

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

PRESENTEE POUR OBTENIR
LE TITRE DE DOCTEUR EN SCIENCES
PAR

GLEMOT Loïc

CHAMPS CRITIQUES
DES FERMIONS LOURDS
 UBe_{13} ET URu_2Si_2

Date de soutenance: 30 janvier 1998

Composition du Jury:

M.Héritier (*Président*)
D.Jaccard (*Rapporteur*)
A.I.Buzdin (*Rapporteur*)
M.Ribault
J.P.Brisson
J.Flouquet

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

.....

Remerciements

Je remercie P.Monceau de m'avoir accueilli au sein du CRTBT.

Je remercie J.Flouquet pour avoir accepté d'encadrer cette thèse. Je remercie aussi J.P.Brisson pour avoir accepté de codiriger ce travail de thèse. Qu'il trouve ici l'expression de ma plus profonde reconnaissance et de mon amitié. Sa très grande clarté d'esprit et ses dons pédagogiques (dignes d'une habilitation implicite) m'ont été d'un très grand secours pour comprendre les subtilités des champs critiques et plus généralement de la physique des fermions lourds.

Merci à Sacha Buzdin et à Didier Jaccard pour leur aide et pour avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse. Merci à M.Héritier et à M.Ribault pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Merci aux techniciens et ingénieurs du laboratoire. En premier lieu je remercie P.Lejay pour la patience et le temps qu'il a consacré à URu_2Si_2 . Des remerciements particuliers à Anne toujours efficace de la fabrication aux nombreuses modifications de la cellule de dilatation, à H.Jurek, j'ai pu profiter de ses inestimables compétences techniques dans les moments les plus difficiles (notamment la délicate opération de "désimplosion" d'un cryostat !), à M.Caussignac concepteur et spécialiste des dilutions que j'ai utilisées pendant ma thèse toujours disponible pour donner de judicieux conseils techniques, merci aussi à H.Rodenas. Merci aux membres du service électronique et en particulier à J.L.Bret et J.P.Faure pour leur très haute compétence technique et leur grande disponibilité dans les moments tragiques où l'électronique tombe en panne... Dans des domaines très différents merci aussi à Danielle, à Pierrette Amyot, à B.Waksman pour toutes les occasions où j'ai pu bénéficier de leur aide.

Merci à Ilya pour sa collaboration précieuse dans la mise sous pression d' UBe_{13} .

Merci à I. Fomin, j'ai eu le privilège de bénéficier à plusieurs reprises de ses éclaircissements.

Je remercie l'ensemble des chercheurs du CRTBT et plus particulièrement Mr le directeur J.J.Préjean et L.Puech qui m'ont aidé dans la conception de la cellule de dilatation, ainsi que K.Hasselbach, E.Wolf, et G.Vermeulen qui ont rendu particulièrement plaisant (en plus de la qualité scientifique et technique) ce séjour de quelques années dans le "Hall" du CRTBT.

Je remercie aussi D'Herman from Bilbao pour la sympathie qu'il m'a témoigné et pour la recette des tapas et du gaspacho qu'il doit me donner incessamment sous peu. Merci à mes "collègues de Chambéry" Stéphane et Pierre (qui a presque eu la chance d'être encadré par Frank T.). Merci à tous les thésards du CRTBT : Olivier, Olivier, Olivier (dans le désordre mais ils se reconnaîtront), Geraldo, Fernando, Adel, Franck et tous ceux que je ne cite pas mais auxquels je pense. Pour ceux qui y étaient, une pensée émue pour St Nizier, son hôtellerie et ses jeux de carte. A tous je souhaite bonne chance et bon courage, on en a besoin !

Enfin un petit mot pour Agnès : bon courage, pense aux paroles zen (ça ne polarise pas l'Hélium mais ça aide à faire de la physique expérimentale) et pense à l'avenir.

1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20 21 22 23 24 25 26 27 28 29 30 31 32 33 34 35 36 37 38 39 40 41 42 43 44 45 46 47 48 49 50 51 52 53 54 55 56 57 58 59 60 61 62 63 64 65 66 67 68 69 70 71 72 73 74 75 76 77 78 79 80 81 82 83 84 85 86 87 88 89 90 91 92 93 94 95 96 97 98 99 100

Table des Matières

	<i>pages</i>
INTRODUCTION	2
1. Phase normale des fermions lourds	4
2. Généralités sur la phase supraconductrice des fermions lourds	5
3. Plan de la thèse	5
CHAPITRE I : Supraconductivité et champ critique des fermions lourds	
I.1. Deux aspects de la supraconductivité des fermions lourds	10
I.1.a) Supraconductivité non conventionnelle	10
• Symétries et supraconductivité	10
• Champ critique et symétrie du paramètre d'ordre	13
I.1.b) Supraconducteur en limite de Pauli	14
• Limite orbitale, limite de Pauli	14
• Comparaison des deux limites, cas des fermions lourds	17
• Phase FFLO	18
I.2. Exemple des composés UBe_{13} et URu_2Si_2	20
I.2.a) UBe_{13}	20
• Phase normale	20
• Phase supraconductrice	20
I.2.b) URu_2Si_2	22
• Phase normale	22
• Phase supraconductrice	23
I.3. Supraconductivité de surface	25
I.3.a) Cas d'un supraconducteur conventionnel	25
• Détermination de H_{c2}	25
• Détermination de H_{c3}	27
I.3.b) Cas d'un supraconducteur non conventionnel	29
CHAPITRE II : Description des deux dispositifs expérimentaux	
II.1. Parties communes aux deux montages	34
II.1.a) Automatisation	34
II.1.b) Mesure de résistivité	35
II.1.c) Thermométrie, régulation en température	35
II.2. Manip 3-axes	36
II.2.a) Cryogénie	36
II.2.b) Champ magnétique: système des trois bobines	36
II.2.c) Mesure de dilatation thermique	39
• Principe de la mesure de dilatation thermique	39
• Description et mode d'emploi du dilatomètre	40
(i) <i>Vue générale et mode d'emploi</i>	40
(ii) <i>Câblage, thermalisation</i>	41
(iii) <i>Caractéristiques de la lame de ressort</i>	42
• Effets de cellule et résolution	44
(i) <i>Effet de cellule en température</i>	44
(ii) <i>Résolution</i>	44
(iii) <i>Effet de cellule en champ</i>	45
• Mesure avec modulation de température	45
(i) <i>Principe, montage expérimental</i>	45
(ii) <i>Résolution</i>	47
II.3. Manip 12 teslas	49
II.3.a) Cryogénie	49

	• Schéma du réfrigérateur à dilution	49
	• Performances	50
II.3.b)	Champ magnétique: la bobine 12 T	51
II.3.c)	Mécanisme de rotation de l'échantillon	52
II.3.d)	Cellule de pression	54

CHAPITRE III : Recherche d'un indice expérimental sur la symétrie du paramètre d'ordre de URu₂Si₂

III.1.	Procédure de mesure	58
III.1.a)	Méthode de détermination de l'anisotropie du champ critique	58
	• Méthode de mesure en résistivité et en dilatation thermique	58
	• Résolution en champ critique pour une mesure de résistivité	59
	• Résolution en champ critique pour une mesure de dilatation thermique	60
III.1.b)	Technique de recherche des axes cristallins de l'échantillon	60
	• Cas d'une mesure de résistivité	60
	• Cas d'une mesure de dilatation thermique	61
III.1.c)	Mesure dans le plan tétragonal de l'échantillon	62
	• Cas d'une mesure de résistivité	62
	• Cas d'une mesure de dilatation thermique	62
III.2.	Les différents effets d'anisotropie possibles	62
III.2.a)	Effets liés à la géométrie de mesure	62
	• Cas d'une mesure de résistivité	62
	(i) Susceptibilité magnétique, champ démagnétisant ..	62
	(ii) Magnétorésistance, effet Hall	63
	(iii) Supraconductivité de surface	63
	• Cas d'une mesure de dilatation thermique	64
	(i) Champ démagnétisant	64
	(ii) Magnétostriction	64
III.2.b)	Effets intrinsèques	65
	• Symétrie du paramètre d'ordre	65
	• Anisotropie de la surface de Fermi	66
III.2.c)	Critères pour différencier les différents effets	66
III.3.	Qualité des échantillons mesurés	67
	• Elaboration des échantillons, critères de qualité	67
	• Echantillon n° 1, test d'homogénéité par mesure de résistivité ..	70
	• Echantillon n° 5, test d'homogénéité par mesure de dilatation thermique	71
	• Conclusion	72
III.4.	Résultats expérimentaux	73
III.4.a)	Pente initiale du champ critique	73
	• Mesure résistive	73
	• Mesure de dilatation thermique	76
III.4.b)	Mesure d'échantillons en forme de parallélépipède ...	77
	• Echantillon n° 2 et 3, supraconductivité de surface ...	77
	(i) Résultats	77
	(ii) Interprétation en terme de supraconductivité de surface	78
	(iii) État de surface des échantillons	82
	(iv) Effet à 45° des axes cristallins	83
	(v) Comment éliminer les effets de surface ?	84
III.4.c)	Mesure d'un échantillon en forme de disque	85

III.4.d)	Supraconductivité de surface pour les différents axes cristallins	86
	• Les trois géométries simples à tester	86
	• Test de la supraconductivité de surface pour les géométries (a) et (b)	87
	• Test de la supraconductivité de surface selon l'axe a, pour une surface perpendiculaire à l'axe c	88
III.5.	Conclusion	89

CHAPITRE IV : Recherche de la phase FFLO dans le composé UBe_{13} , couplage fort

IV.1.	Supraconductivité en couplage fort, effets sur le champ critique	94
IV.1.a)	Couplage faible, couplage fort	94
	• Couplage faible	94
	• Couplage fort	95
	• Effet du couplage fort sur le phase normale	96
IV.1.b)	Effets du couplage fort sur le champ critique	97
	• Limite orbitale	97
	• Limite de Pauli	98
IV.2.	Mesure d'un monocristal d' UBe_{13} à pression nulle	100
IV.2.a)	Qualité du monocristal	100
IV.2.b)	Diagramme de phase sous champ	101
IV.2.c)	Interprétation, précisions sur le modèle utilisé	102
	• Modèle microscopique	102
	• Calcul du champ critique	103
	• Résultat	104
IV.3.	Mesures d'un polycristal de UBe_{13} sous pression	107
IV.3.a)	Comparaison du polycristal au monocristal mesuré à pression nulle	107
IV.3.b)	Résultats expérimentaux	108
	• Mesure de la pression	108
	• Résultats	109
IV.4.	Discussion des résultats	111

CONCLUSION GENERALE

118

ANNEXES

Annexe I :	Notation utilisée en théorie des groupes (groupes ponctuels)	122
Annexe II :	Symétrie et supraconductivité	124
Annexe III :	Correction de la fréquence de modulation de la température	126

REFERENCES

130

INTRODUCTION

Historiquement, les composés à fermions lourds sont apparus avec l'étude du magnétisme des systèmes dits à "fluctuations de valence". Dans de tels systèmes, les sites atomiques de moment orbital élevé (4f, 5f,...) ont un nombre d'occupation qui peut être non entier. Cette propriété peut se comprendre par une hybridation des états localisés f avec les états délocalisés des électrons de conduction. Les systèmes à fluctuations de valence ont la particularité d'avoir des propriétés magnétiques entre magnétisme itinérant et magnétisme localisé. Les composés à fermions lourds sont des alliages intermétalliques à base de terres rares (Ce, Yb,...) ou d'actinides (U, Np, ...), les plus couramment étudiés étant les composés à base de Cerium ou d'Uranium. Dans ces systèmes, ce sont les électrons de la couche atomique partiellement remplie 4f (pour les terres rares) ou 5f (pour les actinides) qui gouvernent l'essentiel des propriétés physiques.

1) Phase normale des fermions lourds

A haute température, les composés à fermions lourds sont des métaux qui possèdent des bandes de conduction p ou d avec parfois une bande de conduction f . Leurs propriétés magnétiques sont celles d'un composé paramagnétique (la susceptibilité suit une loi de Curie Weiss). Dans certains composés, un ordre magnétique apparaît à basse température et les systèmes qui restent désordonnés sont toujours proches d'une instabilité magnétique. En fait, c'est l'une des caractéristiques fondamentales des fermions lourds que d'être proche d'une instabilité magnétique: une faible variation des distances interatomiques (en appliquant par exemple une pression) fait facilement transiter d'un état fondamental magnétique à un état fondamental paramagnétique et inversement. Mais, c'est en dessous d'une température caractéristique T^* (de 10K à 50K), que leurs propriétés deviennent tout à fait particulières. En dessous de cette température, la distinction entre les électrons de conduction p ou d et les électrons plus ou moins localisés f disparaît. On a une hybridation entre ces différents états électroniques et une bande de conduction de largeur $E_F = k_B T^*$ très étroite apparaît. Cette hybridation s'accompagne d'une très forte renormalisation des masses effectives des électrons : aux électrons de conduction, on associe des quasi-particules lourdes avec des masses de 100 à 1000 fois la masse d'un électron libre. Dans un autre langage, la densité d'état au niveau de Fermi $n(E_F)$ des quasi-particules est très grande. On peut mesurer $n(E_F)$ dans la contribution électronique à la chaleur spécifique $C = \gamma T$ avec $\gamma = k_B^2 n(E_F)$ supérieur à 50mJ/mole.K alors que $\gamma < 1$ mJ/mole.K dans les métaux ordinaires. Mise à part cette masse effective très élevée et à cause du couplage spin orbite que subissent les électrons f , le spin des quasi-particules n'est pas un bon nombre quantique. On peut quand même leur associer un pseudo-spin⁽¹⁾. Enfin, à cause du caractère localisé des orbitales f , l'énergie coulombienne entre deux électrons sur un même site f est grande, ce qui se traduit par de fortes interactions coulombiennes entre quasi-particules. Par exemple, à basse température, la résistivité suit généralement une loi $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$, et ces interactions se traduisent par un coefficient A anormalement élevé : le terme en AT^2 provient en effet des collisions électron-électron (ρ_0 est la résistivité résiduelle

(1) Cette propriété sera illustrée lorsqu'on présentera la classifications des différents états supraconducteurs possibles (chapitre I §1).

due aux collisions électron-impureté). Les fermions lourds font partie de la "famille" des composés à électrons fortement corrélés.

A l'heure actuelle, on ne sait pas expliquer microscopiquement le mécanisme de renormalisation qui aboutit à des masses effectives aussi élevées. Jusqu'à aujourd'hui, deux approches théoriques se sont développées pour tenter de décrire les fermions lourds en dessous de T^* . Ces deux approches correspondent schématiquement à deux classes de fermions lourds :

— les composés à "fluctuations de spin" dans lesquels une bande de conduction f est formée à haute température (approche théorique [Moriya95],[Millis93]) : des exemples de ce type de composés sont UPt_3 et URu_2Si_2 .

— les composés type "réseau kondo" dans lesquels à haute température les électrons f sont localisés, l'exemple d'un tel système étant donné par UBe_{13} (approche théorique [Doniach77],[Lacroix79] et dans l'article de revue [Fulde88]).

D'un point de vue phénoménologique, les fermions lourds sont bien décrits par une théorie de liquide de Fermi.

2) Généralités sur la phase supraconductrice des fermions lourds.

La supraconductivité dans les systèmes à fermions lourds a été découverte en 1979 dans le composé $CeCu_2Si_2$ [Steglich79]. Du fait de l'existence de fortes interactions magnétiques dans les fermions lourds, cette découverte a d'abord été une surprise. Par la suite, d'autres supraconducteurs à fermions lourds ont été découverts avec des T_c d'environ 1 Kelvin (UBe_{13} [Ott83], UPt_3 [Stewart84], URu_2Si_2 [Schlabitz84], ...). Dans ces supraconducteurs, ce sont les quasi-particules lourdes qui forment les paires de Cooper comme l'indique la valeur du saut en chaleur spécifique à la transition ou bien la pente initiale du champ critique. Il est très vite apparu que la supraconductivité de ces systèmes présentait des aspects originaux. Le seul fait que ce sont ces quasi-particules lourdes qui se condensent dans l'état supraconducteur implique un diagramme de phase sous champ très particulier : le champ critique peut être limité par l'effet paramagnétique à basse température. Un autre aspect original est la possibilité d'une supraconductivité non conventionnelle, c'est-à-dire un appariement des électrons des paires de Cooper dans un état autre que l'état "s" des supraconducteurs conventionnels. La question de fond concernant la supraconductivité des fermions lourds est l'origine du couplage attractif entre électrons. En effet dans ces systèmes les électrons pourraient très bien s'attirer par échange d'excitations magnétiques (comme c'est le cas dans 3He superfluide [Leggett75]) et pas par échange de phonons comme c'est le cas dans les supraconducteurs ordinaires.

3) Plan de la thèse.

L'objet de cette thèse est l'étude de la phase supraconductrice des deux fermions lourds UBe_{13} et URu_2Si_2 à travers des mesures de champ critique. Plus précisément on s'est intéressé à l'aspect "non-conventionnel" de la supraconductivité de URu_2Si_2 par des mesures d'anisotropie de son champ critique et par des mesures de supraconductivité de surface. Dans le cas du composé UBe_{13} , on s'est intéressé à la limitation paramagnétique de son champ critique mais aussi aux aspects "couplage fort" de ce supraconducteur. Des mesures sous pression ont été nécessaires pour

mener à bien le travail réalisé sur ce composé et ont offert une ouverture inattendue sur la question du mécanisme responsable de la supraconductivité d'UBe₁₃.

Dans le **chapitre I**, nous introduisons de manière très générale la supraconductivité non-conventionnelle ainsi que les caractéristiques du champ critique des supraconducteurs et plus particulièrement des supraconducteurs à fermions lourds. Nous illustrerons ces généralités sur les deux composés URu₂Si₂ et UBe₁₃ avec le souci d'expliquer les motivations du travail réalisé pendant cette thèse.

Une grande partie de ce travail à consisté à mettre au point plusieurs dispositifs expérimentaux nécessaires à nos mesures de champ critique. C'est ce que nous détaillons dans le **chapitre II**.

Dans le **chapitre III** sont présentés nos résultats sur URu₂Si₂ et dans le **chapitre IV** les résultats sur UBe₁₃.

Dans la conclusion générale, nous présentons le bilan de ce travail et les perspectives particulières qu'ouvrent les résultats obtenus sur le composé UBe₁₃.

**CHAPITRE I: SUPRACONDUCTIVITE
ET CHAMP CRITIQUE DES
FERMIONS LOURDS**

I.1) Deux aspects de la supraconductivité des fermions lourds

I.1)a) Supraconductivité non conventionnelle

Symétries et supraconductivité

La théorie de Landau décrit les transitions de phase d'un système en étudiant dans un premier temps les propriétés de symétrie de ce système [Boccaro77]. Pour une transition de phase donnée, on peut définir un paramètre d'ordre si le groupe de symétrie de la phase ordonnée est inclus dans le groupe de symétrie de la phase désordonnée. Dans de telles transitions, on dit qu'il y a une brisure de symétrie, c'est le cas de la transition supraconductrice. D'un point de vue microscopique, le groupe de symétrie de la phase désordonnée est le groupe de symétrie G_H de l'hamiltonien du système. La brisure de symétrie se traduit par l'existence d'un état fondamental de symétrie plus basse que celle de G_H ⁽¹⁾. Pour la transition supraconductrice, l'hamiltonien du système des électrons en interaction s'écrit sous la forme :

$$H = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \xi_{\mathbf{k}, \sigma} a_{\mathbf{k}, \sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}, \sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \sigma_4} V_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \sigma_4}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') a_{\mathbf{k}, \sigma_1}^\dagger a_{\mathbf{k}', \sigma_2}^\dagger a_{\mathbf{k}', \sigma_3} a_{\mathbf{k}, \sigma_4} \quad I.(1)$$

où $\xi_{\mathbf{k}, \sigma}$ est l'énergie cinétique⁽²⁾ des électrons repérée par rapport au niveau de Fermi, et où le potentiel d'interaction V à deux corps est un potentiel effectif prenant en compte, dans la gamme d'énergie qui entre en jeu, l'interaction coulombienne et celle due aux phonons virtuels. Dans l'étude de la supraconductivité des fermions lourds l'opérateur a^+ (respectivement a) crée (respectivement détruit) une quasi-particule lourde qui possède par conséquent tous les caractères rappelés succinctement dans l'introduction (très grande masse effective, pseudo-spin, forte interaction coulombienne avec les autres quasi-particules). Le potentiel V doit prendre en compte les différents types d'excitations possibles (phonons, paramagnons, ...) pouvant conduire à une attraction effective entre électrons. Ces excitations sont toujours liées au réseau cristallin, et, par conséquent, le potentiel $V_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \sigma_4}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ résultant, et donc H , possède la symétrie du réseau cristallin. Dans le tableau [I-1] sont précisées les différentes symétries de l'hamiltonien H .

Type de symétrie	Générateur infinitésimal	Opérateur de symétrie	Notation du groupe
Rotation d'un angle θ autour d'un axe u	Opérateur de moment angulaire total J	$e^{-i \frac{J \cdot u}{\hbar} \theta}$	Groupe ponctuel cristallographique G
Rotation d'une même phase α de chaque état individuel électronique	Opérateur nombre de particules ⁽³⁾ $N = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} a_{\mathbf{k}, \sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}, \sigma}$	$e^{-iN\alpha}$	Groupe de transformation de Jauge de 1 ^{ère} espèce $U(1)$
Renversement du temps		Opération de conjugaison $\psi \rightarrow \psi^*$	R

Tableau [I-1]: Les différentes symétries de l'hamiltonien H . Ne sont pas mentionnées : les symétries planes du groupe G et l'opération de parité ($r \rightarrow -r$).

(1) Ce point est illustré en annexe II pour l'état [BCS] et dans le cas de la brisure de symétrie de jauge.

(2) La relation de dispersion $\xi(\mathbf{k}, \sigma)$ est celle de la bande de conduction des quasi-particules qui se condensent en paires de Cooper.

(3) Pour plus de détails, voir §3.1.6 de l'ouvrage [Martin/Rothen90].

Dans l'étude de la supraconductivité des fermions lourds, le groupe de symétrie de l'hamiltonien H est le produit tensoriel (cf annexe II) :

$$G_H = R \otimes G \otimes U(1) \quad I.(2)$$

D'après la théorie de Landau, les différents paramètres d'ordres a priori possibles doivent être recherchés parmi les invariants, sous les opérations de symétrie, des différents sous-groupes de G_H . Cela revient en fait à déterminer les représentations irréductibles (R.I.) du groupe G_H (cf annexe I).

Pour le traitement en champ moyen de l'hamiltonien H, on introduit le potentiel de paire $\Delta_{\sigma_1, \sigma_2}$ défini par :

$$\Delta_{\sigma_1, \sigma_2}(\mathbf{k}) = \sum_{\mathbf{k}', \sigma'_1, \sigma'_2} V_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma'_1, \sigma'_2}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \langle a_{\mathbf{k}, \sigma_1}^\dagger a_{\mathbf{k}', \sigma_2}^\dagger a_{\mathbf{k}', \sigma'_2} a_{\mathbf{k}, \sigma'_1} \rangle \quad I.(3)$$

Les crochets $\langle A \rangle$ définissent la moyenne statistique thermique $\text{tr}[\exp(-\beta H)A] / \text{tr}[\exp(-\beta H)]$. La moyenne thermique $\langle a_{\mathbf{k}, \alpha}^\dagger a_{-\mathbf{k}, \beta} \rangle$ devient non nulle dans l'état supraconducteur, ce qui traduit l'apparition de corrélations entre les deux états individuels $\{\mathbf{k}, \alpha\}$ et $\{-\mathbf{k}, \beta\}$. Dans le cadre de la théorie BCS, ce potentiel de paire est simplement proportionnel au paramètre d'ordre supraconducteur. Dans la définition I.(3), on voit bien que la symétrie du réseau intervient par le potentiel effectif $V_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma'_1, \sigma'_2}(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$. Leggett, dans un article de revue [Leggett75], présente l'étude de la superfluidité de l' ^3He , système de symétrie sphérique. Dans cette présentation, le potentiel d'attraction effectif entre les atomes d' ^3He est développé sur la base des harmoniques sphériques (qui engendrent la R.I. du groupe SO_3 de toutes les rotations de l'espace). Dans le cas d'une symétrie cristalline, la bonne base pour un tel développement, est une base $\{\phi^{\Gamma_i}\}$ qui engendre les représentations irréductibles (R.I.) du groupe ponctuel cristallographique. Le paramètre d'ordre se développe sous la forme :

$$\Delta(\mathbf{R}, \mathbf{k}) = \sum_i \left(\sum_{m=1}^{\dim \Gamma_i} \eta_m^{\Gamma_i}(\mathbf{R}) \Phi_m^{\Gamma_i}(\mathbf{k}) \right) \quad I.(4)$$

où $\dim(\Gamma_i)$ est la dimension de la R.I. Γ_i et \mathbf{R} la position repérée dans le volume du supraconducteur⁽⁴⁾. La fonction $\Phi_m(\mathbf{k})$, \mathbf{k} étant la direction des quantités de mouvement des électrons de la paire de Cooper, décrit la dépendance angulaire de Δ . Dans la phase normale, tous les coefficients $\eta_m^{\Gamma_i}$ sont nuls. Lorsque le système devient supraconducteur, les coefficients $\eta_m^{\Gamma_i}$ d'une R.I. particulière Γ deviennent non nuls⁽⁵⁾ [Bocarra77]. Dans le cas des supraconducteurs conventionnels, la symétrie brisée est une symétrie du groupe de jauge $U(1)$, autrement dit, la R.I. Γ est la représentation identique notée A_{1g} (cf annexe I). Dans le cas des supraconducteurs non conventionnels, en plus de cette symétrie de jauge, le paramètre d'ordre brise une symétrie du groupe ponctuel cristallographique (voir figure [I-2]), dans ce cas, Γ est une représentation autre que la représentation identique.

(4) Cette position correspond microscopiquement à la position du centre de masse des paires de Cooper.

(5) Il peut exister des dégénérescences accidentelles c'est-à-dire des cas où des coefficients η_i deviennent non nuls à la même température pour des R.I. distinctes.

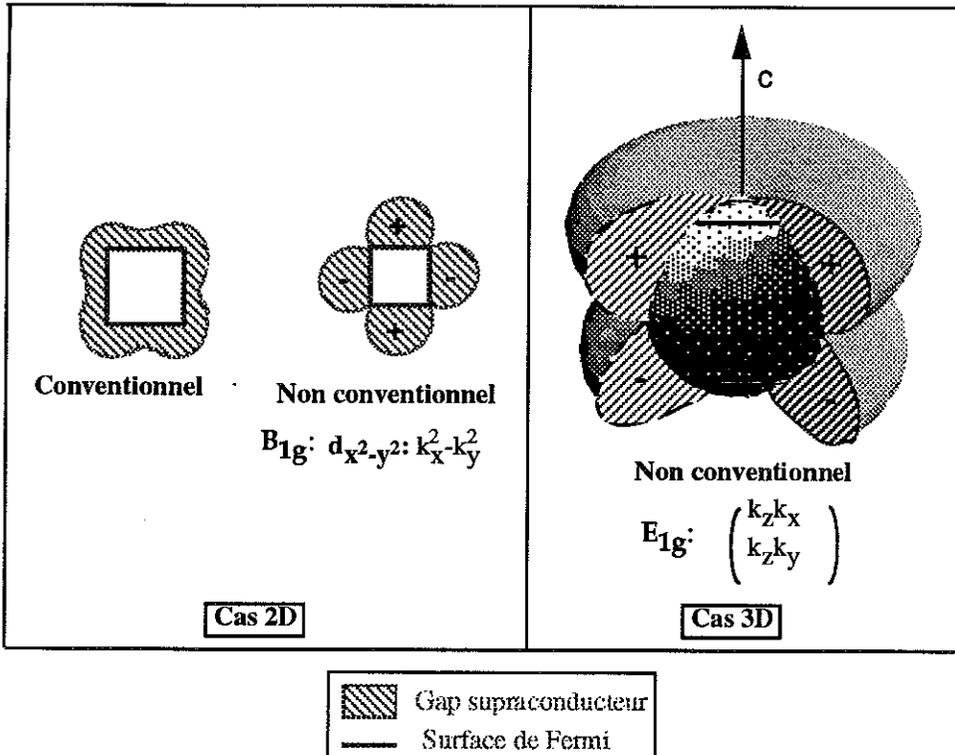


Figure [I-2]: Exemples de symétries du gap supraconducteur comparées à la symétrie de la surface de Fermi dans le cas bidimensionnel et tridimensionnel.

Dans l'étude de la supraconductivité des fermions lourds, le système est tridimensionnel. Dans ces composés, les rapports d'anisotropie entre masses effectives suivant les différents axes sont inférieurs à 5, ce qui implique que les rapports d'anisotropie entre longueurs de cohérence sont inférieurs à $\sqrt{5}$ (car d'après I.(14) et avec $\hbar k_F = \sqrt{m^* E_F}$, on a $\xi \propto 1/\sqrt{m^*}$). On se trouve dans une situation plus complexe que pour les oxydes supraconducteurs à hauts T_c (bidimensionnels), dans le sens où le nombre de paramètres d'ordre a priori possibles est plus grand. De plus, pour un système 3D, il est possible d'avoir des paramètres d'ordre à deux composantes ou même, dans le cas de la symétrie cubique, à trois composantes. L'exemple d'un paramètre d'ordre E_{1g} (voir annexe I pour la notation) à deux composantes est donné en figure [I-2]. Cet exemple est valable aussi bien pour une symétrie cristalline hexagonale que pour une symétrie tétragonale. Sur la base de E_{1g} donnée ici en exemple, le paramètre d'ordre se développe en $\Delta(\mathbf{k}) = \eta_1 k_z k_x + \eta_2 k_z k_y$ où η_1 et η_2 sont, dans le cas général, deux nombres complexes. Si, pour une direction donnée de \mathbf{k} , le paramètre d'ordre s'annule, alors le gap supraconducteur égal à $\sqrt{\frac{1}{2} \text{tr}(\Delta(\mathbf{k}) \Delta^*(\mathbf{k}))}$ s'annule aussi. C'est ce qu'on a représenté en figure [I-2] où $(\eta_1, \eta_2) = (1, i)$ pour indiquer, dans le cas de la R.I. E_{1g} , les zéros du gap (ligne pour $k_z = 0$ et noeuds pour $k_x = k_y = 0$) demeurant quels que soient les coefficients (η_1, η_2) choisis : ce sont les zéros vraiment liés à la symétrie du paramètre d'ordre. Les signes + et - correspondent, dans ce cas, à un déphasage de π de la phase du paramètre d'ordre entre les deux hémisphères $k_z > 0$ et $k_z < 0$. A cause de cette différence de

phase, on voit très clairement que le paramètre d'ordre dessiné en figure [I-2] brise la symétrie par rapport au plan $(\mathbf{k}_x, \mathbf{k}_y)$. En fait, pour une R.I. de dimension supérieure ou égale à 2, il faut utiliser plus d'une base pour développer le paramètre d'ordre le plus général possible⁽⁶⁾. Une discussion détaillée de ce point, et une tabulation complète de toutes les bases à considérer pour plusieurs symétries cristallines est donnée en référence [Yip, Garg93].

Jusqu'à maintenant, on a laissé de côté la question du spin des paires de Cooper. Comme on l'a mentionné dans l'introduction, dans les fermions lourds, le spin des quasi-particules associées aux électrons de conduction n'est pas un bon nombre quantique. Par conséquent, on ne peut pas, à proprement parler, séparer les différents états supraconducteurs en état singulet ou triplet. En fait, on peut quand même séparer les états possibles en deux classes distinctes, en s'intéressant à la parité de $\Delta(\mathbf{k})$, opération qui change \mathbf{k} en $-\mathbf{k}$ et qui existe toujours dans les systèmes à fermions lourds (leur groupe ponctuel G comprend la symétrie d'inversion). Cette opération revient à échanger deux électrons puisque $\Delta(\mathbf{k})$ correspond à la fonction d'onde relative des paires de Cooper (qui doit globalement, partie de spin incluse, être antisymétrique par cette opération d'échange). On obtient deux classes d'états. Les états pairs (scalaires et analogues aux états singulets) :

$$\Delta(\mathbf{k}) = i\sigma_y \Psi(\mathbf{k}) \quad (\text{avec } \Psi(\mathbf{k}) = \Psi(-\mathbf{k})) \quad \text{I.(5)}$$

Et les états impairs (vectoriels et analogues aux états triplets) :

$$\Delta(\mathbf{k}) = i(\mathbf{d}(\mathbf{k}) \cdot \sigma) \sigma_y \quad (\text{avec } \mathbf{d}(\mathbf{k}) = -\mathbf{d}(-\mathbf{k})) \quad \text{I.(6)}$$

où l'on a fait usage, dans ces deux expressions, de la notation de Balian et Werthamer [Ueda/Sigris91]. Pour un état impair, le scalaire $\Phi_m(\mathbf{k})$ de la formule I.(4) est remplacé par un vecteur $\mathbf{d}_m(\mathbf{k})$. En ce qui concerne les fermions lourds, lorsqu'on parle d'état triplet ou singulet, on fait allusion à des états de pseudo-spin [Ueda/Sigris91] qui ont cependant des propriétés très similaires aux états triplets et singulets de spin. Par exemple, un état impair (ou triplet) n'est pas affecté par l'effet paramagnétique de la même manière qu'un état pair (ou singulet) (cf ci-dessous).

Champ critique et symétrie du paramètre d'ordre

Comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, une brisure de symétrie cristalline par le paramètre d'ordre supraconducteur, entraîne que le gap supraconducteur s'annule en certains points ou sur certaines lignes de la surface de Fermi. Une indication expérimentale de la présence de ces lignes ou points de zéro est la dépendance en température de certaines grandeurs physiques selon des lois de puissances, et non pas en loi exponentielle comme c'est le cas pour un gap sans zéros. Ces grandeurs sont la chaleur spécifique, l'atténuation ultrasonore, le temps de relaxation RMN $1/T_1$, la conductivité thermique, ... La détermination des exposants de ces lois de température permet, dans certains cas, de faire un premier tri parmi les différents paramètres d'ordre possibles [Gor'kov 87].

(6) De manière générale, les fonctions $\Phi_m^{\Gamma_i}(\mathbf{k})$ (formule I.(4)) s'écrivent $F_1(\mathbf{k})\Phi_{1,m}^{\Gamma_i}(\mathbf{k}) + F_2(\mathbf{k})\Phi_{2,m}^{\Gamma_i}(\mathbf{k}) + \dots$ où $F_1(\mathbf{k}), F_2(\mathbf{k}), \dots$ sont des fonctions quelconques ayant toute la symétrie de la surface de Fermi.

Un autre moyen d'avoir des renseignements sur la symétrie du paramètre d'ordre a été suggéré en 1985 dans un article théorique de Burlachkov [Burlachkov85]. Dans cet article, il est montré à partir de la théorie de Ginzburg-Landau que pour certaines symétries cristallines, l'étude de l'anisotropie de la pente initiale du deuxième champ critique peut donner des renseignements sur la dimension du paramètre d'ordre supraconducteur. Plus précisément, trois symétries cristallines sont étudiées. Le système hexagonal pour lequel aucun effet sur la pente du H_{c2} n'est prédit, quelque soit le paramètre d'ordre. Les systèmes cubique et tétragonal, où une anisotropie de la pente initiale de H_{c2} indiquerait que le paramètre d'ordre est bidimensionnel.

C'est cette prédiction théorique élégante qui a motivé, sur le système URu_2Si_2 (de symétrie cristalline tétragonale) une partie du travail réalisé pendant cette thèse. Des mesures du H_{c2} par atténuation ultrasonore ont été réalisées en 1988 sur URu_2Si_2 afin de tenter de déceler cet éventuel effet [Moshchalkov88]. Ces mesures ne montrent aucun effet avec une résolution de $\pm 5\%$ en champ critique. Avec le dispositif expérimental dont nous disposons (chap.II §2.b), on peut espérer améliorer très notablement cette résolution. Au chapitre III, nous reviendrons plus en détail sur la prédiction de Burlachkov.

I.1)b) Supraconducteur en limite de Pauli

Comme on l'a précisé dans l'introduction, les questions abordées dans cette thèse sont essentiellement basées sur des mesures de champ critique. Pour un supraconducteur de volume V , le champ critique thermodynamique H_c est défini par :

$$F_n - F_s = \frac{H_c^2}{2\mu_0} \quad I.(7)$$

où F_n est l'énergie libre de tout le volume dans l'état normal et F_s est l'énergie libre de tout le volume dans l'état supraconducteur : cette définition correspond à un bilan volumique en énergie. En fait, pour déterminer la vraie valeur du champ au dessus duquel tout le volume du supraconducteur devient normal, il faut tenir compte de l'énergie de surface entre la phase supraconductrice et la phase normale et aussi, dans le cas des fermions lourds, de l'énergie Zeeman des électrons. Dans cette partie, on expose très brièvement les caractères généraux du champ critique des supraconducteurs en tenant compte de ces deux effets et en mettant l'accent sur les particularités des fermions lourds. Nous reviendrons sur le champ critique au paragraphe I.3 où l'effet d'une surface limitant le volume V sera examiné.

Limite orbitale, limite de Pauli

Dans le cas des supraconducteurs de type II où λ , la longueur de pénétration de London (voir [DeGennes66] pour définition) est supérieure à la longueur de cohérence ξ (c'est le cas des supraconducteurs à fermions lourds), il existe une phase intermédiaire entre la phase normale et la phase supraconductrice avec effet Meissner. Dans cette phase intermédiaire, un champ magnétique appliqué pénètre partiellement dans le volume du supraconducteur sous forme d'un réseau de vortex, c'est la phase de Shubnikov (voir figure [I.3]) encore appelée "état mixte". Cette phase apparaît pour des raisons de minimisation d'énergie de surface ([Saint-

James/Sarma69] §2.4). Un vortex est schématiquement formé d'un coeur normal de forme cylindrique (parallèle au champ magnétique) de diamètre $\xi(T)$, autour duquel circulent des courants d'écrantage. Le champ H pénétrant dans ces régions est écarté sur une distance λ par ces supercourants circulaires.

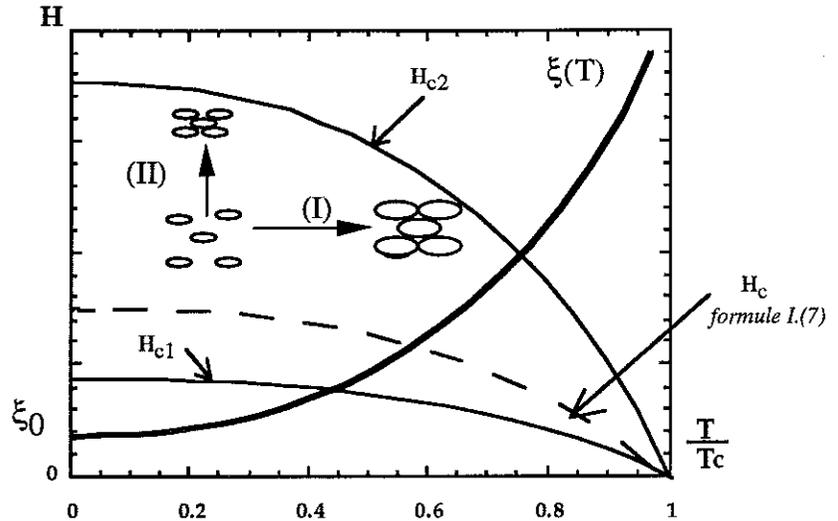


Figure [I-3]: Diagramme de phase sous champ pour un supraconducteur de type II. Lorsqu'on augmente la température, (chemin (I)) la taille des vortex $\xi(T)$ augmente jusqu'à ce qu'ils soient en contact les uns avec les autres (on atteint alors la température de la transition supra->métal normal). Si l'on augmente le champ appliqué (chemin (II)), c'est la maille du réseau de vortex qui diminue jusqu'à ce que les vortex soient en contact. Lorsqu'on atteint la ligne de transition H_{c1} pour entrer dans l'état avec effet Meissner, les vortex sont expulsés d'un coup. Le champ critique thermodynamique H_c (ligne en tirets) se situe entre les champs H_{c1} et H_{c2} .

La limite orbitale du champ critique est atteinte lorsque les coeurs de vortex occupent tout le volume du supraconducteur. Sur la figure [I.3], est représentée comment la ligne de transition $H_{c2}(T)$ est atteinte à champ constant (chemin (I)) ou bien à température constante (chemin (II)). Le nombre de vortex est donné par $N=S/2\pi\xi^2(T)$, S étant la section du supraconducteur perpendiculaire au champ magnétique H appliqué. Chaque vortex portant un quantum de flux $\Phi_0 = h/2e$, le champ critique $H_{c2}(T)$ en limite orbitale est obtenu lorsque le champ pénètre totalement l'échantillon, soit : $H_{c2}(T)*S = N\Phi_0$ ou encore :

$$H_{c2}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2(T)} \quad \text{I.(8)}$$

La formule I.(8) est vrai aussi bien pour un supraconducteur en limite propre, (c'est-à-dire un supraconducteur pour lequel le libre parcours moyen ℓ des électrons est très supérieur à ξ) que pour un supraconducteur en limite sale (où $\xi > \ell$), il faut simplement utiliser la formule de $\xi(T)$ adaptée à chaque limite [Tinkham75]:

— Dans le cas de la limite propre $\xi(T)$ est donné par la relation :

$$\xi(T) = 0.74 \frac{\xi_0}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}} \quad \text{I.(9)}$$

— Dans le cas de la limite sale $\xi(T)$ est donné par la relation :

$$\xi(T) = 0.855 \frac{\sqrt{\xi_0 \ell}}{\sqrt{\left(1 - \frac{T}{T_c}\right)}} \quad \text{I.(10)}$$

En comparant les formules I.(9) et I.(10) on voit que H_{c2} (formule I.(8)) est renforcé dans la limite sale (où $\ell \ll \xi_0$).

