

THESE

PRESENTEE PAR

SUDEROW, Hermann

POUR OBTENIR LE TITRE DE

DOCTEUR

de l'Université Joseph Fourier de Grenoble-I
(arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 30 Mars 1992)
SPECIALITE : PHYSIQUE

CONDUCTION THERMIQUE DES PHASES SUPRACONDUCTRICES DE $U\text{Pt}_3$

Date de soutenance : 18 Novembre 1997

Composition du Jury :

T. Dombre	(CRTBT-CNRS Grenoble)	<i>Président</i>
A.G.M. Jansen	(MPI Grenoble)	<i>Rapporteur</i>
D.J. Hirschfeld	(University of Florida - Gainesville)	<i>Rapporteur</i>
S. Vieira	(Universidad Autónoma - Madrid)	
J.P. Brison	(CRTBT-CNRS Grenoble)	
J. Flouquet	(SPSMS-DRFMC CEA-Grenoble)	

THESE PREPAREE AU SEIN DES LABORATOIRES :

Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité
Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée
Commissariat à l'Energie Atomique
en collaboration avec le
Centre de Recherche sur les très basses températures
Centre National de la Recherche Scientifique

TABLE DE MATIERES

Chapitre I	INTRODUCTION	3
I.1	Les propriétés thermodynamiques et de transport des métaux	4
I.2	La supraconductivité conventionnelle	6
I.2.1	Champ nul	6
I.2.2	Les supraconducteurs sous champ magnétique	9
I.3	La supraconductivité non conventionnelle	12
I.3.1	L' ³ He superfluide	12
I.3.2	Supraconducteurs non-conventionnels.	14
I.4	La supraconductivité de UPt₃	17
I.4.1	Introduction aux fermions lourds	17
I.4.2	Phase normale de UPt ₃	18
I.4.3	Phase supraconductrice de UPt ₃	19
I.4.3.1	Les théories proposées pour expliquer la supraconductivité de UPt ₃ .	23
Chapitre II	TECHNIQUES EXPERIMENTALES	29
II.1	Thermométrie	31
II.1.1	Thermomètres primaires	31
II.1.1.1	Thermomètre à pression de vapeur d' ³ He	31
II.1.1.2	Points fixes NBS	32
II.1.1.3	Sel paramagnétique CMN	32
II.1.2	Thermomètres secondaires	33
II.1.2.1	Résistances en semiconducteurs dopés	33
II.1.2.2	Résistances en carbone	34
II.1.3	Etalonnage des thermomètres	35
II.1.3.1	Etalonnage à champ nul	35
II.1.3.2	Correction de la magnétorésistance	37
II.2	Conductivité thermique	40
II.2.1	Procédure de mesure	41
II.2.2	Correction des pertes à basses températures	43
II.2.3	Programme de mesure.	46
II.3	Conclusion	48
Chapitre III	LA SUPRACONDUCTIVITE DE UPt₃	49
III.1	Le champ critique de UPt₃	50
III.1.1	H _{c2} (T) et son interprétation	50
III.2	Le paramètre d'ordre supraconducteur étudié par conduction thermique	56
III.2.1	Mécanismes de diffusion des électrons par les impuretés : limite unitaire, limite de Born	58
III.2.2	Résultats expérimentaux et discussion	62
III.2.2.1	Diffusion inélastique	62