L'autre phénomène qui peut rendre énergétiquement favorable sous champ la transition dans l'état normal est lié à la différence entre la susceptibilité magnétique de Pauli des électrons de conduction dans la phase normale χ_n et la susceptibilité magnétique des électrons dans la phase supraconductrice χ_s [Saint-James/Sarma69]. La différence d'énergie Zeeman entre les deux phases est :

$$\frac{1}{2}(\chi_n - \chi_s)H^2 \quad \text{I.(11)}$$

L'ordre de grandeur du champ critique H_p en limite de Pauli est obtenu en égalant la perte d'énergie Zeeman au gain en énergie de condensation $\Delta F = H_c^2(T)/2\mu_0$ où H_c est le champ critique thermodynamique :

$$H_p = \frac{H_c}{\sqrt{\mu_0(\chi_n - \chi_s)}} \quad \text{I.(12)}$$

A température nulle, en utilisant l'expression BCS de $H_c(0)$, l'expression de $\chi_n = 1/2 (g\mu_B)^2 N(E_F)$ (g est le facteur gyromagnétique des électrons de conduction, μ_B le magnéton de Bohr, $N(E_F)$ la densité d'état au niveau de Fermi) et le fait que pour un état singulet $\chi_s(T=0) = 0$, I.(10) se ramène à (H_p est en Tesla pour T_c en Kelvin) :

$$H_p(0) = \frac{\sqrt{2}\Delta_0}{g\mu_B} \approx 1,85 T_c \quad \text{I.(13)}$$

où l'on a tenu compte du fait que $\Delta_0 \approx 1,76k_B T_c$ (dans le cadre de la théorie BCS), et où l'on a pris $g=2$ (cas des électrons libres).

D'un point de vue microscopique, la limite orbitale traduit l'effet de la force de Lorentz sur les électrons des paires de Cooper. En effet, le couplage est réalisé entre états $\{-k, \sigma\}$ et $\{k, -\sigma\}$, la force de Lorentz est opposée pour chaque électrons ce qui se traduit par un effet de brisure de paire. Ainsi, le fait que l'effet orbitale du champ magnétique se fasse moins sentir en limite sale vient de la réduction des effets de cette force par moyennage sur les directions de k qui varie aléatoirement à chaque collision. La limite de Pauli quant à elle, traduit l'effet du champ magnétique sur les spins des électrons composant les paires de Cooper. Les spins d'une paire de Cooper dans un état singulet sont opposés, si bien qu'un seul des électrons de la paire peut s'aligner dans la bonne direction par rapport au champ magnétique et gagner l'énergie Zeeman $1/2 g\mu_B H$, l'autre électrons perd une énergie $1/2 g\mu_B H$. La formule I.(10) s'interprète alors simplement : l'état supraconducteur devient instable sous champ lorsque la perte en énergie Zeeman de l'état singulet est de l'ordre du gap supraconducteur Δ_0 . Une remarque importante sur la limite de Pauli: si les électrons sont couplés dans un état triplet (spins $(\uparrow \uparrow)$ comme dans la phase A de l'³He superfluide [Leggett75]), alors, l'effet paramagnétique disparaît car les deux spins peuvent s'aligner suivant la direction du champ appliqué. Ceci n'est plus vrai dans le cas où les électrons subissent un couplage spin orbite fort. Dans ce cas, les spins des électrons vont s'aligner dans une direction préférentielle par rapport au réseau cristallin (c'est la direction perpendiculaire à d car $d \cdot S = 0$), et si le champ magnétique est aligné dans cette direction, il n'y aura pas de limitation paramagnétique. Un

champ critique en limite de Pauli est donc très sensible à l'état de spin des paires de Cooper. Par contre, on s'attend à ce que les effets de supraconductivité non conventionnelle soient faibles sur un champ critique en limite orbitale (voir par exemple les calculs effectués par Scharnberg et Rieck pour les différents R.I. De UPd_2Al_3 [Hessert97]).

Comparaison des deux limites, cas des fermions lourds

En figure [I-4], sont représentées les différentes limites du champ critique H_{c2} .

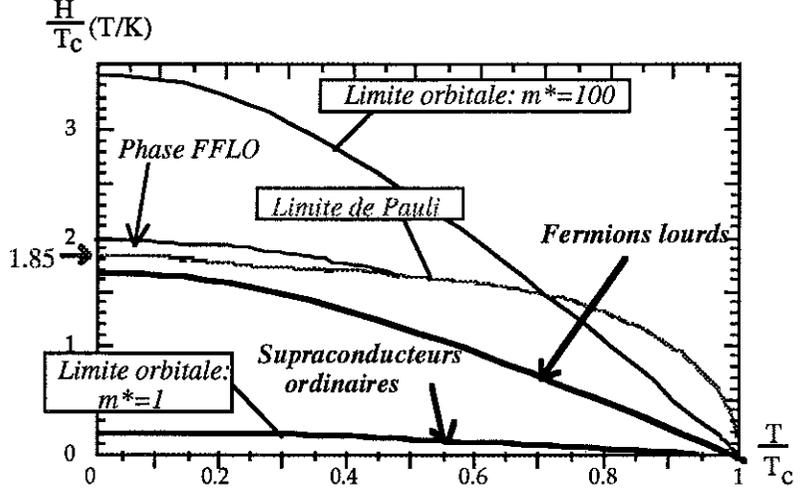


Figure [I-4]: Comparaison des différentes limites au champ critique.

On a, en limite orbitale, et d'après I.(8) : $H_{c2}(T=0) \propto m^{*2}$ car :

$$\xi_0 = \xi(T=0) = \frac{\hbar k_F}{m^* k_B T_c} \quad \text{I.(14)}$$

Dans le cas des supraconducteurs ordinaires où $m^* \approx 1$, la limite de Pauli est bien trop grande par rapport à la limite orbitale pour avoir un effet limitatif sur le champ critique, on est dans la situation où le champ critique est en limite orbitale quelque soit la température. Dans le cas des supraconducteurs à fermions lourds et à basse température, la situation est inversée du fait que les masses effectives des quasi-particules sont suffisamment grandes. ($m^* \approx 100$) pour que la limite orbitale soit très supérieure à la limite de Pauli. D'un point de vue microscopique, les vitesses de Fermi des quasi-particules sont petites et donc la force de Lorentz agissant sur la paire de Cooper est faible. Près de T_c par contre, on est toujours en limite orbitale car la pente initiale du champ critique en limite de Pauli est infinie. Dans tout ce qu'on a expliqué jusqu'à maintenant sur le champ critique, on a sous entendu que les fermions lourds sont bien décrits par la théorie BCS (c'est-à-dire par une théorie de couplage faible). Or, nous verrons au chapitre IV que le champ critique d' UBe_{13} ne peut pas être compris dans une théorie de couplage faible, il faut utiliser une théorie en couplage fort qui modifie le champ critique en renforçant par exemple la limite de Pauli. La théorie du couplage fort ainsi que ses conséquences sur le champ critique seront brièvement décrites dans le chapitre IV. Cependant, les idées générales présentées ici restent vraies en couplage fort.

Sur la figure [I-5], est présenté un autre mécanisme susceptible de renforcer le champ critique en limite de Pauli : c'est l'apparition de la phase FFLO correspondant à une modulation spatiale du paramètre d'ordre et qui a été prédite indépendamment en 1964 par Fulde et Ferrel et par Larkin et Ovchinnikov (d'où son nom de phase FFLO).

Phase FFLO

Pour optimiser l'énergie de condensation dans l'état supraconducteur, il est nécessaire de coupler deux états dégénérés [Anderson59]. Dans le cadre de la théorie BCS, ce sont les états $\{-k, \sigma\}$ et $\{k, \sigma\}$. Sous champ magnétique, et lorsque l'énergie Zeeman n'est pas négligeable, ces deux états ne sont plus dégénérés. Dans le cas 1D, la solution exacte de l'état fondamental à $T=0$ est connue : à fort champ, la différence d'énergie Zeeman est compensée par une différence d'énergie cinétique en couplant les états $\{-k+q, \sigma\}$ et $\{k+q, \sigma\}$ (cf figure [I-5]).

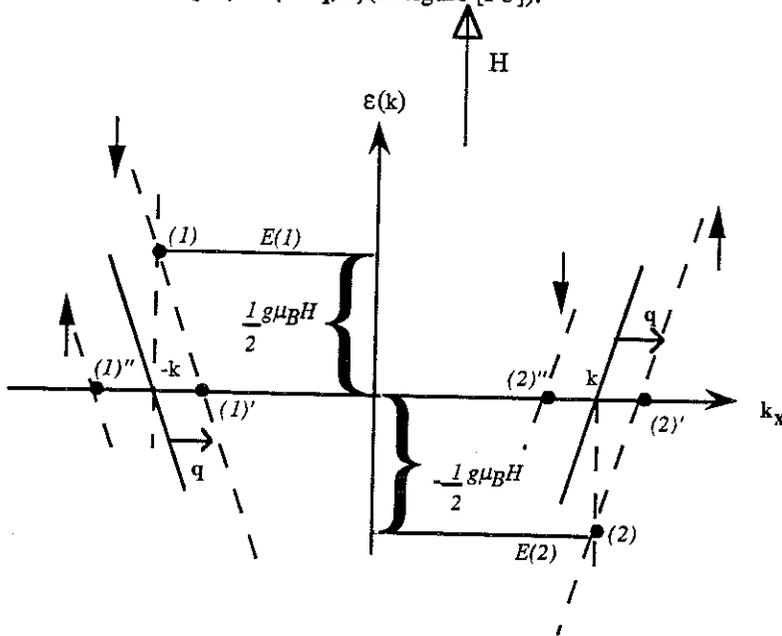


Figure [I-5]: Relation de dispersion $\varepsilon(k)$ pour un système unidimensionnel sous champ. Les états dégénérés de spins opposés ne sont plus les états (1): $\{-k, \sigma\}$ et (2): $\{k, -\sigma\}$ mais les états (1)': $\{-k+q, \sigma\}$ et (2)': $\{k+q, -\sigma\}$ (ou bien (1)'': $\{-k-q, \sigma\}$ et (2)'': $\{k-q, -\sigma\}$) où q est déterminé par la relation: $\hbar q = g\mu_B H / v_F$.

Le vecteur $\hbar q = (g\mu_B H / v_F) \mathbf{k}_x$ correspond à l'impulsion du centre de masse des paires de Cooper (nulle pour un état BCS). Ainsi, en couplant tous les électrons avec un même vecteur q , on obtient un état macroscopique avec un courant moyen non nul. En fait, il faut aussi considérer les paires de Cooper avec une quantité de mouvement $-\hbar q$ pour obtenir la solution d'énergie minimale. Dans ce cas, le courant moyen de paires de Cooper est nul. Le vecteur q correspond aussi à une fréquence de modulation spatiale du paramètre d'ordre où encore de la fonction d'onde relative des paires de Cooper. En effet, pour obtenir l'état FFLO on somme des fonctions d'onde

multipliées par un facteur $e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}$ (où \mathbf{R} est la position du centre de masse des paires de Cooper) avec des fonctions d'onde multipliées par un facteur $e^{-i\mathbf{q}\mathbf{R}}$.

Dans le cas 2D ou 3D, la situation est plus compliquée, puisque la direction de \mathbf{q} qui minimise l'énergie des électrons n'est plus imposée par la dimension du système. Mais, en limite de Pauli pure, on peut montrer qu'en dessous d'une certaine température en couplant les paires de Cooper par états $\{-\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma\}$ et $\{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma\}$, le champ critique se trouve renforcé (q dépend de la température) [Saint-James/Sarma69]. Dans le cas 3D, si l'effet orbital agit sur le champ critique, le vecteur \mathbf{q} est aligné avec le champ magnétique appliqué, sinon, sa direction est arbitraire.

Pour que la phase FFLO apparaisse, outre la condition d'avoir un champ critique fortement contrôlé par la limite de Pauli, le supraconducteur doit être en limite propre. En effet, dans un supraconducteur en limite sale les états de Bloch des électrons se mélangent à cause des diffusions par les impuretés : la quantité de mouvement $\hbar\mathbf{k}$ n'est plus un bon nombre quantique. Cela n'empêche pas de construire un état BCS (il faut simplement que les états électroniques couplés soient symétriques par renversement du temps pour être dégénérés en énergie, cf argument d'Anderson [Anderson59]). Par contre, on ne peut plus construire un état FFLO puisque q n'est plus défini.

Jusqu'à aujourd'hui, cette phase FFLO n'a jamais été observée expérimentalement car comme on l'a déjà expliqué, les supraconducteurs ordinaires ne sont que très faiblement influencés par la limite de Pauli. Les candidats potentiels où pourrait exister cette phase sont :

- Les phases de Chevrel, car dans ces systèmes, la limite de Pauli est très fortement réduite par rapport à la limite orbitale du fait que le facteur gyromagnétique g des électrons supraconducteurs est grand (à cause d'interactions d'échange avec des moments localisés). Le problème est qu'il faut aussi qu'elles soient en limite propre.

- Les Fermions lourds [Brisson97] où, comme on l'a expliqué, la limite de Pauli peut être dominante à basse température, et qui sont presque tous en limite propre.

- Les supraconducteurs de dimension 1 ou 2 où la limite orbitale peut être presque supprimée; la difficulté est alors d'obtenir de bons échantillons en limite propre.

Les deux fermions lourds étudiés dans cette thèse URu_2Si_2 et UBe_{13} sont deux supraconducteurs où pourrait apparaître cette phase modulée. Dans le paragraphe qui suit, nous introduisons les caractères généraux de ces deux composés pour illustrer les idées que nous venons d'exposer sur le champ critique des fermions lourds.

I.2) Exemple des composés UBe_{13} et URu_2Si_2

I.2)a) UBe_{13}

Phase normale

UBe_{13} a été découvert en 1983 par Ott *et al* [Ott83]. Il cristallise selon la structure cubique (cf figure [I-6]) avec un paramètre de maille $a_0=10.249\text{Å}$ [Goldman85-86]. La distance minimale entre atomes d'Uranium est égale à $a_0/2=5.12\text{Å}$. Elle est trop grande pour qu'il puisse se former une bande de conduction f: UBe_{13} fait partie de la famille de fermions lourds type "réseau Kondo".

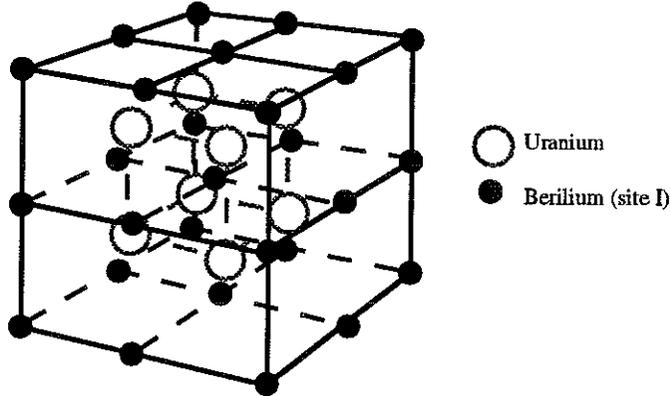


Figure [I-6]: Structure cristalline de UBe_{13} . Sur ce schéma, on n'a pas représenté tous les atomes de Béryllium présents dans la maille élémentaire.

La valeur de la constante de Sommerfeld à basse température est $\gamma=1100\text{ mJ.mol}^{-1}.\text{K}^{-2}$ [Ott84], ce qui confère aux quasi-particules une masse effective de l'ordre de 1000 fois la masse d'un électron libre. La température de cohérence, repérée par le maximum de résistivité ou de chaleur spécifique, est de 2 Kelvin. Par conséquent, on s'attend à ce que le régime de liquide de Fermi soit clairement établi à une température de l'ordre de 200mK. Des mesures par muons ne montrent aucun indice d'ordre magnétique dans UBe_{13} avec une résolution de $0.001\mu_B$ par atome d'Uranium [Heffner90].

Phase supraconductrice

Concernant les caractéristiques de la phase supraconductrice, UBe_{13} est en limite propre: le libre parcours moyen est estimé à $\ell=600\text{Å}$ par des calculs de bande et des mesures de résistivité [Norman87], alors que la longueur de cohérence vaut $\xi_0=50\text{Å}$. D'autre part, deux indications expérimentales généralement considérées comme des indices de supraconductivité en couplage fort sont clairement mesurés dans le composé UBe_{13} :

=> A $T_c=950\text{mK}$, UBe_{13} n'est pas un bon liquide de Fermi [Ott87b], [Grewe91], [Beyermann95]. Il faut descendre plus bas en température et appliquer un champ élevé pour voir, dans la phase normale, un comportement de liquide de Fermi [Remenyi86]. Un autre moyen de faire apparaître le régime liquide de Fermi est d'appliquer une pression (T_F augmente avec P [Thompson87]).

=> Les mesures de chaleur spécifique (voir figure[I-7]) donnent une valeur du saut relatif $\Delta C/C$ à la transition de l'ordre de 3 alors que ce même rapport vaut 1.43

dans le cadre de la théorie BCS, et elles ont toutes été rapprochées de celles réalisées sur ^3He superfluide, lui aussi en couplage fort [Ott84].

La transition en chaleur spécifique montrée en figure [I-7] indique clairement que le saut relatif $\Delta C/C_n$ est de l'ordre 3, la valeur normale C_n étant celle des quasi-particules lourdes (ce qui se prouve que ce sont bien ces quasi-particules lourdes qui se condensent dans l'état supraconducteur). L'échantillon présenté ici est le monocristal mesuré par F.Thomas *et al* [Thomas96] (cf chapitre IV).

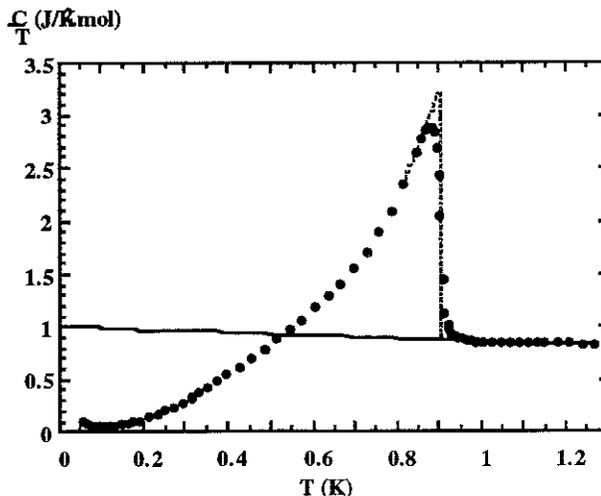


Figure [I-7]: Saut relatif de chaleur spécifique à la transition supraconductrice [Thomas96].

En ce qui concerne la possibilité d'une supraconductivité non conventionnelle, les différentes mesures à basse température indiquent la présence de points de zéro dans le gap supraconducteur : par exemple en chaleur spécifique on mesure une loi en T^3 [Ott84]. Seules des mesures de temps de relaxation spin réseau par RMN indiquent la présence d'au moins une ligne de zéros (une revue des différentes mesures est donnée par [Ott87]). En figure [I-8] est représenté le diagramme de phase de UBe_{13} sous champ.

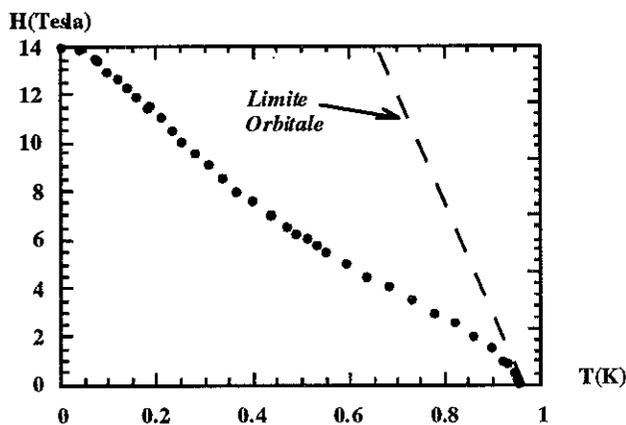


Figure [I-8]: Diagramme de phase sous champ de UBe_{13} [Thomas96].

Ce diagramme de phase présente des caractéristiques générales très particulières. Tout d'abord, la pente initiale $(dH/dT)_{T=T_c}$ est estimée à -50 T/kelvin. Cette valeur très élevée est une conséquence directe de la valeur de la masse effective des quasi-particules ($(dH/dT)_{T=T_c}$ est en effet proportionnel au carré de la masse effective). De plus, le champ critique a une courbure négative très grande pour des températures proches de T_c . Cette courbure importante rend d'ailleurs difficile une estimation précise de $(dH/dT)_{T=T_c}$. En figure [I-7], on a représenté en pointillé la limite orbitale compte tenu d'une pente initiale estimée à -50 T/K. Très clairement, et comme l'ont fait remarquer les premiers Maple *et al* [Maple85], le champ critique est limité à basse température par l'effet paramagnétique. Enfin, à $T \approx T_c/2$, le champ critique présente une courbure positive très prononcée. Les caractères généraux de ce diagramme de phase n'ont été compris que très récemment [Thomas96]. L'interprétation proposée par Thomas *et al* prévoit notamment l'apparition de la phase FFLO. Les mesures sous pression que nous avons réalisées sur ce système et qui seront exposées au chapitre IV ont pour but principal de tester la validité de cette interprétation.

I.2)b)URu₂Si₂

Phase normale

URu₂Si₂ a été découvert en 1984 par Schlabitz *et al* [Schlabitz84], [Schlabitz86]. Ce composé cristallise selon la structure tétragonale (cf figure [I-9]) avec des paramètres de maille $a=4.121$ Å et $c=9.681$ Å [Cordier85].

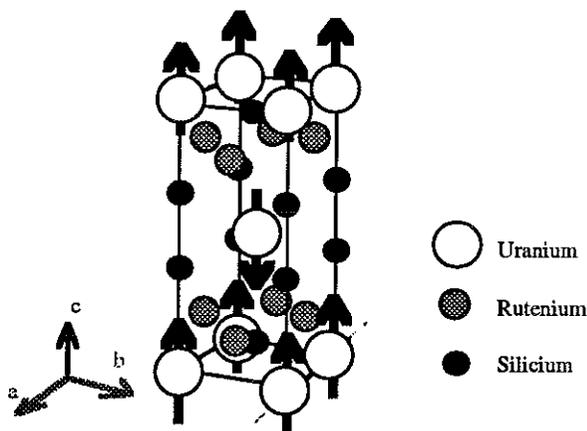


Figure [I-9]: Structure cristalline et ordre antiferromagnétique dans URu₂Si₂.

La distance minimale entre atomes d'Uranium étant de 4.121 Å, on peut avoir dans ce composé recouvrement des orbitales f et formation d'une bande de conduction f à haute température. URu₂Si₂ est à classer parmi les fermions lourds à "fluctuations de spin". En figure [I-9], est aussi représenté l'ordre antiferromagnétique qui apparaît à $T_N = 17.5$ K [Broholm87] avec un moment magnétique extrêmement faible $(0.03 \pm 0.01) \mu_B$ par atome d'Uranium et un vecteur de propagation $Q=(0,0,1)$. La température de cohérence, repérée par un maximum de résistivité [Palstra85] est de l'ordre de 10 K. Par conséquent, le régime de liquide de Fermi est bien établi à la transition supraconductrice ($T_c=1.5$ K). La constante de Sommerfeld passe de $\gamma=180$

$\text{mJ}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-2}$ à T_N , à $\gamma=65 \text{ mJ}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-2}$ à basse température, ce qui correspond à une masse effective des quasi-particules de 50 fois la masse d'un électron libre. Des mesures d'oscillations de De Haas Van Alphen et de Shubnikov de Haas [Brison95] ont par ailleurs permis de mettre en évidence plusieurs poches de la surface de Fermi. Le libre parcours moyen a pu être estimé à 900 \AA .

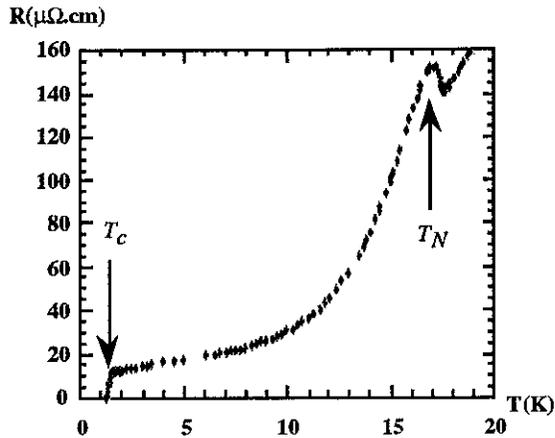


Figure [I-10]: Variation de la résistivité de URu_2Si_2 on peut voir la transition antiferromagnétique à $T_N=17.5$ et la transition supraconductrice à $T_c=1.5\text{K}$.

Phase supraconductrice

URu_2Si_2 est le premier composé où a été observée la coexistence d'un ordre antiferromagnétique et d'un ordre supraconducteur [Palstra85]. Le saut relatif de chaleur spécifique à la transition supraconductrice vaut 0.8 : il n'y a pas dans URu_2Si_2 d'évidence expérimentale d'effet de couplage fort. La longueur de cohérence ξ_0 est de l'ordre de 100 \AA [Palstra86], et donc, si l'on compare au libre parcours moyen $\ell=900\text{\AA}$ mesuré par oscillations de Shubnikov de Haas [Brison95], URu_2Si_2 est en limite propre. Pour ce qui est du caractère non conventionnel de la supraconductivité, les différentes mesures (chaleur spécifique [Hasselbach91a], temps de relaxation spin réseau par RMN [Asyama88]) montrent l'existence d'au moins une ligne de zéro dans le gap supraconducteur ou bien de pôles d'ordre supérieur ou égal à un. Cependant, dans un modèle proposé par Brison *et al* où est pris en compte un couplage entre le paramètre d'ordre antiferromagnétique et le paramètre d'ordre supraconducteur supposé de type "s", il est montré qu'une ligne zéro dans le plan basal peut exister indépendamment du type de couplage responsable de la supraconductivité [Brison94]. Des mesures de spectroscopie de pointe (donnant accès à la densité d'état par la détermination de dI/dV) ont été réalisées [Hasselbach92]. Les auteurs concluent sur l'existence d'une ligne de zéros. Cependant, d'autres auteurs [DeWilde94] pensent plutôt détecter des pôles dans le gap supraconducteur. Des mesures plus récentes [Naidyuk96], sont interprétées comme une preuve expérimentale de l'existence d'une ligne de zéros du gap supraconducteur dans le plan basal. Les mesures de spectroscopie de pointe

permettent de détecter des zéros dans le gap supraconducteurs mais ne permettent pas de savoir si ces zéros correspondent à une brisure de symétrie cristalline.

Le diagramme de phase sous champ de la phase supraconductrice d'URu₂Si₂ (figure [I-10]) est très anisotrope [Palstra85], [Delong90], [Koziol94], [Brisson95].

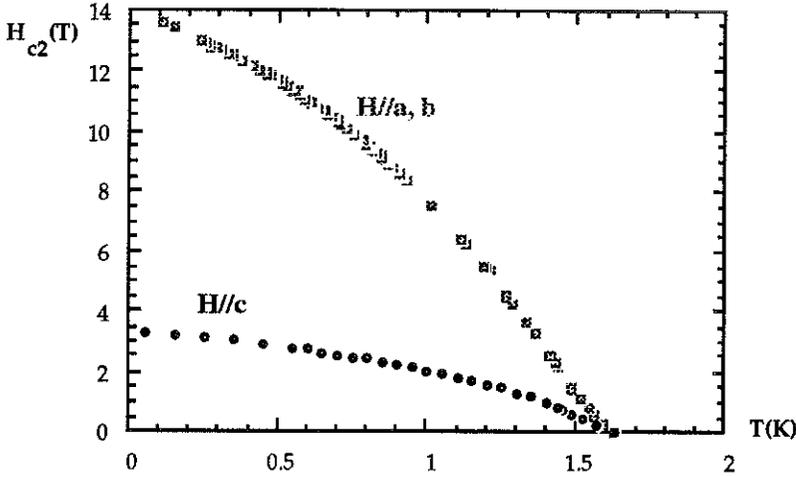


Figure [I-11]: Diagramme de phase de URu₂Si₂. La mesure suivant l'axe c a été réalisée en utilisant le mécanisme de rotation décrit dans le paragraphe II.3.c. La mesure dans le plan basal est due à L.Schmidt [Schmidt93].

Du fait que près de T_c, le champ critique est en limite orbitale, l'anisotropie entre l'axe c et le plan basal s'exprime simplement en fonction de l'anisotropie des masses effectives m_a/m_c (§18.7[Abrikosov88]).

$$H_{c2}(T, \theta) = \frac{H_{c2}^c(T)}{\sqrt{\sin^2 \theta + \frac{m_a}{m_c} \cos^2 \theta}} \quad \text{I.(15)}$$

pour T proche de T_c, et où θ est l'angle entre le plan basal et l'axe c et H_{c2}^c(T) le champ critique selon l'axe c.

Par contre, la forte anisotropie à basse température est beaucoup plus difficile à interpréter. Comme on l'a expliqué précédemment, on s'attend à ce que la limite de Pauli détermine le champ critique à basse température. Or, dans le cas d'URu₂Si₂, l'effet paramagnétique ne se manifeste que selon l'axe c : selon l'axe a, seule la limite orbitale détermine le champ magnétique. A l'heure actuelle, cette très forte anisotropie à basse température n'est pas comprise. On peut invoquer une forte anisotropie du facteur gyromagnétique des électrons supraconducteurs causée par le couplage spin-orbite ou due à des corrections de liquide de Fermi, mais il est difficile d'expliquer pourquoi g≈0 dans le plan basal. Une interprétation possible, serait de considérer les paires de Cooper couplées dans un état triplet avec les spins confinés dans le plan basal (à cause du couplage spin-orbite), autrement dit, l'état supraconducteur serait un état impair avec d parallèle à l'axe c. Dans ce cas, la disparition de la limitation de Pauli pour H dans le plan basal s'expliquerait de manière naturelle.

L'expression implicite du champ critique H pour un supraconducteur en limite propre et en tenant compte de l'effet orbital et de l'effet paramagnétique est [Brisson95] :

$$\ln t = \int_0^{\infty} \frac{dy}{\text{sh}(y)} \int_0^1 dx \left[\cos \left(0.28 \frac{\alpha H}{H_{\text{orb}}(0)} \frac{y}{t} \right) \times \exp \left(-0.25 \frac{y^2 (1-x^2)}{t^2} \frac{H}{H_{\text{orb}}(0)} \right) - 1 \right] \quad \text{I.(16)}$$

où $t = T/T_c$ est la température réduite, $\alpha = \sqrt{2} H_{\text{orb}}(T=0)/H_p(T=0)$ (voir I.(8) et I.(13) pour les expressions de H_{orb} et H_p) est le paramètre de Maki [Maki64]. Dans le chapitre III, on utilisera la dépendance angulaire du champ critique déduite de cette formule (l'anisotropie entre l'axe c et le plan basal est introduite "à la main" dans le facteur gyromagnétique g des électrons supraconducteurs).

Comme on l'a déjà indiqué, URu₂Si₂ est un bon candidat pour l'apparition de la phase FFLO. L'installation d'un mécanisme de rotation sur le dispositif expérimental "12Teslas" (cf. chapitre II) avait pour but d'étudier plus en détail la question de l'anisotropie de H_{c2}, afin de tester la possibilité de l'existence de la phase FFLO. Les mesures ont jusque là été reportées faute d'avoir un échantillon de qualité suffisante à mesurer sous champ magnétique élevé. Nous ne reviendrons plus sur cette question dans la suite.

Concernant URu₂Si₂, nous nous sommes concentrés sur la recherche d'indices expérimentaux concernant la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur. Comme on le verra au chapitre III, cette étude nous a conduit à nous intéresser de près aux effets de supraconductivité de surface, et plus particulièrement aux effets de supraconductivité de surface dans un supraconducteur non conventionnel. L'étude de ce sujet assez nouveau (le premier article théorique date de 1995 [Samokhin95]) a été motivée par les mesures de N.Keller sur le fermion lourd UPt₃ [Keller94]. Dans le paragraphe qui suit, nous décrivons le phénomène de supraconductivité de surface.

I.3) Supraconductivité de surface

I.3)a) Cas d'un supraconducteur conventionnel

Dans ce paragraphe, on résume la technique de calcul de H_{c3} à partir des équations de Ginzburg-Landau pour un supraconducteur conventionnel. Pour un calcul détaillé, on pourra se référer aux ouvrages de DeGennes (chap.6), de Saint-James et Sarma (chap.3) ou de Tinkham (§4.9) [DeGennes66], [Saint-James/Sarma69], [Tinkham75].

Détermination de H_{c2}

Avant de nous intéresser au H_{c3} proprement dit, nous montrons comment redériver l'expression I.(8) de H_{c2} à partir des équations de Ginzburg-Landau pour mieux comprendre l'origine du champ critique de surface.

Dans la théorie de Ginzburg-Landau, l'expression de l'énergie libre F en fonction du paramètre d'ordre Δ(r) est donnée par :

$$F = F_n + \int_v \left(-a(T_c - T) |\Delta(r)|^2 + \frac{\beta}{2} |\Delta(r)|^4 + \frac{1}{2m} |\nabla \Delta(r)|^2 \right) dr \quad \text{I.(17)}$$

où F_n est l'énergie libre de la phase normale et où le terme de rigidité $\nabla\Delta(\mathbf{r})$ traduit le coût en énergie d'une variation spatiale du paramètre d'ordre. Si on applique un champ magnétique $\mathbf{H}=\text{rot}(\mathbf{A})$ au supraconducteur, I.(17) devient :

$$F = F_n + \int_v \left(-a(T_c-T)|\Delta(\mathbf{r})|^2 + \frac{\beta}{2}|\Delta(\mathbf{r})|^4 + \frac{1}{2m} |(-i\hbar\nabla - 2e\mathbf{A})\Delta(\mathbf{r})|^2 + \frac{H^2}{2\mu_0} \right) d\mathbf{r} \quad \text{I.(18)}$$

Dans l'expression I.(18), on tient seulement compte de l'effet orbital du champ magnétique à travers le terme $(-i\hbar\nabla - 2e\mathbf{A})$ qui traduit l'effet de la force de Lorentz. En limite de Pauli pure, il n'y a pas d'effet de supraconductivité de surface. En minimisant variationnellement F par rapport Δ et par rapport à \mathbf{A} , on obtient les deux équations de Ginzburg Landau ainsi qu'une condition aux limites I.(19).c :

$$\frac{1}{2m}(-i\hbar\nabla - 2e\mathbf{A})^2\Delta(\mathbf{r}) = a(T_c - T)\Delta(\mathbf{r}) + \beta|\Delta(\mathbf{r})|^2\Delta(\mathbf{r}) \quad \text{I.(19).a}$$

$$\mathbf{j} = \frac{e\hbar}{im} (\Delta(\mathbf{r})^* \nabla\Delta(\mathbf{r}) - \Delta(\mathbf{r}) \nabla\Delta(\mathbf{r})^*) - \frac{4e^2}{mc} \Delta(\mathbf{r})^* \Delta(\mathbf{r}) \mathbf{A} = 0 \quad \text{I.(19).b}$$

$$(-i\hbar\nabla - 2e\mathbf{A})_n \Delta(\mathbf{r}) = 0 \quad \text{I.(19).c}$$

Où \mathbf{n} est la normale à la surface du supraconducteur. La première équation (I.(19).a) permet de calculer $\Delta(\mathbf{r}, T)$, la deuxième (I.(19).b) permet de calculer la densité de courant \mathbf{j} dans le supraconducteur connaissant Δ et le potentiel vecteur \mathbf{A} , enfin, la condition aux limites I.(19).c exprime qu'aucun courant ne sort du supraconducteur : $\mathbf{j} \cdot \mathbf{n} = 0$ (on multiplie l'expression I.(19).c par Δ^* puis on somme l'expression obtenu avec son complexe conjugué ce qui nous donne la projection de I.(19).b selon \mathbf{n} égale à zéro). Pour $T \approx T_c$, $\Delta(\mathbf{r}) \ll 1$ et on peut linéariser I.(19).a et on obtient :

$$\frac{1}{2m} (-i\hbar\nabla - 2e\mathbf{A})^2 \Delta(\mathbf{r}) = a(T_c - T)\Delta(\mathbf{r}) \quad \text{I.(20)}$$

Si l'on ne tient pas compte de la condition aux limites I.(19).c, I.(20) est analogue à l'équation de Schrödinger d'une particule de fonction d'onde Δ , de masse m et de charge $2e$ dans un champ magnétique uniforme. Dans cette analogie, le niveau d'énergie E_n de la particule est équivalent à $(T_c - T)$, E_n étant donnée par :

$$E_n(k_z) = \frac{1}{2} \frac{\hbar^2 k_z^2}{4m} + \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2}\right) \quad \text{I.(21)}$$

où $\omega_c = 2eH/m$ et où k_z est le vecteur d'onde de la particule selon la direction du champ magnétique. Si l'on se réfère à la figure [I-12], on voit que, pour un champ donné, la valeur de la température de transition est obtenue à partir de I.(21) en prenant le plus bas niveau d'énergie : $a(T_c - T) = E_0(0) = e\hbar H/m$.

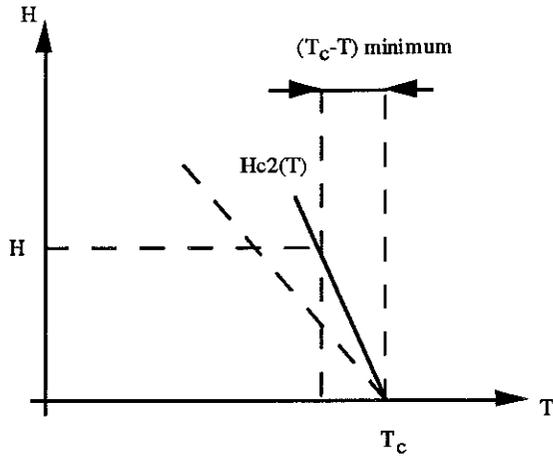


Figure I.121: Pour un champ H donné, la ligne de transition est atteinte pour $(T_c - T)$ le plus petit possible, c'est-à-dire pour le plus bas niveau d'énergie dans l'équation I.(21).

On peut ainsi déterminer $H_{c2}(T)$ pour T proche de T_c et vérifier notamment qu'on retrouve la formule I.(8).

Détermination de H_{c3}

Le problème est de résoudre I.(20), avec en plus la condition aux limites I.(19).c. On se place dans le cas idéal d'une surface parfaitement plane avec un volume supraconducteur pour $x > 0$ et le vide ou un isolant pour $x < 0$. Dans la réalité où la surface n'est pas parfaitement plane, pour que le calcul résumé ci-dessous soit applicable (validité des équations de Ginzburg Landau), on doit avoir $\xi(T) \ll R$ où R est le rayon de courbure minimum de la surface du supraconducteur et $\xi(T)$ la longueur de cohérence du supraconducteur.

Si le champ est perpendiculaire à la surface du supraconducteur, on est en fait ramené au cas précédent et on obtient $H = H_{c2}(T)$.

Si le champ est parallèle à la surface, on peut montrer que l'équation I.(20) se ramène à :

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 f}{dx^2} + \frac{2e^2 H^2}{mc^2} (x-x_0)^2 f = a(T_c - T) f \quad \text{avec} \quad \frac{df}{dx} = 0 \quad \text{en} \quad x = 0 \quad \text{I.(22)}$$

où f est la dépendance en x de $\Delta(x, y, z)$.

L'équation I.(22) est analogue à l'équation d'un oscillateur harmonique dont le minimum d'énergie potentielle est centré en x_0 . x_0 est arbitraire et doit être choisi pour minimiser l'énergie libre.

Dans cette analogie on a les équivalences suivantes :

$$\begin{aligned} E &\Leftrightarrow (T_c - T) && \text{(comme pour le calcul de } H_{c2}) \\ k &\Leftrightarrow H^2 \end{aligned}$$

où k est la constante de raideur de l'oscillateur harmonique.

L'équivalence de E et de $(T_c - T)$, nous permet de déterminer la ligne de transition $H(T)$ de la même manière que dans le paragraphe précédent, c'est-à-dire à partir du niveau minimum d'énergie (cf fig [I-12])⁽⁷⁾.

Si le puits de potentiel est centré en $x_0=0$ ou bien très loin de la surface (dans ces deux cas la condition aux limites (I.(19).c) est vérifiée), en résolvant I.(22), on retrouve le champ critique H_{c2} calculé précédemment qui correspond donc à la nucléation de la supraconductivité dans le volume du supraconducteur. En fait, on trouve que la supraconductivité peut nucléer près de la surface, c'est-à-dire qu'il existe une solution $H_{c3}(T)$ supérieure à $H_{c2}(T)$ en choisissant x_0 de l'ordre de $\xi(T)$. On peut qualitativement le comprendre en s'appuyant sur l'analogie avec l'oscillateur harmonique et en choisissant un potentiel pair suggéré par DeGennes (I.(23)) pour que f vérifie automatiquement la condition aux limites $df/dx=0$ (cf fig [I-13]) :

$$\begin{aligned} V_1(x) &= 2e^2 H^2 (x - x_0)^2 / mc^2 \\ V_1(x) &= V_1(-x) \text{ si } x < 0 \end{aligned} \quad \text{I.(23)}$$

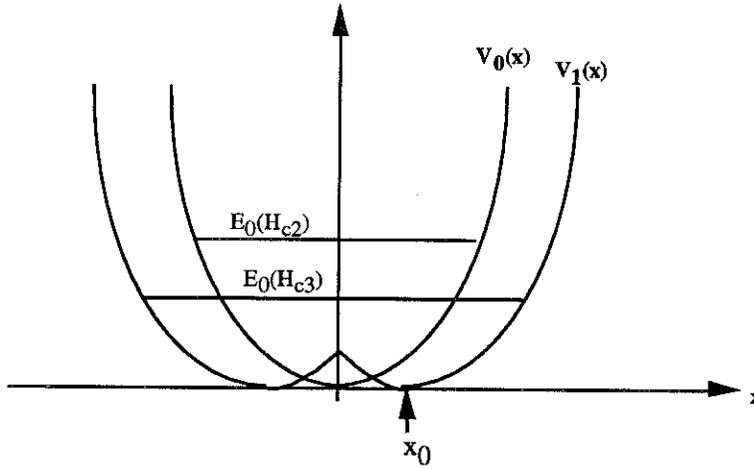


Figure (I-13): Analogie avec l'oscillateur harmonique. Le potentiel V_1 est plus large que le potentiel V_0 centré en $x_0=0$. Par conséquent, il possède un niveau d'énergie fondamental $E_0(H_{c3})$ plus bas. Ceci correspond à une température plus proche de T_c et donc à un champ critique H_{c3} plus raide.

Le calcul exact peut être mené en utilisant pour f des combinaisons linéaires de fonctions de Weber. Avec de telles fonctions, on obtient :

$$H_{c3}(T) / H_{c2}(T) = 1.695 \text{ et } x_0 = 0.5901 \xi(T) \quad \text{I.(24)}$$

La condition aux limites $df/dx=0$ dans I.(22) n'est valable que pour une interface supraconducteur vide ou isolant. Dans le cas où le supraconducteur est recouvert d'un métal, la condition aux limites est plus restrictive et devient :

⁽⁷⁾ On peut vérifier avec cette analogie qu'on décrit qualitativement le comportement de $H(T)$. Quand H augmente, k augmente et le puit de potentiel de l'oscillateur se creuse. Donc, quand H augmente le niveau fondamental d'énergie augmente, ce qui revient à diminuer T . En résumé, sur la ligne de transition H augmente quand T décroît, ce qui correspond bien au comportement d'un champ critique.

$$\frac{df}{dx} = \frac{1}{b} f \quad \text{I.(25)}$$

où b est un paramètre microscopique qui dépend du composé en contact avec le supraconducteur, de la température et du champ magnétique appliqué.

Dans le cas d'un supraconducteur non conventionnel, la condition aux limites df/dx peut aussi prendre la forme I.(25) même si le supraconducteur est en contact avec un isolant ou avec le vide [Samokhin95]. Ceci a pour conséquence que le rapport H_{c3}/H_{c2} peut être inférieur à la valeur standard de 1.695. Comme on va le voir dans le paragraphe suivant, il peut même exister des paramètres d'ordre et des géométries pour lesquelles on a $H_{c3}/H_{c2}=1$, c'est-à-dire des paramètres d'ordre pour lesquels la supraconductivité de surface n'existe pas (la condition I.(25) est remplacée par $f=0$).

I.3)b) Cas d'un supraconducteur non conventionnel

On considère un paramètre d'ordre ayant les composantes $\{\eta_i\}$ sur la base $\{\phi_i\}$, ϕ_i pouvant être un scalaire (supraconductivité paire) ou un vecteur (supraconductivité impaire) (cf § I.1a)). Avec un tel paramètre d'ordre, l'expression de la densité de courant \mathbf{j} est plus compliquée [Chen/Garg96] :

$$\mathbf{j}_i = \frac{4e}{h} \text{Im} \sum_{j, r, s} \kappa_{ij}^{rs} \eta_r^* D_j \eta_s \quad \text{avec } D_j = (-i\hbar \nabla_j - \frac{2e}{c} A_j) \quad \text{I.(26)}$$

où les coefficients κ sont les coefficients phénoménologiques des termes en gradient D_j de l'énergie libre. Dans le cas où le plan qui limite la surface du supraconducteur est perpendiculaire à un axe cristallin et où la réflexion des électrons sur la surface est parfaitement spéculaire, la condition aux limites $\mathbf{j} \cdot \mathbf{n} = 0$ se résume aux relations I.(27) sur les composantes du paramètre d'ordre :

$$\begin{array}{ll} \eta_i = 0 & \text{si } \phi_i(R\mathbf{k}) = -\phi_i(\mathbf{k}) \quad \text{I.(27).a} \\ (\mathbf{n} \cdot \mathbf{D}) \eta_i = 0 & \text{si } \phi_i(R\mathbf{k}) = +\phi_i(\mathbf{k}) \quad \text{I.(27).b} \end{array}$$

où l'on a noté R la symétrie de réflexion par rapport au plan qui limite le supraconducteur et où \mathbf{n} , parallèle à un axe cristallin, est la normale à ce plan. Les auteurs de cet article ont supposé que les différents coefficients microscopiques b_i que l'on peut associer aux différents paramètres d'ordre (et qui sont équivalents au coefficient b intervenant dans la condition I.(27)) sont égaux à l'infini.

On peut comprendre la relation I.(27).a en considérant un potentiel symétrique comme en figure [I-13]. La solution f à rechercher n'est plus une solution symétrique comme dans le paragraphe précédent mais une solution antisymétrique pour vérifier la condition I.(27).a. Cette solution correspond à un niveau d'énergie plus élevé que la solution dans le volume (c'est-à-dire pour $x_0 \rightarrow \infty$) (voir figure I.(14)).

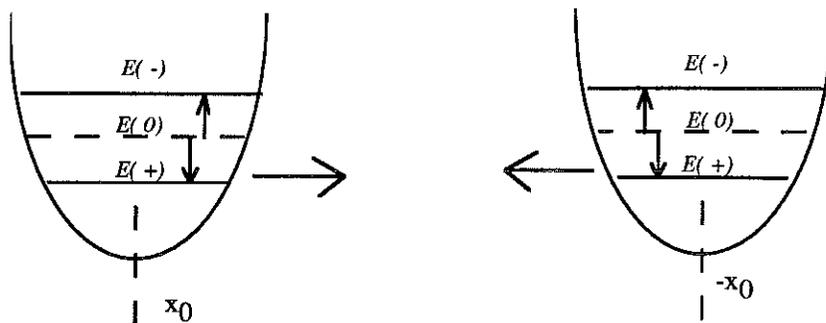


Figure (I-14): Lorsqu'on rapproche deux puits de potentiel, on lève la dégénérescence de l'état fondamental (0) en créant un état symétrique (+) d'énergie plus basse et un état antisymétrique (-) d'énergie plus élevée.

Pour illustrer les relations I.(27), prenons l'exemple d'un supraconducteur de symétrie tétragonale (ou hexagonale) limité par un plan perpendiculaire à l'axe cristallin c . Une réflexion par rapport à ce plan change $\mathbf{k}=(k_x, k_y, k_z)$ en $(k_x, k_y, -k_z)$. Si par exemple le paramètre d'ordre de ce supraconducteur se développe sur la base $(k_z k_x, k_z k_y)$ de E_{1g} avec les composantes (η_1, η_2) (cf § I.1.a), les conditions I.(27) impliquent $(\eta_1, \eta_2)=(0,0)$. Dans cet exemple de géométrie et de paramètre d'ordre, la supraconductivité de surface n'existe pas. Ainsi, la recherche de l'existence ou de la suppression de la supraconductivité de surface en jouant sur la géométrie de mesure peut se révéler être un moyen d'investigation intéressant pour avoir des renseignements sur les composantes des différents paramètres d'ordres a priori possibles.

D'un point de vue expérimental et si l'on se réfère à la littérature [Burger64], [Hempstead64], les mesures quantitatives de H_{c3} en résistivité se font sur des couches minces pour bien contrôler l'état de surface. Pour mesurer H_{c3} sur des échantillons avec un petit facteur géométrique (c.à.d plus massifs et réalisés par des méthodes de métallurgie classiques), ce sont préférentiellement des mesures d'aimantation qui sont utilisées [Tomasch64], [Kleiman89]. Malheureusement, les couches minces de fermions lourds sont très difficiles à élaborer. Ce n'est que très récemment que des films d' UPd_2Al_3 ont été réalisés [Jourdan97]. Cependant, comme on le verra au chapitre III, nos mesures de résistivité sont sensibles aux effets de supraconductivité de surface.

CHAPITRE II: DESCRIPTION DES DEUX DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

Comme il a été précisé dans l'introduction et dans le chapitre I, le sujet de la thèse s'articule autour de deux axes principaux :

- recherche d'un indice de supraconductivité non conventionnelle à travers l'étude du diagramme de phase de URu_2Si_2 près de T_c (≈ 1.5 K), à bas champ ($H < 1$ tesla), et en faisant tourner le champ dans le plan tétragonal, par des mesures de résistivité et de dilatation thermique.

- recherche de la phase modulée FFLO à travers l'étude du diagramme de phase de UBe_{13} à très basse température et à plus haut champ, par des mesures de résistivité. Pour étudier plus en détail les effets de couplage fort, on a été amené à faire des mesures sous pression (chap I §1.2.a) jusqu'à 20kbars.

Pour mener ces deux études, on a disposé de deux montages expérimentaux :

- Une dilution rapide avec un système de trois bobines pour faire des mesures angulaires très précises près de T_c . Ce montage est baptisé "manip 3-axes" dans la suite.

- Une dilution permettant de faire des mesures dans une bobine de 12 Teslas. Cette dilution peut être équipée d'un mécanisme de rotation mécanique permettant de réorienter (selon un axe) l'échantillon à froid. Ce montage est baptisé "manip 12Teslas".

II.1) Parties communes aux deux montages

II.1)a) Automatisation

Les mesures systématiques nécessaires à nos études requièrent une automatisation assez poussée qui a été réalisée sur les deux montages en dilution. Le fonctionnement des cryostats proprement dit a cependant été laissé en mode "manuel"! Les deux dispositifs expérimentaux sont pilotés par le même appareillage qui peut se déplacer d'un cryostat à l'autre. Sur la figure [II-1] est représenté cet ensemble mobile.

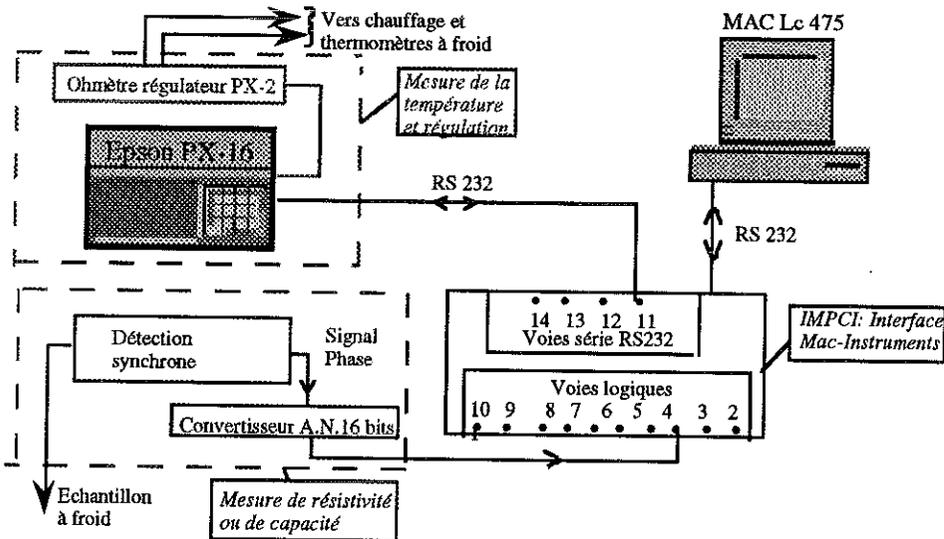


Figure III-1: Automatisation : partie mobile.

L'appareil appelé IMPCI (pour Interface Macintosh ou PC / Instruments) fonctionne comme "un poste d'aiguillage". C'est un multiplexeur qui permet à partir

du Macintosh et via une seule voie série RS232 de lire des données ou d'envoyer des ordres aux différents appareils à travers 10 voies logiques différentes ou bien à travers 4 voies RS232. Deux programmes en C (sous Code Warrior) ont été réalisés (un pour chaque montage) à partir d'un "logiciel maison" appelé "Manip" et développé par A.Benoît et L.Puech. Ce logiciel permet d'écrire simplement des programmes conviviaux (interface graphique) pour gérer les mesures. Par exemple, on dispose de fonctions en C qui permettent d'écrire ou de lire sur une voie RS232.

II.1)b) Mesure de résistivité

Pour les mesures de résistivité, on utilise la technique classique au laboratoire de mesure de pont quatre fils avec une détection synchrone. Le matériel utilisé est un pont basse impédance Barras-Provence/CRTBT fonctionnant à une fréquence de 43Hz et avec un bruit de $0.2 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$. La bande passante en fréquence après filtrage (deux filtres RC en cascade de constante de temps $\tau = 0.3\text{s}$) à la sortie de la détection synchrone est $\Delta F = 1/8\tau = 0.4167\text{Hz}$. Par conséquent, le bruit ΔR sur la mesure de résistance est donné par :

$$\Delta R(\mu\Omega) = 130 / I_{\text{mes}} \quad \text{II.(1)}$$

où I_{mes} est le courant de mesure, en microampère, injecté dans l'échantillon.

Le signal analogique, mesurant la déviation du pont à l'équilibre, est converti en signal numérique par un convertisseur 16 bits (cf figure [II-1]). Ce signal varie linéairement avec l'écart entre résistance de mesure et résistance de référence. L'équilibrage du pont a été automatisé avec "un multiplieur programmable" contrôlé par liaison RS232, et qui remplace une boîte de résistances variables.

II.1)c) Thermométrie, régulation en température

Dans la gamme de température de 100mK à 2K, les thermomètres utilisés sont des résistances de Germanium Lake Shore. On a veillé à ne pas avoir d'effet de magnétorésistance sur les thermomètres en les plaçant dans la zone de champ compensé dans le cas de la "manip 12 Teslas" (§II.3.b). Dans le cas de la "manip trois axes", il n'y a pas de zone de champ compensé (§II.2b) : la résistance de germanium est placée loin du centre du champ et est isolée par un écran en plomb (supraconducteur et donc diamagnétique parfait aux températures et aux champs de mesure). Dans le cas de la "manip 12 Teslas" et pour des températures inférieures à 100mK, on utilise une résistance de Carbone placée elle aussi dans la zone de champ compensée. Ces résistances sont mesurées grâce à un ORPX (Ohmmètre Régulateur commandé par un ordinateur PX-16 Barras-Provence-ABB-CRTBT). Cet appareil permet de lire huit thermomètres et dispose d'un P.I.D. programmable pour la régulation en température. Il se commande par une liaison RS232 et nous a permis d'automatiser complètement la régulation de température dans la gamme de température 30mK-4.2K, avec éventuellement une interruption autour de 1 Kelvin pour la "manip-12-Teslas" pour rentrer le mélange du cryostat dans les réserves et travailler en "gaz sec" entre 1 et 4K.

II.2) Manip 3-axes

II.2)a) Cryogénie

Le réfrigérateur à dilution utilisé dans le système des trois bobines, est une "diluette Caussignac" dont la température minimale est environ 50mK. Cette dilution est décrite dans la thèse de Niels Keller [Keller94]. Pour avoir une idée du principe de fonctionnement d'une dilution, on peut se référer à la figure [II-15] (§ II.3.a).

Une fuite thermique constituée simplement d'un petit cylindre de laiton a été installée entre la boîte à mélange et les échantillons pour pouvoir réguler à des températures supérieures à 1 Kelvin, ce qui est nécessaire pour les mesures sur URu₂Si₂ dont le T_C est d'environ 1.5 Kelvin. L'installation de cette fuite thermique a permis d'améliorer considérablement la régulation en température : $T = (T_{\text{consigne}} \pm 0,0002)\text{K}$ pour une gamme de température de 500mK à 1.8K. En moyennant sur une quarantaine de points, on arrive à un écart type en température de moins de 0.05 mK.

II.2)b) Champ magnétique : système des trois bobines

Le système des trois bobines est décrit dans la thèse de N.Keller [Keller94]. Il permet d'appliquer un champ de 0 à 1 Tesla dans n'importe quelle direction de l'espace. En figure [II-2] est représenté le cablage de lecture et de commande du champ, ainsi qu'un schéma des trois bobines supraconductrices.

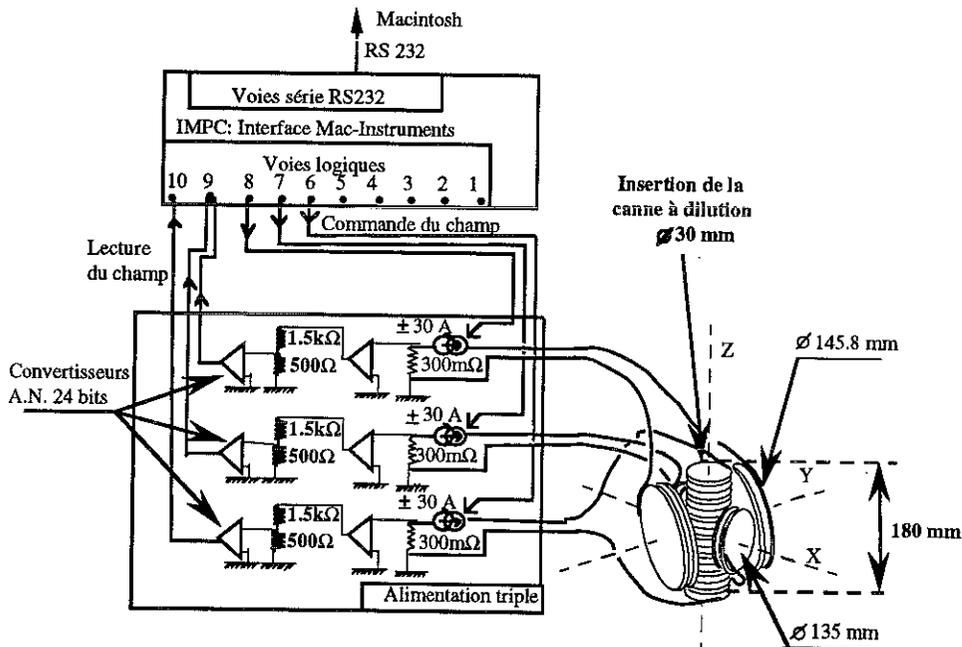


Figure III-21: Cablage de la commande et de la lecture du système des trois bobines.

L'alimentation des bobines est constituée de trois sources de courant identiques de ±30 Ampères pilotées numériquement avec une résolution de 0.92 mA/bit (de -30A à 30A pour $(2^{16}-1)$ bits). Le courant est régulé à la consigne voulue par un P.I.D. Le coefficient de conversion courant/champ est d'environ :

0.35 Gauss/mA pour les bobines X et Z, et 0.6 Gauss/mA pour la bobine Y. On a donc une résolution numérique inférieure à 0.7 Gauss/bit. La régulation en champ autour d'une consigne donnée est seulement de quelques bits (environ 3 bits) conduisant à une résolution en champ de 2 gauss. Il faut ainsi moyenner au moins sur 25 points pour retrouver notre résolution numérique de l'ordre de 0.5 Gauss.

L'automatisation de la commande des trois bobines avait été réalisée en Basic sur un ordinateur Apple GS par N.Keller. Je l'ai reprogrammée en langage C sur Macintosh avec principalement des modifications sur la lecture du champ. Dans le dispositif précédemment utilisé [Keller94], la lecture du champ se faisait par l'intermédiaire de convertisseurs 12bits, si bien que la résolution en lecture était moins bonne que la résolution en commande de champ. On ne pouvait pas se fier à la valeur de champ mesurée pour tester la stabilité en champ ou même pour calculer la consigne de champ à appliquer. Les consignes étaient calculées à partir des consignes précédentes et il n'y avait aucun moyen de correction par rapport au champ réel appliqué. Pour remédier à ce problème, et n'être limité que par la résolution en commande de champ, on a remplacé les convertisseurs 12 bits par des convertisseurs 24 bits. De plus, la lecture du champ est moyennée (en norme et en angle) et on recalculé la consigne à partir du champ mesuré.

En figure [II-3], on présente une mesure du champ pour une rotation de plus de 360° avec un pas de 2°. A chaque angle, on a moyenné sur 40 mesures.

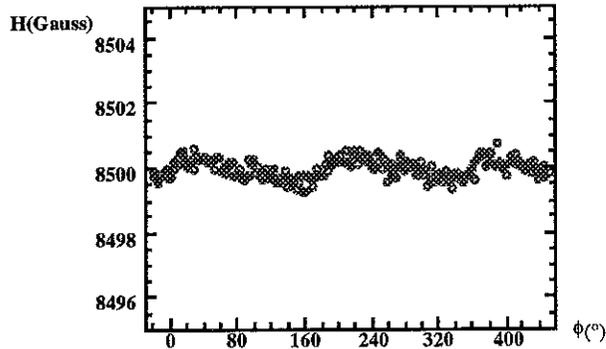


Figure III-3: Résolution en norme de champ.

On constate qu'on a bien une résolution de l'ordre de 0.5 Gauss avec cependant un effet de période de 180° et d'amplitude de l'ordre de 1 Gauss. On a remarqué qu'en fait, lorsqu'on programme les alimentations de courant à une consigne donnée, le courant vrai injecté dans les bobines est un peu inférieur à cette consigne (la différence est de moins de 1% et dépend des bobines). La solution serait d'attendre pour chaque angle que les sources de courants se stabilisent et de reprogrammer une deuxième fois à la même consigne. En fait, on a choisit de ne pas modifier la programmation (la mesure présentée en figure [II-3] dure déjà plus de 6 heures!) et de se contenter d'une résolution de 1 Gauss car, comme on le verra au chapitre III (§1.a), ce sont surtout la régulation en température et la mesure de résistance qui limitent la résolution de nos mesures. Une résolution de 1 Gauss correspond, pour un champ appliqué H , à une résolution angulaire (figure [II.4]) :

$$\Delta\theta(^{\circ})=120/ H(\text{Gauss})$$

Ce qui nous donne par exemple pour un champ de 2000 Gauss une résolution meilleure que 0.1° .

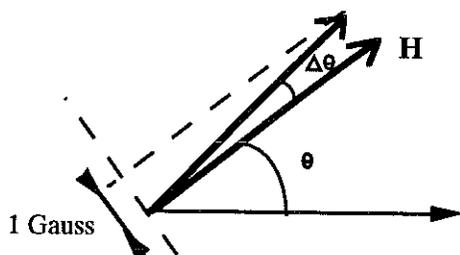


Figure III-41: Résolution angulaire en champ. Si on ajoute une petite composante de 1 Gauss à un champ appliqué H, on fait varier l'orientation de ce champ H d'un angle $\Delta\theta$ tel que $\sin\Delta\theta=1/H$ soit $\Delta\theta(^{\circ})=360/(2\pi*H)$

La technique de détermination de l'orientation de l'échantillon sera décrite dans le chapitre III (§III.1).

En dehors des problèmes d'automatisation, une bonne partie du travail expérimental réalisé pendant cette thèse a été focalisé sur le montage de mesures nouvelles répondant aux besoins de nos études sur la supraconductivité des fermions lourds. On va maintenant préciser les performances et les difficultés rencontrées lors de la mise au point des mesures :

- de dilatation thermique (collaboration avec L. Puech et J.J.Préjean)
- mise en route d'une nouvelle dilution sur la "manip 12 Teslas".

II.2)c) Mesure de dilatation thermique

L'idée d'utiliser des mesures de dilatation thermique était d'obtenir une détermination thermodynamique du champ critique sans problèmes spécifiques dus à la magnétorésistance des thermomètres (qui pourraient nous gêner par exemple dans une mesure de chaleur spécifique).

Principe de la mesure de dilatation thermique

La mesure de la dilatation thermique est obtenue à partir de la mesure de la capacité d'un condensateur plan : une des armatures de ce condensateur est fixe, l'autre armature suit la dilatation ou la contraction de l'échantillon à mesurer. La capacité de ce type de condensateur est donnée par la formule :

$$C = \frac{\epsilon_0 \times A}{d} \quad \text{II.(2)}$$

où A est la surface des armatures en regard, d est la distance entre ces armatures et où ϵ_0 est la permittivité du vide. Dans notre montage, les armatures en regard ont une surface de l'ordre de 2 cm^2 , et la formule II.(2) devient :

$$C(\text{pF}) = 2078.6/d(\mu\text{m})$$

Le principe du montage électrique est représenté en figure [II-5].

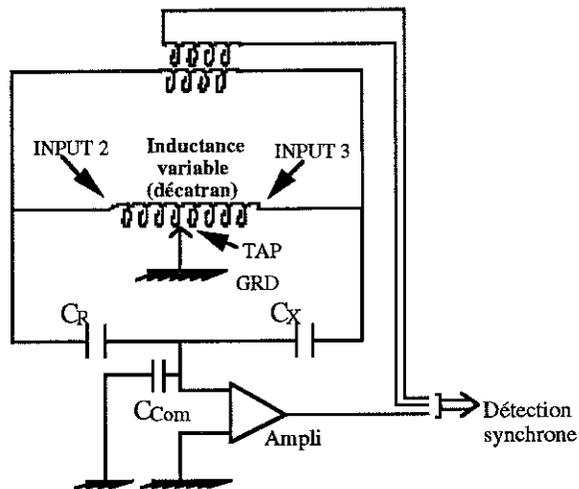


Figure [II-5]: Montage électrique.

Le principe est le même que pour une mesure de résistivité sauf qu'au lieu d'équilibrer le pont avec une boîte de résistances variables, on utilise une boîte d'inductances variables (on doit équilibrer la composante capacitive et donc imaginaire du signal). La capacité à mesurer est C_X , C_R est la capacité de référence qui doit être de l'ordre de grandeur de C_X . Dans notre montage, C_R est un condensateur en mica placé à froid au niveau de la boîte à 1 Kelvin et dont la capacité vaut 9.888 pF (à 4.2 K). La fréquence de la détection synchrone est 1 kHz . Pour ne pas diminuer le gain lorsque le pont est déséquilibré, il est important que la capacité C_{com} (avec la masse) du câble coaxial commun aux capacités C_X et C_R soit la plus petite possible (une dizaine de pF). Le signal analogique de la détection synchrone est converti en un signal numérique par un convertisseur 16 bits (cf figure [II-1]).

Description et mode d'emploi du dilatomètre

(i) Vue générale et mode d'emploi

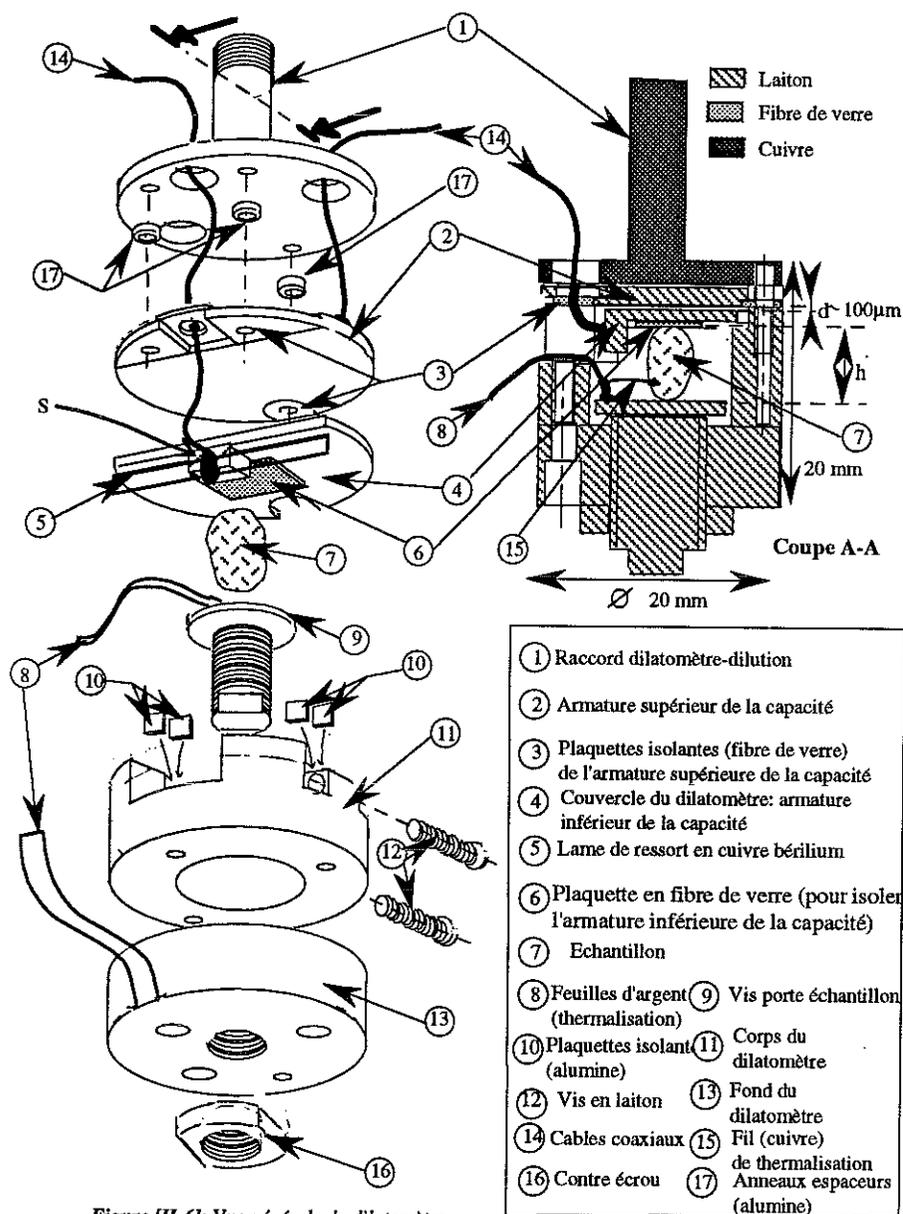


Figure [II-6]: Vue générale du dilatomètre.

La figure [II-6] représente le dilatomètre en coupe (monté) et en perspective (démonté). Le principe de fonctionnement est dû à L.Puech. Les deux armatures de la capacité sont les pièces (2) et (4), elles ne doivent pas être en contact avec la masse. Lorsque l'échantillon se dilate ou se contracte, il fait varier l'inclinaison de l'armature inférieure (couvercle (4)) par rapport à l'armature supérieure (2) (la lame de ressort (5) travaille en torsion). Ainsi, on détecte les variations de longueur de l'échantillon.

On peut faire une remarque : puisque les armatures ne restent pas parallèles, la formule II.(2) n'est pas tout à fait exacte. On utilisera quand même cette formule pour déterminer d , car on ne cherche pas à faire une mesure absolue de la dilatation thermique de l'échantillon, on veut simplement repérer la transition métal-supraconducteur (chap.III §III.1). La lame de ressort (5) est soudée au duratrode sur le couvercle (4) au niveau de la surface S. L'angle entre cette surface S et le plan du couvercle (4) sous lequel pousse l'échantillon est légèrement inférieur à 90° de manière à ce que le ressort subisse une torsion lorsque le plan de l'armature (4) est à l'horizontale (figure (b)[II-8]). Cela rigidifie le montage et permet ainsi d'être moins sensible aux vibrations. La plaquette de fibre de verre (6) est collée sur le couvercle (4) à la colle pour jauge de contrainte. L'isolation électrique entre l'armature inférieure de la capacité (c-à-d le couvercle (4)) et la masse (pièces (11) et (12)) est assurée par de petites plaquettes (10) en alumine. L'armature supérieure (2) de la capacité est isolée de la masse par des plaquettes en fibre de verre (3) et (6) collées à la colle pour jauge de contrainte et par des anneaux espaceurs en alumine (17) qui écartent (2) du raccord (1).

L'écart d entre les armatures de la capacité a été ajusté en ponçant les petites cales en fibre de verre (3). Il est de l'ordre de $100 \mu\text{m}$ à chaud et reste proche de cette valeur à froid (4.2K).

Pour monter la cellule, on procède en deux étapes :

i)- On monte d'abord les pièces (4) et (11) ensemble. On place ces deux pièces à l'envers sur une surface parfaitement plane (un marbre). En appuyant très fort sur le couvercle (4) et sur la pièce (11), on serre les vis (12) qui maintiennent la lame de ressort (5) entre les plaquettes (10). Ensuite, on monte les pièces (1), (2) et (11) ensemble.

ii)- Au début du montage, l'échantillon (7) est maintenu sur la vis porte-échantillon (9) par le fil de thermalisation (15) (soudé sur la vis (9) et sur l'échantillon). Le porte-échantillon (9) est vissé sur la pièce (13) de manière à avoir grossièrement la bonne distance h (de l'ordre de 5mm) pour que l'échantillon pousse sur le couvercle (4) en le maintenant horizontal. Le réglage fin se fait simplement par la mesure de la capacité de la manière suivante : on maintient le couvercle (4) incliné vers le haut avec le pouce de manière à pouvoir monter ou descendre librement l'échantillon en tournant la vis (9). Lorsque, couvercle relâché, on mesure une capacité de l'ordre de 20pF (ce qui correspond à $d \approx 100 \mu\text{m}$), on peut estimer que le réglage est bon.

(ii)Cablage, thermalisation

Les câbles coaxiaux arrivant de 300K, sont thermalisés à 4.2K puis à 1.6K (au niveau de boîte à un Kelvin) par de fines lamelles de cuivre collées avec du stycast noir (isolant électrique) sur une pièce en cuivre thermalisée sur le bain à 4.2K ou sur la boîte à 1Kelvin. Les masses des câbles coaxiaux sont soudées à chaque extrémité à la masse du cryostat.

Au niveau de la boîte à mélange, la thermalisation des câbles coaxiaux se fait par l'intermédiaire de capacités cylindriques (figure. [II-7]). Le principe du montage et de la thermalisation à froid a été suggéré par J.J.Préjean.

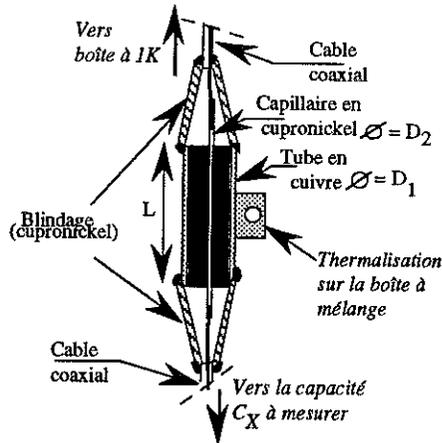


Figure [II-7]: Les thermalisations sont des capacités cylindriques réalisées à partir d'un tube de cuivre (en contact avec la masse de la dilution) et d'un capillaire de cupronickel (sur lequel sont soudées les âmes des coaxes), le capillaire étant noyé dans de la stycast noire à l'intérieur du tube en cuivre. Les côtes sont déterminées de manière à avoir une capacité négligeable avec la masse.

La capacité C d'un condensateur cylindrique étant donnée par la formule :

$$C = \frac{0.2416 \times L \times \epsilon}{\text{Log}_{10}\left(\frac{D_1}{D_2}\right)} \quad \text{II.(3)}$$

où ϵ est la permittivité diélectrique relative du milieu entre les deux armatures de la capacité (pour le stycast à 4 Kelvin et à une fréquence de 1kHz: $\epsilon = 5,1$) et où la signification des paramètres géométriques L, D_1 et D_2 est précisée figure [II-7]. Avec $L=1\text{cm}$, $D_1=3\text{mm}$ et $D_2=0.3\text{mm}$, on obtient $C=1.4\text{pF}$. On peut estimer grossièrement quelle puissance parasite on peut évacuer grâce à ce petit montage. La conductivité thermique du stycast à une température de l'ordre de 1K vaut $\langle \kappa \rangle = 100\text{mW.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Donc pour un gradient d'au moins $\Delta T=100\text{mK}$ entre le capillaire de cupronickel et le tube en cuivre on peut évacuer une puissance parasite $P \approx \pi L \langle \kappa \rangle \Delta T / \ln(D_1/D_2)$ d'environ 10mW ce qui est largement suffisant (on peut s'attendre à un apport de chaleur maximum de quelques dizaines de μW). A chaque thermalisation, on a veillé à ce que les âmes des coaxes soient blindées. La capacité de référence est elle aussi blindée par une petite boîte de cuivre.

(iii) Caractéristiques de la lame de ressort

La lame de ressort est en cuivre béryllium. Elle a subi un traitement thermique pour augmenter son module d'Young. La constante de torsion d'un tel ressort (de géométrie indiquée en figure (a)[II-8]) est donnée par la formule :

$$C = \frac{E \times I_x}{2(1+\nu)} \quad (\text{en rd/m}) \quad \text{II.(4)}$$

où E est le module d'Young du cuivre béryllium ($E=10^{11}$ Pa) ν son coefficient de Poisson ($\nu=1/3$) et où

$$I_x = \iiint y^2 dydz = \frac{he^3}{12} \quad \text{II.(5)}$$

est le moment quadratique de la lame de cuivre béryllium par rapport à l'axe x (avec les notations de la figure (a)[II-8]).

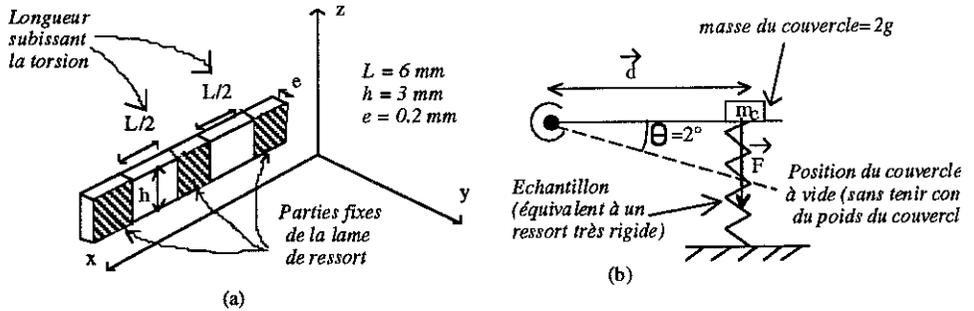


Figure III-8: a) Géométrie de la lame de ressort.
b) Force appliquée sur l'échantillon.

Ainsi, on peut calculer la force F appliquée sur l'échantillon (figure (b)[II-8]) pour le maintenir fixe :

$$\vec{F} \wedge \vec{d} = \frac{C\theta}{L} \text{ soit } F = \frac{C\theta}{Ld} \quad \text{II.(6)}$$

où $d=5\text{mm}$ est la distance entre l'axe de torsion du ressort et le point de contact de l'échantillon sous le couvercle du dilatomètre. Pour s'assurer de la rigidité de notre système à froid c'est-à-dire ne pas avoir de saut de capacité traduisant le décollement du couvercle (2) de l'échantillon (7) (figure [II-7]), on a fait le petit test suivant. On excite notre système en tapant sur le cryostat (!). A l'oscilloscope, on mesure la sortie de la détection synchrone pour estimer la pulsation des oscillations ressenties par la capacité : on trouve $\omega \approx 250 \text{rd.s}^{-1}$. La force d'inertie maximale F_{vib} qui pourrait décoller le couvercle (2) est déterminée par $F_{\text{vib}} = m_c A_{\text{max}} \omega^2$ où $A_{\text{max}} = 20 \text{\AA}$ est l'amplitude initiale des oscillations (mesurée à l'oscilloscope) et m_c la masse du couvercle. On calcule $F = 7.10^{-2} \text{N}$ et $F_{\text{vib}} = 2,5 \cdot 10^{-7} \text{N}$. Par conséquent, on a bien $F \gg F_{\text{vib}}$: notre système est suffisamment rigide.

Effets de cellule et résolution

(i) Effet de cellule en température

En figure (a)[II-9] est reportée la mesure d'un échantillon de laiton pour estimer l'effet de cellule en température. On obtient une variation relative de la capacité de 10^{-5} par Kelvin, soit 10 \AA par Kelvin pour un écart de $100 \mu\text{m}$.

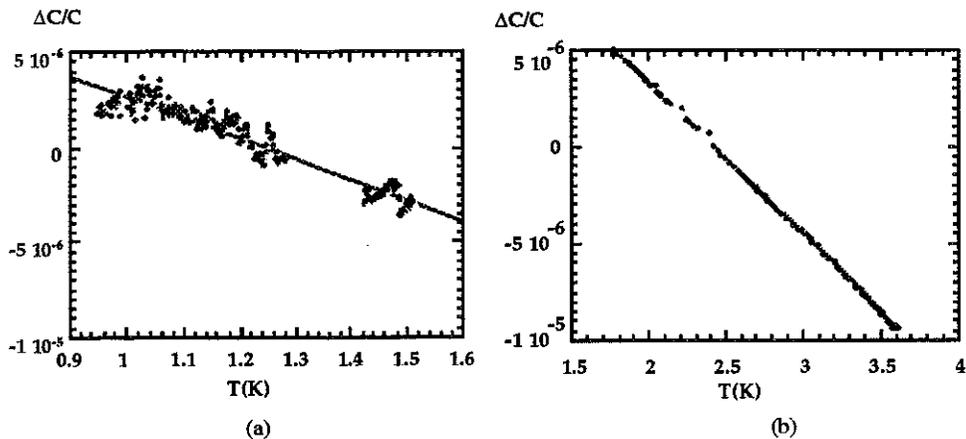


Figure III-9: Effet en température sur les capacités :

(a) C_X , la capacité de la cellule autour de la T_C d' URu_2Si_2

(b) C_R , la capacité de référence thermalisée sur la boîte à 1 K.

On a aussi mesuré l'effet de la température sur la capacité de référence (figure (b)[II-9]) en faisant varier la température de la boîte à 1 Kelvin. On obtient une variation relative sur le signal de $8 \cdot 10^{-6}$ par Kelvin. Or, pendant une mesure de 5 heures, la température de la boîte à 1K dérive de moins de 10 mK ce qui correspond à un effet relatif sur le signal de $8 \cdot 10^{-8}$ qu'on peut négliger.

(ii) Résolution

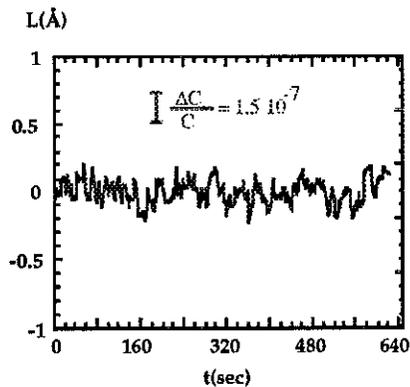


Figure III-10: Bruit, résolution.

En figure [II-10] est reportée une mesure du bruit sur une durée d'environ 10 mn. L'amplitude du bruit est de $\Delta C/C \approx 1,5 \cdot 10^{-7}$ correspondant à moins de $0,2 \text{ \AA}$. Si l'on moyenne sur une vingtaine de points, on obtient une résolution de l'ordre de :

$$\Delta L_{\text{RMS}} = 0.05 \text{ \AA} \quad \text{II.(7)}$$

(iii) *Effet de cellule en champ*

Pour des mesures de rotation en champ, on a constaté que la cellule de dilatation présente un effet dont on n'a malheureusement pas réussi à déterminer l'origine. C'est un effet de période 180° et d'amplitude relative $1,2 \cdot 10^{-6}$ (respectivement $3 \cdot 10^{-5}$) pour H dans le plan horizontal (x,y) (respectivement H dans un plan vertical perpendiculaire à (x,y)) (figure [II-11]).