III.2.2.2 Anisotropie de la conduction thermique et influence de la surface de Fermi	62
III.2.2.3 Lois de puissance	68
III.2.3 Effets de brisure des paires par les impuretés	71
III.2.4 Mesures expérimentales à très basse température	73
III.3 Conclusion des mesures à champ nul	77
III.4 Le paramètre d'ordre supraconducteur étudié par conduction thermique dans l'état mixte	78
III.4.1 Introduction	78
III.4.1.1 La conduction thermique dans des supraconducteurs conventionnels	78
III.4.1.2 La conduction thermique dans la phase mixte de UPt ₃	81
III.4.2 Effets de vortex sur le transport de chaleur	85
III.4.2.1 Mesures à angle fixe	85
III.4.2.2 Mesures en tournant le champ magnétique.	85
III.4.2.3 Conclusion.	88
III.4.3 Mesures près de H _{c2}	90
III.4.3.1 La conduction thermique près de T _c (H) : changement du paramètre d'ordre à la transition de phase A-C.	90
III.4.3.2 La conduction thermique près de H _{c2} (T) : limitation paramagnétique du champ critique à basses températures.	92
III.4.4 Bas champ magnétique basse température : la conduction thermique et la structure du gap supraconducteur	95
III.4.4.1 Introduction aux lois d'échelle sous champ magnétique dans un supraconducteur non conventionnel.	95
III.4.4.2 Résultats expérimentaux à bas champ magnétique et basse température	97
III.5 Conclusion des mesures sous champ magnétique	103
III.6 Conclusion des mesures sur UPt₃	104
Chapitre IV LA SUPRACONDUCTIVITE DE Sr₂RuO₄	105
IV.1 La phase normale de Sr₂RuO₄	106
IV.2 La phase supraconductrice de Sr₂RuO₄	109
IV.3 Mesures de conduction thermique	111
IV.4 Conclusion des mesures sur Sr₂RuO₄	116
Chapitre V CONCLUSION GENERALE	117
1 REFERENCES	119

Chapitre I

INTRODUCTION

L'objet de cette thèse est l'étude de la supraconductivité dite non-conventionnelle. Nous avons notamment étudié le composé supraconducteur UPt_3 . Ce composé est un métal dit à fermions lourds, car ses électrons de conduction possèdent des masses effectives jusqu'à une centaine de fois plus élevées que la masse effective des électrons dans les métaux usuels (comme le cuivre). Dans UPt_3 , des électrons lourds forment une phase supraconductrice en dessous de 0.5 K aux propriétés très particulières. En effet, ce composé est l'unique supraconducteur connu à ce jour qui présente clairement un diagramme de phase champ magnétique-température avec trois phases supraconductrices distinctes.

La technique que nous avons utilisée pour sonder la supraconductivité est la conduction thermique. Cette sonde expérimentale permet d'accéder au spectre d'excitations de la phase supraconductrice. Dans le cas d' UPt_3 , elle est par exemple sensible au fait que le gap supraconducteur possède des lignes et des points de zéro sur la surface de Fermi. La conduction thermique dans la phase mixte montre de plus un comportement très riche, dû en partie à la multiplicité des phases supraconductrices qu'on trouve dans ce composé. Nous avons démontré que la conductivité thermique à basse température et bas champ magnétique reste contrôlée par les zéros du gap supraconducteur.

Dans ce **premier chapitre**, nous allons d'abord rappeler quelques formules simples de la physique des métaux qui nous seront utiles. Ensuite, nous rappellerons quelques idées sur la supraconductivité classique, ou conventionnelle qui vont nous aider à définir par la suite ce que nous appelons une supraconductivité "non-conventionnelle". Les mesures sur le composé UPt_3 étant la plus grande partie de cette thèse, nous allons présenter ce composé et décrire en détail les théories proposées pour expliquer sa supraconductivité.

Dans le **chapitre II** nous allons présenter les techniques expérimentales que nous avons utilisées. Nous allons mettre l'accent sur l'objet principal de cette thèse : la mise au point d'une expérience pour mesurer la conductivité thermique à très basse température et sous champ magnétique.

Nos résultats sur le composé UPt_3 seront discutés dans le **chapitre III**. Nous présentons nos mesures de champ critique à très basse température. Puis, nos mesures de conductivité thermique à champ nul et sous champ magnétique.