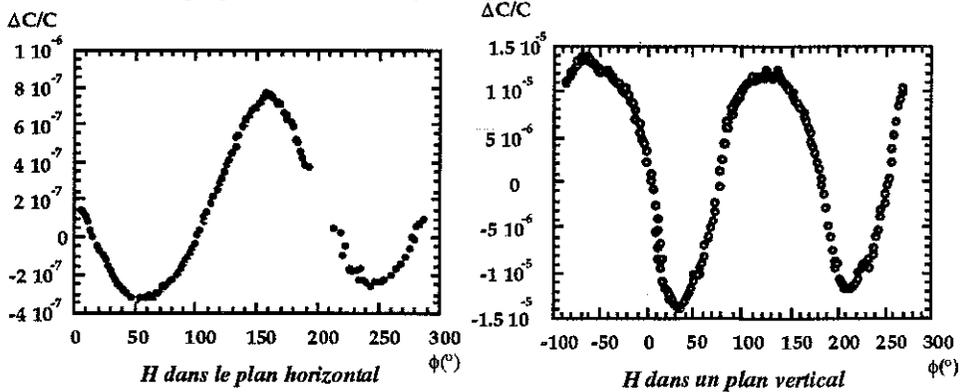


Figure [II-11]: Mesure d'un échantillon en laiton à $T=1.5K$, effet de cellule pour un champ de 8500 Gauss.

Malgré plusieurs modifications de la cellule de dilatation, on n'a pas réussi à éliminer cet effet parasite. Cependant, on a pu vérifier que cet effet ne dépend pas de la température en faisant la même mesure présentée figure [II-11] à une température de 900mK. Par conséquent, on ne doit pas être gêné par cet effet si on module la température (voir § suivant pour la description de la méthode). On n'a pas pu tester directement ce point sur un échantillon en laiton car avec une modulation en température d'amplitude 50mK et du fait que l'effet de cellule en température est petit (figure (a)[II-9]), on obtient un signal en capacité dont l'amplitude sort à peine du bruit. Quoiqu'il en soit, nos mesures avec modulation de température sur un échantillon d' URu_2Si_2 (chapitre III §III.1) ne montrent aucun effet de cellule en champ entre les deux directions H dans le plan (x,y) et H parallèle à z.

Mesure avec modulation de température

(i) *Principe, montage expérimental*

Le principe est d'appliquer une petite modulation de température ΔT à l'échantillon et de mesurer la variation de longueur ΔL correspondante. On mesure ainsi directement le coefficient de dilatation thermique $\alpha = L^{-1} dL/dT \approx L^{-1} \Delta L / \Delta T$. Lors d'une transition de phase du deuxième ordre la grandeur thermodynamique α subit un saut puisqu'elle correspond à une dérivée seconde de l'énergie libre.

En figure [II-12] est schématisé le montage expérimental réalisé pour moduler la température de l'échantillon.

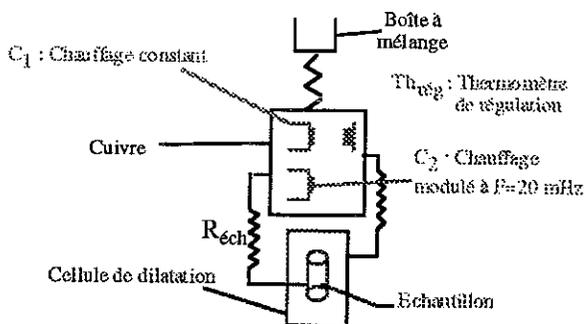


Figure [II-12]: Montage expérimental avec modulation de température.

Avec le chauffage C_2 , on envoie une puissance sinusoïdale de période T_{mod} . Le chauffage C_1 permet de changer la température moyenne de cette modulation. On peut ainsi faire une rampe en température. La mesure se fait en continu dans le temps en prenant une vingtaine de points par période T_{mod} . Les données sont ensuite traitées numériquement à l'aide d'un programme (réalisé par L.Puech) qui permet d'extraire pour chaque période la valeur moyenne et l'amplitude de la modulation en fittant le signal par une sinusoïde plus une droite. Avec ce programme, on traite le signal en température et le signal en capacité et on obtient le déphasage entre les deux signaux (il est bien constant au cours de la rampe en température). Une petite difficulté est que la période du signal n'est pas exactement la période de traitement numérique. En annexe III est expliquée la méthode pour résoudre ce petit problème. D'un point de vue thermique, notre montage est équivalent à un circuit électrique en régime forcé où une capacité est équivalente à une chaleur spécifique C_p et une résistance électrique est équivalente à une résistance thermique R_{th} . Le temps de relaxation de notre système est donc $\tau = R_{th}C_p$.

En fait, comme on le verra au chapitre III, ce montage n'est pas adapté à une mesure avec modulation de température autour d'une moyenne fixe. Le mieux qu'on puisse faire est d'appliquer une puissance constante avec le chauffage C_1 . Cette méthode marche en dessous de 900mK. Au dessus de cette température, la température moyenne dérive avec le temps, le montage s'échauffe lentement. On ne peut pas réguler la température moyenne étant donné la lenteur des modulations. Il faudrait que le thermomètre de régulation Th_{reg} ait une constante de temps suffisamment grande pour ne pas réagir aux modulations appliquées à l'échantillon, le cas idéal étant : $T_{mod} \ll \tau$. La solution envisagée est, d'une part de coller le chauffage de modulation C_2 sur l'échantillon pour pouvoir moduler à une fréquence plus élevée (on diminue le temps de relaxation au niveau de l'échantillon), d'autre part de mieux découpler l'échantillon et le thermomètre de régulation en augmentant R_{ech} pour pouvoir réguler la température moyenne sans être gêné par les modulations de température (on augmente le temps de relaxation au niveau de la régulation).

A cause de cette dérive en température, on n'a pas atteint le but qu'on s'était fixé au départ, c'est-à-dire une mesure avec rotation du champ à une température fixe proche de 1.5K. Cependant, on a pu estimer notre résolution en champ critique avec

cette méthode (§III.1.a) d'une mesure du bruit à angle de champ fixe (voir ci-dessous). D'autre part, ce montage permet de réaliser facilement des rampes en température. Ainsi, on a pu mesurer la transition de URu₂Si₂ en dilatation thermique et comparer les mesures de pente initiale du champ critique en résistivité et en dilatation thermique (§III.4.a).

(ii) *Résolution*

En figure [II-13] est présentée une mesure de la transition de URu₂Si₂ en modulant de température ($\Delta T \approx 30\text{mK}$) après traitement numérique et sans aucune correction d'effet de cellule.

$$\frac{1}{L} \frac{dL}{dT} (\text{K}^{-1} 10^{-7})$$

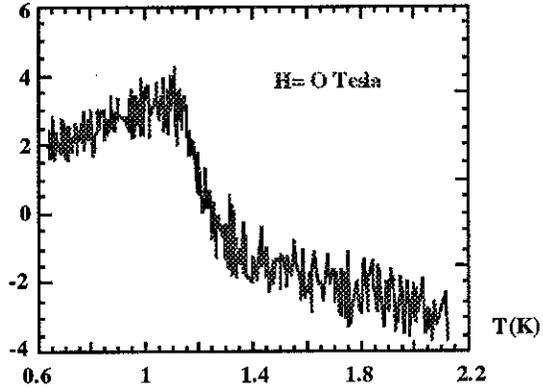


Figure [II.13]: Transition supraconductrice en dilatation thermique de URu₂Si₂ : mesure du bruit.

Le traitement numérique agit comme un filtre synchrone (le signal est moyenné par une sinusoïde) qui filtre le bruit haute fréquence. Par contre, comme chaque point correspond à une seule période de modulation, le bruit basse fréquence n'est pas filtré. Il faudrait moyenné sur plusieurs périodes mais on est limité par $T_{\text{mod}}=50\text{s}$. Là encore, l'augmentation de la fréquence de modulation devrait améliorer le montage en permettant de moyenné sur plusieurs périodes. D'autre part, le bruit de mesure dépend bien évidemment de l'amplitude de modulation de température : plus l'amplitude de modulation est grande, plus on diminuera le bruit sur notre mesure. On le voit bien si l'on se réfère à la mesure présentée figure [II-13], où, du fait qu'on a modulé la température avec la même puissance de chauffage pour $0.6 < T < 2.2$, l'amplitude de modulation vaut $\Delta T \approx 30\text{mK}$ pour $T < 1.4\text{K}$ et diminue jusqu'à $\Delta T \approx 20\text{mK}$ pour $T > 1.4\text{K}$ alors que le bruit de mesure augmente pour $T > 1.4\text{K}$. Toujours en se référant à cette figure et pour $T < 1.4\text{K}$, on estime notre bruit de mesure à :

$$\Delta\left(\frac{1}{L} \frac{dL}{dT}\right) = 1.10^{-7} \text{ K}^{-1} \quad \text{II.(8)}$$

Pour les mesures d'anisotropie de champ critique (chapitre III), a priori, on a intérêt à moduler la température avec une amplitude de l'ordre de la largeur de la transition. En figure (a)[II-14], on reporte une mesure à une température moyenne de

670mK (pour être stable en température) et avec une amplitude de modulation $\Delta T=110\text{mK}$.

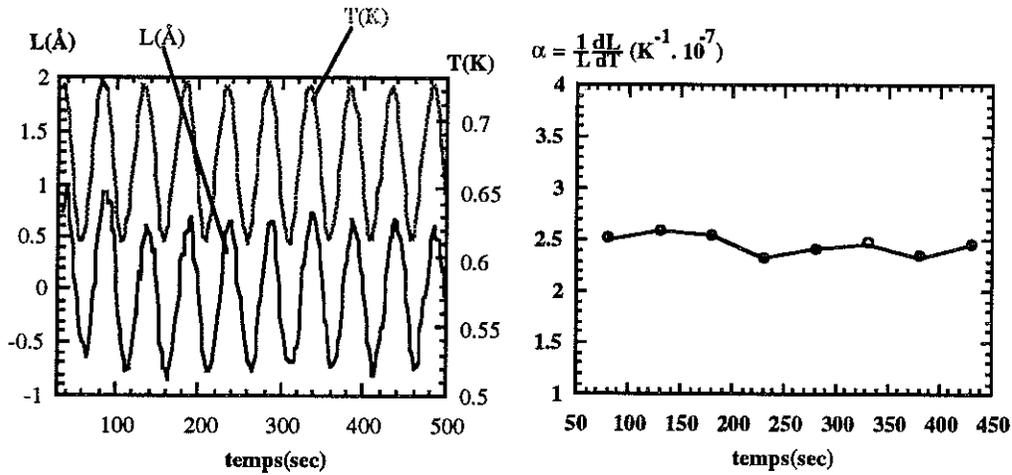


Figure [II.14]:

(a) modulation de température de $\Delta T=110\text{mK}$, signal de réponse de l'échantillon

(b) résultat obtenu à partir de (a) après traitement numérique.

Le résultat du traitement numérique des données est reporté sur la figure (b)[II-14] à partir de laquelle on peut estimer notre bruit à :

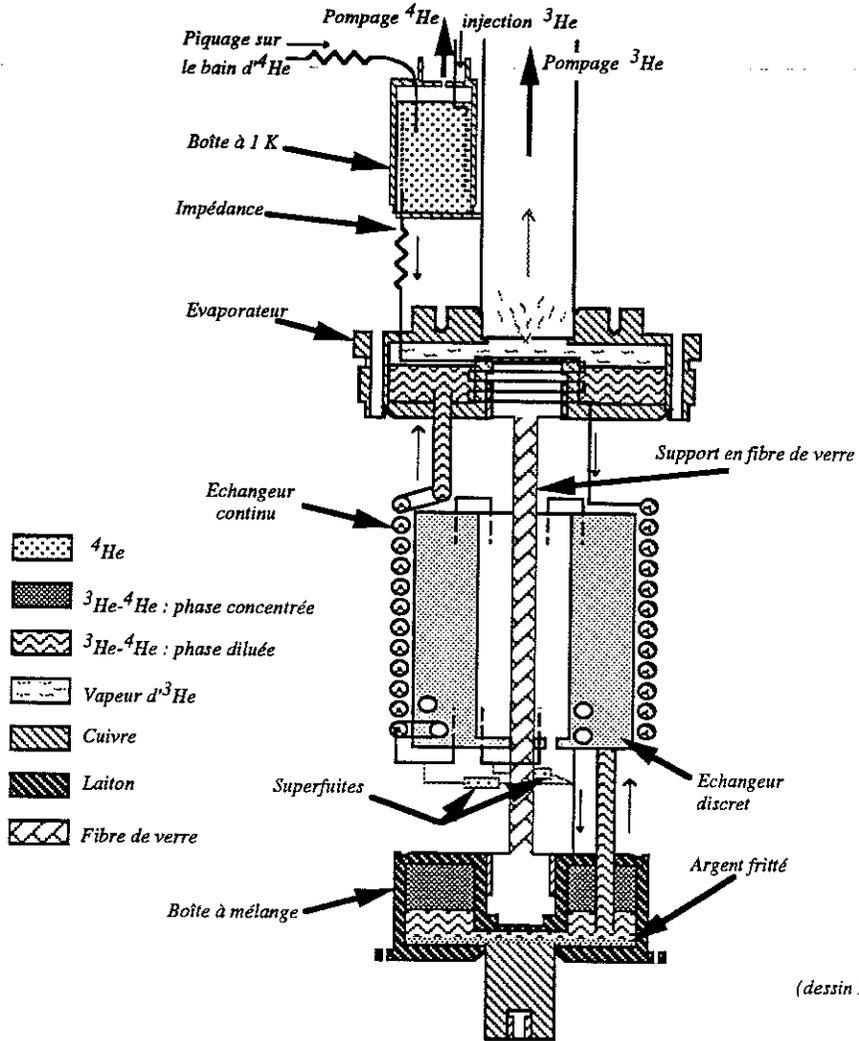
$$\Delta\left(\frac{1}{L} \frac{dL}{dT}\right) = 0,3 (10^{-7} \text{K}^{-1}) \quad \text{II.(9)}$$

II.3) Manip 12 Teslas

II.3)a) Cryogénie

Schéma du réfrigérateur à dilution

Le réfrigérateur à dilution utilisé dans la bobine 12 Teslas a été mis en service en début de thèse en collaboration avec D.Trichot (stage IUT). En figure [II-15] est présenté un schéma de cette dilution.



(dessin D. Trichot).

Figure [II-15]: Dilution ^3He - ^4He en coupe.

L'originalité de ce système réside dans l'emplacement de l'échangeur fritté : il se trouve au même niveau que l'échangeur continu pour raccourcir la canne à dilution afin d'éloigner au maximum la boîte à mélange de la zone de champ maximum, et de gagner en autonomie d' ^4He . Des superfuites ont été installées pour purger l' ^4He .

superfluide aux points bas de l'échangeur discret : l'⁴He pourrait s'y accumuler par gravité et nuire à l'efficacité de la dilution.

Performances

Sur la figure [II-16], est reportée une mesure de la température minimale atteinte par le réfrigérateur à dilution pour une puissance de chauffage donnée sur la boîte à mélange (notée $P_{B.M.}$). On a tracé en fait $P_{B.M.}$ en fonction de T^2 car la chaleur latente $L(T)$ de dilution de l'Helium 3 dans l'Helium 4 varie en T^2 . En effet, $L(T)=86 \times T^2$ et on a par conséquent :

$$P_{B.M.} = 86 \times \frac{dn_3He}{dt} \times T^2 - P_{perte} \quad \text{II.(10)}$$

où $\frac{dn_3He}{dt}$ est le débit d'³He en nombre de moles par seconde, débit qui dépend de la puissance de chauffage de l'évaporateur (1.26 mW pour la courbe figure [II-16]) et où P_{perte} est la puissance parasite de chauffage sur la boîte à mélange.

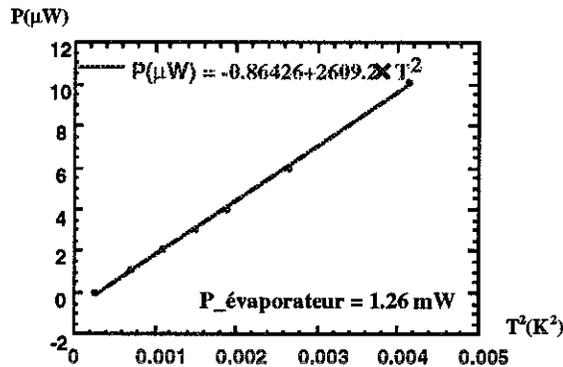


Figure [II-16]: Performances de la dilution du dispositif 12 Teslas.

Un fit linéaire de cette courbe nous donne $P_{perte} = 0.86 \mu W$. Une autre détermination de P_{perte} pour $P_{\text{évaporateur}} = 2.1 \text{ mW}$ donne $P_{perte} = 1.19 \mu W$. De plus la température minimale atteinte par la dilution en coupant l'injection d'³He (one shot) est de 6 mK. Ces deux observations laissent penser que l'échangeur fritté n'est peut-être pas aussi efficace qu'il devrait l'être. Quoi qu'il en soit, les performances de la dilution sont suffisantes pour les différentes études entreprises dans cette thèse.

II.3)b) Champ magnétique : la bobine 12T

En figure [II-17] est schématisé le cablage de lecture et de commande du champ, ainsi que la bobine principale et la bobine de compensation.

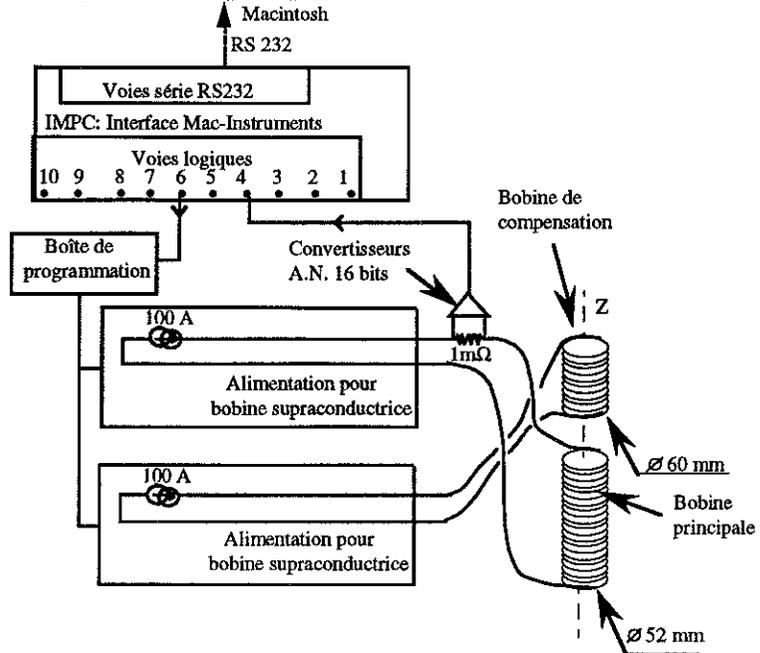


Figure III-17: Lecture et commande du champ pour le système 12 Teslas.

Le coefficient de conversion courant champ magnétique pour la bobine 12 Teslas est de 7.8918 A/T. La résolution numérique en lecture de champ est de 3.8 Gauss.

La mesure de l'homogénéité du champ est représentée figure [II-18] Le champ est homogène à 0.05% sur une hauteur de un centimètre.

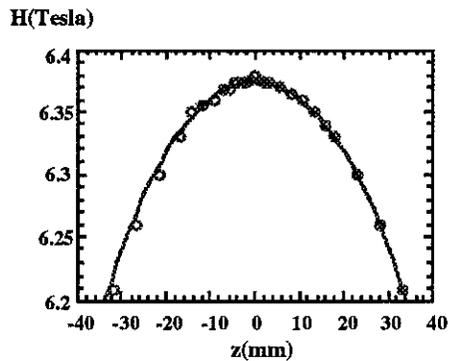


Figure III-18: Homogénéité du champ de la bobine 12 Teslas.

II.3)c) Mécanisme de rotation de l'échantillon

Le mécanisme de rotation a été conçu et réalisé par J.M.Martinod (SPSMS-CENG). Un schéma de principe est représenté en figure (a)[II-19].

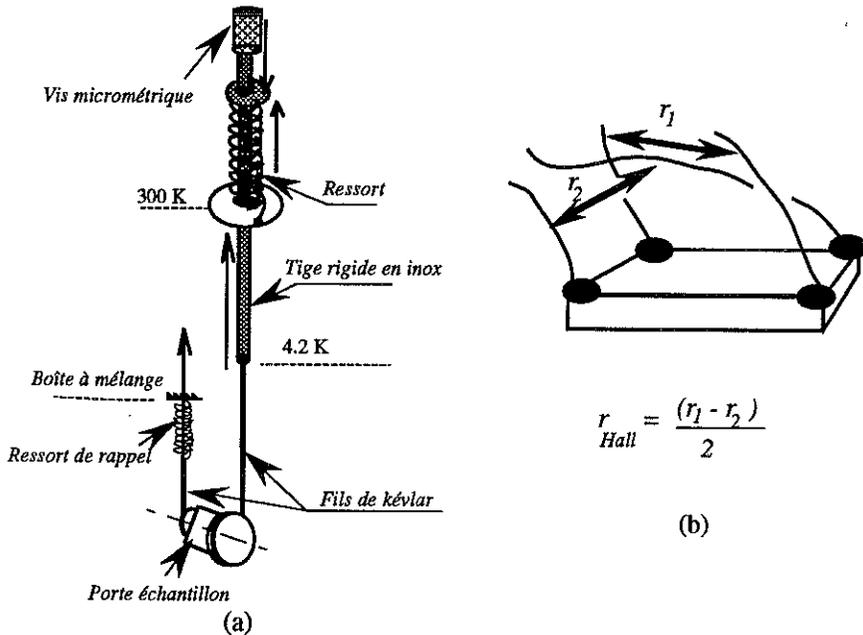


Figure III-19: (a) Schéma de principe du mécanisme de rotation.
(b) Méthode de van der Pauw.

Les fils de Kévlar entre 4.2K et l'échantillon ont une conductivité thermique très faible. La tige en inox entre 300K et 4.2K assure une compensation des variations de dilatation du cryostat avec le niveau d'Helium. Le porte échantillon lui-même est fait dans un plastique à faible coefficient de frottement pour éviter (par rapport à un mécanisme métallique) les problèmes de grippage et les échauffements par courants de Foucault dans les mesures sous champ.

Ce mécanisme a été testé et étalonné en mesurant l'effet Hall d'un échantillon d'UBe₁₃ par la méthode de van der Pauw (figure(b)[II-19]). Dans ce fermion lourd, l'effet Hall est particulièrement grand et est très sensible à l'orientation du champ par rapport à l'échantillon [Fert87]. L'étalonnage (figure [II-20]) donne une valeur pour le coefficient de conversion $\Delta\beta / \Delta L_{\mu\text{m}}$ de $(9.54 \pm 0.01) \text{ } ^\circ/\text{mm}$. La figure [II-20] en encart indique que la résolution angulaire du système est inférieure à 0.5° .

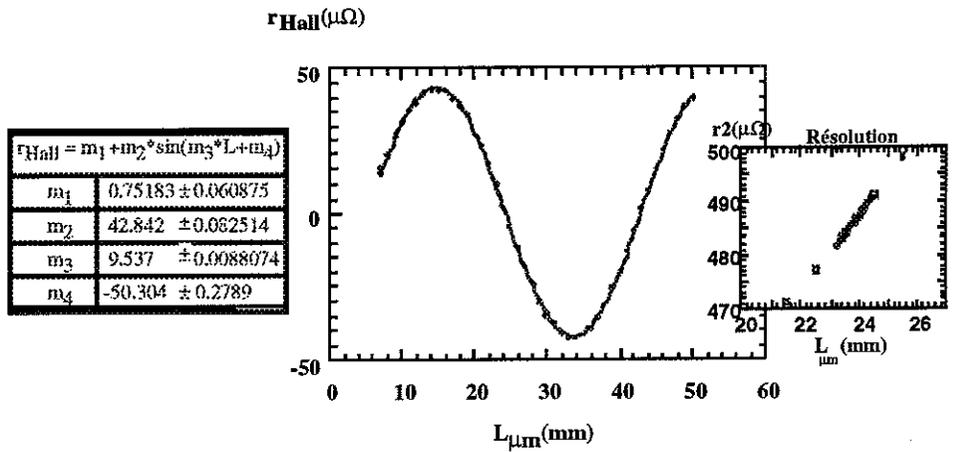


Figure [II-20]: Test du mécanisme de rotation, étalonnage avec $H=2\text{Teslas}$ et $\Delta T=4.2\text{K}$.

L'idée de départ qui a motivé la mise en place de ce mécanisme était de mesurer le diagramme de phase de URu_2Si_2 pour différents angles entre le plan basal et l'axe c pour étudier la possibilité de l'existence de la phase FFLO dans ce système. Ces mesures ont été repoussées faute d'avoir un échantillon suffisamment bon à mesurer (l'élargissement de la transition sous champ est très grande). Avec ce système on a tout de même mesuré le champ critique de URu_2Si_2 selon l'axe c avec une précision sur l'orientation de quelques dixièmes de degrés (chap.I figure [I-11]) et en utilisant le principe d'orientation de l'échantillon décrit au chapitre III (§III.1.b).

II.3)d) Cellule de pression

Les mesures sous pression ont été faites en collaboration avec D.Jaccard (DPMC-Genève), M.Ribault (LPS Orsay) et I.Cheikine (SPSMS-CENG). La cellule de pression est montrée (en coupe) en figure [II-21].

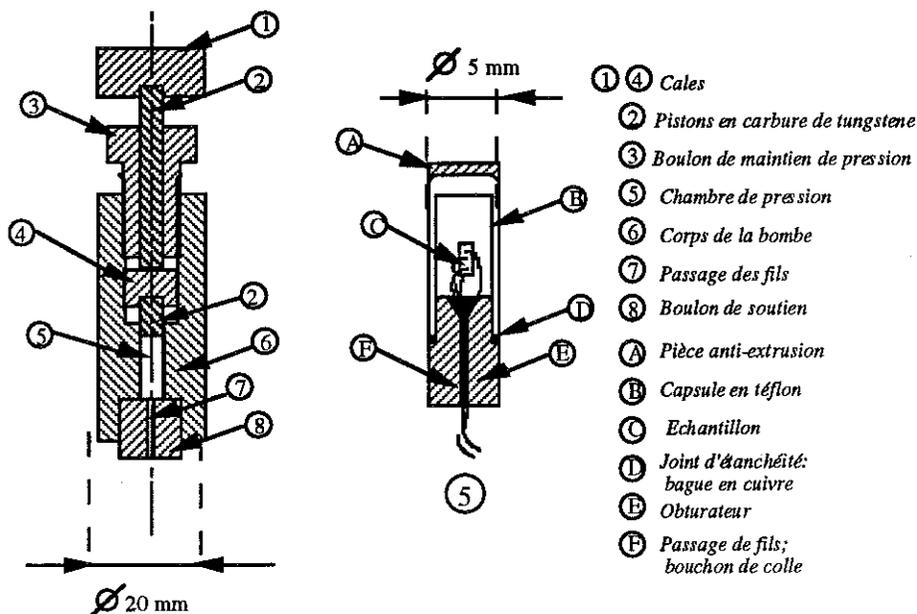


Figure [II-21]: Cellule de pression 20kbars en cuivre béryllium.

Elle a été construite par C.Fierz et est décrite dans sa thèse [Fierz88]. La pression appliquée à chaud à l'aide d'une presse hydraulique est maintenue grâce à l'écrou (3) et est transmise à l'échantillon dans le corps de la bombe (5) par un liquide (mélange d'alcool). Cette cellule est réalisée en matériaux non magnétiques (CuBe) pour éviter les échauffements par courants de Foucault, et permet d'appliquer jusqu'à 20kbars. Elle nous a permis de faire des mesures jusqu'à $P=10$ kbars (chap. IV). La mesure à 20kbars a été faite à l'aide d'une cellule de pression basée sur le même principe mais un peu plus massive.

**CHAPITRE III: RECHERCHE D'UN INDICE
EXPERIMENTAL SUR LA SYMETRIE DU
PARAMETRE D'ORDRE DE URu_2Si_2**

Ce chapitre présente nos résultats sur l'étude de l'anisotropie du diagramme de phase de URu_2Si_2 . Avant de discuter les résultats proprement dits (§III.4), nous précisons la procédure expérimentale que l'on a utilisée pour obtenir des mesures haute résolution de la dépendance angulaire du champ critique.

III.1) Procédure de mesure

III.1a) Méthode de détermination de l'anisotropie du champ critique, résolution

Une détermination directe du diagramme de phase pour différentes orientations du champ dans le plan basal s'avère peu précise. En effet, quelque soit le critère utilisé ("milieu de transition" ou "onset" (§III.4.a)), à cause de la largeur de la transition, on a une grande incertitude sur la détermination de la température de transition. Une méthode permettant de faire des mesures à haute résolution d'une anisotropie du champ critique est exposée dans ce paragraphe, l'idée est de mesurer à température et à norme de champ fixe. On indique aussi dans cette partie quelle résolution sur le champ critique on peut espérer atteindre en utilisant cette méthode.

Méthode de mesure en résistivité et en dilatation thermique

On discute ici spécifiquement le cas d'une transition résistive, mais pour le cas d'une transition en dilatation thermique, le principe de mesure est le même : il suffit simplement de remplacer la résistance R par le coefficient de dilatation thermique $\alpha = 1/L \, dL/dT$ et la température de régulation par la température moyenne $\langle T \rangle$ autour de laquelle on module (voir §II.2.c pour la technique de modulation). En principe, on peut déterminer une anisotropie de champ critique à partir d'une mesure d'anisotropie de résistivité (ou de dilatation thermique). En effet, si l'on se réfère à la figure [III-1], on voit que si l'on mesure la résistivité de l'échantillon en se plaçant dans la transition et en réglant la température à une valeur fixe $T_{\text{régulation}}$, alors un déplacement de la transition ΔT_c sera mesuré par une variation ΔR de la résistance.

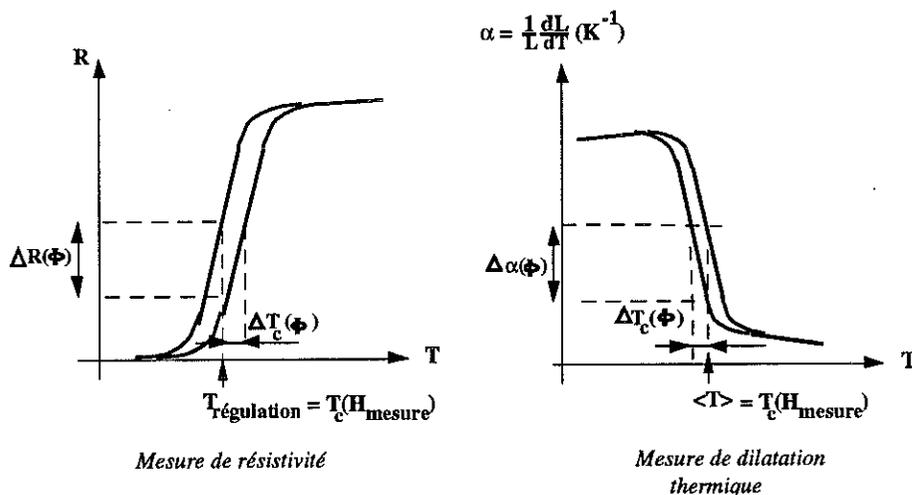


Figure [III-1]: Déplacement de la transition en fonction de l'orientation du champ.

Si maintenant la température de transition dépend, à norme de champ fixe, de l'orientation ϕ du champ (ce qui revient à avoir un champ critique plus grand ou plus petit suivant la direction du champ), en mesurant $R(\phi)$ à norme de champ et température fixes, on mesurera une variation de résistance $\Delta R(\phi)$ correspondant à un déplacement de la température de transition de $\Delta T_c(\phi)$ (figure [III-1]). Pour convertir une variation $\Delta R(\phi)$ en déplacement $\Delta T_c(\phi)$, il suffit de déterminer la pente de la transition dR/dT et l'on aura simplement $\Delta T_c(\phi) = \Delta R(\phi) * (dR/dT)^{-1}$. Dans la zone près de T_c , on peut encore déduire de $\Delta T_c(\phi)$ la variation du champ critique $\Delta H_c(\phi)$ à partir de la relation :

$$\Delta H_c(\phi) = \Delta T_c(\phi) \times \frac{H_{\text{mesure}}}{(T_c(H=0) - T_c(H_{\text{mesure}}) - \Delta T_c)} \quad \text{III.(1)}$$

Sur la figure [III-2], la formule III.(1) est illustrée dans le cas $\Delta T_c > 0$.

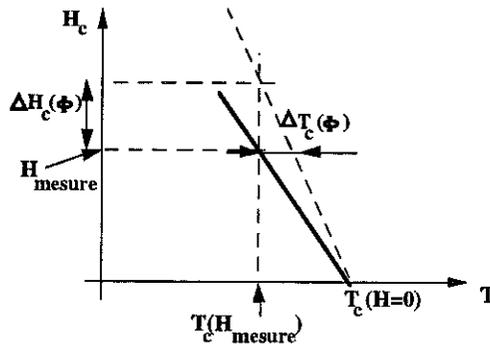


Figure [III-2]: Détermination de ΔH_c à partir de ΔT_c

Cette méthode revient à déterminer H_c en prenant comme critère le milieu de la transition résistive. Dans le cas d'une mesure par dilatation thermique, on a intérêt à faire une modulation de température d'amplitude égale à la largeur de la transition pour avoir la résolution la meilleure possible (cf §II.2.c).

Résolution en champ critique pour une mesure de résistivité

Cinq paramètres déterminent notre résolution en champ critique :

- la résolution en mesure et régulation de température $\Delta T_{RMS} = 0.05 \text{ mK}$ (§II.2.a)
- la résolution en mesure de résistance $\Delta R_{RMS} = 0.5 \mu\Omega$ (§II.1.b formule II.(1) avec $I_{mes} = 40 \mu\text{A}$ et pour une moyenne sur 40 points ($\Delta R_{RMS} = \Delta R / \sqrt{40}$))
- la résolution en champ appliqué $\Delta H_{RMS} = 1 \text{ Gauss}$ (§II.2.b)
- la pente de la transition dR/dT qui lie ΔT_c à ΔR
- la pente dH_c/dT du champ critique selon l'axe α qui lie ΔH_c à ΔT_c .

Pour comparer entre elles les résolutions en champ, en résistivité et en température, on peut tout ramener à une résolution équivalente en champ critique.

(i) **Résolution en résistance :** On pourra mesurer une variation ΔT_c d'autant plus petite que (dR/dT) sera grand ($\Delta T_c = \Delta R * (dR/dT)^{-1}$). Avec la pente la plus raide (échantillon n°2, tableau [III-7]) $dR/dT = 28.6 \mu\Omega \cdot \text{mK}^{-1}$, on obtient, pour une variation ΔR_{RMS} de $0.5 \mu\Omega$, un déplacement équivalent de la transition égal à 0.015 mK . Etant donné que

pour URu_2Si_2 $dH_c/dT > 75$ Gauss/mK suivant l'axe **a**, le déplacement de 0.015mK correspond à une variation de champ critique de 1.2 Gauss.

(ii) Résolution en température : Avec $dH_c/dT > 75$ Gauss/mK suivant l'axe **a**, un déplacement de 0.05mK correspond à une variation de champ critique de 3.75 Gauss.

En résumé, avec une transition résistive d'au moins $20\mu\Omega/mK$, pour ne pas être limité en résolution par ΔR_{RMS} , on peut espérer voir un déplacement de la transition de quelques dixièmes de millikelvin. Ce déplacement correspond à une variation du champ critique de l'ordre de la dizaine de Gauss. Dans ces conditions, c'est la stabilité en température (0.05mK) qui limite la résolution en champ critique. Dans les mesures qu'on a réalisées, on a effectivement atteint cette limite de résolution sur l'échantillon n°2 (§III.3.b).

Résolution en champ critique pour une mesure de dilatation thermique

Pour estimer notre résolution, la seule différence avec une mesure de résistivité, c'est qu'il faut considérer la pente de la transition en dilatation thermique $d\alpha/dT$ à la place de la pente de la transition résistive. Pour URu_2Si_2 , on a $d\alpha/dT \approx -35.57 \cdot 10^{-7} K^{-2}$ par conséquent, avec $\Delta\alpha = 0.15 \cdot 10^{-7}$ (bruit donné par la formule II.(9) moyenné sur 40 points pour comparer à une mesure de résistivité) on obtient $\Delta T \approx 1mK$ ce qui correspond en champ critique à une résolution de 75 Gauss. Une mesure complète avec cette résolution n'a pas été réalisée du fait de notre instabilité en température, et de la période trop longue de nos modulations en température.

III.1)b) Technique de recherche des axes cristallins de l'échantillon **Cas d'une mesure de résistivité**

La première étape de nos mesures d'anisotropie de champ critique consiste à déterminer précisément "in situ" la position des axes cristallins de nos échantillons par rapport à ceux des bobines de champ. L'idée est d'utiliser la forte anisotropie de H_{c2} entre axe **a** et **c**.

Dans toute la suite, le référentiel des bobines est noté $\{xyz\}$, et le référentiel de l'échantillon $\{abc\}$. Un référentiel est repéré par rapport au référentiel $\{xyz\}$ par les angles d'Euler (α, β, γ) . Le champ magnétique **H** est repéré dans un référentiel donné par ses coordonnées polaires (H, ϕ, θ) .

Pour déterminer les angles d'Euler de $\{abc\}$ par rapport à $\{xyz\}$, on repère l'axe cristallin **c** de l'échantillon en utilisant l'anisotropie de champ critique entre le plan tétragonal et l'axe **c**. On procède en 3 étapes (une version du programme a permis d'automatiser les étapes 2 et 3) :

(1) On mesure la transition supraconductrice en appliquant le champ maximum $H=8500$ Gauss pour avoir le maximum de résolution.

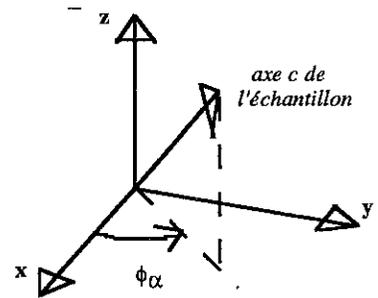
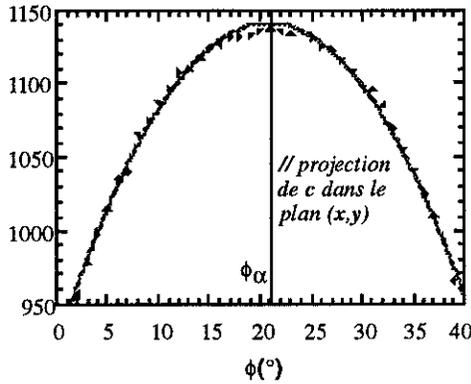
(2) On utilise la méthode décrite précédemment : on régule en température de manière à se placer au milieu de la transition et on fait tourner le champ dans le plan xy ($\alpha=\beta=\gamma=0^\circ$; $\phi : 0^\circ \rightarrow 360^\circ$, $\theta=90^\circ$). Dans la plupart des cas, on doit recommencer cette opération en changeant la température de régulation de manière à obtenir un maximum de résistivité au milieu de la transition (pour avoir un maximum de résolution, il faut repérer le maximum de résistivité à l'endroit où la transition est la plus raide possible). De cette manière, on repère l'angle ϕ_α du maximum de résistivité, cette direction correspond à la projection de l'axe **c** dans le plan xy .

(3) Toujours en régulant à la même température, on fait tourner le champ magnétique dans le plan x_1y_1 perpendiculaire au plan xy et dont la direction

d'intersection avec xy est définie par l'angle ϕ_α (le plan x_1y_1 est repéré par $\alpha=\phi_\alpha, \beta=0^\circ, \gamma=90^\circ$; et le champ H dans x_1y_1 par $(\phi : 0^\circ \rightarrow 360^\circ, \theta=90^\circ)$), on repère alors l'angle ϕ_γ du maximum de résistivité. Cet angle nous donne la direction de c dans le plan x_1y_1 .

La figure [III.3] donne un exemple d'orientation d'un échantillon (il s'agit de l'échantillon n°2 décrit dans le paragraphe III.3).

$R(\mu\Omega)$



$R(\mu\Omega)$

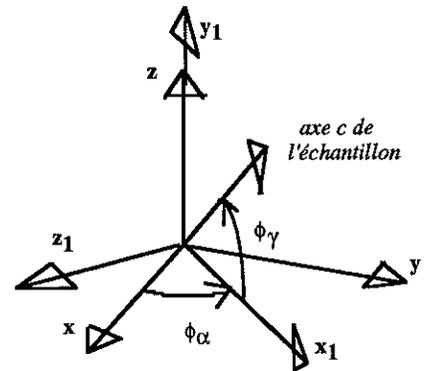
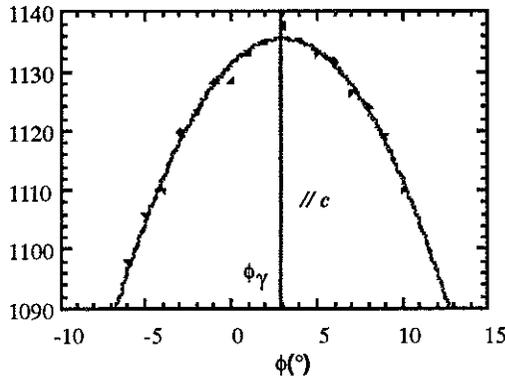


Figure III-3]: Détermination de la direction de l'axe c . Le référentiel de l'échantillon est repéré par les angles d'Euler : $\alpha=(\phi_\alpha-90^\circ), \beta=0^\circ, \gamma=(90^\circ+\phi_\gamma)$

Cas d'une mesure de dilatation thermique

En principe, la technique décrite dans le cas d'une mesure de résistivité est applicable à une mesure de dilatation thermique. En fait, avec notre géométrie de mesure, on n'a pas besoin de déterminer la position des axes cristallins de l'échantillon par rapport aux axes des bobines : l'axe c de l'échantillon est confondu avec l'axe de la bobine z . En effet, l'échantillon est un cylindre d'axe c posé sur un plan horizontal.