Nous avons aussi étudié la conduction thermique du supraconducteur Sr_2RuO_4 . Dans le **chapitre IV** nous montrons nos résultats expérimentaux sur ce composé. Ce supraconducteur est une pérovskite avec une structure similaire aux supraconducteurs à haute température critique. C'est un métal aussi, mais avec des masses effectives élevées, bien qu'il ne soit pas un fermion lourd comme UPt_3 . La supraconductivité dans ce composé a été découverte récemment. Cela a soulevé un grand intérêt, car ce composé est, à ce jour, le seul supraconducteur ayant une structure pérovskite sans plans de cuivre-oxygène. La température de transition est de l'ordre de 1 Kelvin, du même ordre que celle de UPt_3 . De plus, les premières mesures sur ce composé ont montré que la supraconductivité pourrait être aussi non-conventionnelle.

I.1 Les propriétés thermodynamiques et de transport des métaux

Nous avons fait des mesures de transport sur des composés métalliques. Pour introduire le sujet, nous allons tout d'abord rappeler quelques formules très simples concernant les processus de transport dans les métaux. Ces formules serviront de guide pour comprendre la discussion de nos mesures. Pour plus de détails, voir par exemple les livres de Abrikosov, Ashcroft et Mermin ou Ziman.[Abrikosov, Ashcroft, Ziman]

En ce qui concerne le transport de charge, la résistivité d'un métal normal suit à basses températures la loi:

$$\rho = \rho_0 + AT^2 + BT^5 \quad \text{Equation (I.1)}$$

où ρ_0 est la résistivité due aux collisions élastiques entre électrons et impuretés, le terme AT^2 est dû aux collisions inélastiques entre électrons, et BT^5 dû aux collisions entre électrons et phonons: dans les métaux simples (Cu, Pt, ...), ce dernier terme domine complètement le terme en AT^2 , mais la situation est complètement inversée dans les systèmes à fortes corrélations électroniques comme les fermions lourds.

La résistivité résiduelle ρ_0 est reliée au temps de relaxation τ dû aux collisions électron-impureté par:

$$\rho_0 = \frac{m}{ne^2\tau} \quad \text{Equation (I.2)}$$

où n est la densité des électrons, m la masse effective de ces électrons et e la charge électronique. Le libre parcours moyen des électrons est défini par:

$$l = v_F\tau \quad \text{Equation (I.3)}$$

où v_F est la vitesse de Fermi.

Le terme en AT^2 de la résistivité dû aux collisions inélastiques entre électrons vient de ce que, dans le cadre de la théorie des liquides de Fermi, la probabilité de transition d'un état électronique à un autre par l'interaction entre électrons est proportionnelle à l'énergie au carré (mesuré par rapport au niveau de Fermi). Cela donne un temps de relaxation τ inversement proportionnel à l'énergie au carré $\tau \propto 1/\varepsilon^2$, donc à la température au carré, et explique une résistivité variant comme $AT^2 \propto 1/\tau$. Dans un système électronique simple, comme par exemple le cuivre, les corrélations entre électrons sont faibles, donc le temps de relaxation long, et ce type de diffusion est difficilement mesurable. Par contre, dans les systèmes à fortes corrélations, comme les matériaux mesurés pendant cette thèse, le temps de relaxation est faible, et le terme $AT^2 \propto 1/\tau$ devient grand. De plus, nous avons mesuré à très basse température ($T < 1\text{K}$), donc la diffusion des électrons par les phonons est pratiquement négligeable et nous avons toujours mesuré la "loi de liquide de Fermi":

$$\rho = \rho_0 + AT^2 \quad \text{Equation (I.4)}$$

En ce qui concerne la conduction de chaleur (conductivité thermique κ), dans le cas le plus simple des collisions élastiques entre électrons et impuretés ($\rho = \rho_0$), la loi de Wiedemann-Franz relie de manière simple la conduction de chaleur à la conduction de charge par l'équation:

$$\frac{\kappa}{T} = \frac{L_0}{\rho_0} \quad \text{Equation (I.5)}$$

où L_0 , le nombre de Lorentz, a une valeur qui ne dépend que de la charge électronique, donc qui est le même pour tous les métaux $L_0 = 2,44 \cdot 10^{-8} \frac{\Omega}{K^2 cm}$.