III.1)c) Mesure dans le plan tétragonal de l'échantillon

Cas d'une mesure de résistivité

Pour faire tourner le champ dans le plan tétragonal de l'échantillon, il suffit de programmer une rotation en champ avec $\alpha=(\phi_\alpha-90^\circ)$, $\beta=0^\circ$, $\gamma=(90^\circ+\phi_\gamma)$; $\phi : 0^\circ > 360^\circ$, $\theta=90^\circ$ en réglant à une température fixe, une fois encore, de manière à se placer dans de la transition supraconductrice. Un effet intrinsèque d'anisotropie du champ critique doit nous permettre de repérer les axes (a,b) dans le plan basal.

Cas d'une mesure de dilatation thermique

Pour faire tourner le champ dans le plan tétragonal de l'échantillon et étant donné notre géométrie de mesure (un cylindre d'axe c posé sur un plan horizontal), il suffit de programmer une rotation en champ dans le plan (x, y) ($\alpha=\beta=\gamma=0^\circ$; $\phi : 0^\circ > 360^\circ$).

III.2) Les différents effets d'anisotropie possibles

Dans cette partie, on explique plus en détail le possible effet d'anisotropie du champ critique dans le plan basal dont on a déjà parlé dans le chapitre I (§I.1.a), le but initial de nos mesures étant d'essayer de détecter cet éventuel effet. Dans cette partie, on énumère aussi les différents effets d'anisotropie autres que l'effet recherché auxquels nos mesures peuvent être sensibles. En ce qui concerne les effets liés à la géométrie, la philosophie a été de chercher à les éliminer au maximum en jouant sur notre géométrie de mesure. Dans le cas où certains effets ne sont pas éliminables (c'est le cas par exemple de la magnétorésistance en résistivité avec un courant de mesure dirigé selon l'axe a de l'échantillon), on explique dans le paragraphe III.2.c comment les différencier d'un éventuel effet d'anisotropie lié à la symétrie du paramètre d'ordre.

III.2)a) Effets liés à la géométrie de mesure

Cas d'une mesure de résistivité

(i) Susceptibilité magnétique, champ démagnétisant

Tout d'abord, il faut être sûr que l'échantillon mesuré voit bien le champ magnétique H_{bobines} qu'on pense lui appliquer ! Une estimation rapide montre que la perturbation du champ magnétique causée par l'échantillon du fait de ses propriétés magnétiques est tout à fait négligeable. En effet, en dessous de 10K, URu₂Si₂ a un comportement paramagnétique avec une susceptibilité selon l'axe a de 10^{-3} uem/mole [Palstra85]. Une borne supérieure de la correction à apporter au champ appliqué est donnée par l'aimantation M de l'échantillon : $M=\chi \times H_{\text{bobines}}$. Pour un échantillon de URu₂Si₂ de 5 mg soit 10^{-5} mol, on a $\chi=10^{-8} \times 4\pi 10^{-6}$ S.I., valeur qui correspond à la correction relative à apporter au champ exprimé en Tesla. Les effets de géométrie qui tendent à aligner l'aimantation M selon la longueur maximale de l'échantillon quelque soit l'orientation du champ donnent un effet inférieur à cette valeur. On voit donc que les effets de champ démagnétisant sont complètement négligeables.

(ii) *Magnétoresistance, effet Hall*

Un autre type d'effet parasite est la variation de la résistivité sous champ magnétique. De manière générale, la loi d'Ohm pour un conducteur soumis à un champ magnétique B prend la forme suivante :

$$E_i = \rho_{ik}(B) J_k$$

où E_i sont les composantes de champ électrique et où J_k sont les composantes de densité de courant injectées dans l'échantillon.

Pour un système à symétrie tétragonale, le tenseur de résistivité s'écrit (les composantes des différentes grandeurs sont repérées par rapport au système d'axes cristallins) en fonction des composantes B_x, B_y, B_z du champ B :

$$\begin{aligned} \rho_{xx} &= A^{(0)} + A^{(2)}B_x^2 + B^{(2)}B_y^2 + D^{(2)}B_z^2 \\ \rho_{xy} &= A^{(1)}B_z + 2F^{(2)}B_x B_y \\ \rho_{xz} &= -B^{(1)}B_y + 2G^{(2)}B_x B_z \\ \rho_{yx} &= -A^{(1)}B_z + 2F^{(2)}B_x B_y \\ \rho_{yy} &= A^{(0)} + A^{(2)}B_x^2 + B^{(2)}B_y^2 + D^{(2)}B_z^2 \\ \rho_{yz} &= B^{(1)}B_x + 2G^{(2)}B_y B_z \\ \rho_{zx} &= B^{(1)}B_y + 2G^{(2)}B_x B_z \\ \rho_{zy} &= -B^{(1)}B_x + 2G^{(2)}B_y B_z \\ \rho_{zz} &= C^{(0)} + C^{(2)}B_x^2 + C^{(2)}B_y^2 + E^{(2)}B_z^2 \end{aligned}$$

III.(2)

L'ensemble des coefficients avec les indices (1) rendent compte de l'effet Hall, les coefficients avec les indices (2) traduisent la magnétoresistance. Pour interpréter qualitativement les formules III.(2), dans ρ_{ij} , i indique la composante E_i qui doit être projetée dans la direction des contacts de tension pour obtenir la composante de champ électrique mesurée, j indique la composante J_j de courant injecté. Les différentes composantes de courant injecté sont déterminées par l'orientation des contacts de courant par rapport aux axes cristallins de l'échantillon.

Tous les coefficients ρ_{ij} n'ont pas été mesurés. Dans la littérature on peut trouver pour une température de 1 Kelvin les valeurs de :

$$A^{(0)} = C^{(0)} = 33 \mu\Omega \cdot \text{cm}^{-1}, \quad A^{(2)}/A^{(0)} = 2.1 \cdot 10^{-3} \text{T}^{-2}, \quad C^{(2)}/A^{(0)} = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Tesla}^{-2} \text{ [Palstra86]}$$

Le coefficient de Hall à 1 Kelvin : $R_H < 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{Coulomb}$ [Onuki87] (les auteurs ne précisent pas suffisamment leur géométrie de mesure pour savoir si ce R_H correspond au coefficient $A^{(1)}$ ou $B^{(1)}$ de la formule III.(2)).

Même si l'on ne connaît pas quantitativement tous les effets possibles, l'intérêt des formules III.(2) est de savoir a priori quelles composantes sont présentes pour une géométrie donnée et quelle est la période de l'effet qu'elles produisent. L'effet Hall correspond à une modulation de la résistance de période 2π et la magnétoresistance à une modulation de période π .

(iii) *Supraconductivité de surface*

Le dernier effet lié à la géométrie est dû au phénomène de supraconductivité de surface. Ce phénomène est décrit dans le chapitre I (§I.1.c) où l'on donne notamment la valeur calculée du rapport H_{c3}/H_{c2} . C'est en fait l'effet le plus gênant, car il se traduit par une anisotropie de la pente initiale, exactement comme l'effet qu'on recherche (§II.2.b). En plus du rapport H_{c3}/H_{c2} , on a besoin, pour interpréter nos mesures, de connaître la dépendance angulaire $H_{c3}(\theta)$ où θ est l'angle repéré par

rapport à la surface limitant le supraconducteur. Un calcul de cette dépendance angulaire dans le cas d'un supraconducteur isotrope (c-à-d avec H_{c2} isotrope) est proposé par Yamafuji *et Al* [Yamafuji66]. La formule analytique obtenue est :

$$\left(\frac{H_{c3}(\theta)}{H_{c3}(90^\circ)}\right)^2 \frac{\cos^2(\theta)}{\sigma^2} [1 + |\tan\theta| (1 - |\sin\theta|)] + \frac{H_{c3}(\theta)}{H_{c3}(90^\circ)} |\sin\theta| = 1 \quad \text{III.(3)}$$

où $\sigma = H_{c3}(0^\circ)/H_{c3}(90^\circ) = H_{c3}/H_{c2}$ est le rapport d'anisotropie. On a ajouté des valeurs absolues à la formule d'origine pour pouvoir faire varier θ entre 0° et 360° .

$H_c(\theta)$

H_{c2}

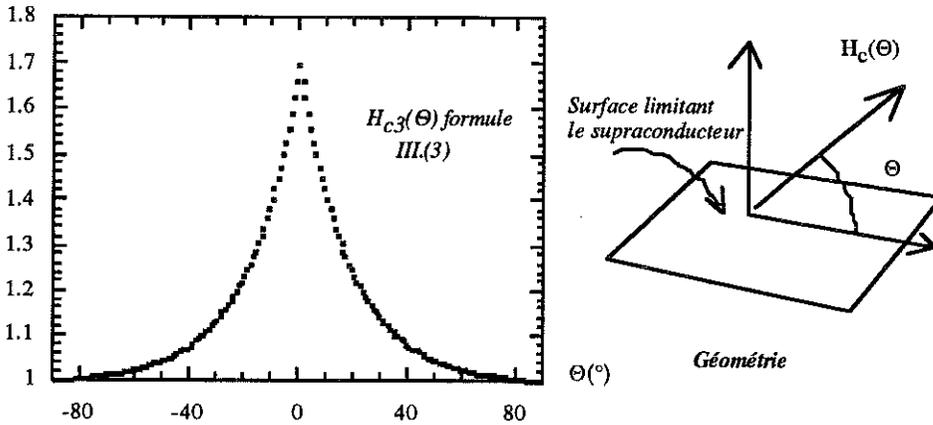


Figure III-41: Dépendance angulaire de H_{c3} prédite par Yamafuji (formule III.(3)) avec un rapport d'anisotropie $\sigma=1.695$.

Si l'on prend pour le rapport d'anisotropie σ , la valeur 1.695 prédite dans le cadre de la théorie de Ginzburg-Landau (formule I.(21)), l'effet de supraconductivité de surface (figure [III-7]) est un effet très important : il renforce le champ critique H_{c2} de 70%. De plus, cet effet se manifeste par un point anguleux dans la dépendance angulaire du champ.

Cas d'une mesure de dilatation thermique

(i) Champ démagnétisant

Comme on l'a montré dans le paragraphe précédent, les effets de champ démagnétisant sont tout à fait négligeables.

(ii) Magnétostriction

Les différents coefficients de magnétostriction b_{ijk} sont définis à partir de la variation relative de longueur $\lambda_i = (L_i(\mathbf{B}) - L_i(0)) / L_i(0)$ (où i est la composante dans le repère des axes cristallins (a, b, c) et $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)$ le champ magnétique appliqué) par la relation :

$$\lambda_i = b_{ijk} B_j B_k \quad \text{III.(4)}$$

où la sommation sur les indices j et k est implicite.

Pour les géométries simples où l'on mesure la longueur de l'échantillon selon la direction d'un axe cristallin (repéré par l'indice i) et où le champ \mathbf{B} est appliqué selon ce même axe ou selon un autre axe cristallin, la formule III.(4) s'écrit simplement :

$$\lambda_i = b_i B^2 \quad \text{III.(5)}$$

Les coefficients b_i sont beaucoup plus grands pour $\mathbf{B} // \mathbf{c}$ (axe de facile aimantation) que pour $\mathbf{B} // \mathbf{a}$ [Kayzel87] [van Dijk94]. Notre géométrie de mesure est telle que l'on mesure la longueur de l'échantillon selon son axe \mathbf{c} . Or, pour un système de symétrie tétragonale où les axes \mathbf{a} et \mathbf{b} sont équivalents, on a $\lambda_c(\mathbf{B} // \mathbf{a}) = \lambda_c(\mathbf{B} // \mathbf{b})$ et une anisotropie de λ_c dans le plan basal, si elle existe, doit être extrêmement faible. Par conséquent, notre géométrie est choisie de telle sorte que l'on doit être insensible aux effets anisotropes de magnétostriction.

III.2)b) Effets intrinsèques

On discute maintenant les deux effets indépendants de la géométrie de mesure et qui se manifestent par une anisotropie du champ critique.

Symétrie du paramètre d'ordre

Comme on l'a expliqué dans le chapitre I, pour un système de symétrie tétragonale, une anisotropie dans le plan basal de la pente initiale du champ critique serait la signature d'un paramètre d'ordre bidimensionnel. Cette prédiction théorique est basée sur la théorie de Ginzburg Landau [Burlakov85]. Pour une symétrie tétragonale et pour un paramètre d'ordre bidimensionnel, l'expression I.(13) de l'énergie libre devient⁽¹⁾ à l'ordre le plus bas :

$$F = \int (\alpha (\nabla_c \cdot \mathbf{T}) \eta_1^* \eta_1 + \frac{1}{2m_1} \partial_{ij}^* \eta_1^* \partial_{ij} \eta_1 + \frac{1}{2m_2} (\partial_{11}^* \eta_1^* \partial_{11} \eta_1 + \partial_{1j}^* \eta_1^* \partial_{1j} \eta_1) + \frac{1}{2m_3} \partial_{11}^* \eta_1^* \partial_{11} \eta_1 + \frac{1}{2m_4} \partial_{21}^* \eta_1^* \partial_{21} \eta_1) dV \quad \text{III.(6)}$$

où :

$$\partial_{\mathbf{k}} = \nabla_{\mathbf{k}} - \frac{2ie \mathbf{A} \cdot \mathbf{k}}{c}$$

et où (η_1, η_2) sont les composantes du paramètre d'ordre bidimensionnel.

C'est à partir de cette énergie libre et par un calcul variationnel que Burlakov obtient l'expression analytique de $H_{c2}(\Phi)$, où Φ est l'angle polaire repéré dans le plan basal:

$$H_{c2}(\Phi) = \frac{\alpha \frac{c}{2e}}{\sqrt{P_4} \times \sqrt{P_1 + \frac{P_2 + P_3}{2}} - \frac{1}{2} \sqrt{(P_2^2 + (2P_2 P_3 + P_3^2) \cos^2(2\Phi))}} \quad \text{III.(7)}$$

Les coefficients $P_i = 1/2m_i$ sont des paramètres phénoménologiques. Ainsi, l'ordre de grandeur de l'effet auquel on peut s'attendre est indéterminé.

⁽¹⁾ Les invariants de l'énergie libre et donc les coefficients phénoménologiques qui doivent apparaître dans le développement de l'énergie libre pour telle ou telle symétrie sont déterminés grâce à la théorie des groupes (Cf [Ueda/Sigrist91] pour tabulation).

Sur la figure [III-5] de gauche, le champ critique III.(7) est représenté en coordonnées polaires, l'effet prédit a une période de 90° .

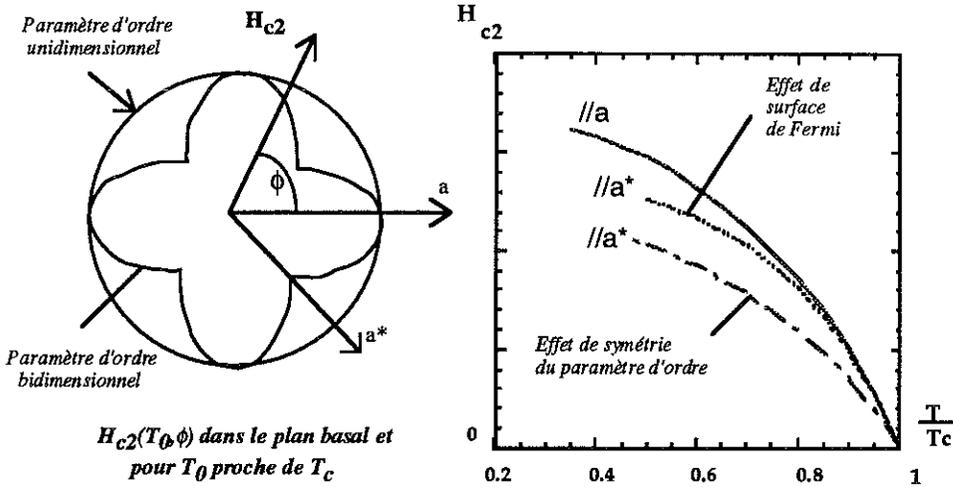


Figure [III-5]: Effet prédit représenté en coordonnées polaires (à gauche) et sur le diagramme de phase (H,T) (à droite). Sur la figure de droite, on montre que l'effet de symétrie du paramètre d'ordre apparaît tout près de T_c , ou, autrement dit, il est calculable à partir du développement de l'énergie libre F à l'ordre le plus bas (III.(6)). Cet effet correspond à une anisotropie de la pente initiale du champ critique et se manifeste linéairement en température. Sur cette même figure, on a aussi représenté un autre effet possible d'anisotropie du champ critique dans le plan basal : l'effet d'une anisotropie de la surface de Fermi (S.F.). Le point important à noter est que pour un système de symétrie tétragonale, il faut pousser le développement de F (formule III.(6)) à l'ordre supérieur pour calculer cet effet. Il correspond à une anisotropie de la courbure du champ critique et se manifeste non linéairement en température.

Sur la figure [III-5] de droite, on a représenté l'effet prédit près de T_c ainsi qu'un autre effet d'anisotropie possible. Ce deuxième effet est lié à l'anisotropie de la surface de Fermi.

Anisotropie de la surface de Fermi

Comme on l'a expliqué dans le chapitre I, le champ critique H_{c2} , près de T_c , est toujours déterminé par la limite orbitale. Ainsi, le champ critique est sensible à l'anisotropie éventuelle des masses effectives cyclotron (c'est-à-dire le tenseur des masses effectives dans le plan perpendiculaire au champ appliqué) ou, autrement dit, à l'anisotropie de la surface de Fermi. Sur la figure [III.5] de droite est représenté cet effet intrinsèque qui se manifeste sur la courbure du champ critique. Pour le calculer, il faudrait pousser à l'ordre supérieur le développement III.(6) de l'énergie libre.

III.2)c) Critères pour différencier les différents effets

On a vu que les effets de champ démagnétisant sont négligeables.

Pour une rotation du champ dans le plan basal, la géométrie idéale pour ne pas avoir d'effets liés à des variations de la résistivité sous champ est d'injecter le courant selon l'axe c de l'échantillon et de mesurer le champ électrique, ou de manière

équivalente la différence de potentiel, dans cette même direction. Dans ce cas, on mesure seulement la composante ρ_{zz} du tenseur de résistivité (formule III.(2)). De plus, comme on fait tourner H dans le plan basal, on a $B_z=0$ et donc il ne reste dans ρ_{zz} que le terme isotrope : $C^{(0)}+C^{(2)}H^2$. Cela dit, on a mesuré des géométries où apparaissent des effets anisotropes de magnétorésistance. On procède alors de la manière suivante : on mesure l'anisotropie de la résistivité de l'échantillon dans sa phase normale pour s'assurer que l'on n'a pas de contribution de période $\pi/2$ et pour estimer l'ordre de grandeur des composantes de période π (magnétorésistance). Ensuite, on corrige de cet effet la mesure dans la phase supraconductrice. Les effets d'anisotropie de transport sont proportionnels à la résistance mesurée. Par conséquent, pour un champ donné, ces effets augmentent avec la température (figure (a)[III-6]).

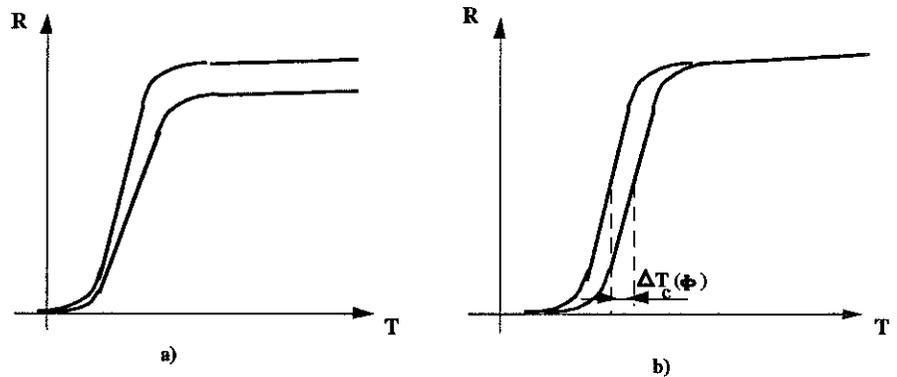


Figure [III-6]: Différence de comportement en température le long d'une transition supraconductrice entre (a) une anisotropie de transport et (b) une anisotropie de champ critique.

La supraconductivité de surface, est une anisotropie du champ critique. Ce phénomène se manifeste donc par un déplacement de la transition (figure (b)[III-6]), il faut jouer sur la géométrie de mesure pour l'éliminer, la géométrie idéale étant celle d'un disque d'axe c (§III.4.c).

Enfin, pour différencier les deux effets intrinsèques sur H_{c2} qui se manifestent par un déplacement de la transition (figure (b)[III-6]), on mesure son changement d'amplitude pour différentes valeurs de champ magnétique, ce qui nous donne la dépendance de l'effet en température le long du diagramme de phase. L'effet de symétrie du paramètre d'ordre est linéaire en température, alors que le comportement en température de l'effet d'anisotropie de surface de Fermi est quadratique (cf légende figure [III-5]).

III.3) Qualité des échantillons mesurés

Elaboration des échantillons, critères de qualité

D'une manière générale, les propriétés supraconductrices des fermions lourds sont très sensibles à la qualité des échantillons. Un effort très important a été réalisé par P. Lejay (CRTBT/CNRS) pour améliorer la qualité des échantillons d' URu_2Si_2 pendant la durée de cette thèse. L'élaboration se fait en trois étapes. Tout d'abord, les trois éléments de l'alliage URu_2Si_2 sont purifiés par la technique de fusion de zone

sous ultravide⁽²⁾. Ensuite, un polycristal d' URu_2Si_2 est obtenu en faisant fondre dans un four à induction le mélange stoechiométrique des composés de départ. L'alliage en fusion est maintenu en lévitation (pour éviter la contamination par des impuretés) au-dessus d'un creuset refroidi, dans une atmosphère d'argon purifié. Pour terminer, un monocristal est élaboré à partir de ce polycristal dans un four "tri-arc" par la méthode du tirage de Czochralsky sous atmosphère d'argon purifié. Il est possible que cette méthode engendre des inhomogénéités (surtout radiales) dans les échantillons d' URu_2Si_2 à cause de l'établissement d'un gradient thermique (voir figure [III-7]).

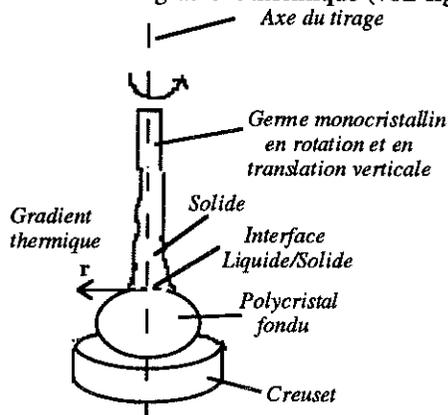


Figure [III-7]: Schéma de principe d'un tirage de Czochralsky. L'échantillon est tiré à partir d'un germe en rotation continue. Il peut exister un gradient thermique entre le centre et la périphérie de la colonne de tirage.

Deux types d'inhomogénéités peuvent exister dans l'échantillon :

— une inhomogénéité chimique. Le degré de substitution dépend de la position r dans le cristal, la structure chimique ayant la forme $URu_{2-\varepsilon(r)}Si_{2+\varepsilon(r)}$. Une étude expérimentale du composé UR_2Si_2 [Vernière95], très proche chimiquement de URu_2Si_2 , a mis en évidence l'existence de substitutions des atomes Ir par des atomes Si (de l'ordre de 1%).

— une inhomogénéité mécanique c'est-à-dire un champ de contrainte dans l'échantillon. Dans le cas d' URu_2Si_2 , des mesures sous pression montrent que T_C diminue fortement avec la pression : $dT_C/dP \approx -100 \text{ mK/kbars}$ [Onuki87], [McElfresh87]. Si l'on prend un module d'Young pour URu_2Si_2 égal à $3 \cdot 10^3 \text{ kbars}$ [Bullock90], une variation de T_C de 100 mK correspond à une variation relative en volume de $3 \cdot 10^{-4}$ soit, si l'on suppose une compression isotrope, une variation relative du paramètre de maille de 10^{-4} . Tous les échantillons ont été découpés à la scie à fil excepté le disque n°5 (clivé puis poncé) et l'échantillon n°6 (clivé aux deux extrémités). Ils ont tous subi un recuit après modification de leur géométrie. L'optimisation du temps et de la température du recuit présente une grande importance dans les composés à fermions lourds. Le but des recuits est de diminuer les inhomogénéités d'origine mécanique (en faisant relaxer les contraintes) et de

(2) Cette technique consiste à fondre localement l'élément à purifier puis à le balayer plusieurs fois par cette zone de fusion locale. Au dernier balayage, on laisse se réchauffer la zone liquide au bout de l'échantillon puis on coupe ce bout d'échantillon. L'efficacité de cette technique réside dans le fait que les impuretés sont plus solubles dans le liquide que dans le solide.

diminuer le nombre de défauts présents dans l'échantillon. Avec nos températures de recuit, on ne change ni le taux d'impuretés ni le taux de substitutions.

Pour évaluer la qualité des échantillons mesurés, on dispose de 4 critères :

(i) Le premier critère concerne la pureté chimique des échantillons. Des mesures par microsonde montrent que la composition chimique de nos meilleurs échantillons d' URu_2Si_2 est exacte à 0.01% près. Autrement dit, si on écrit la composition de l'alliage sous la forme $\text{URu}_{2-\varepsilon(r)}\text{Si}_{2+\varepsilon(r)}$ on a $\varepsilon(r) < 0.0002$ et donc si des substitutions existent elles sont 100 fois moins nombreuses que ce qui a été observé dans URu_2Si_2 [Vernière95].

(ii) Le deuxième critère concerne la qualité cristallographique des échantillons. Des mesures au rayonnement synchrotron (ESRF) montrent sur les meilleurs cristaux une mosaïque avec des désalignements inférieurs à 0.01 degrés (pour un cristal de 1 cm de long) et un paramètre de maille constant, en valeur relative, à moins de 10^{-4} près pour tout le volume de l'échantillon. Autrement dit, les échantillons sont très bons au niveau cristallographique. Cependant, il faut bien réaliser qu'une variation relative de $3 \cdot 10^{-4}$ du volume de l'échantillon correspond à un déplacement de la transition de 100mK.

(iii) Le troisième critère qui donne une mesure indirecte des défauts et du taux d'impuretés de l'échantillon (lacunes, substitutions, dislocations), est le rapport de résistivité entre 300K et 4.2K: $r.r. = \rho(300\text{K})/\rho(4.2\text{K})$: plus il est important, et plus on peut s'attendre à une résistivité résiduelle ρ_0 petite. Pour comparer les échantillons entre eux, on a préféré considérer $r.r.$ plutôt que ρ_0 comme critère de qualité car ρ_0 mesure bien sûr l'effet des collisions résiduelles électron-impureté et électron-défaut mais aussi les propriétés magnétiques intrinsèques de l'échantillon. De plus, sa détermination se fait avec une incertitude expérimentale importante (taille des contacts, extrapolation de la résistance à $T=0$ Kelvin) : $\rho_0 = (10 \pm 5) \mu\Omega \cdot \text{cm}$ pour nos différents échantillons à champ nul et pour I/a ou I/c . Compte tenu de la qualité cristallographique des échantillons, on peut estimer que la quantité $r.r.$ mesure surtout le taux d'impuretés et le taux de lacunes et de substitutions dans le cristal.

(iv) Enfin, le dernier critère mesure les inhomogénéités du cristal : c'est la largeur de transition supraconductrice. En effet, dans un échantillon inhomogène, les différentes zones de l'échantillon ne transitent pas à la même température, ce qui se traduit par un élargissement de la transition. Dans ce cas, plus le champ magnétique est élevé, plus la transition s'élargit⁽³⁾. En principe, les mesures de dilatation thermique sont particulièrement sensibles aux inhomogénéités : on "somme" les inhomogénéités sur toute la longueur de l'échantillon, ce qui n'est pas le cas pour une mesure en résistivité où les zones qui transitent à plus haute température "court-circuitent" les zones qui transitent à plus basse température.

Dans le tableau [III-8] sont résumés les résultats des critères de qualité (iii) et (iv) ainsi que les géométries de mesure des différents échantillons. Par ailleurs, on a indiqué en dernière colonne la pente de la transition dR/dT en $\mu\Omega \cdot \text{K}^{-1}$. Cette pente dépend de la qualité des échantillons (raideur de la transition) mais dépend aussi de la géométrie de l'échantillon (distance entre contacts,...). Cette grandeur nous intéresse en pratique pour connaître notre résolution expérimentale en champ critique (§III.1.a). Les échantillons n°4 et 5 proviennent du même tirage, l'échantillon n°5 a été mesuré en dilatation thermique.

(3) Les différents diagrammes de phase des différentes zones de l'échantillon s'écartent sous champ, ce qui se traduit par un élargissement de la transition supraconductrice lorsqu'on augmente le champ magnétique.

Echantillon	Recuit	$\frac{\rho(300K)}{\rho(4.2K)}$	Largeur de transition critère 10%→90%	Géométrie de mesure	Côtes (mm)	$\frac{dR}{dT} (\mu\Omega.mK)^{-1}$
n°1	Non recuit	24.2	125mK	Parallélépipède avec I//a et 3 contacts de tension (test d'homogénéité)	1,5 x 0,3 ²	X
		24.1	148mK		2 x 0,3 ²	
n°2	5j. à 950°C	20.8	45mK	Parallélépipède avec I//c	2 x 0,24 x 0,475	28.6
n°3	5j. à 950°C	12.1	65mK	Parallélépipède avec I//a	1,5 x 0,32 x 0,5	16.9
n°4	5j. à 1050°C	25	30mK	Disque ponsé d'axe c avec I⊥(a,b)	$\phi=3$ e=1.1	3.5
n°5	5j. à 1050°C	X	170mK ⁽⁴⁾	Cylindre d'axe c	$\phi=3$ L=5	X

Tableau [III-8]: Caractéristiques des différents échantillons mesurés.

En fait, de tous les critères dont on dispose, le plus sensible à la qualité des échantillons est le critère (iv). En effet, si l'on se fie aux critères (i) et (ii), les échantillons (2) à (5) sont parfaits alors que leur transition supraconductrice reste large. Ce point est illustré dans les deux paragraphes qui suivent.

Echantillon n°1, test d'homogénéité par une mesure de résistivité

Le tirage des monocristaux est, comme on l'a dit au paragraphe précédent, réalisé par la méthode de Czochralsky. Dans le cas d'URu₂Si₂, on suppose que cette technique engendre surtout des inhomogénéités radialement à l'axe de tirage.

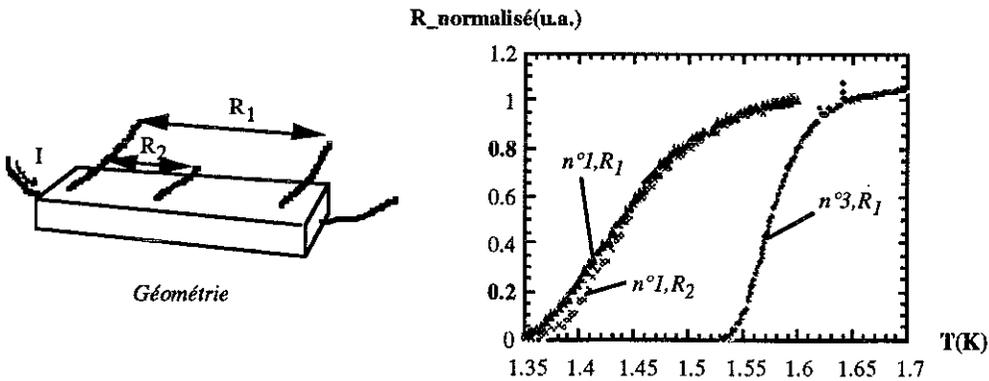


Figure [III-9]: Inhomogénéités des échantillons, effet de recuit.

La mesure reportée en figure [III-9] illustre de façon très claire ce problème d'inhomogénéités. L'échantillon n°1 a été tiré selon l'axe c. Les contacts de tension sont donc disposés radialement à l'axe de tirage. Contrairement à l'échantillon n°1,

(4) Mesuré en dilatation thermique.

l'échantillon n°3 a été recuit, ce qui diminue considérablement sa largeur de transition. Cette observation implique que les inhomogénéités sont en grande partie d'origine mécanique. On a cherché au maximum à rapprocher les contacts de tension pour mesurer des parties d'échantillon les plus homogènes possibles. Cependant, le fait d'avoir une transition moins haute en résistivité diminue la pente dR/dT et donc la résolution en ΔT_c (voir § I.1 sur la méthode de mesure). Il faut trouver un compromis entre les deux.

Parallèlement à ce test d'inhomogénéité radiale, on a étudié l'homogénéité d'un échantillon selon son axe de tirage (axe c) par une mesure de dilatation thermique.

Echantillon n°5, test d'homogénéité par une mesure de dilatation thermique

Les échantillons n°4 et n°5 sont issus d'un même tirage suivant l'axe c. L'échantillon n°4 est le meilleur échantillon mesuré avec une largeur de transition de 30mK et un rapport de résistivité de 25, les contacts de tension étant très rapprochés du centre de l'échantillon. En figure [III-10], on compare les transitions des échantillons en dilatation thermique et en résistivité.

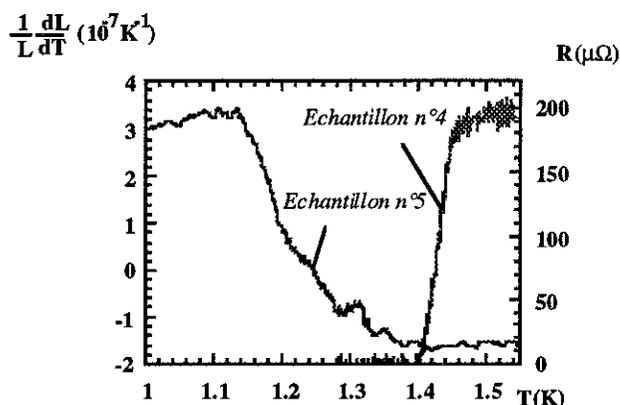


Figure III-10]: Transition résistive (n°4) et en dilatation thermique (n°5)

L'idée de cette comparaison était de chercher à voir si la transition mesurée radialement à l'axe de tirage (échantillon n°4) s'élargit plus sous champ que la transition mesurée longitudinalement à cet axe de tirage (échantillon n°5). Le résultat est qu'aussi bien pour l'échantillon n°4 que pour l'échantillon n°5, la transition ne s'élargit pas sensiblement sous champ.

Par ailleurs, on a comparé notre échantillon n°5 à un échantillon d' URu_2Si_2 mesuré en dilatation thermique par [van Dijk94a] (figure (b)[III-11]) et de largeur de transition à champ nul comparable.

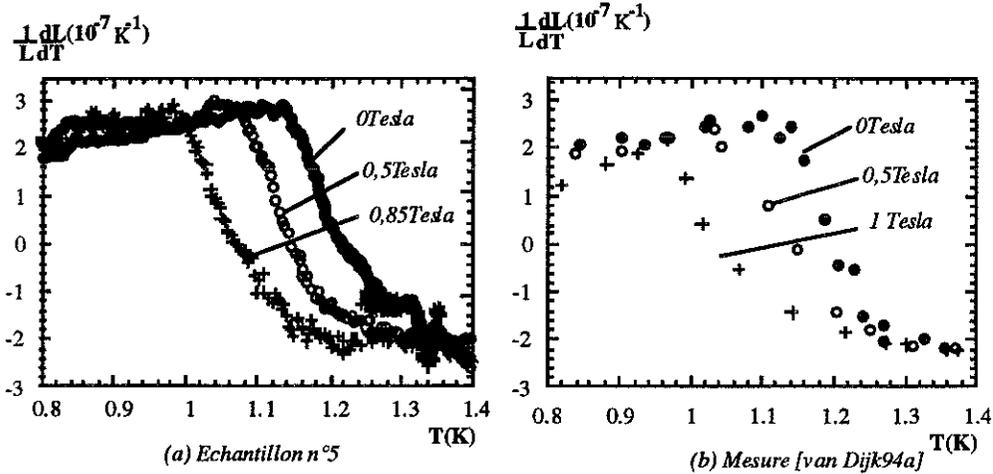


Figure [III-11]: En comparaison à un échantillon mesuré sous champ en dilatation thermique par van Dijk (b), la transition de notre échantillon n°5 (a) semble moins s'élargir au niveau du pied.

Malheureusement, compte tenu des largeurs de transition initiale, le résultat n'est pas très clair : il semble que notre échantillon s'élargisse moins sous champ que l'échantillon mesuré par van Dijk, mais pour pouvoir l'affirmer avec certitude, il aurait fallu pouvoir comparer des mesures à champ plus élevé.

Conclusion

L'ensemble des tests qui ont pu être réalisés sur la qualité des échantillons d'URu₂Si₂ montrent que leur élaboration est particulièrement critique si l'on s'intéresse aux propriétés de la phase supraconductrice de ce composé. Des inhomogénéités sont présentes même dans les meilleurs échantillons. Il est très peu probable que ces inhomogénéités soient d'origine chimique, on suspecte plutôt que ce sont des inhomogénéités mécaniques, c'est-à-dire des contraintes qui élargissent la transition supraconductrice. Ces contraintes pourraient venir de la méthode d'élaboration ou bien encore de la découpe des échantillons. Cependant, l'échantillon n°4 (voir figure [II-10]) est de très bonne qualité : sa largeur relative de transition vaut seulement $\Delta T/T_c = 2\%$.

Quoi qu'il en soit, une étude est en cours pour comparer un tirage selon l'axe a aux résultats obtenus sur les échantillon n°4 et n°5.

Nous allons revenir sur les problèmes d'inhomogénéité dans le paragraphe suivant où l'on détermine la pente initiale du deuxième champ critique.

III.4) Résultats expérimentaux

Au départ, le but de nos mesures était d'essayer de détecter une anisotropie de H_{c2} dans le plan basal. En fait, comme on va le voir dans ce paragraphe, il est très vite apparu que nos mesures sont gênées par des effets de supraconductivité de surface. Par la suite, et après parution de plusieurs articles théoriques sur la supraconductivité de surface des supraconducteurs non conventionnels (voir §1.3), la mesure de supraconductivité de surface s'est révélée être un moyen original de tester la symétrie du paramètre d'ordre. Dans ce paragraphe on s'intéresse donc à deux questions : Existe-t-il une anisotropie du H_{c2} dans le plan basal ? Quelles sont les directions cristallines et les géométries pour lesquelles on détecte de la supraconductivité de surface ?

III.4)a) Pente initiale du champ critique

Dans ce paragraphe, avant de s'intéresser à une détermination fine de l'anisotropie du champ critique dans le plan basal, on présente la détermination de la pente du champ critique selon l'axe a et selon l'axe c par des mesures résistives et par des mesures de dilatation thermique.

Mesure résistive

La pente initiale du champ critique est présentée en figure [III-12] pour deux critères différents. Le critère "onset" est, en principe, moins sensible aux inhomogénéités de l'échantillon puisqu'on suit sous champ la transition de la zone de l'échantillon qui transite le plus haut en température.

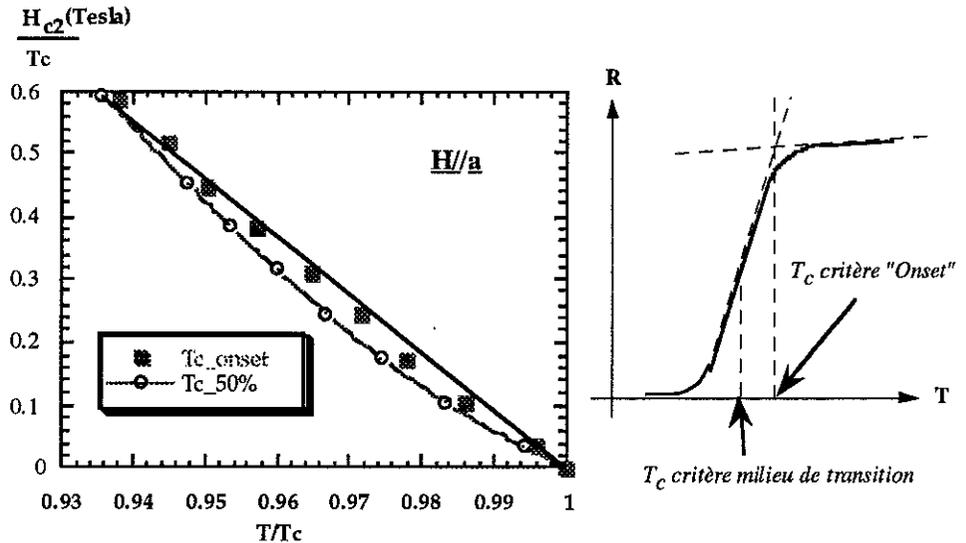


Figure [III-12]: Pente initiale du champ critique pour $H//a$ déterminée par une mesure résistive sur le échantillon n°4 à partir de deux critères.

Sur la figure [III-12], on voit que le champ critique présente une courbure positive lorsqu'il est déterminé à partir du critère "milieu de transition". Par contre,

cette courbure est beaucoup plus faible si l'on détermine H_{c2} par le critère "onset". La pente initiale du champ critique selon l'axe c est présentée en figure [III-13].

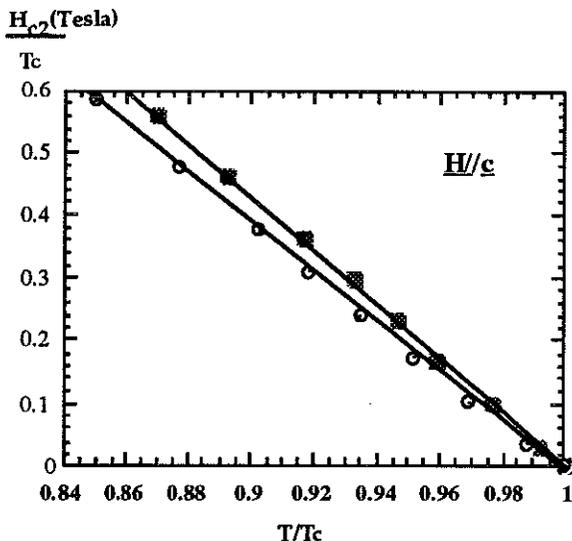


Figure [III-13]: Pente initiale du champ critique H/c déterminée par une mesure résistive sur le échantillon n°4 à partir de deux critères.