Dans des cas plus compliqués, la loi de Wiedemann-Franz n'est valable que de façon qualitative. Pour une résistivité de type liquide de Fermi, comme montré dans l'équation I.4, on peut décrire la conduction de chaleur comme suit:

$$\frac{\kappa}{T} = \frac{L}{\rho_0 + AT^2} \quad \text{Equation (I.6)}$$

avec $L < L_0$. En effet, les collisions entre électrons sont inélastiques, ce qui impose un nombre L plus petit que L_0 et dépendant de la température ($L = L(T) < L_0$). En présence d'un autre chemin de conduction comme les phonons, on trouve au contraire $L > L_0$, ce qui permet de séparer grossièrement la conduction thermique par les phonons de celle par les électrons.

Pour ce qui est de la chaleur spécifique C_p , dans les fermions lourds, au dessus de 4K, elle est complètement dominée par les contributions électroniques. Dans ce cas, C_p est proportionnelle à la température à basse température, et reliée à la densité d'états électronique au niveau de Fermi $N(E_F)$ par la formule :

$$\gamma_S = \frac{C}{T} = \frac{\pi^2}{3} N(E_F) k_B^2 \quad \text{Equation (I.7)}$$

où k_B est la constante de Boltzmann. $N(E_F)$ est proportionnelle à la masse effective des électrons:

$$N(E_F) = \frac{m^* k_F}{\hbar^2 \pi^2} \quad \text{Equation (I.8)}$$

Dans les systèmes à électrons fortement corrélés la densité d'états, tout comme le terme en AT^2 de la résistivité, est plus grande que dans les métaux normaux. On trouve souvent que A est proportionnel à γ_S^2 avec $A/\gamma_S^2 \approx a_0 = 1 \cdot 10^{-5} \mu\Omega cm / (mJ/K^2 mol)$. Cette relation est connue sous le nom de relation de Kadowaki-Woods. Elle n'est valable que si les effets sont décrits par une simple renormalisation de la densité d'états.

I.2 La supraconductivité conventionnelle

En dessous d'une certaine température, beaucoup de matériaux deviennent supraconducteurs: leur résistivité devient nulle et le champ magnétique, s'il est suffisamment faible, est expulsé du matériau. C'est un phénomène découvert en 1911 par Kammerling Onnes, et qui montre maintenant une variété impressionnante d'aspects différents.[deGennes, Tinkham] Nous avons étudié un type de supraconductivité, dite non-conventionnelle, qui a été d'abord découverte dans le cadre de l'³He superfluide. Dès la découverte des fermions lourds supraconducteurs, on a eu des indications qu'ils seraient aussi non-conventionnels, ce qui a soulevé beaucoup d'intérêt. Depuis sont apparus les supraconducteurs à haute température critique, qui sont probablement aussi des supraconducteurs non-conventionnels.

Pour pouvoir définir ce que nous appelons des supraconducteurs non-conventionnels, nous allons rappeler quelques caractéristiques de la supraconductivité en général. Nous allons mettre l'accent sur les idées qui sont nécessaires pour comprendre nos mesures. Par la suite nous allons décrire la supraconductivité non-conventionnelle. On peut trouver une introduction détaillée à ce sujet dans les articles de revue de Gor'kov, Sigrist et Ueda, ou Heffner et Norman.[Gorkov87, Sigrist91, Heffner96] Dans le cas de l'³ He superfluide nous citons l'article de Leggett et le livre de Vollhardt et Wölfle [Leggett75, Vollhardt] (notons aussi l'article récent de Vollhardt [Vollhardt97] qui donne une introduction simplifiée).

I.2.1 Champ nul

La transition supraconductrice est provoquée par une interaction attractive entre les électrons proches du niveau de Fermi qui favorise le développement de corrélations à deux électrons (paires de Cooper) se matérialisant par l'apparition d'un "condensat de paires de Cooper". La théorie BCS en donne une description microscopique.

L'état supraconducteur est très stable et capable de supporter de grands courants de charge sans dissipation. La transition de phase dans l'état supraconducteur est du deuxième ordre, et la chaleur spécifique subit donc un saut à la température critique T_c . Les propriétés thermodynamiques en dessous de T_c changent complètement par rapport aux propriétés de la phase normale. Les paires d'électrons condensées ont une entropie nulle, et ne contribuent plus à la chaleur spécifique C_p ou à la conduction thermique κ . Les excitations thermiques ont une énergie supérieure à une valeur finie, le gap supraconducteur Δ .

Pour obtenir Δ , nous écrivons la fonction d'onde des paires de Cooper, qui est donnée par le produit des fonctions électroniques $\Psi_{\vec{k},\sigma}$:

$$\Delta_{\alpha\beta}(\vec{k}) \propto \langle \Psi_{\vec{k},\alpha} \Psi_{-\vec{k},\beta} \rangle \quad \text{Equation (I.9)}$$

où α et β indiquent l'état des spins. Remarquons que les électrons des paires ont des vecteurs \vec{k} antiparallèles. Dans le cas des supraconducteurs conventionnels, les spins sont dans un état singulet ($S = 0$) et on peut écrire $\Delta_{\uparrow\downarrow}(\vec{k})$. Le spectre d'excitations est donné par:

$$E_{\vec{k}} = \sqrt{\varepsilon_{\vec{k}}^2 + |\Delta_{\uparrow\downarrow}(\vec{k})|^2} \quad \text{Equation (I.10)}$$

Le gap supraconducteur Δ est reliée à $|\Delta_{\uparrow\downarrow}(\vec{k})|$. Il faut néanmoins noter que tous les

supraconducteurs n'ont pas un gap bien défini. La supraconductivité sans gap est possible. En tous cas, quand le gap existe, il se manifeste sur les mesures de chaleur spécifique ou de conduction thermique. Ces mesures donnent ainsi (de façon indirecte) de l'information sur la fonction d'onde des paires de Cooper $\Delta_{\uparrow\downarrow}(\vec{k})$.

Nous remarquons que le gap supraconducteur $\Delta = \Delta_{\vec{k}}$ dépend a priori de la direction de \vec{k} . $\Delta_{\vec{k}}$ doit avoir la même symétrie que le groupe cristallin, mais il n'est pas nécessairement uniforme sur la surface de Fermi. Pour trouver la fonction d'onde précise des paires de Cooper, il faut avoir un modèle microscopique qui décrit l'interaction attractive. A basse température, les lois d'activation dans les mesures thermodynamiques donnent la valeur du gap la plus petite $\Delta_{\vec{k}_{\min}} = \Delta_{\min}$.

La figure I.1 montre la chaleur spécifique, ainsi que la conductivité thermique électronique κ , en fonction de la température.