Selon l'axe c et pour l'échantillon présenté ici la courbure positive n'apparaît pas. Sur certains échantillons, on mesure aussi une faible courbure selon l'axe c . L'existence d'une courbure positive a été considérée par certains auteurs comme une preuve de supraconductivité non conventionnelle [Kwok90] : le changement la courbure est interprété comme un changement de pente au niveau d'un point tétracritique T^* (figure [III-14]).

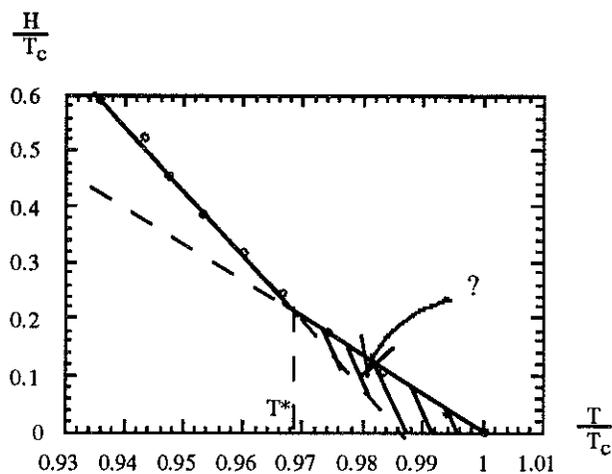


Figure [III-14]: Courbure positive interprétée comme une preuve de l'existence d'une température tétracritique T^* .

en supposant que le changement total de volume est le même que pour la transition mesurée (ce qui revient à égaliser les aires (+) et (-)).

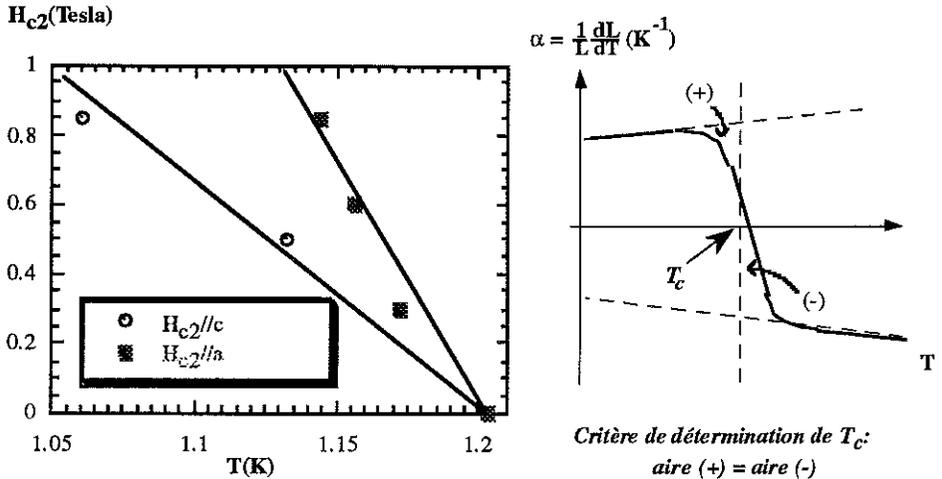


Figure III-18: Pente initiale du champ critique déterminée par une mesure de dilatation thermique sur l'échantillon n°5.

Les valeurs des pentes initiales sont reportées dans le tableau [III-19].

	H//a	H//c
$\frac{dH_{c2}}{dT}$	$(-12 \pm 3) T/K$	$(-6 \pm 1) T/K$

Tableau III-19: Pente initiale du champ critique de l'échantillon n°5 mesuré par dilatation thermique.

Si l'on compare aux résultats du tableau [III-16], on voit que les mesures résistives donnent, dans les barres d'erreur, les mêmes valeurs que les mesures thermodynamiques pour les pentes initiales du champ critique. On mesure bien H_{c2} par les mesures de résistivité : le facteur de renforcement de 1.7 du H_{c3} est inexistant ou fortement réduit (voir les barres d'erreur!). Néanmoins, un petit effet de H_{c3} est clairement vu sur les mesures d'anisotropie de H_{c2} que nous allons maintenant présenter.

III.4)b) Mesure d'échantillons en forme de parallépipède: Echantillon n°2 et 3, supraconductivité de surface.

(i) Résultats

En figure [III-20] sont reportées les mesures effectuées sur les échantillons n°2 et n°3, en forme de parallépipèdes avec le courant suivant l'axe c (échantillon n°2) et suivant l'axe a (échantillon n°3). Dans les deux cas, on fait tourner le champ magnétique de 8500 Gauss dans le plan tétraogonal de l'échantillon et on régle à

température fixe de manière à se placer au milieu de la transition pour $\phi=0^\circ$, comme décrit au §I.1.

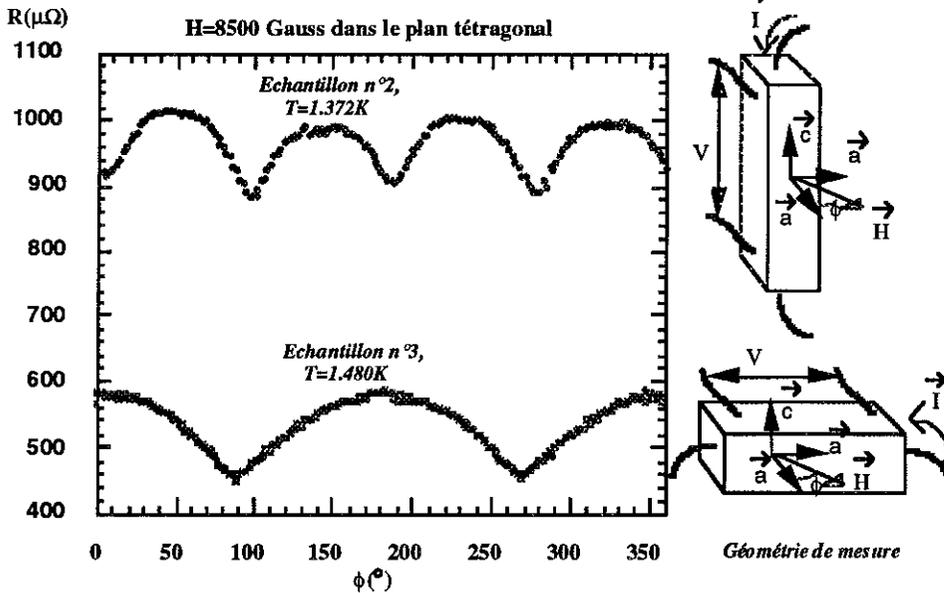


Figure III-20: Rotation du champ dans le plan basal de URu_2Si_2 à température fixe dans le milieu de la transition résistive et pour deux géométries différentes. La première géométrie fait apparaître des modulations de $T_c(H)$ de période 90° , la seconde de période 180° .

Dans le cas de l'échantillon n°3, l'effet est corrigé de l'anisotropie due à la magnétorésistance. On observe dans la première géométrie (échantillon n°2) une modulation avec une période de 90° , et dans la seconde de 180° . L'effet mesuré dans les deux cas correspond à une anisotropie du champ critique. En effet, on a vérifié qu'il s'agit bien d'une translation de la transition supraconductrice et pas d'un effet d'anisotropie de transport dans la phase normale: l'amplitude de l'effet ne dépend pas de la température à laquelle on se place dans la transition (figure [III-27]) et l'effet n'apparaît pas dans la phase normale.

(ii) Interprétation en termes de supraconductivité de surface

De manière évidente, l'effet détecté (figure [III-20]) dépend de notre géométrie de mesure et n'a rien d'intrinsèque. En fait, en mettant de côté pour l'instant la dépendance en température, on peut l'interpréter en termes de supraconductivité de surface. Si l'on calcule l'amplitude de la modulation en champ critique dans le cas de l'échantillon n°3, on obtient le résultat reporté en figure [III-21]. Pour comparer ce résultat à la dépendance angulaire du H_{c3} prédite par Yamafuji et al (formule III.(3)) avec un rapport d'anisotropie $\sigma=H_{c3}/H_{c2}$ égal à 1.7 (formule I.(21)), on fait l'hypothèse importante suivante : *lorsque le champ est perpendiculaire à la surface, on mesure H_{c2}* . Cette hypothèse n'a rien d'évident a priori, car on pourrait imaginer que les surfaces court-circuitent complètement l'échantillon avant même que son volume ne commence à transiter. Ainsi, par nos mesures de résistivité, on n'aurait pas accès à H_{c2} . Un tel "court-circuit" est décrit par exemple dans la référence

[Hempstead64] où pour des densités de courant suffisamment faible (100 fois supérieures à notre densité de courant), les auteurs ne voient transiter que la surface de l'échantillon. Ce sont les valeurs très comparables des pentes initiales du champ critique déterminées en dilation thermique et par des mesures de résistivité (§III.4.a) qui justifient cette hypothèse.

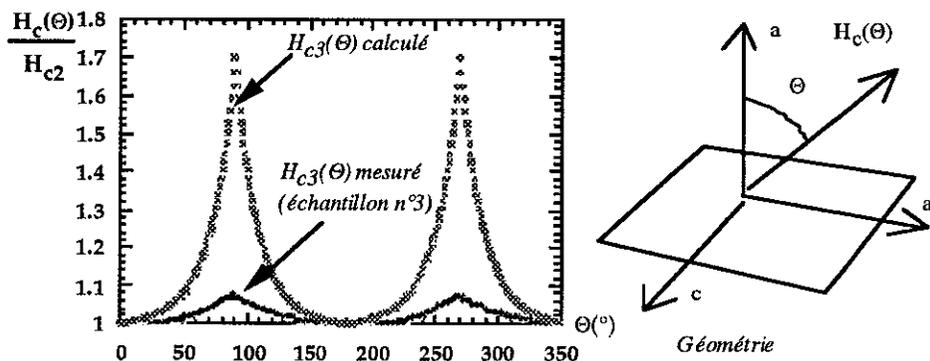


Figure III-21: Comparaison de l'effet mesuré sur l'échantillon n°3 et de la dépendance angulaire calculé par Yamafuji avec le rapport d'anisotropie $H_{c3}/H_{c2}=1.7$.

L'anisotropie mesurée sur URu_2Si_2 est seulement de 7% pour un champ de 8500Gauss, soit dix fois plus petite que la valeur prédite. Cette constatation est examinée dans le paragraphe (iii) suivant. Pour interpréter les mesures des deux échantillon n°2 et n°3, on représente schématiquement un échantillon (fig [III-22]) comme composé de deux résistances de surface en parallèle R_{S1} et R_{S2} (qui transitent sous un champ $H \geq H_{c2}$) en série avec une résistance de volume normale R_N (qui transite sous H_{c2} , le R_N comprend aussi les portions de surface qui restent normales). Dans la géométrie de l'échantillon n°2, les résistances R_{S1} et R_{S2} varient avec l'orientation du champ et les deux variations sont déphasées de 90° . Par contre, dans la géométrie de l'échantillon n°3, une des paires de surface est parallèle au plan (a,b), si bien que leur résistance ne varie pas lorsqu'on fait tourner le champ dans le plan basal.

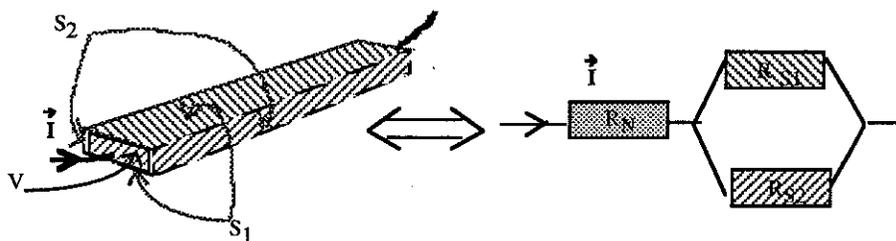


Figure III-22: Interprétation de l'effet mesuré. L'échantillon est, de manière schématique, équivalent à deux résistances en parallèle R_{S1} et R_{S2} dont la résistance varie avec l'orientation du champ en série avec une résistante constante R_N .

On peut ainsi expliquer l'effet mesuré sur l'échantillon n°2 à partir de la mesure de l'échantillon n°3. On considère l'effet en champ mesuré sur l'échantillon

n°3 (environ 7%). On traduit cet effet en résistivité en utilisant les températures de transition et la pente de la transition résistive de l'échantillon n°2. Ensuite, on ajoute deux résistances en parallèle subissant cet effet avec un déphasage de 90°. On retrouve en amplitude l'effet mesuré sur l'échantillon n°2 (figure [III-23]).

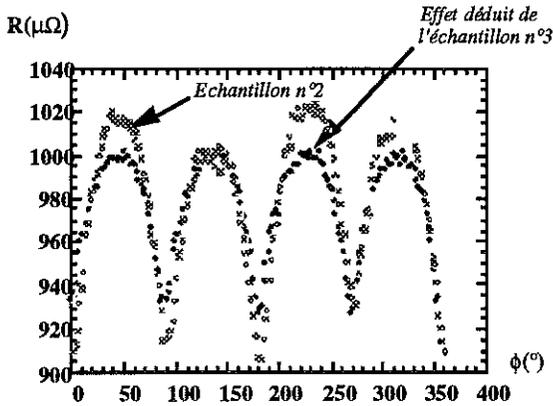


Figure III-23: Interprétation de l'effet mesuré sur l'échantillon n°2 comme superposition de deux effets déphasés de 90°.

On a, par ailleurs mesuré la dépendance en champ de cet effet. On s'attend à ce que le rapport $(H_{\text{mesure}} + \Delta H_c) / H_{\text{mesure}}$ (voir figure [III-2] pour la signification des notations) soit constant quelque soit le champ appliqué. Dans le cas de l'échantillon n°2 on obtient le résultat reporté en figure (a)[III-24].

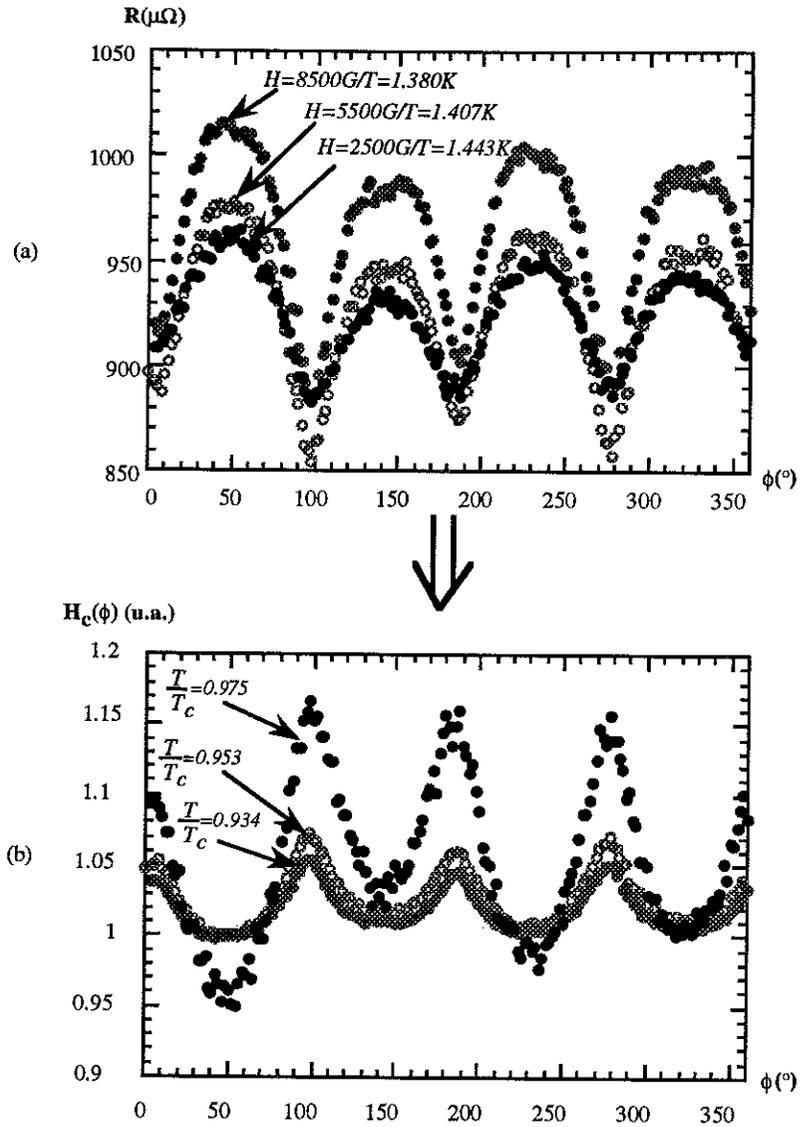


Figure III-24]: (a) Variation de l'effet avec le champ magnétique. (b) Interprétation de (a) en variation relative de champ critique. Les valeurs numériques associées à chaque courbe correspondent au rapport T/T_c .

A partir de la figure (a)[III-24], on obtient la variation avec la température de l'effet (formule III.(1)). On constate que l'amplitude relative de la modulation croît lorsqu'on se rapproche de T_c .

En résumé, l'amplitude de l'effet mesuré, si on l'interprète comme un effet de supraconductivité de surface, est inférieur à l'amplitude prévue et ne se comporte pas en température comme on s'y attend. Pour essayer de comprendre ce comportement, il est nécessaire de s'intéresser de plus près à l'état de surface de nos échantillons.

(iii) Etat de surface des échantillons

L'effet d'une découpe à la scie à fil est d'écraser la surface sur une longueur de quelques dizaines de microns mais aussi de créer des défauts en arrachant des portions de surface. Le recuit permet en principe d'améliorer la surface en faisant relaxer les contraintes. Pour définir de manière plus précise l'état de notre surface, on introduit l'échelle caractéristique L des défauts de surface que l'on doit comparer à l'autre échelle caractéristique de notre système : la longueur de cohérence $\xi(T)$ du supraconducteur. Très schématiquement, on a deux cas limites (figure [III-25]).

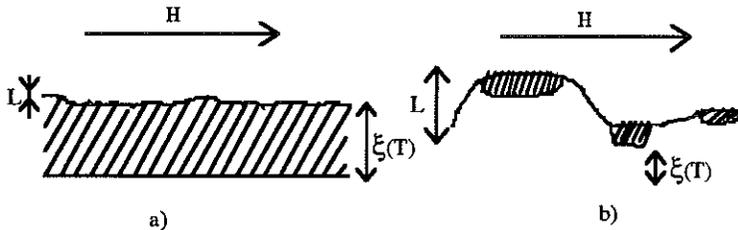


Figure [III-25]: Nucléation près de la surface du supraconducteur, comparaison de la longueur de cohérence ξ à l'échelle caractéristique des défauts L .

— Le cas où $\xi \gg L$: la supraconductivité peut nucléer sur toute la surface d'un seul coup.

— Le cas où $\xi \ll L$: la supraconductivité peut nucléer seulement dans des petites zones de surface parallèle au champ appliqué.

Dans le cas d'un supraconducteur en limite propre, on a, près de T_c [Tinkham75] :

$$\xi(T) = 0.74 \times \xi_0 \times (1 - T/T_c)^{-1/2} \quad \text{III. (8)}$$

Par conséquent, pour notre domaine de température de mesure on obtient: $3 \times \xi_0 < \xi(T) < 6 \times \xi_0$. Or, pour URu_2Si_2 , $\xi_0 \approx 100 \text{ \AA}$ si bien que l'échelle caractéristique à laquelle on doit comparer nos défauts de surface est compris entre 300 \AA et 600 \AA .

Les mécanismes susceptibles de diminuer le rapport d'anisotropie auxquels on peut penser sont au nombre de trois :

(1) Impuretés déposées sur la surface de l'échantillon. On sait que la présence d'une couche métallique ou magnétique diminue le rapport H_{c3}/H_{c2} en modifiant la condition aux limites à la surface du supraconducteur (§I.1.c). Ce mécanisme peut jouer aussi bien dans le cas (a) que dans le cas (b) (figure [III-25]). Toutes les mesures présentées ici sont pour des échantillons "bruts", avec une interface supraconducteur-vide. Cependant, nous avons essayé de déposer une couche ferromagnétique pour diminuer la taille de notre effet (§(v)). Cette tentative n'a pas diminué la taille de l'effet, mais les couches déposées tenaient très mal, ce qui laisse penser que les surfaces de nos échantillons pouvaient présenter systématiquement une couche d'oxyde.

(2) La condition de réflexion spéculaire des électrons à la surface du supraconducteur pour avoir un maximum de H_{c3} est particulièrement importante dans le cas des supraconducteurs non conventionnels. En effet, pour de tels supraconducteurs, la rugosité de la surface a un effet de brisure de paires de Cooper. On peut interpréter l'effet de rugosité de surface sur un supraconducteur non conventionnel comme une modification de la condition aux limites, exactement comme dans le cas d'une couche métallique ou magnétique [Samokhin95]. Ce

mécanisme est à prendre en considération dans le cas (a), et il pourrait intervenir dans le cas (b) si l'on avait une deuxième échelle caractéristique de défauts L_2 telle que $L_2 \ll \xi(T)$. Mais un tel mécanisme explique difficilement pourquoi l'effet observé croît lorsqu'on s'approche de T_c .

(3) Enfin, en supposant qu'on est dans le cas (b) où $\xi(T) \ll L$, l'effet d'anisotropie mesuré serait plutôt une mesure indirecte du rapport $S_{//axe} / S_{désorienté}$ où $S_{//axe}$ est la superficie de la surface orientée dans la direction préférentielle de découpe et $S_{désorienté}$ la superficie des surfaces désinclinées par rapport à cette direction préférentielle. Cette interprétation permet de comprendre le comportement en température de notre effet : lorsque l'on s'approche de T_c , la longueur de cohérence diverge (formule III.(8)), et, par conséquent, la portion de surface devenant supraconductrice sous H_{c3} croît lorsqu'on s'approche de T_c .

En observant la surface d'un de nos échantillons au microscope électronique (cet échantillon avait des contacts de courant et de tension), on a d'une part détecté de l'oxyde d'étain (l'étain vient de la soudure des contacts de courant et de tension) ainsi que des zones d'échantillon très oxydées. D'autre part, on a observé une échelle de rugosité $L \gg \xi(T)$ (on n'a pas pu sonder l'état de surface à une échelle inférieure à $\xi(T)$).

En résumé, l'explication (3) paraît la plus cohérente compte tenu de nos différentes observations.

(iv) Effet à 45° des axes cristallins

En dehors de l'effet de supraconductivité de surface d'environ 7% en champ critique (pour $T/T_c = 0.935$), on a pu repérer la présence de minima reproductibles à 45° des axes cristallins a et b (figure [III-26]). On le voit assez clairement sur l'échantillon n°2, nettement moins clairement sur l'échantillon n°3.

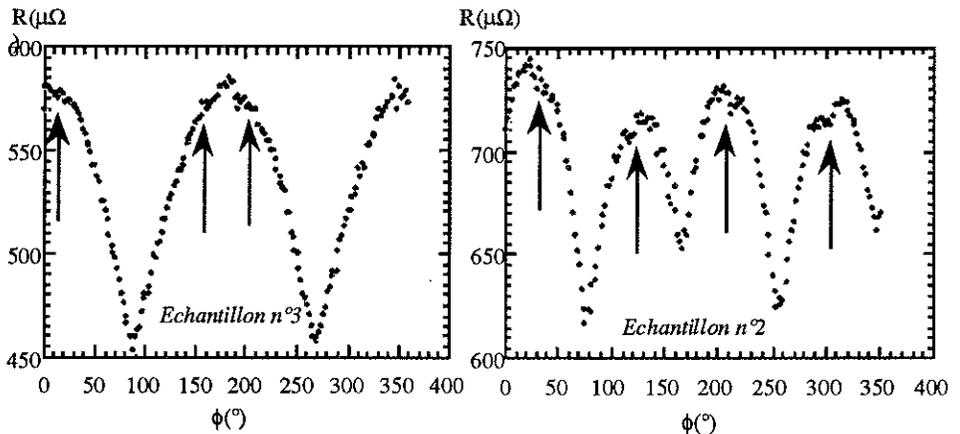


Figure [III-26]: Effet à 45° des axes cristallins.

On a vérifié sur l'échantillon n°2 que l'effet ne dépend pas de l'endroit où l'on se place dans la transition (figure [III-27]), plus précisément l'effet est le plus marqué là où la transition est la plus raide, il semble donc lié à une anisotropie du champ critique et pas à une anisotropie de transport.

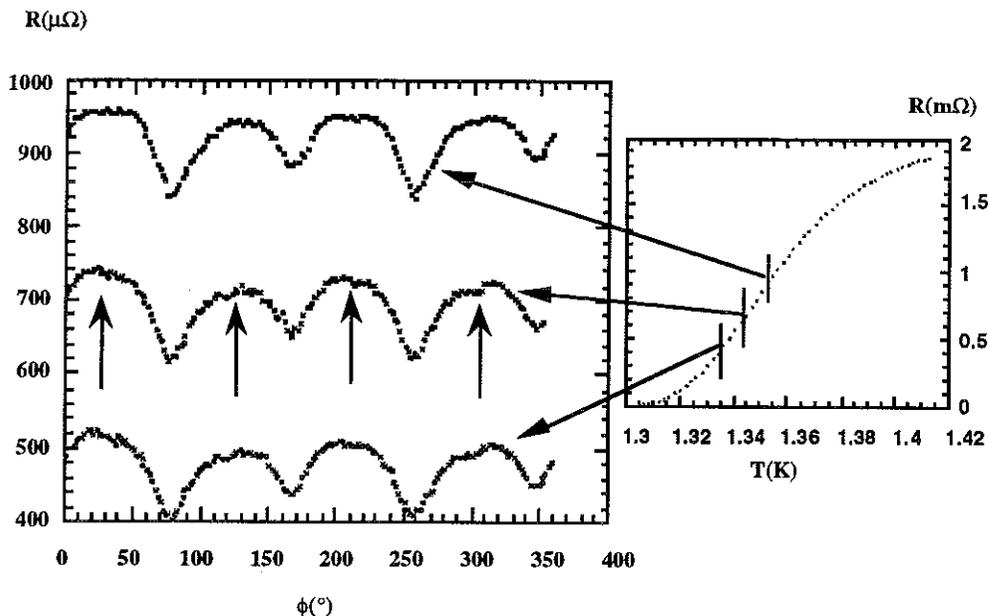


Figure [III-27]: L'effet à 45° des axes cristallins est maximum là où la transition résistive est la plus raide: il peut donc s'interpréter comme un effet sur le champ critique.

Une interprétation possible est l'existence d'une proportion non négligeable de surfaces inclinées à 45° de l'axe de découpe, surfaces qui deviendraient supraconductrices pour un champ orienté dans cette direction. Dans ce cas, l'effet mesuré serait encore une manifestation du phénomène de supraconductivité de surface. Il est difficile de déterminer si cet effet a le même comportement en température que l'effet dominant (supérieur à 7%), car il est trop petit pour être étudié précisément. On ne le détecte plus pour un champ inférieur à 2500 Gauss. Une autre interprétation possible serait un effet dû à une anisotropie de la surface de Fermi. Dans ce cas, et contrairement à l'interprétation précédente, l'effet doit décroître (non linéairement) lorsqu'on s'approche de T_c .

(v) Comment éliminer les effets de surface?

Pour éliminer l'effet de surface susceptible de masquer un éventuel effet d'anisotropie du H_{c2} , on a pensé à trois méthodes :

— D'une part, on a essayé de déposer une couche métallique ou ferromagnétique sur nos échantillons pour tuer la supraconductivité de surface (cf §I.1.c). Nos tentatives pour utiliser cette méthode ont échoué. En fait, il s'avère très difficile de faire tenir une couche métallique (ou ferromagnétique) sur URu_2Si_2 . Il est très probable que la surface de l'échantillon soit oxydée avant qu'on ait fait le dépôt, et un décapage ionique serait sans doute nécessaire avant dépôt.

— D'autre part, on a changé la géométrie de mesure pour éliminer les effets de surface. C'est ce qu'on a tenté de faire en mesurant un échantillon en forme de disque (voir §III.4.d). On peut faire une remarque : en mesurant un disque clivé perpendiculairement à l'axe c , on pourrait espérer ne mesurer que le H_{c3} dans le plan basal. Dans ce cas, ce à quoi on pourrait s'attendre, c'est de mesurer l'effet du H_{c2} , s'il

existe, sur le H_{c3} mais avec une amplitude plus grande (dans le cadre de la théorie BCS H_{c3} "amplifie" H_{c2} d'un facteur 1.7 chapitre I §I.1c)). Cette remarque est tout à fait spéculative étant donné qu'à notre connaissance, un calcul rigoureux du H_{c3} à partir de la théorie de Ginzburg Landau pour une symétrie tétragonale et un paramètre d'ordre bidimensionnel n'a jamais été mené. Malheureusement, l'échantillon était de qualité médiocre. D'autre part, un gros inconvénient du clivage est qu'on ne peut éviter de créer des marches sur la surface de clivage. Ainsi, avec des contacts de courant et de tension sur cette surface on induit une composante J_z de courant et on mesure une composante E_z de champ électrique. Autrement dit, on mesure toutes les composantes ρ_{ij} du tenseur de résistivité avec $i=z$ ou $j=z$, on mesure de l'effet Hall et de la magnétorésistance et le mélange des deux peut faire apparaître un effet de période $\dots\pi/2$ (c'est effectivement ce qu'on voit sur nos mesures dans la phase normale). Quoi qu'il en soit ce disque clivé nous a permis de tester l'existence du H_{c3} pour une des trois géométries présentées dans le paragraphe III.4.d.

— Mesurer le H_{c2} par une mesure thermodynamique directe, et non par une mesure de transport sensible au H_{c3} . La technique de mesure retenue est une mesure de dilatation thermique. Le gros inconvénient de cette technique est qu'a priori on risque de ne pas avoir une très bonne résolution (comparée aux mesures de résistivité). On a tout de même essayé de mettre en oeuvre cette technique pour voir quelle résolution on pouvait atteindre. Les mesures de dilatation nous ont par ailleurs permis de savoir si les mesures de résistivité, malgré les effets de surface, nous donnent accès au H_{c2} .

III.4)c) Mesure d'un échantillon en forme de disque

En figure [III-28], on présente le résultat d'une mesure d'un échantillon en forme de disque.

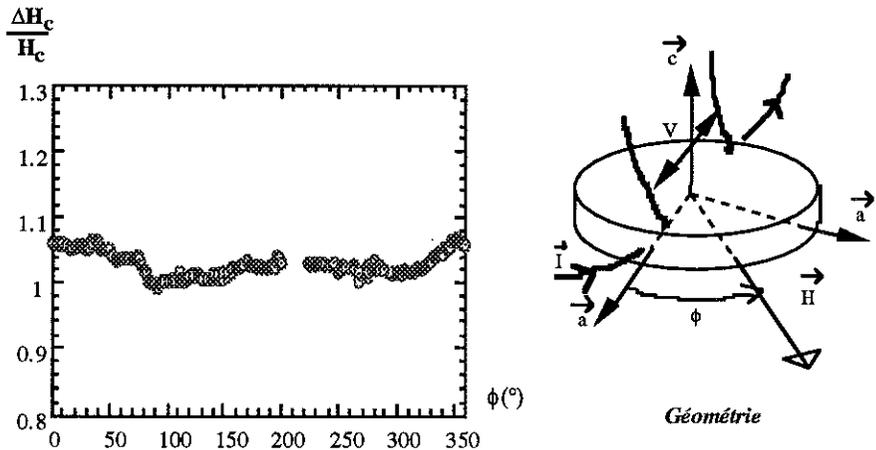


Figure [III-28] Mesure d'un échantillon en forme de disque.

Ce disque a été poli à la pâte diamant de $1\mu\text{m}$. Par conséquent, notre état de surface est caractérisé par une échelle maximum L de défaut de surface de l'ordre de $1\mu\text{m}$ (ce qu'on a vérifié au microscope électronique). A priori, on peut donc supposer qu'on est dans le cas $L \gg \xi(T)$ mais avec des portions de surface orientées dans toutes

les directions. On ne devrait pas détecter d'effet d'anisotropie liée à la supraconductivité de surface. Malheureusement, on a observé des rayures dans une direction privilégiée. Par ailleurs, le facteur géométrique de notre disque est trop petit pour qu'on puisse conclure sur l'élimination de l'anisotropie liée à la supraconductivité de surface (dR/dT petit entraîne une faible résolution de mesure, cf tableau [III-7]). Un meilleur polissage de l'échantillon n°5 est en cours pour amincir le disque et donc pour augmenter son facteur géométrique. Il faut au moins diviser l'épaisseur du disque par 8 pour être dans de bonnes conditions de mesures.

III.4)d) Supraconductivité de surface pour les différents axes cristallins

L'idéal pour tester l'existence de la supraconductivité de surface serait de mesurer un whisker comme il a été fait par N.Keller sur UPt_3 [Keller94]. Pour de tels échantillons, les surfaces sont quasiment parfaites, on est donc extrêmement sensible au H_{c3} . Malheureusement, il n'est pas possible d'élaborer des whiskers de URu_2Si_2 . Quoi qu'il en soit, comme on l'a vu précédemment et avec l'état de surface de nos échantillons, on est sensible à la supraconductivité de surface.

Les trois géométries simples à tester

Dans le cas d'un système de symétrie tétragonale, on peut tester trois configurations simples dans deux géométries différentes :

- (a) : $H//a$ et pour une surface perpendiculaire à l'axe a
- (b) : $H//c$ et pour une surface perpendiculaire à l'axe a
- (c) : $H//a$ et pour une surface perpendiculaire à l'axe c

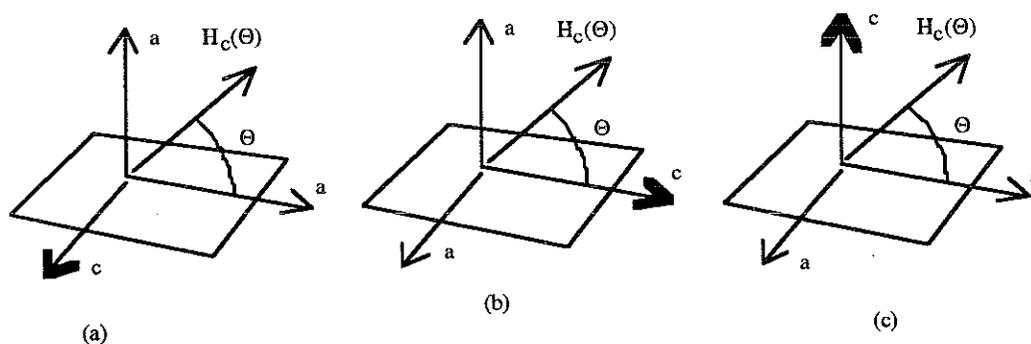


Figure [III-29] : Les trois configurations simples pour lesquelles on peut tester l'existence du H_{c3} dans le cas d'un système de symétrie tétragonale.

En principe, ces configurations doivent nous permettre de faire la différence entre les paramètres d'ordre avec une ligne de noeuds équatoriale (pas de H_{c3} dans la géométrie (c)) et certains paramètres d'ordre avec une ligne de noeuds méridienne (pas de H_{c3} dans la géométrie (a) et (b))

Test de la supraconductivité de surface pour les géométries (a) et (b).

Il faut noter tout d'abord, en liaison avec la question de l'existence du H_{c3} dans les supraconducteurs non conventionnels, que c'est le même plan de réflexion (celui qui limite le supraconducteur) qui intervient dans les configurations (a) et (b) et donc dans les considérations sur les opérations de symétrie sur le paramètre d'ordre. Par conséquent, si l'on détecte H_{c3} dans la configuration (a), alors, de manière équivalente, on doit détecter H_{c3} dans la configuration (b). Inversement, si H_{c3} n'existe pas dans la configuration (a), de manière équivalente il ne doit pas exister dans la configuration (b). Comme on l'a expliqué précédemment, l'effet principal détecté est interprété comme l'existence de H_{c3} dans la géométrie (a). Une géométrie qui nous permet de tester la supraconductivité de surface selon l'axe c est la géométrie de l'échantillon n°3. Malheureusement, selon l'axe c , on est gêné par l'anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c (c'est d'ailleurs cet effet qui nous permet de déterminer l'orientation de l'échantillon cf §I.1), anisotropie qui, lorsque le champ est proche de l'axe c , varie en sens inverse de l'effet de supraconductivité de surface. Cependant, on peut comparer une mesure de l'anisotropie du H_{c3} pur à une mesure de l'anisotropie du H_{c2} plus celle due au H_{c3} en procédant comme décrit en figure [III-30]. Il nous faut préciser que cette mesure a été faite pour rechercher l'axe c . Elle est donc réalisée pour $H=8500G$ et à $T/T_c=0.867$. Or, comme on l'a vu précédemment, l'effet de supraconductivité de surface diminue lorsqu'on s'éloigne de T_c . Par conséquent, pour détecter H_{c3} , le plus judicieux serait de faire une mesure à un champ plus faible pour s'approcher de T_c et renforcer l'effet de surface par rapport à l'anisotropie due aux masses effectives. Néanmoins, le résultat obtenu pour tenter de détecter H_{c3} suivant l'axe c est reporté en figure [III-30].

$$\frac{H_c(\Theta)}{H_c(0^\circ)}$$

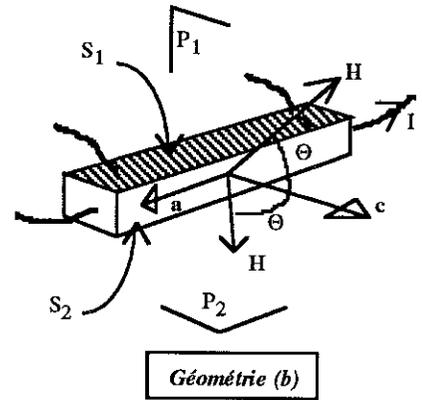
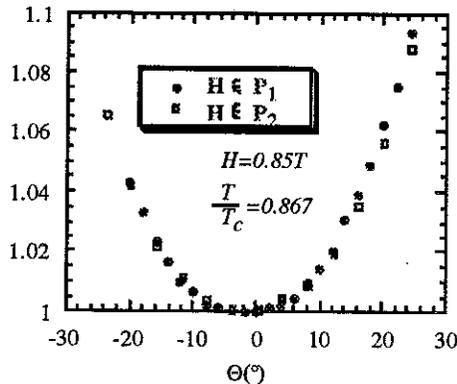


Figure [III-30]: Recherche d'un indice de supraconductivité de surface pour $H//c$. Lorsque H tourne dans le plan P_2 , il reste parallèle à la surface S_1 , on mesure donc l'anisotropie de H_{c2} (plus exactement celle de H_{c3} qui une fois renormalisée, devrait être identique à l'anisotropie de H_{c2}) plus l'effet de la surface S_2 . Lorsque H tourne dans le plan P_1 , on mesure l'anisotropie du H_{c2} plus les effets des surfaces S_1 et S_2 .

La rotation dans le plan P_2 a été corrigée de l'effet de magnétorésistance (inférieur à 1%). On peut légitimement oublier l'effet de la surface S_2 puisqu'on est à moins de 30° de sa normale. De toute façon, l'effet de cette surface est le même pour la rotation dans le plan P_1 que pour la rotation dans le plan P_2 . Pour $\Theta=25^\circ$, si on

avait un effet de supraconductivité de surface par exemple de l'ordre de 5% selon l'axe c , H_{c3} aurait diminué de 3% à 4% par rapport à sa valeur maximale mesurée au même angle Θ pour H dans le plan P_2 . Or, on ne détecte pas de différence entre les deux courbes de la figure [III-30].

En résumé, on détecte H_{c3} dans la géométrie (a) et pas dans la géométrie (b). Il faut cependant garder à l'esprit que la détection de H_{c3} dans la géométrie (b) est plus difficile que dans la géométrie (a) d'une part parce qu'on est gêné par l'anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c et d'autre part parce que pour un même champ l'effet est plus petit en valeur relative selon l'axe c que selon l'axe a (la pente du champ critique est moins raide selon l'axe c). Cela dit, la détection de H_{c3} dans la géométrie (b) est nécessaire pour que nos résultats soient cohérents; une mesure du type de celle présentée en figure [III-30] doit être faite à un champ plus faible pour tenter de détecter H_{c3} , car plus le rapport T/T_c est grand, plus l'effet de supraconductivité doit être renforcé par rapport à l'anisotropie du H_{c2} .

Test de la supraconductivité de surface selon l'axe a , pour une surface perpendiculaire à l'axe c .

Pour tenter de détecter la supraconductivité de surface suivant a et pour une surface perpendiculaire à l'axe c on a mesuré un échantillon clivé perpendiculairement à son axe c . Malheureusement cet échantillon est de qualité médiocre (largeur de transition de 150mK, il n'est pas présenté dans le tableau [III-7]). Néanmoins, le fait que sa surface soit clivée est intéressant pour tester l'existence du H_{c3} . Le résultat obtenu pour un champ de 0.85Tesla et un rapport T/T_c de 0.855 est reporté en figure [III-31].

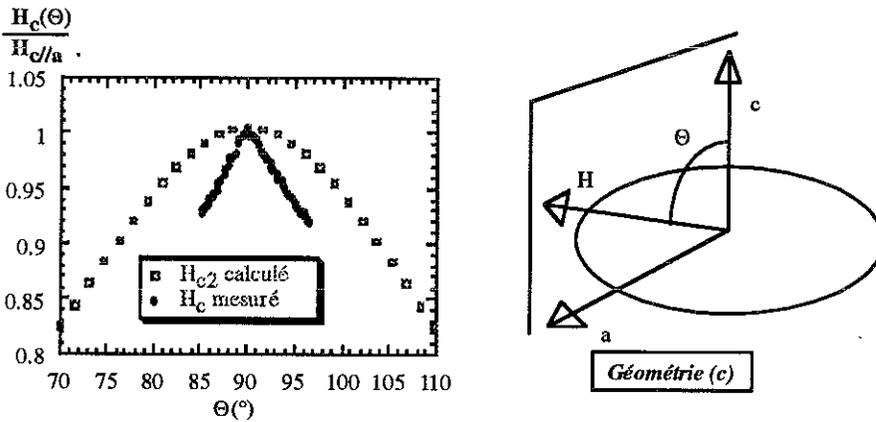


Figure [III-31]: Supraconductivité de surface sur un échantillon en forme de disque clivé perpendiculairement à l'axe c . On détecte H_{c3} par sa dépendance angulaire beaucoup plus piquée qu'une dépendance liée à l'anisotropie des masses effectives (courbe calculée numériquement à partir de la formule I.(16)).