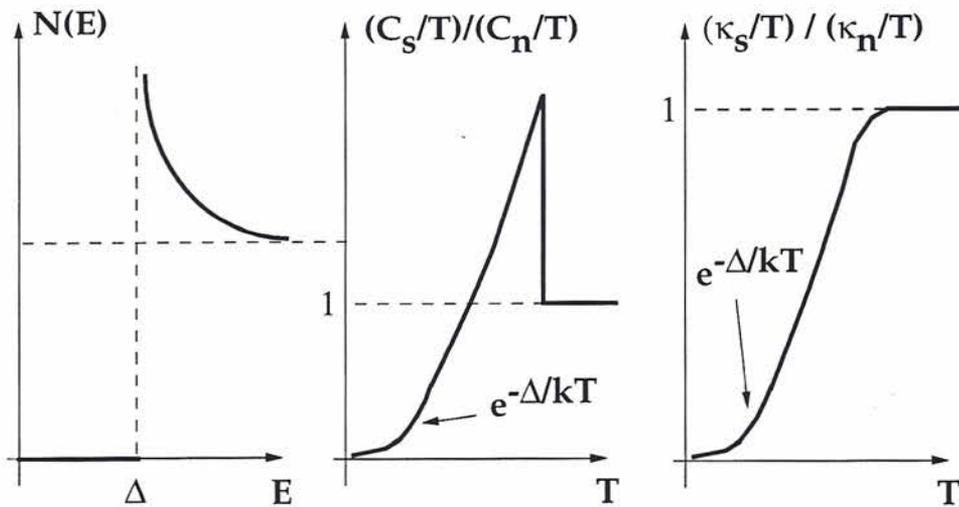


Figure I.1: La densité d'états, la chaleur spécifique et la conductivité thermique dans un supraconducteur classique (BCS).

La transition supraconductrice, comme toute transition de phase, peut être décrite de façon macroscopique dans le cadre du formalisme de Landau, avec notamment un paramètre d'ordre Ψ . Le paramètre d'ordre peut être vu comme la fonction d'onde des paires de Cooper. La caractéristique de l'état supraconducteur est que la phase relative des paires de Cooper n'est plus arbitraire mais fixée à une valeur constante.

En effet, un état électronique dans la phase normale est invariant par une rotation de phase produit par l'opérateur $e^{i\phi N}$, où ϕ est la phase et N le nombre de particules. C'est la **symétrie de jauge**. Par contre, l'état supraconducteur n'est pas invariant par une application de l'opérateur de phase $e^{i\phi N}$. C'est la différence fondamentale entre l'état normal et l'état supraconducteur, où il y a la **cohérence de phase**. La symétrie brisée à la transition supraconductrice dans le sens des transitions de phase du formalisme de Landau est la **symétrie de jauge**. La phase de Ψ est justement cette phase relative des paires de Cooper, et $|\Psi(\vec{r})|^2$ est la densité des paires condensées en \vec{r} .

La théorie de Ginzburg-Landau décrit bien l'état supraconducteur quand le paramètre d'ordre Ψ est petit, c'est à dire, près de la température critique T_c . On peut notamment développer l'énergie

libre en puissances de $|\Psi|^2$:

$$F_s = F_n + a|\Psi|^2 + \frac{1}{2}b|\Psi|^4 + \dots \quad \text{Equation (I.11)}$$

avec des paramètres a, b, \dots qui sont reliés à la théorie microscopique.

Les longueurs caractéristiques de la phase supraconductrice sont la longueur de cohérence ξ_0 et la longueur de pénétration de London λ . Ces longueurs sont données par les formules (à T=0K):

$$\xi_0 = \frac{2\hbar v_F}{\pi\Delta_0} \quad \text{Equation (I.12)}$$

$$\lambda = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n e^2}} \quad \text{Equation (I.13)}$$

où v_F est la vitesse de Fermi, Δ_0 le gap supraconducteur à T=0K, m la masse effective et n la densité électronique. La longueur de cohérence ξ_0 donne un ordre de grandeur pour la taille des paires de Cooper. ξ_0 est de l'ordre de 10000 Å dans les supraconducteurs classiques, 100 Å dans les supraconducteurs à fermions lourds et de l'ordre de quelques dizaines d'Angström dans les supraconducteurs à haute température critique. λ donne la longueur de pénétration du champ magnétique. Quand $\lambda \ll \xi$, le champ magnétique n'entre pas dans l'échantillon et le supraconducteur est appelé un supraconducteur de type I. Si par contre, $\xi \ll \lambda$, le supraconducteur est dit de type II, et au dessus d'un premier champ critique H_{c1} , le champ magnétique entre dans l'échantillon. Le paramètre de Ginzburg-Landau $\kappa = \frac{\lambda}{\xi}$ donne le changement de régime: pour $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$, le supraconducteur est de type I, pour $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$, le supraconducteur est de type II. Dans les supraconducteurs classiques, on peut trouver les deux cas, par contre les supraconducteurs à fermions lourds ou ceux à haute température critique sont tous de type II.

I.2.2 Les supraconducteurs sous champ magnétique

Limite orbitale.

Dans les supraconducteurs de type II, au dessus d'un premier champ critique, il devient énergétiquement plus favorable pour le système que le champ magnétique pénètre dans l'échantillon sous forme de "tubes de flux" appelés vortex. Le système est dans un état mixte avec coexistence de zones normales et de zones supraconductrices. Les zones normales apparaissent sous forme de "cylindres normaux" au coeur des vortex orientés parallèlement au champ appliqué. Le paramètre d'ordre s'y annule sur une distance de l'ordre de la longueur de cohérence ξ . Le champ magnétique est maximum au centre du vortex et tombe vers zéro sur une distance de l'ordre de la longueur de pénétration λ , chaque vortex portant un quantum de flux Φ_0 . L'écrantage du champ est réalisé par des supercourants qui circulent autour des coeurs des vortex. Les vortex forment un réseau, de plus en plus dense quand on augmente le champ magnétique.

C'est en fait l'interaction orbitale (force de Lorentz) entre le champ magnétique et les paires de Cooper qui brise les paires supraconductrices et produit cet état mixte dans les supraconducteurs de type II. On peut dire que la supraconductivité sera complètement détruite quand la vitesse des paires sous l'action du champ magnétique devient trop élevée. Autrement dit, le rayon de Larmor $\frac{mv_s}{eH}$ (avec v_s la vitesse superfluide des paires) doit rester plus grand que la longueur de cohérence ξ pour que la supraconductivité soit possible.

L'énergie libre de la phase supraconductrice tenant compte de l'effet du champ magnétique peut être écrite comme suit :

$$F_s = \int dV \left(a |\Psi|^2 + \frac{1}{2} b |\Psi|^4 + \frac{1}{4m} \left| (-i\hbar\nabla - \frac{2e}{c} \vec{A}) \Psi \right|^2 + \frac{H^2}{8\pi} \right) \quad \text{Equation (I.14)}$$

où \vec{A} est le vecteur potentiel du champ magnétique \vec{H} . L'intégration en volume est nécessaire pour tenir compte de la modulation spatiale du paramètre d'ordre en présence des vortex. En minimisant cette énergie libre par rapport au paramètre d'ordre, on peut trouver le champ critique donné par l'effet orbital :

$$H_{c2}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2(T)} \quad \text{Equation (I.15)}$$

où Φ_0 est le quantum de flux et $\xi^2(T)$ la longueur de cohérence en fonction de la température :

$$\xi(T) = 0.74 \frac{\xi_0}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}} \quad \text{Equation (I.16)}$$

Près de T_c on trouve alors une variation linéaire du champ critique, comme montré dans la figure I.2 avec une pente $\frac{\partial H_{c2}}{\partial T} = -\frac{\Phi_0}{2\pi(0.74\xi_0)^2}$. Comme ξ_0 est relié à la vitesse de Fermi par la formule I.12, on trouve que la pente du champ critique déterminée par l'effet orbital du champ magnétique est inversement proportionnelle au carré de la vitesse de Fermi : $\frac{\partial H_{c2}}{\partial T} \propto 1/v_F^2$.

Les systèmes à fermions lourds ont des vitesses de Fermi très faibles. Le champ critique déterminé par la limite orbitale est alors particulièrement élevé. D'autres effets du champ magnétique peuvent alors aussi détruire la supraconductivité.