Sur cette figure, on voit très clairement que la dépendance angulaire du champ critique près de T_c ne peut pas s'expliquer par la seule anisotropie du H_{c2} : on détecte de la supraconductivité de surface qui renforce le champ critique près de l'axe a . Même si l'amplitude de l'effet est inférieure à la valeur classique de $1.7H_{c2}$, on voit que l'effet est facilement détectable à $T/T_c=0.855$.

Le fait qu'on détecte H_{c3} dans la configuration (a) (cf. figures [III-29] et [III-20]) défavorise les paramètres d'ordre A_{2g} et B_{2g} (cf. légende du tableau [III-32]). Une configuration intéressante à tester serait celle d'un échantillon avec une surface S contenant l'axe c et à 45° des axes a et b. Dans ce cas, on pourrait tester les paramètres d'ordre B_{1g} , A_{2g} et A_{2u} (cf. [Ueda/Sigrist91] où les opérations de symétries sur le vecteur $\mathbf{d}(\mathbf{k})$ sont aussi examinées dans le cas d'un fort couplage spin-orbite).

L'anisotropie du diagramme de phase de URu_2Si_2 favorise un paramètre d'ordre impair avec $\mathbf{d} // \mathbf{z}$ (cf chapitre I). Dans ce cas, le paramètre d'ordre A_{1u} est possible avec $b=0$, c'est ce qui explique pourquoi on considère la condition $b=0$ dans le tableau [III-32]. Une autre raison pour considérer le cas $b=0$ est que si A_{1u} est possible avec $a \neq 0$ et $b \neq 0$, la chaleur spécifique doit suivre une loi exponentielle à basse température [Gorkov87] car alors on n'a ni ligne ni point de zéro dans le gap supraconducteur. En résumé, si l'on fait confiance aux critères de Chen et Garg [Chen/Garg96], le fait qu'on détecte une supraconductivité de surface dans un plan perpendiculaire à l'axe c interdit une ligne de zéro liée à une brisure de symétrie cristalline dans le plan basal de URu_2Si_2 : les paramètres d'ordre E_g ou A_{1u} sont défavorisés.

Enfin, pour conclure, il semble nécessaire de mieux contrôler l'état de surface de nos échantillons afin de déterminer de manière plus quantitative le rapport H_{c3}/H_{c2} . En effet, le critère que l'on a utilisé n'est strictement valable que pour une surface parfaite (pour satisfaire la condition de réflexion spéculaire) et le fait que l'on mesure un rapport très inférieur à 1.7 (cas d'une surface parfaite) ne nous permet pas d'interpréter nos mesures en toute fiabilité.

**CHAPITRE IV: RECHERCHE DE LA PHASE FFLO
DANS LE COMPOSE UBe_{13} , COUPLAGE FORT**

Comme on l'a précisé dans le chapitre I, le fermion lourd UBe_{13} est un bon candidat pour la recherche de la phase FFLO puisque c'est un supraconducteur 3D en limite propre et subissant, à basse température, une limitation de son champ critique par l'effet paramagnétique. L'étude entreprise sur ce composé avait pour but initial de vérifier par une mesure de son champ critique si l'apparition de cette phase FFLO est plausible. On savait déjà, et ceci dès les premières mesures, qu' UBe_{13} est un supraconducteur en couplage fort (mesure du saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice [Ott84], régime de liquide de Fermi mal défini à T_c [Ott87b]). En confrontant la mesure du champ critique d' UBe_{13} à un modèle théorique simple proposé par A.I.Buzdin [Thomas96], il est apparu que la valeur de la constante de couplage fort λ (voir ci-dessous pour définition) dans UBe_{13} est particulièrement élevée. Ce résultat nous a poussé à étudier plus en détail les effets de couplage fort en réalisant des mesures sous pression. Avant de présenter les résultats expérimentaux proprement dits, nous allons brièvement exposer les caractéristiques de la théorie du couplage fort en nous concentrant sur ses effets sur le champ critique H_{c2} .

IV.1) Supraconductivité en couplage fort, effets sur le champ critique

Nous allons très brièvement décrire la théorie du couplage fort. Cette théorie est exposée dans le volume (1) des ouvrages de Parks [Scalapino69]. Pour un article de revue récent sur ce sujet on pourra se référer à [Carbotte90] où la discussion est orientée sur le problème des oxydes supraconducteurs à haute température critique.

IV.1)a) Couplage faible, couplage fort

Dans toute la discussion de ce paragraphe, on suppose que les électrons s'attirent par échange de *phonons* dont l'échelle caractéristique d'énergie est la température de Debye Θ_D . Pour une approche théorique récente d'un couplage attractif entre électrons d'origine magnétique, on pourra se référer à [Nakamura96] où le cas des supraconducteurs 3D est étudié dans le cadre d'une théorie de couplage fort.

Couplage faible

Un supraconducteur est en couplage faible si les échelles d'énergie le caractérisant vérifient la relation :

$$k_B T_c \ll k_B \Theta_D \ll E_F \quad \text{IV.(1)}$$

où T_c est la température critique du supraconducteur et E_F l'énergie du niveau de Fermi dans la phase normale. Ainsi, à T_c , le régime de liquide de Fermi est très bien défini car il n'existe quasiment plus d'excitations thermiques du réseau. C'est la polarisabilité du réseau qui est seule responsable du couplage attractif entre électrons : les électrons échangent des phonons virtuels. L'hypothèse IV.(1) simplifie le traitement du problème puisqu'il n'y a pas à tenir compte des interactions des électrons avec le "gaz de phonons". La théorie du couplage faible a la particularité d'être une théorie à un seul paramètre : la température critique (voir par exemple les formules I.(11), I.(12), I.(14),...). L'interaction électron-phonon n'intervient que dans l'expression de T_c , qui dans le cadre de cette théorie, est relié à la densité d'état au niveau de Fermi $N(0)$, au potentiel effectif attractif V entre électrons et à la température de Debye par la relation :

$$k_B T_c = 1.13 k_B \Theta_D \exp\left(\frac{-1}{N(0)V}\right) \quad \text{IV.(2)}$$

L'exemple type de supraconducteur très bien décrit par la théorie BCS est l'aluminium. Dans cette approximation de couplage faible, on n'a aucune sensibilité aux détails du mécanisme c'est-à-dire au spectre d'excitation des phonons.

Couplage fort

Dans la théorie du couplage fort, les hypothèses IV.(1) sont remises en question : on suppose qu'on peut avoir $k_B T_c \approx k_B \Theta_D$. A T_c , il reste alors beaucoup de phonons thermiques. Par conséquent, les interactions électron-phonon sont fortes et entraînent un temps de vie très court pour les quasi-particules associées aux électrons de conduction : le liquide de Fermi est alors mal défini à T_c ⁽¹⁾. Dans le cas des fermions lourds, les interactions responsables du raccourcissement du temps de vie des quasi-particules peuvent avoir des origines multiples : électron-phonon, électron-électron, électron-excitation magnétique. Le formalisme des fonctions de Green permet de traiter de front les deux problèmes à N corps : le gaz d'électrons et le gaz de phonons. Son application au problème de la supraconductivité permet d'établir les équations d'Eliashberg. Ce sont deux équations non linéaires qui couplent les deux grandeurs $Z(\omega)$ et $\Delta(\omega)$. La fonction $Z(\omega)$ contient l'information sur la renormalisation des masses effectives des quasi-particules due aux interactions électron-phonon. La fonction $\Delta(\omega)$ contient l'information sur la structure en énergie des excitations au dessus du gap supraconducteur. Le fait que $Z(\omega)$ soit couplé à $\Delta(\omega)$ signifie que la renormalisation des masses effectives (ou autrement dit les interactions électron-phonon) est modifiée par l'apparition de la supraconductivité⁽²⁾. Par contre, dans cette théorie, il est supposé que ni les interactions électron-électron ni le spectre des phonons n'est modifié par l'apparition de la phase supraconductrice.

Dans les équations d'Eliashberg, on a comme paramètres :

— La densité spectrale d'interaction électron-phonon $\alpha^2 F(\omega)$ où $\alpha(\omega) \approx \alpha$ est la force du couplage et $F(\omega)$ la densité spectrale des phonons.

— Le potentiel écrant d'interaction Coulombienne entre les électrons $\mu^*(\omega) \approx \mu^*$ qui s'oppose à la supraconductivité.

A partir de la densité spectrale d'interaction électron-phonon, on définit le paramètre de couplage fort λ :

$$\lambda = \int_0^{\infty} \frac{2\alpha^2 F(\omega)}{\omega} d\omega \quad \text{IV.(3)}$$

Ce paramètre qui traduit la force du couplage est aussi appelé paramètre effectif de renormalisation puisqu'il est relié à la masse effective m^* des quasi-particules par la relation :

$$1 + \lambda = Z(\omega=0) = \frac{m^*}{m} \quad \text{IV.(4)}$$

(1) Si on considère la relation d'incertitude d'Heisenberg $\Delta E \Delta t > \hbar$ (où Δt est la durée de vie du niveau excité et ΔE l'incertitude en énergie sur ce niveau excité), quand Δt diminue, l'incertitude sur les niveaux d'énergies des quasi-particules augmente et lorsque ΔE est de l'ordre de grandeur de l'écart entre niveaux excités du système, on ne peut plus utiliser la description en termes de liquide de Fermi.

(2) Dans les équations d'Eliashberg, on introduit la relation de dispersion de la bande de conduction des électrons supposés sans interaction avec le bain de phonons, relation de dispersion qui définit la masse de bande m , la vitesse de Fermi de bande v_F , etc...

où m est la masse des électrons de la bande de conduction supposés sans interaction avec les phonons et m^* la masse m renormalisée par les interactions avec les phonons. Pour faire le lien avec la théorie du couplage faible, λ joue le même rôle que le paramètre de couplage $N(0)V$:

$$\lambda \approx N(0)V \quad \text{IV.(5)}$$

Du fait que la densité de phonons thermiques, qui ont un effet de brisure de paires de Cooper, diminue avec la température, on a un renforcement de la supraconductivité pour $T \rightarrow 0$ et donc un renforcement du gap supraconducteur $\Delta(T)$ à $T=0$.

Un exemple connu de supraconducteur en couplage fort est le plomb pour lequel $\lambda=1.5$ et $\mu^* \approx 0.1$. Le plomb a été très étudié dans les années soixantes pour tester la théorie du couplage fort: en mesurant la densité des états excités de ce supraconducteur (c.à.d. $\Delta(\omega)$) par effet tunnel [MacMillan65], on retrouve la densité spectrale des phonons (dans $\alpha^2F(\omega)$) mesurée par diffraction inélastique de neutrons [Stedman69].

Deux indications expérimentales d'une supraconductivité en couplage fort sont :

— La phase normale est un mauvais liquide de Fermi

— Le saut de chaleur spécifique à la transition est supérieur à la prédiction en couplage faible : $\Delta C/C=1.43$ dans le cadre de la théorie BCS alors que $\Delta C/C=3$ par exemple pour le plomb. Cette dernière indication n'est valable que pour λ pas trop grand car pour $\lambda \gg 1$, $\Delta C/C$ devient inférieur à la valeur BCS [Carbotte90].

Comme on va le voir dans le paragraphe IV.1b), et dans le cas des fermions lourds, la détermination du champ critique permet aussi de tester si l'on est dans la limite du couplage fort ou du couplage faible.

Effets du couplage fort sur la phase normale

Dans la phase normale, le gap supraconducteur $\Delta(\omega)$ est nul. Par contre le phénomène de renormalisation des masses effectives ou autrement dit les interactions électron-phonon sont bien évidemment déjà présentes dans la phase normale. Par conséquent, la fonction de renormalisation $Z(\omega)$ et donc le paramètre de couplage λ sont aussi bien définis dans la phase normale que dans la phase supraconductrice. Expérimentalement, les paramètres électroniques que l'on mesure sont les paramètres renormalisés : la relation de dispersion, la surface de Fermi déterminent v_F^* , m^* , $\rho^*(E_F)$, ... Si l'on peut calculer théoriquement l'effet du réseau périodique sur les électrons de conduction ou autrement dit la relation de dispersion de bande (qui définit v_F , m_b , ...), on a accès au paramètre λ puisque :

$$v_F^* = v_F / (1 + \lambda) \quad \text{et} \quad 1 + \lambda = m^* / m_b \quad \text{IV.(6)}$$

Dans la plupart des métaux, les interactions électron-phonon jouent un rôle important. Ces interactions ont été très étudiées et sont bien comprises [Parks..]. Leur effet principal est d'augmenter la densité d'états au niveau de Fermi en modifiant la relation de dispersion près du niveau de Fermi [Ashcroft76] (voir figure [IV-1]).

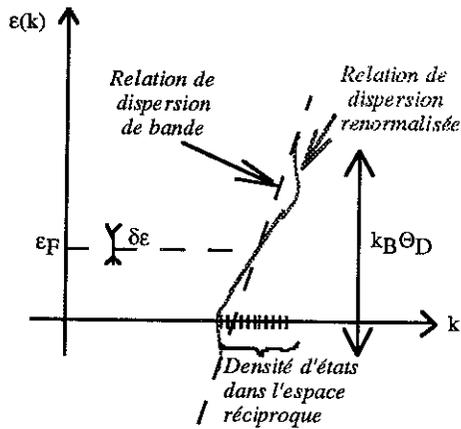


Figure [IV- 1]: Effet des interactions électron-phonon sur la relation de dispersion de bande, c'est-à dire la relation de dispersion des électrons de conduction, si l'on tient seulement compte de l'effet du réseau périodique (courbe en pointillés). Les interaction électron-phonon augmentent la densité d'états au niveau de Fermi sur une largeur $k_B \Theta_D$ en énergie: pour une même gamme d'énergie $\delta \epsilon$, il y a plus d'états accessibles en énergie sur la courbe continue que sur la courbe en pointillés.

Par contre, il est beaucoup plus difficile de traiter théoriquement les interactions électron-électron et électron-excitation magnétique ce qui explique pourquoi, comme on l'a déjà précisé dans l'introduction, on ne sait pas expliquer de manière satisfaisante la très forte renormalisation des masses effectives dans les systèmes à fermions lourds. Pour cette raison, le modèle proposé dans la suite pour interpréter le champ critique d' UBe_{13} ne présume en rien de l'origine de la renormalisation des masses effectives et de la valeur de λ .

IV.1)b) Effets du couplage fort sur le champ critique

Pour considérer les effets sur le champ critique, les deux points importants sont bien évidemment la renormalisation des masses effectives mais aussi le renforcement du gap supraconducteur à basse température.

Limite orbitale

En limite orbitale, l'effet se fait surtout ressentir sur la pente initiale du champ critique à cause de la renormalisation de la masse effective ou bien, de manière équivalente, de la vitesse de Fermi : $v_F^* = (1+\lambda)^{-1} v_F$ (IV.(6)). Par ailleurs, on a une légère augmentation du rapport :

$$\frac{H_{c2}(0)}{\left(\frac{dH_{c2}}{dT}\right)_{T=T_c}} \times T_c$$

comparé à sa valeur en couplage faible, à cause de la diminution du nombre des phonons à basse température.

Une théorie de couplage faible avec une vitesse de Fermi renormalisée permet de calculer un champ critique assez proche de celui obtenu en couplage fort lorsque $\lambda \approx 1$.

Limite de Pauli

En limitation paramagnétique, les effets de couplage fort sont beaucoup plus importants : la limite de Pauli est fortement relevée à cause du renforcement de $\Delta(T)$ à basse température (formule I.(13)). $H^P(0)$ ne dépend plus seulement de T_c mais dépend aussi de λ . Pour $\lambda \gg 1$, $H^P(0)$ croît comme :

$$H^P(0) \propto \sqrt{\lambda} T_c \quad \text{IV.(7)}$$

En couplage faible, l'effet de renforcement de $H^P(0)$ par apparition de la phase FFLO est de quelques pourcents ($\approx 5\%$). Ce renforcement du champ critique est beaucoup plus important dans la limite du couplage fort.

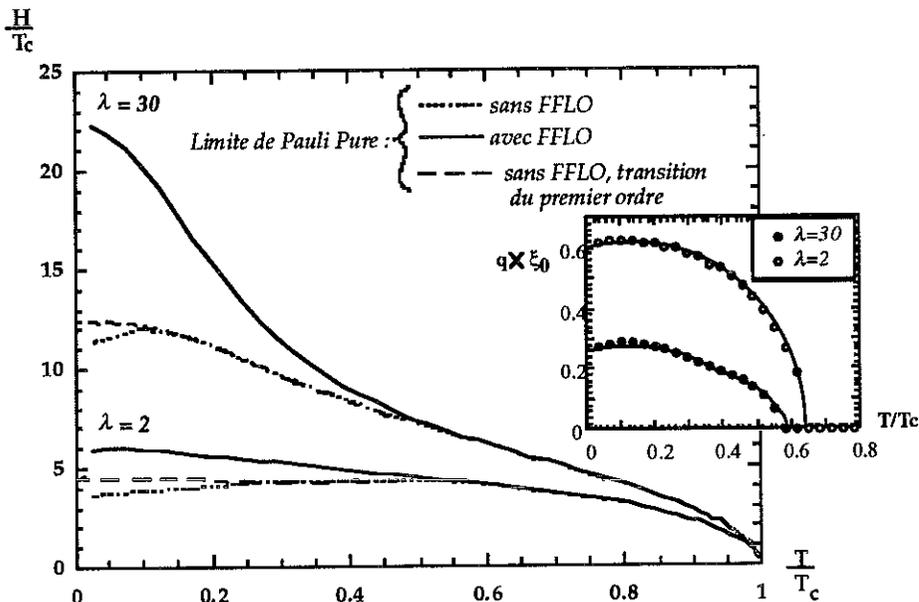


Figure [IV-2]: Renforcement du champ critique en limite de Pauli pure par apparition de la phase FFLO (d'après calcul numérique). La ligne en pointillés correspond au calcul d'une transition du deuxième ordre sans FFLO. En fait, la ligne de transition sans FFLO en limite de Pauli pure (non traitée par le calcul) est représentée en tirets et correspond à une transition du premier ordre. En encart est représentée la variation avec la température du vecteur de modulation q : q non nul marque l'apparition de la phase FFLO.

En effet, si l'on se réfère à la figure [IV-2] où l'on a tracé pour deux valeurs de λ la limite de Pauli pure avec et sans phase FFLO, on voit que l'effet de renforcement du champ critique est de quelques dizaines de pourcents ($\approx 50\%$ pour $\lambda=2$, presque 100% pour $\lambda=30$). Sur la figure [IV-2], on a représenté en tirets la "vraie" ligne de transition en limite de Pauli pure sans phase FFLO. Cette ligne de transition (non déterminée par le calcul) est du premier ordre [Sarma63], et la transition entre la phase modulée et la phase uniforme devrait être aussi du premier ordre. On a aussi représenté en encart sur la figure [IV-2] la variation du vecteur q avec la température : q est de l'ordre de ξ_0^{-1} .

Un effet remarquable en couplage fort (dû à la sensibilité de $H^P(0)$ à l'apparition d'une phase modulée) est le renforcement de la limite de Pauli pure sans phase FFLO lorsqu'on tient compte aussi de l'effet orbital. Sur la figure [IV-3], on a

tracé pour une valeur de $\lambda=15$ et une limite orbitale caractérisée par une pente initiale de $-50T/K$ (le cas d' UBe_{13}) trois courbes :

- en tirets, la limite de Pauli pure en phase uniforme.
- en trait plein, un calcul complet : limite de Pauli + limite orbitale + phase FFLO : un fort renforcement de H_{c2} apparaît en dessous de $0.4T_c$, dû à la phase FFLO.
- mais, en pointillé, on a aussi tracé le calcul avec simplement la limitation orbitale et celle de Pauli, sans la phase FFLO : le renforcement en dessous de $0.4T_c$ par rapport à la limite de Pauli pure sans phase FFLO existe déjà !

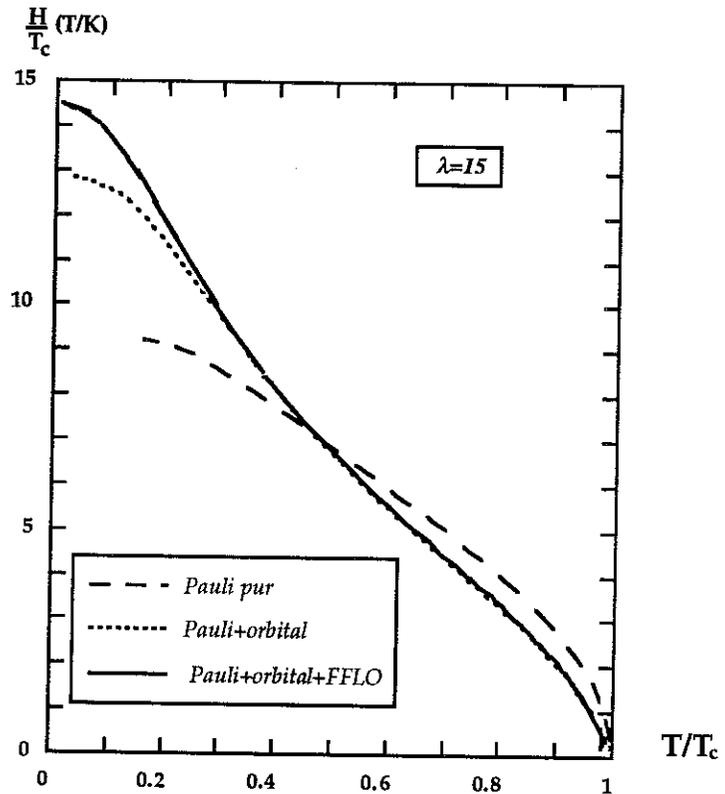


Figure [IV-3]: Renforcement du champ critique en limite de Pauli pure par apparition de la phase mixte et par apparition de la phase FFLO (d'après calcul numérique).

Ce résultat est surprenant au premier abord dans la mesure où l'ajout de deux mécanismes de brisure de paire (effet paramagnétique et effet orbital) devrait au contraire diminuer le champ critique et le rabaisser en dessous de la limite de Pauli pure sans phase FFLO. Pour comprendre ce renforcement, il faut réaliser que la phase mixte correspond à une modulation spatiale du paramètre d'ordre dans la direction perpendiculaire au champ appliqué : même si cette modulation spatiale n'est pas l'optimum réalisé par la phase FFLO (la phase mixte n'a ni la bonne direction de modulation, ni la forme périodique optimale), elle renforce la limite de Pauli parce que la période de modulation qu'elle introduit a le bon ordre de grandeur ($\approx \xi_0$). Néanmoins, si la limitation orbitale est plus basse et que H_{c2} s'éloigne de la limite de Pauli pure, on retrouve le cas "normal" où la prise en compte des deux effets de

brisure de paire conduit à un champ critique inférieur aux champs critiques calculés pour chaque limite séparément. L'apparition de la phase FFLO, quant à elle est alors repoussée à plus basse température, voire même supprimée.

En résumé, le couplage fort renforce $H_{c2}(0)$ par rapport à la valeur en couplage faible. Comme on va le voir dans la suite, ces effets de renforcement de $H_{c2}(0)$ sont spectaculaires sur UBe_{13} .

IV.2) Mesure d'un monocristal d' UBe_{13} à pression nulle

IV.2a) Qualité du monocristal

Le monocristal a été élaboré dans le groupe de G.Stewart (Gainsville-Université de Floride). En figure [IV-4] est reportée la mesure de la chaleur spécifique de cet échantillon. On voit sur cette courbe que l'échantillon est de très bonne qualité : la largeur de transition est seulement de $\Delta T_c = 50mK$ pour un T_c de $900mK$.

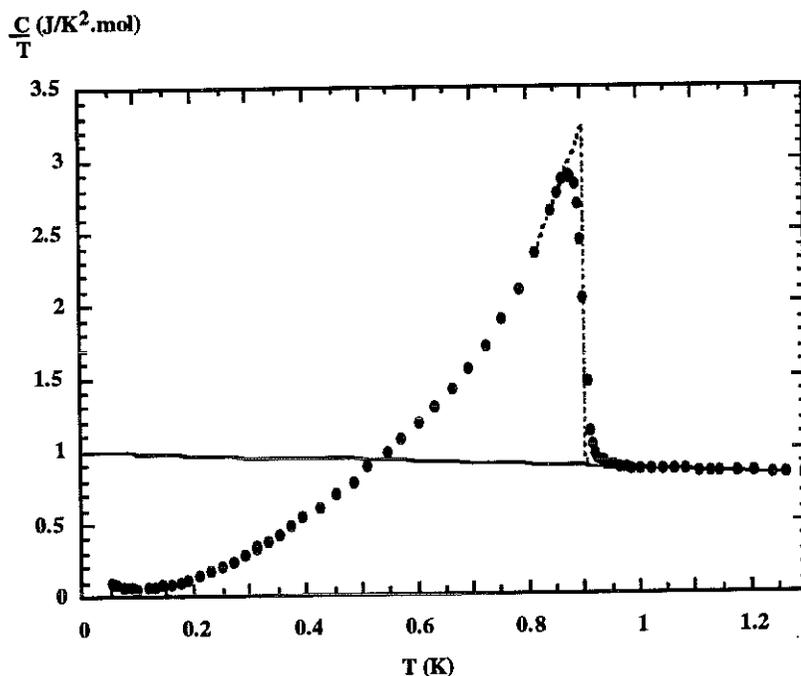


Figure [IV-4]: Saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice de l'échantillon monocristallin. La largeur de transition est seulement de $50mK$ pour une température critique de $900mK$. En pointillés : transition "idéale" déduite d'un bilan entropique. En ligne continue : chaleur spécifique de la phase normale extrapolée à $T=0$ et satisfaisant le bilan entropique à T_c .

La remontée de la courbe de chaleur spécifique à très basse température (pour $T < 100mK$) est attribuée à la contribution des niveaux magnétiques nucléaires à l'entropie du système. Comme on l'a fait remarquer dans le chapitre I, le saut de chaleur spécifique $\Delta C/C = 3$ est très supérieur à la valeur 1.43 de la théorie BCS. Mais, la hauteur de ce saut n'est pas reliée directement à la valeur de λ (variation non monotone de $\Delta C/C$ avec λ [Carbotte90]).

IV.2)b) Diagramme de phase sous champ

La détermination du diagramme de phase $H_{c2}(T)$ à pression nulle a été réalisée par F.Thomas à Grenoble pour les mesures à bas champ et à Darmstadt pour les mesures à haut champ (collaboration avec le groupe de Steglich). En figure [IV-5] est représentée la mesure obtenue. Un effort a été fait pour mesurer de la manière la plus précise possible la valeur de $(dH_{c2}/dT)_{T=T_c}$ et la valeur de $H_{c2}(0)$: la détermination de T_c est faite à partir du critère "onset" (pour être moins sensible à l'élargissement de la transition sous champ cf chapitre III) et avec un faible courant de mesure (pour éviter de chauffer l'échantillon et d'élargir la transition).

$$\frac{H}{T_c} \text{ (T/K}^{-2}\text{)}$$

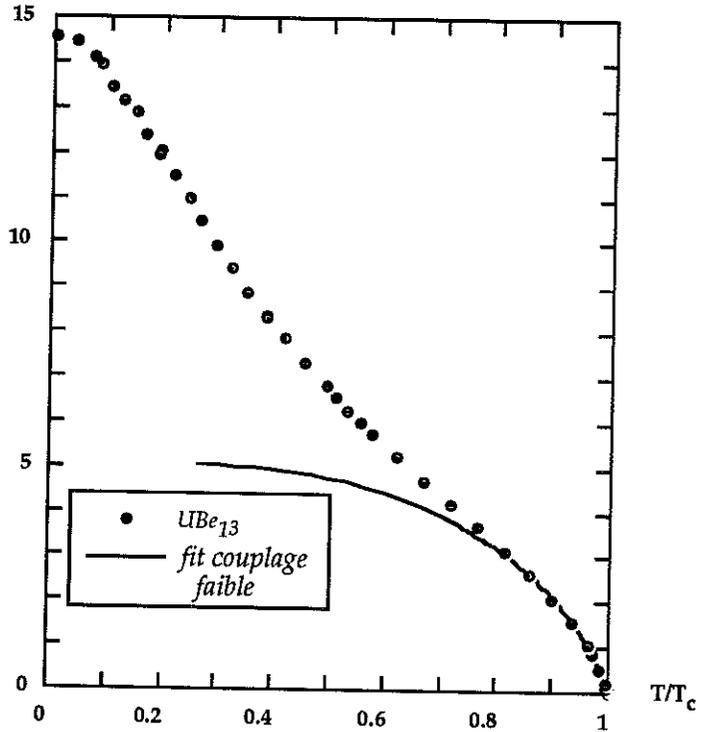


Figure [IV-5]: Champ critique de UBe_{13} à pression nulle. La ligne continue est le meilleur fit obtenu avec un modèle de couplage faible où l'on a tenu compte de la limite de Pauli, de la limite orbitale et de la possible apparition de la phase FFLO.

Sur la figure [IV-5], est aussi représenté le meilleur fit avec un modèle de couplage faible sans aucune hypothèse particulière la limitation de Pauli ($g \approx 0.6$) a été ajustée pour bien reproduire la courbure de $H_{c2}(T)$ à bas champ. Comme on peut le voir, la déviation avec le champ critique mesuré est énorme : il n'est pas possible d'expliquer le champ critique d' UBe_{13} simplement si l'on se base sur une théorie de couplage faible. Pour rester dans le cadre d'une théorie de couplage faible, il faut faire des hypothèses supplémentaires. Jusqu'à maintenant, deux idées principales ont été développées :

— On suppose que UBe_{13} est un supraconducteur non conventionnel dont le paramètre d'ordre est un mélange de deux R.I. distinctes de son groupe de ponctuel [Rauchschwalbe87]. Sous champ, on passerait *continuellement* de l'une à l'autre de ces R.I., ce qui explique la courbure positive à $T \approx T_c/2$.

— On suppose, en s'appuyant sur la très forte magnétorésistance négative d' UBe_{13} (voir figure [IV-12]), que l'interaction attractive entre électrons est renforcée sous champ [Maple85], [Tachiki85], [Rauchschwalbe85], [Brison89a]. Cette explication est très phénoménologique car, à l'heure actuelle, on ne comprend pas l'origine de cette très forte magnétorésistance. De plus, des mesures de chaleurs spécifiques sous champ magnétique [Mayer86], montrent que la constante de Sommerfeld est invariante sous champ, ce qui suggère plutôt que les interactions que subissent les électrons sont indépendantes du champ.

Comme on va le voir dans les paragraphes qui suivent, l'avantage d'un modèle en couplage fort est qu'il n'est pas utile de faire d'hypothèses particulières pour expliquer le champ critique d' UBe_{13} .

IV.2)c) Interprétation, précisions sur le modèle utilisé

Une première difficulté pour construire un modèle microscopique de la supraconductivité d' UBe_{13} (et des fermions lourds en général) est que l'on ne sait pas décrire microscopiquement le mécanisme de renormalisation des masses effectives. Ce point est surtout critique dans un modèle de couplage fort où une partie au moins de la renormalisation des masses effectives est incluse dans les équations d'Eliashberg. Par ailleurs, on pense que les excitations responsables de l'attraction des électrons, ne sont sans doute pas des phonons mais plutôt des excitations magnétiques. Dans ce cas, on peut avoir modification du spectre des excitations magnétiques par feedback (comme dans 3He superfluide [Leggett75]) lorsque la phase superconductrice apparaît. En résumé, on dispose de peu de renseignements microscopiques sur UBe_{13} et le modèle proposé pour interpréter le champ critique ne peut être qu'approximatif.

Modèle microscopique

Expérimentalement, on sait que UBe_{13} est un supraconducteur en limite propre et très vraisemblablement en couplage fort. L'idée est de tester les effets de couplage fort avec le modèle microscopique le plus simple possible :

- On suppose que le supraconducteur a une surface de Fermi sphérique.
- On suppose que les paires de Cooper sont couplées dans un état s.
- On suppose que le facteur gyromagnétique g des électrons est proche de la valeur pour les électrons libres : $g \approx 2$.

En ce qui concerne les paramètres qui interviennent dans le couplage fort :

— Le potentiel coulombien μ^* est supposé nul. En fait, on peut ajouter μ^* comme paramètre au calcul du champ critique, on constate alors qu'il ne doit pas dépasser la valeur de 0.05 (l'augmentation de μ^* diminue la courbure positive à $T^* \approx T_c/2$).

— Dans la densité spectrale d'interaction électron-phonon $\alpha^2 F(\omega)$, on considère pour F le spectre des phonons du modèle d'Einstein qui donne un seul mode d'interaction electron-phonon à Ω :

$$\alpha^2 F(\omega) = \frac{\lambda \Omega}{2} \delta(\omega - \Omega) \quad \text{IV.(8)}$$

Dans ce modèle qui est le plus simple qu'on puisse construire, la fréquence Ω peut être comprise comme la fréquence moyenne du spectre des phonons qui donne un couplage effectif attractif entre les électrons. Pour un mécanisme provenant de l'interaction électron-phonon, Ω est l'analogie de la température de Debye Θ_D introduite dans une théorie de couplage faible. Dans les fermions lourds, on suspecte très fortement que le mécanisme responsable de la supraconductivité n'est pas lié aux phonons mais plutôt à des excitations magnétiques. Dans ce cas, Ω s'interprète comme l'énergie caractéristique de ces excitations magnétiques.

Calcul du champ critique

Pour le calcul du champ critique, on considère bien sûr les deux mécanismes de brisure de paires : l'effet paramagnétique et l'effet orbital. Moyennant toutes les hypothèses énoncées ci-dessus, le champ critique a été calculé par Bulaevskii [Bulaevskii88] pour étudier notamment le cas des composés supraconducteurs A15. A.I..Buzdin a ajouté la possibilité de l'apparition de la phase FFLO nécessaire pour renforcer la limite de Pauli [Thomas96]. En fait, comme on l'a expliqué précédemment, le simple fait d'ajouter un mécanisme orbital renforce déjà la limite de Pauli (voir figure [IV-3]). Précisons que le calcul de l'apparition de la phase FFLO, n'ajoute *aucun paramètre*.

On résoud numériquement l'équation implicite dérivée par A.I..Buzdin pour déterminer H (programme réalisé par J.P.Brisson). Dans cette résolution numérique, les paramètres introduits sont :

- le facteur gyromagnétique g qui gouverne la limite de Pauli et qui est, a priori, supposé de l'ordre de 2.
- la pente initiale du champ critique dH_{c2}/dT ou de manière équivalente la vitesse de Fermi renormalisée v_F^* qui gouverne la limite orbitale et qui est déterminée par les mesures près de T_c .
- la constante de couplage fort λ qui est en fait le seul paramètre arbitraire du modèle.

Résultat

Avec $g=2.1$ et $dH_{c2}/dT=-55T/K$, la valeur obtenue pour λ est égale à 15 (voir figure [IV-6]). Par ailleurs, le modèle prévoit l'apparition de la phase FFLO à une température $T/T_c \approx 0.4$.

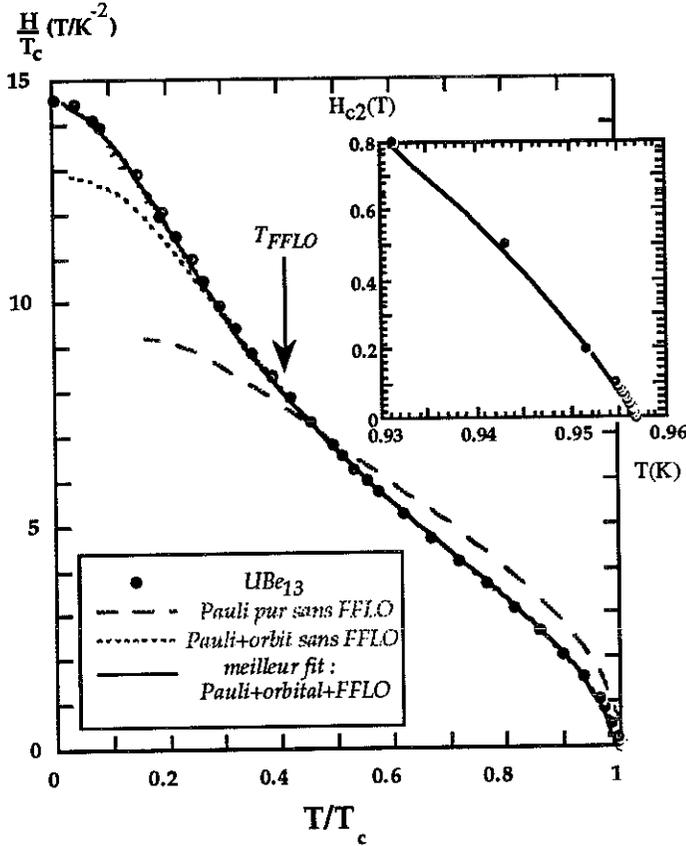
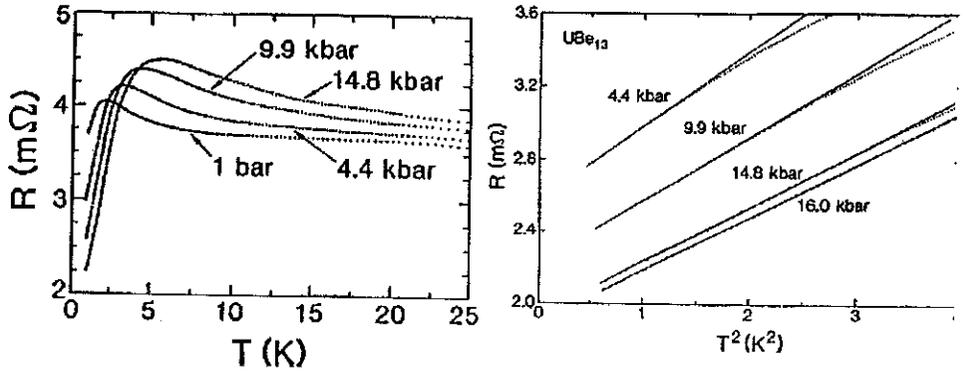


Figure IV-56: Champ critique de UBe_{13} à pression nulle : fits en couplage fort. En encart : zoom sur la pente initiale. La ligne continue correspond au meilleur fit en couplage fort où l'on a tenu compte de la limite de Pauli, de la limite orbitale et de la possible apparition de la phase FFLO, on obtient pour les paramètres du fits : $g=2.1$; $dH_{c2}/dT=-55T/K$ et $\lambda=15$.

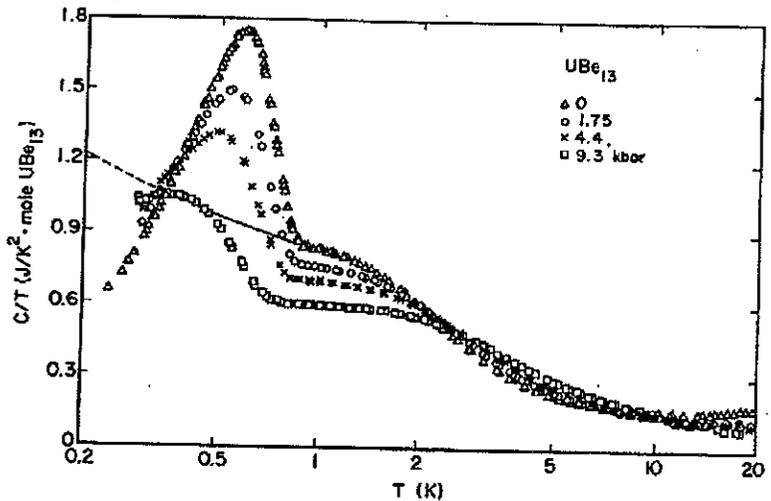
La valeur très élevée de λ pour UBe_{13} et jamais mesurée jusqu'à aujourd'hui dans aucun supraconducteur (le "record" de constante de couplage fort était détenu par les composés A15 avec $\lambda \approx 2$) demande des confirmations expérimentales. Le moyen qu'on a utilisé pour tester la validité du modèle est d'appliquer une pression sur UBe_{13} . Comme on l'a déjà précisé, lorsqu'on augmente la pression le régime de

liquide de Fermi est de mieux en mieux établi dans UBe_{13} . En figure [IV-7] sont reportées les mesures de résistivité sous pression de Thompson *et al* [Thompson87].



Figure[IV-7]: Mesure de résistivité d' UBe_{13} pour différentes pressions [Thompson87]. Sur la figure de gauche on constate que la température T_K du maximum de résistivité augmente avec la pression. Sur la figure de droite, on voit que lorsque la pression augmente, l'évolution de la résistivité avec la température (en pointillés) se rapproche de la loi AT^2 (en ligne continue) d'un bon liquide de Fermi.

Sur la figure de gauche, on voit que le maximum de résistivité se déplace vers les plus hautes températures lorsqu'on augmente la pression. Sur la figure de droite, l'augmentation de la résistivité avec la température est comparée à la loi AT^2 caractéristique des liquides de Fermi. On constate que le comportement d' UBe_{13} se rapproche du comportement d'un liquide de Fermi lorsque la pression augmente. On peut aussi vérifier ce rapprochement du régime de liquide de Fermi par des mesures de chaleur spécifique sous pression. Sur la figure [IV-8] sont reportées les mesures de Philips *et al* [Philips87].



Figure[IV-8]: Mesure de chaleur spécifique d' UBe_{13} sous pression [Philips87]. Lorsque la pression augmente, il apparaît une zone de température dans laquelle C suit une loi de liquide de Fermi en γT .

La chaleur spécifique se rapproche de la loi $C=\gamma T$ d'un liquide de Fermi lorsque la pression augmente. On voit aussi que la constante de Sommerfeld γ diminue avec la pression où autrement dit que la masse effective des quasi-particules diminue avec la pression.

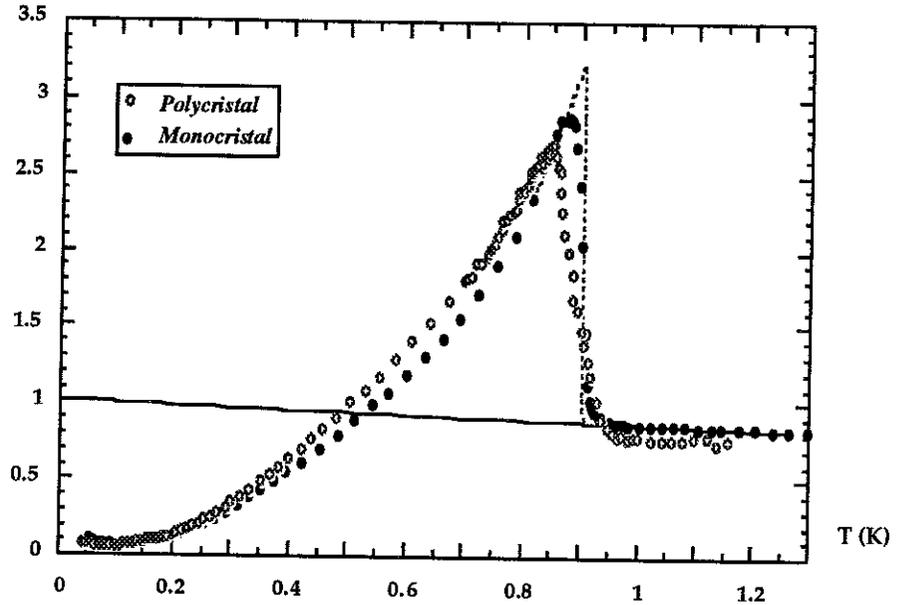
Si l'on fait le bilan de ces différentes mesures, on conclut qu'en faisant varier la pression, le paramètre λ ainsi que la pente initiale du champ critique doivent diminuer puisque l'on se rapproche d'un régime de liquide de Fermi (figure [IV-7]) et que la renormalisation des masses effectives devient moins forte (figure [IV-8]).

IV.3) Mesures d'un polycristal d'UBe₁₃ sous pression

IV.3)a) Comparaison du polycristal au monocristal mesuré à pression nulle

Les mesures sous pression ont été réalisées sur un polycristal. Avant de présenter les résultats obtenus, on compare ce polycristal au monocristal mesuré à pression nulle. En figure [IV-9] est présentée une mesure comparative en chaleur spécifique.

$$\frac{C}{T} \text{ (J/K}^2\text{.mol)}$$



Figure[IV-9]: Comparaison par mesure de chaleur spécifique du monocristal [Thomas96] au polycristal [Brison89b].

On voit que l'échantillon polycristallin est de moins bonne qualité que le monocristal. Pour les deux échantillons, la résistivité résiduelle ρ_0 sous champ magnétique élevé est de l'ordre de $10 \mu\Omega\text{.cm}$ (cf figure [IV-12] pour le polycristal) ce qui correspond aux valeurs reportées dans la littérature pour les meilleurs échantillons. On a aussi comparé le champ critique de ces deux échantillons (figure [IV-10]). Le critère qui avait été utilisé pour déterminer le champ critique du polycristal est le critère "milieu de transition" (voir §III.4.a) : on est donc très sensible à l'élargissement de la transition à basse température où le champ magnétique appliqué est très élevé.

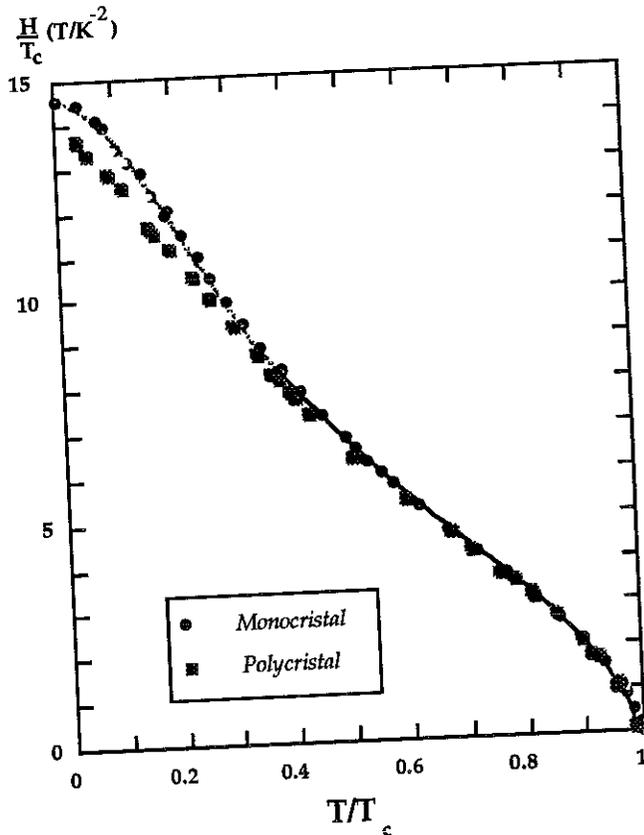


Figure IV-10: Champ critique à pression nulle de l'échantillon monocristallin [Thomas96] comparé à l'échantillon polycristallin [Brison89b].

Ceci explique que le champ critique mesuré sur le polycristal ne sature pas à basse température et dévie de la valeur beaucoup plus fiable du champ critique déterminée sur le monocristal. Hormis cette déviation à basse température (expliquée par la différence de critère), les deux champs critiques sont confondus ce qui autorise une comparaison de nos mesures sous pression au champ critique du monocristal mesuré à pression nulle.

IV.3)b) Résultats expérimentaux

Les données expérimentales disponibles concernant la phase supraconductrice d'UBe₁₃ sous pression se résument à la dépendance de la température critique avec la pression : T_c(P) (première mesure [Chen84]). On a mesuré pour la première fois toute la dépendance en température du champ critique de UBe₁₃ pour différentes pressions. Ces mesures sont nécessaires pour tester le modèle de couplage fort.

Mesure de la pression

Pour mesurer la pression, on a monté dans la cellule de pression (chapitre II§II.3.d) et en plus de l'échantillon d'UBe₁₃, une feuille laminée d'étain très pur dont

$\gamma \alpha m^*$ déduite de mesures de chaleur spécifique [Phillips87] (voir figure [IV-8]) : l'ensemble des résultats est tout à fait cohérent compte tenu de la simplicité du modèle (on ne peut pas prétendre déterminer les coefficients à mieux de 10%). Par conséquent, les mesures sous pression confirment l'explication du champ critique de UBe_{13} par un modèle en couplage fort avec apparition de la phase FFLO à basse température. Par ailleurs, le fait que notre détermination de m^* à partir de λ coïncide avec les mesures de Phillips *et al* nous indique que le mécanisme responsable de l'appariement des électrons est aussi celui qui renormalise les masses effectives de bande. Ceci a pour conséquence que le mécanisme responsable de la supraconductivité dans UBe_{13} n'est sûrement pas d'origine phononique puisque la température de Debye Θ_D vaut environ 600K dans ce composé : la renormalisation des masses effective par les phonons se faisant sur une échelle d'énergie $k_B \Theta_D$ (figure [IV-1]) une renormalisation avec un paramètre effectif $\lambda=15$ est très peu probablement lié aux phonons.

En ce qui concerne la phase FFLO, UBe_{13} est le seul candidat sérieux pour son apparition car les mesures faites sur les autres fermions lourds se sont révélées peu concluantes. Des mesures pour tenter de détecter la ligne de transition du 1^{er} ordre entre la phase FFLO et la phase des vortex ont été tentées sur plusieurs fermions lourds [Gloos93], [Huxley93], [Modler96], [Haga97], [Tenya97]. Une ligne de transition du premier ordre a été effectivement détectée mais jusqu'à T_c ce qui ne correspond pas à comportement attendu (on doit avoir une ligne de transition du premier ordre pour $T < T_c/2$). Les lignes de transition détectées semblent plutôt liée à un "peak effect" ou à un effet de piégeage collectif faible du réseau de vortex [Larkin79], [Huxley96]. Une détection microscopique de cette phase modulée est nécessaire pour s'assurer de sa réelle existence.

Dans cette thèse, nous avons montré comment des mesures de champ critique permettent d'aborder deux problèmes concernant la supraconductivité des fermions lourds : la symétrie du paramètre d'ordre et les propriétés d'un supraconducteur en limite de Pauli.

Concernant le composé URu_2Si_2 , on ne peut pas encore tirer de conclusion définitive à partir des résultats obtenus. Ce qu'on peut dire, c'est que jusqu'à maintenant et avec nos mesures de champ critique, on n'a pas détecté d'évidence expérimentale indiquant que URu_2Si_2 est un supraconducteur non-conventionnel. Plus précisément, on n'a pas détecté d'anisotropie du champ critique dans le plan basal signalant l'apparition d'un paramètre d'ordre bidimensionnel dans ce composé. La résolution estimée sur ce résultat est que l'effet, s'il existe, doit être inférieur à 1%. Par ailleurs, nos mesures de supraconductivité de surface sont incompatibles avec un paramètre d'ordre possédant une ligne de zéro dans le plan basal par raison de symétrie, ce qui va à l'encontre des hypothèses les plus "populaires" sur la supraconductivité de ce système.

Concernant le composé UBe_{13} , nos mesures sous pression confirment l'interprétation du champ critique par un modèle de couplage fort avec apparition à basse température d'une phase modulée spatialement (phase FFLO). Malgré la simplicité du modèle microscopique utilisé, les résultats sont remarquablement cohérents. Le résultat le plus marquant dans cette interprétation est la valeur extrêmement élevée de la constante de couplage : $\lambda=15$. Le lien qui a pu être établi entre la forte renormalisation de la masse effective des quasi-particules et le mécanisme responsable de la supraconductivité nous a donné la première indication un tant soit peu quantitative que ce mécanisme ne peut être dominé par l'interaction électron-phonon. Ceci ouvre des perspectives nouvelles sur les possibilités d'étude du mécanisme responsable de la supraconductivité dans UBe_{13} . En effet, étant donné la valeur élevée de λ , le spectre d'excitation des quasi-particules de ce supraconducteur devrait faire apparaître assez distinctement des structures liées aux excitations responsables de la supraconductivité. Dans les supraconducteurs ordinaires où $\lambda=1$, les structures créées par les phonons dans la dépendance en fréquence du gap supraconducteur $\Delta(\omega)$ sont de l'ordre du pourcent. La réalisation de jonctions tunnel sur UBe_{13} donnant accès à $\Delta(\omega)$ pourrait donc permettre un test de ce mécanisme. A noter que jusqu'à présent, les tentatives de réalisation de telles jonctions ont échouées.

ANNEXES

Le but de cette annexe est de préciser la notation de la théorie des groupes, et de rappeler le lien, de manière très basique, entre la théorie des groupes et la mécanique quantique. Pour une présentation simple et rapide de la théorie des groupes et de son utilisation en physique, on pourra par exemple se référer à [Leech69].

Représentation irréductible d'un groupe

Un groupe est entièrement caractérisé de manière abstraite par sa table de multiplication. Une caractérisation plus concrète est obtenue en représentant chaque élément du groupe par une matrice. Il existe des bases⁽¹⁾ dans lesquelles ces matrices s'écrivent sous forme de blocs de Jordan irréductibles (voir fig.[A.I-1]).

$$R(A) = \left[\begin{array}{c|c|c} R^{(1)}(A) & 0 & 0 \\ \hline 0 & R^{(2)}(A) & 0 \\ \hline 0 & 0 & R^{(3)}(A) \end{array} \right]$$

Figure [A.I-1]: Quelque soit la représentation R d'un groupe G on peut toujours trouver une base où les matrices R(A) (pour tout élément A de G) s'écrivent sous forme de blocs irréductibles (notés R⁽¹⁾(A), R⁽²⁾(A), R⁽³⁾(A)). Les ensembles de sous matrices blocs R⁽¹⁾, R⁽²⁾, R⁽³⁾ forment eux mêmes des représentations de G appelées représentations irréductibles du groupe.

Ces sous matrices blocs irréductibles sont appelées des représentations irréductibles (R.I.) du groupe. Deux représentations sont dites équivalentes si l'une se déduit de l'autre en faisant agir sur elle un élément du groupe. Pour les groupes ponctuels cristallographiques, les différentes représentations irréductibles sont connues⁽²⁾, et l'on présente souvent les traces de leurs matrices sous forme de tables⁽³⁾ appelées tables de caractères.

Notation pour les groupes ponctuels

R.I. de dimension 1 :

A_{1u}, A_{1g}, A_{2u}, A_{2g}, ..., A_{iu}, A_{ig},... si la trace de la matrice de la rotation principale du groupe (c'est-à-dire la rotation d'angle minimum) est +1.

(1) Dans le cas de l'étude de la supraconductivité, il faut effectivement déterminer ces bases (ce qui n'est pas toujours le cas dans les applications de la théorie des groupes en physique).

(2) Par exemple, les R.I. du groupe ponctuel de toutes les rotations de l'espace (appelé SO₃) sont engendrées par les harmoniques sphériques.

(3) En effet, pour une représentation quelconque, l'étude des traces des matrices (où plus précisément de certaines relations algébriques qui les lient) et l'utilisation de ces tables fournissent énormément de renseignements sur cette représentation (on peut savoir notamment si on a à faire à une R.I. ou pas et même quelles R.I. sont a priori présentes dans cette représentation).

$B_{1u}, B_{1g}, B_{2u}, B_{2g}, \dots, B_{iu}, B_{ig}, \dots$ si la trace de la matrice de la rotation principale du groupe est -1 .

R.I. de dimension 2 :

$E_{1u}, E_{1g}, E_{2u}, E_{2g}, \dots, E_{iu}, E_{ig}, \dots$

R.I. de dimension 3 :

$T_{1u}, T_{1g}, T_{2u}, T_{2g}, \dots, T_{iu}, T_{ig}, \dots$

Il y a autant d'indices i que de représentations irréductibles non équivalentes. Les indices u et g signifient impaire ou paire, ces indices apparaissent pour classer les R.I. dans le cas où le groupe possède la symétrie d'inversion (ce qui est le cas de tous les groupes ponctuels cristallographiques). La représentation A_{1g} est aussi appelée représentation identique du groupe : à chaque élément du groupe est associé la matrice identité unidimensionnelle, ainsi, le vecteur (unidimensionnel) qui engendre cette représentation est invariant par tous les éléments du groupe. Par exemple, l'harmonique sphérique s engendre la R.I. A_{1g} du groupe SO_3 de toutes les rotations de l'espace.

Une propriété fondamentale et très importante est qu'une représentation irréductible pour un groupe G ne l'est pas forcément pour tous les sous groupes de G .

Dans les articles où sont tabulées les bases des différentes R.I. intervenant dans la supraconductivité ([Gor'kov 87], [Ueda/Sigrist91], [Yip,Garg93], ...), on s'intéresse seulement à la partie angulaire de la transformée de Fourier des fonctions d'ondes car la dépendance radiale (où en $||k||$ dans l'espace réciproque) de ces fonctions a peu d'importance dans les calculs, du fait que les électrons qui se condensent dans l'état supraconducteur, sont ceux qui sont proches de la surface de Fermi (petit domaine de variation de $||k||$ ou de $||r||$ dans l'espace direct).

On rencontre parfois, dans certains articles, une notation moins précise. Les R.I. sont simplement notées Γ_i^{\pm} sans précision sur la dimension de Γ et où le signe $+$ (respectivement $-$) signifie que Γ est paire (respectivement impaire).

Théorie des groupes et mécanique quantique

En mécanique quantique, un hamiltonien H est invariant par un opérateur de symétrie A si $A^* H A = H$ c'est-à-dire si H commute avec A . On peut toujours trouver une base commune de vecteurs propres de l'opérateur H et des opérateurs de son groupe de symétrie G_H (H commute avec les éléments de G). Or, les vecteurs propres des opérateurs de G_H sont justement les vecteurs qui engendrent les R.I. de G_H , on comprend l'intérêt de s'intéresser aux représentations irréductibles des groupes de symétrie.

Le fait qu'une représentation puisse être irréductible pour un groupe G sans l'être obligatoirement pour tous les sous groupes de G se traduit en physique quantique par une possible levée de dégénérescence lors d'un abaissement de symétrie. Par exemple, une perturbation de symétrie plus basse que celle d'un hamiltonien non perturbé H_0 peut lever des dégénérescences sur les états propres de H_0 .

Comme indiqué dans le chapitre I, le groupe de symétrie G_H de l'hamiltonien décrivant la supraconductivité des fermions lourds est donné par :

$$G_H = R \otimes G \otimes U(1) \quad \text{A.II.(1)}$$

où les notations R, G et U(1) sont précisées dans le tableau I.a du chap.I.

Brisure de symétrie de jauge

L'invariance de H par les éléments de U(1) implique qu'il conserve le nombre de particules. En effet, pour que $e^{-iN\alpha} H e^{iN\alpha}$ soit égal à H, il faut qu'il y ait, dans le terme d'interaction entre les électrons (écrit en seconde quantification), autant de créateurs que d'annihilateurs, ce qui revient à dire que H conserve le nombre de particules (c'est bien le cas de l'hamiltonien I.(1) du chapitre I)

Cas d'un état fondamental métallique

Si l'on fait agir $e^{iN\alpha}$ sur l'état fondamental métallique :

$$|F\rangle = \prod_{k < k_F} a_k^\dagger |0\rangle \quad \text{A.II.(2)}$$

état dans lequel le nombre d'électrons n est fixé, on obtient le même état (avec un facteur de phase $e^{iN\alpha}$ qui ne change rien aux grandeurs physiques du système), $|F\rangle$ est invariant par les opérations de symétrie de U(1).

Cas d'un état fondamental supraconducteur

Si l'on fait agir $e^{iN\alpha}$ sur l'état à nombre de particules non fixé (où u_k et v_k sont deux réels) :

$$|BCS\rangle = \prod_k (u_k + v_k e^{i\phi} a_{k,\alpha}^\dagger a_{k,-\alpha}^\dagger) |0\rangle \quad \text{A.II.(3)}$$

on ne peut plus mettre en facteur la phase α . En effet, dans le développement de $|BCS\rangle$, on a une somme d'états à 0 particule (ce qui donne un facteur $e^{i \cdot 0 \cdot \alpha} = 1$ quand on fait agir $e^{iN\alpha}$), à deux particules (facteur $e^{2i\alpha}$), à quatre particules (facteur $e^{4i\alpha}$), etc... En fin de compte, on obtient un état, toujours état fondamental de H, mais différent de l'état de départ. L'état supraconducteur $|BCS\rangle$ brise la symétrie de jauge U(1).

Dans l'état $|BCS\rangle$, le nombre de particule N n'est plus fixé. Dans la limite thermodynamique, ce nombre est tout de même très piqué autour d'une valeur moyenne [DeGennes66] . Dans cet état, c'est la phase qui est fixe. La phase en question est la phase relative entre les électrons qui composent les paires de Cooper, elle est la même pour toutes les paires de Cooper (on le voit bien dans la formule A.II.(3) avec le même facteur $e^{i\phi}$ pour toutes les paires de Cooper).

Dans le cadre de la théorie BCS, on ne tient pas du tout compte des symétries cristallines. Le potentiel effectif attractif a la symétrie sphérique. Les paires de Cooper sont dans un état orbital s, $|BCS\rangle$ ne brise aucune symétrie sphérique

(l'harmonique sphérique s engendre la représentation identique A_{1g} de SO_3 (cf annexe I)). En dehors des fermions lourds, des oxydes supraconducteurs et de certains composés organiques, tous les supraconducteurs gardent la symétrie du réseau, même s'il peuvent avoir des propriétés anisotropes: par exemple, dans le plomb très pur (limite propre), le potentiel effectif entre électrons qui composent les paires de Cooper est considéré comme très anisotrope. Cette anisotropie se retrouve directement en mesurant son gap supraconducteur, le paramètre d'ordre engendre aussi A_{1g} mais est anisotrope (avec toutefois encore la symétrie du réseau cristallin sous-jacent).

Précisions sur G_H , autres brisures de symétrie possibles

Comme on l'a expliqué au chapitre I, un supraconducteur non conventionnel brise, en plus de la symétrie de jauge, une symétrie du groupe ponctuel cristallographique G . On peut faire trois commentaires sur le groupe de symétrie G_H de la formule A.II.(1).

D'une part, n'apparaissent pas dans G_H , les éléments de symétrie de translation du réseau. La raison est que le potentiel effectif est moyenné plusieurs fois sur \mathbf{a} , le pas du réseau cristallin. Autrement dit, pour les paires de Cooper de taille moyenne ξ , le réseau cristallin est un milieu homogène et anisotrope ($\xi \gg \mathbf{a}$). Cela est vrai pour les supraconducteurs en général et reste vrai pour les supraconducteurs à fermions lourds où ξ est petit mais tout de même très supérieur à \mathbf{a} . Cependant on peut imaginer des paramètres d'ordres qui brisent la symétrie de translation d'un système homogène, c'est le cas de la phase FFLO (§I.1.b) où le paramètre d'ordre supraconducteur est modulé spatialement à une fréquence \mathbf{q} . Dans ce cas, la théorie des groupes ne nous renseigne pas beaucoup sur les \mathbf{q} possibles : il y en a une infinité! Seule la minimisation de l'énergie du système permet de trancher. A priori, on peut tout de même donner une borne supérieure à \mathbf{q} : on ne peut pas moduler le paramètre d'ordre sur une distance plus petite que ξ qui mesure l'échelle minimale de rigidité du paramètre d'ordre.

D'autre part, on ne tient pas compte non plus dans G_H des degrés de liberté de spin. A cause du couplage spin orbite, les degrés de liberté de spin sont gelés, et le spin n'intervient pas dans la classification des différents états possibles.

Enfin, jusqu'à maintenant, le seul état superfluide connu qui brise l'invariance par renversement du temps est la phase A de ^3He superfluide [Leggett75]. Dans cet état, les paires de Cooper possèdent un moment magnétique (la brisure de symétrie par renversement du temps correspond à l'établissement d'un ordre magnétique). Des tentatives ont été faites sur certains fermions lourds pour déceler cet éventuel moment magnétique, qui doit apparaître dans le cas d'un paramètre d'ordre complexe (qui n'est plus invariant par l'opération de conjugaison) [Luke93], [Brawner97].

ANNEXE III: Correction de la fréquence de modulation de la température.

La fréquence de modulation de la température dans la mesure de dilatation thermique a été prise (minimum accessible) égale à : $F=(20,0\pm 0,1)\text{mHz}$. Pour pouvoir traiter correctement nos données, on a besoin de connaître F à moins de $0,1\text{mHz}$ près. Dans cette annexe est décrite la procédure à suivre pour corriger la fréquence de modulation F d'une valeur f connaissant le signal en phase et en quadrature détecté à la fréquence F .

Supposons qu'on détecte un signal S dont on ne connaît pas a priori exactement la fréquence d'oscillation :

$$S(t)=A(t)\cos(2\pi(F+f)t + \phi_0)$$

où f est la correction en fréquence qu'on cherche à déterminer et où ϕ_0 est une phase constante déterminée par le temps à partir duquel on commence à détecter le signal.

Si on détecte de manière synchrone le signal S à la fréquence F , on va mesurer un signal

$$S'(t)=\begin{array}{ll} A'(t) & \text{composante du signal en } \cos(2\pi Ft) \text{ (phase)} \\ B'(t) & \text{composante du signal en } \sin(2\pi Ft) \text{ (quadrature de phase)} \end{array}$$

avec $A'(t) = A(t)\cos(2\pi ft + \phi_0)$ et $B'(t)=-A(t)\sin(2\pi ft + \phi_0)$. Une erreur de fréquence de détection f , se traduit donc par une modulation sinusoïdale de notre signal S' à la fréquence f . Pour déterminer f , on calcule $\phi(t)=-\text{Arctan}(B'(t)/A'(t))$ qui correspond à l'angle dont tournent les composantes de S' au cours du temps, si l'on trace $\phi(t)$ en fonction du temps, on obtient une droite de pente $2\pi f$ et d'abscisse à l'origine ϕ_0 . Pour corriger le signal, il suffit alors d'appliquer une rotation d'angle $-\phi(t)$ aux composantes de $S'(t)$:

$$A'(t)\Rightarrow \cos(2\pi ft + \phi_0)A'(t) + \sin(2\pi ft + \phi_0)B'(t)$$

$$B'(t)\Rightarrow \cos(2\pi ft + \phi_0)B'(t) - \sin(2\pi ft + \phi_0)A'(t)$$

Cette rotation permet d'annuler la composante en quadrature $B'(t)$ et de ramener tout le signal sur la composante en phase. On obtient le même résultat en traitant numériquement les données avec la bonne fréquence $F+f$.

REFERENCES

.....

- [Abrikosov88] A.A.Abrikosov, "Fundamentals of the theory of metals", North Holland (1988).
- [Anderson59] P. W. Anderson, *J. Phys.Chem.Solids*, vol.11, p.26 (1959).
- [Ashcroft76] N.W. Ashcroft et N.D.Mermin, "Solid State Physics", Holt-Saunders International Editions, p.519 (1976).
- [Boccara77] N. Boccara, "Symétries brisées", Hermann (1977).
- [Brison89a] J.P.Brison, G.Deutscher, et J.FLouquet, *J. Low Temp. Phys.*, vol.76, p.453 (1989).
- [Brison89b] J.P.Brison, O.Laborde, D.Jaccard, J.FLouquet, P.Morin, Z.Fisk, et L.Schmidt, *J. Phys. France*, vol.50, p.2795 (1989).
- [Brison94] J.P.Brison, P.Lejay, A.Buzdin, et J.FLouquet, *Physica C*, p. (1994).
- [Brison95] J.P.Brison, N.Keller, A.Vernière, P.Lejay, L.Schmidt, A.Buzdin, J.FLouquet, S.R. Julian, G.G. Lonzarich, *Physica C* 250, p.128 (1995).
- [Brison97] J.P.Brison, A.Buzdin, L.Glémot, F.Thomas, J.FLouquet, *Physica B* 230-232, p.406 (1997).
- [Bulaevskii90] L.N.Bulaevskii, *Int.J.Mod.Phys.B*, vol 4, p.1849 (1990).
- [Bullock90] G.L.Bullock, B.Shivaran, et D.J.Hinks, *Physica C*, vol 169, p.497 (1990).
- [Burger64] J.P..Burger, G.Deutscher, E.Guyon, et A.Martinet, *Solid State Comm.*, vol 2, p.101 (1964).
- [Burlachkov85] L.I.Burlachkov, *Sov. Phys. JETP*, vol 62, p.800 (1985).
- [Carbotte90] J.P. Carbotte, *Rev. Mod. Phys.*, vol 62, p.1027 (1990).
- [Chen84] J.W.Chen, S.E. Lambert, M.B.Maple, Z.Fisk, J.L.Smith et H.R.Ott, *Proceedings LT17*, (1984).
- [Chen/Garg96] D. C. Chen et A.Garg, *Phys.Rev.B*, vol 53, p.374 (1996).
- [DeGennes66] P. G. De Gennes, "Superconductivity of metals and alloys", W.A.Benjamin Inc., New York, Amsterdam (1966).
- [DeWilde94] Y.De Wilde, J.Heil, A.G.M.Jansen, P.Wyder, R.Deltour, W.Assmus, A.A.Menovsky, W.Sun, et L.Taillefer, *Phys. Rev. Lett.*, vol 72, p.2278 (1994).
- [Doniach77] S.Doniach, *Physica B*, vol 91, p.231 (1977).

- [Fert87] A.Fert, P.M.Levy, *Phys. Rev. B*, vol.36, p.1907 (1987).
- [Fierz88] C.Fierz, thèse, Université de Genève (1994).
- [Fisher89] R.A. Fisher, S.Kim, B.F.Woodfield, L.Taillefer, K.Hasselbach, J.Flouquet, A.L.Giorgi et J.L.Smith, *Phys. Rev. Lett.*, vol 62, p.1411 (1989).
- [Fulde88] P.Fulde, J.Keller, et G.Zwicknagl, *Solid State Physics*, vol 41, p.1411 (1988).
- [Gladstone69] G.Gladstone, M.A.Jensen, et J.R.Schrieffer, "Superconductivity", D.Parks (ed.), vol.2, p.771 (1969).
- [Goldman85] A.I.Goldman, S.M.Shapiro, D.E.Cox, J.L.Smith, et Z.Fisk, *Phys. Rev. B*, vol 32, p.6042 (1985).
- [Gloos93] K.Gloos, R.Modler, H.Schimanski, C.Bredl, C.Geibel, F.Steglich, A.I.Buzdin, N.Sato et T.Komatsubara, *Phys. Rev. Lett.*, vol 70, p.501 (1993).
- [Goldman86] A.I.Goldman, S.M.Shapiro, G.Shirane, J.L.Smith, et Z.Fisk, *Phys. Rev. B*, vol 33, p.1627 (1986).
- [Gor'kov 87] L.P. Gor'kov, "Superconductivity of Heavy Fermion systems", *Sov. Sci. Rev. A. Phys.*, Vol.9, (1987), pp. 1-116.
- [Haga97] Haga Y., Yamamoto E., Inada Y., Aoki D., Tenya K., Ikeda M., Sakakibara T., and Onuki Y., *Physica B* 230-232, p.357 (1997).
- [Hasselbach89] K.Hasselbach, A. de Visser, J.J.M.Franse, et L.Taillefer, *Phys. Rev. Lett.*, vol 55, p.2727 (1989).
- [Heffner90] R.H.Heffner et al, *Phys. Rev. Lett.*, vol 65, p.2816 (1990).
- [Hempstead64] C.F. Hempstead, Y.B. Kim, *Phys. Rev. Lett.*, vol 12(6), p.145 (1964).
- [Huxley93] Huxley A.D., Paulsen C., Laborde O., Tholence J.L., Sanchez D., Junod A. et Calemezuck R., *J. Phys.: Condens. Matter* 5 (1993) 7709.
- [Huxley96] Huxley A., Cubitt R., McPaul D., Forgan E., Nutley M., Mook H., Yethiraj M., Lejay P., Caplan D. and Pénisson J.M., *Physica B* 223-224 (1996) 169.
- [Jourdan97] M.Jourdan, M.Huth, J.Hessert, H.Adrian, *Physica B*, vol 230-232, p.235 (1997).
- [Keller94] N.Keller, thèse, Université Joseph Fourier-Grenoble (1994).
- [Kleiman89] R.N.Kleiman, P.L.Gammel, E.Bücher, et D.J.Bishop, *Phys. Rev. Lett.*, vol 62(3), p.328 (1989).

- [Kwok90] W.K.Kwok, L.E.DeLong, G.W.Crabtree, D.G.Hinks et Robert Joynt, *Phys. Rev. B* vol **41** (16), p.11649 (1990).
- [Lacroix79] C.Lacroix et M.Cyrot, *Phys. Rev. B*, vol **20**, p.1969 (1979).
- [Lander94] G.H.Lander, E.S.Fisher, et S.D.Bader, *Advances in physics*, vol **43** (1), pp.1-111 (1994).
- [Larkin79] A.I.Larkin, et Y.N.Ovchinnikov, *J. Low Temp. Phys.* **34** (1979) 409.
- [Leech69] J.W.Leech, et D.J.Newman, "How to use groups", Methuen and co LTD and Science Paperbacks (1969).
- [Leggett75] A.J.Leggett, *Rev.Mod.Phys.*, vol **47**, p.331 (1975).
- [Luke93] G.M.Luke, A.Keren, L.P.Le, W.D.Wu, Y.J.Uemura, D.A.Bonn, L.Taillefer et J.D.Garvett, *Phys. Rev. Lett.*, vol **71**, p.1466 (1993).
- [McElfresh87] M.W.McElfresh, J.D.Thompson, J.O.Willis, M.B.Maple, T.Kohara, et M.S.Torikachvili, *Phys. Rev. B*, vol **35**, p.43 (1987).
- [MacMillan65] A.A.W.L.McMillan, et J.M.Rowell, *Phys. Rev. Lett.*, vol **72**, p.108 (1965).
- [Maple72] M.B. Maple et D.Wohlleben, *Phys. Lett.*, vol **38A** (5), p.351(1972).
- [Maple85] M.B. Maple, J.W.Chen, S.E.Lambert, Z.Fisk, J.L.Smith, H.R.Ott, Brooks et M.J.Naughton, *Phys. Rev. Lett.*, vol **54**, p.477 (1985).
- [Martin/Rothen90] P.A.Martin, F.Rothen, "Problèmes à N-corps et champs quantiques", Presse polytechniques et universitaires romandes (1990).
- [Mayer86] H.M.Mayer, U.Rauchschalbe, C.D.Bredl, L.Steglich, H.Rietschel, H.Schmidt, H.Wühl, et J.Beuers, *Phys. Rev. B*, vol **33**, p.3168 (1986).
- [Meservey69] R.Meservey, et B.B.Schwartz, "Superconductivity", D.Parks. (ed.), vol.1, p.168 (1969).
- [Millis93] A.J.Millis, *Phys. Rev. B*, vol **48**, p.7183 (1993).
- [Modler96] Modler R., Gegemvart P., Lang M., Deppe M., Weiden M., Lüthmann T., Geibel C., Steglich F., Paulsen C., Tholence J.L., Sato N., Komatsubara T., Ōnuki Y., M.Tachiki et S.Takahashi, *Phys. Rev. Lett.*, vol **76**, p.1292 (1996).
- [Moriya95] T.Moriya et T.Takimoto, *J.Phys.Soc.Jpn*, vol **64**, p.960 (1995).
- [Moshchalkov88]T.T.M.Palstra, A.A.Menovsky, et J. A. Mydosh, *J. Appl. Phys.*, vol **63**(8), p.3414 (1988).

- [Naidyuk96] Naidyuk et al, *Europhys. Lett.*, vol 33, p.557 (1996).
- [Nakamura96] S.Nakamura, T.Moriya et K.Ueda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol.65 (12), p.4026 (1996).
- [Norman87] Norman M.R. Pickett W.E., Krakauer H. and Wang C.S., *Phys. Rev. B* 36, p. 4058 (1987).
- [Onuki87] Y.Onuki et al, *Physica B*, vol 148, p.29 (1987).
- [Ott84] H.R.Ott, H.Rudiger, T.M.Rice, K.Ueda, Z.Fisk, et J.L.Smith, *Phys. Rev. Lett.*, vol 52, p.1915 (1984).
- [Ott87] H.R.Ott, E.Felder, C.Bruder, et T.M.Rice, *Europhys. Lett.*, vol 3, p.1123 (1987).
- [Palstra85] T.T.M.Palstra, A.A.Menovsky, J. van den Berg, A. J. Dirkmaat, P. H. Kes, G.J. Nieuwenhuys, et J. A. Mydosh, *Phys. Rev. Lett.*, vol 55, p.2727 (1985).
- [Palstra86] T.T.M.Palstra, A.A.Menovsky, et J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B*, vol 33, p.6527 (1986).
- [Phillips87] N.E.Phillips, R.A.Fisher, J.Flouquet, A.L.Giorgi, J.A.Olsen, et G.R.Stewart, *J. of Magn. and Magn. Mat.*, vol.63-64, p.332, (1987).
- [Ramirez91] A.P.Ramirez, T.Siegrist, T.T.M.Palstra, J.D. Garrett, E.Bruck, A.A.Menovsky, et J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B*, vol 44 (10), p.5392 (1991).
- [Rauchschwalbe85] U.Rauchschwalbe, U.Ahlheim, L.Steglich, D. Rainer, et J.J.M.Franse, *Z. Phys. B-Condensed Matter*, vol 60, p.379 (1985).
- [Rauchschwalbe87] U.Rauchschwalbe, L.Steglich, G.R. Stewart, A.L. Giorgi, P.Fulde, et K.Maki, *Europhys. Lett.*, vol 3(6), p.751 (1987).
- [Remenyi86] G. Remenyi, D.Jaccard, J.Flouquet, A.Briggs, Z.Fisk, J.L.Smith, et H.R. Ott, *J.Physique*, vol 47, P.367 (1986).
- [Saint-James/Sarma69] Saint-James, Thomas and Sarma, "*Type II Superconductivity*", Pergamon Press 1969.
- [Sarma63] G.Sarma, *J. Phys.Chem.Solids*, vol.24, p.1029 (1963).
- [Scalapino69] D.J.Scalapino, "*Superconductivity*", D.Parks (ed.), vol.1, p.449 (1969).
- [Schlabitz84] W.Schlabitz, J.Baumann, J.Diesing, W.Krause, U.Rauchschwalbe, H.M.Mayer, U.Ahlheim, et C.D.Bredl, IV International Conference on valence Fluctuations, ICVF, Cologne (1984), non-publié.

- [Schlabitz86] W.Schlabitz, J.Baumann, B.Pollit, U.Rauchschwalbe, H.M.Mayer, U.Ahlheim, et C.D.Bredl, *Z.Phys. B*, vol **62**, p.171 (1986).
- [Schmidt93] L.Schmidt, Thèse Université Joseph-Fourier Grenoble I, France (1993).
- [Stedman69] R.Stedman, L.Almquist, et G.Milsson, "Superconductivity", D.Parks (ed.), vol.1, p.511 (1969).
- [Steglich79] F.Steglich, C.D.Bredl, D.Meshede, W.Franz, J.Schafer, *Phys. Rev. Lett.*, vol **43**, p.1892 (1979).
- [Stewart84] G.R. Stewart, Z.Fisk, J.O.Willis, et J.L.Smith, *Phys. Rev. Lett.*, vol **52**, p.679 (1984).
- [Tachiki85] M.Tachiki, T.Koyama, S.Takahashi, *Proceedings of the 8th Taniguchi International Symposium on the Theory of Condensed Matter*, Kashikojima (1985), In: Springer Series in Solid-State Sciences, T. Kasuya (ed.).
- [Tenya97] K.Tenya et al, *Physica B*, **230-232**, p.345 (1997).
- [Thomas96] F.Thomas, B.Wand, T.Lühmann, P.Gegenwart, G.R.Stewart, F.Steglich, J.P.Brisson, A.Buzdin, L.Glémot, et J.Flouquet, *J.Low Temp. Phys.*, vol.102, p.117 (1996).
- [Tomasch64] C.F. Hempstead, Y.B. Kim, *Phys. Rev. Lett.*, vol **12**(6), p.145 (1964).
- [Thompson87] J.D. Thompson, M.W. McElfresh, J.O.Willis, Z.Fisk, J.L.Smith, et M.B.Maple, *Phys. Rev. B*, vol **35**, p.48 (1987).
- [Ueda/Sigrist91] M.Sigrist, et K.Ueda, *Rev.Mod.Phys.*, vol **63**, p.239 (1991).
- [van Dijk94a] N.H.van Dijk, thèse, Université d'Amsterdam (1994).
- [van Dijk94b] N.H.van Dijk, A. de Visser, J.J.M.Franse, et L.Taillefer, *Physica B*, **199-200**, p.159 (1994).
- [Yip,Garg93] S.Yip, et A.Garg, *Phys.Rev.B*, vol **48**(5), p.3304 (1993).

.....

Résumé

Dans cette thèse, on montre comment des mesures de champs critiques permettent d'aborder des aspects fondamentaux de la supraconductivité des fermions lourds. Après une introduction générale sur H_{c2} , le deuxième champ critique, on décrit les différentes procédures expérimentales et les différents dispositifs expérimentaux développés pendant cette thèse.

On expose ensuite comment l'aspect non-conventionnel des supraconducteurs à fermions lourds a été étudié sur URu_2Si_2 de deux manières différentes. D'une part, une étude fine près de T_c de l'anisotropie du H_{c2} de ce composé permet en principe d'identifier un paramètre d'ordre supraconducteur bidimensionnel. D'autre part, la suppression de la supraconductivité de surface pour certaines configurations géométriques de l'échantillon par rapport au champ magnétique appliqué doit aussi permettre d'identifier un paramètre d'ordre non-conventionnel. Le résultat de ces mesures est qu'on ne détecte pas d'évidence expérimentale indiquant que URu_2Si_2 est un supraconducteur non-conventionnel aussi bien par les mesures d'une éventuelle anisotropie de H_{c2} (avec une résolution de 1%) que par les mesures de supraconductivité de surface.

Enfin, on s'est intéressé à la limitation de Pauli du champ critique de UBe_{13} . Nos mesures résistives sous pression confirment l'interprétation de ce champ critique par un modèle de couplage fort extrême (constante de couplage λ de l'ordre de 15) avec, à basse température, une limitation paramagnétique de son champ critique et apparition d'une phase modulée spatialement (phase FFLO) prédite dans les années soixante et jamais observée jusqu'à aujourd'hui. Par ailleurs, le lien qui a pu être établi entre la forte renormalisation de la masse effective des quasi-particules et le mécanisme responsable de la supraconductivité donne la première indication un tant soit peu quantitative que ce mécanisme ne peut être dominé par l'interaction électron-phonon.

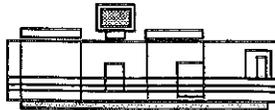
Mots clés

Fermions lourds
 URu_2Si_2
 UBe_{13}
Champs critiques

Supraconductivité non-conventionnelle
Couplage fort
Supraconductivité de surface
Limite de Pauli



Grenoble, février 1998



Imprimé sur "Xerox 5090",
au Service Reprographie du CNRS de Grenoble.

Abstract

In this thesis, we show how measurements of critical fields can help to deal with fundamental questions concerning the superconductivity of heavy fermions.

After an introduction presenting the general features of the upper critical field H_{c2} , we describe the experimental set ups developed and used during this thesis.

In the third chapter we discuss two different effects, which are of interest because they may convey information concerning the unconventional aspects of the superconductor URu_2Si_2 . Firstly, a careful study of the H_{c2} anisotropy around T_c should allow to identify a bidimensional order parameter in a superconducting crystal with a tetragonal symmetry (as is the case for URu_2Si_2). Secondly, the suppression of surface superconductivity for some specific geometrical configurations should allow the identification of a non conventional order parameter. In our experiments, we have found no evidence for non conventional superconductivity in this compound.

Finally, we have studied the Pauli limit of the upper critical field of UBe_{13} . Our resistivity measurements under pressure are very well understood in the framework of a model which calculates the upper critical field in an extreme strong coupling regime (the value that is found for the coupling constant λ equals 15 at zero pressure), taking into account the appearance at low temperature of a spatially modulated phase (FFLO phase) arising from the Pauli limit.

Moreover, the link that we have established between the huge renormalization of the mass of quasi-particles in the normal phase and the mechanism responsible for superconductivity in this system gives the first quantitative indication for a non phonon-like mechanism.

Keywords

Heavy Fermions
 URu_2Si_2
 UBe_{13}
Critical fields

Non-conventional Supraconductivity
Strong coupling
Surface supraconductivity
Pauli Limit