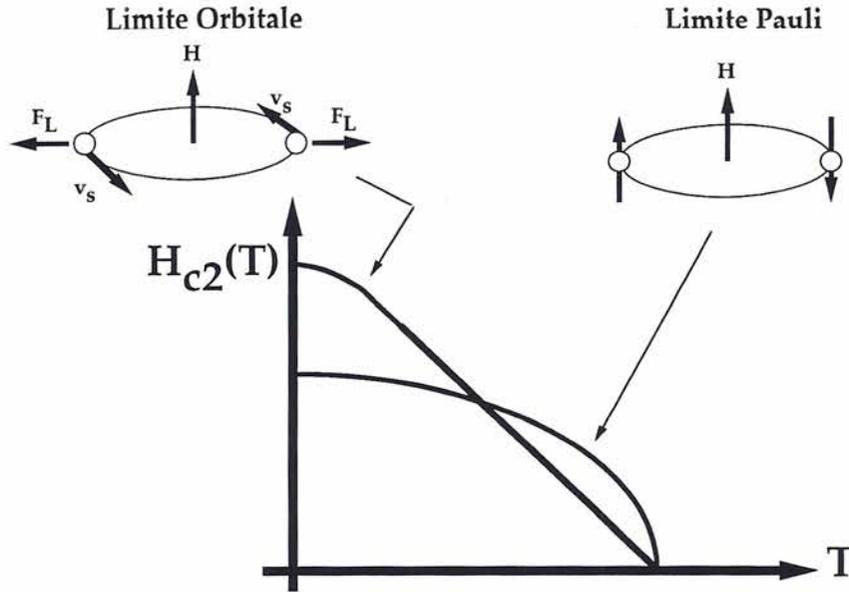


Figure 1.2: L'effet de brisure de paires par le champ magnétique. Dans le cas de la limite orbitale du champ critique (gauche), F_L représente la force de Lorentz qui tend à casser les paires de Cooper.

Limite paramagnétique.

L'effet Zeeman sur le spin des électrons des paires de Cooper peut ainsi détruire la supraconductivité avant l'effet orbital. Une discussion de cet effet est donnée dans le livre de Saint James, Thomas et Sarma. [SaintJames] Pour comprendre cet effet, on peut comparer la valeur de la susceptibilité des spins dans la phase normale χ_n et dans la phase supraconductrice χ_s .

Dans la phase normale, χ_n s'écrit:

$$\chi_n = \frac{1}{2}(g\mu_B)^2 N(E_F) \quad \text{Equation (I.17)}$$

où μ_B est le magnéton de Bohr, g le facteur gyromagnétique et $N(E_F)$ la densité d'états au niveau de Fermi. Dans la phase supraconductrice, à $T=0K$ par contre, la susceptibilité des spins χ_s est nulle, les électrons étant condensés en paires de Cooper de spin nul. Pour détruire la supraconductivité avec cet effet, il faut alors appliquer un champ magnétique suffisamment fort pour que la perte d'énergie Zeeman soit plus grande que l'énergie de condensation de la phase supraconductrice. On peut définir le champ critique thermodynamique $H_c(T)$ à l'aide de l'énergie de condensation de l'état supraconducteur:

$$F_n - F_s = \frac{H_c^2(T)}{8\pi} \quad \text{Equation (I.18)}$$

où $F_n - F_s$ est la différence des énergies libres supraconductrice et normale. A $T=0K$ on peut

donner $H_c(0)$:

$$\frac{H_c^2(0)}{8\pi} = \frac{N(E_F)\Delta_0^2}{2} \quad \text{Equation (I.19)}$$

Ainsi, le champ nécessaire pour polariser (et détruire) la phase supraconductrice s'écrit comme:

$$\frac{1}{2}(\chi_n - \chi_s)H^2 = \frac{H_c^2(T)}{8\pi} \quad \text{Equation (I.20)}$$

La dépendance de H_p , le champ critique paramagnétique est donc donné par:

$$H_p(T) = \frac{H_c(T)}{\sqrt{4\pi(\chi_n - \chi_s)}} \quad \text{Equation (I.21)}$$

Près de T_c à champ nul, $H_p(T)$ varie fortement en fonction de la température. A $T=0K$, en utilisant l'équation I.19 on peut calculer $H_p(0) = 1.84T_c \frac{T}{K}$ (voir aussi Fig. I.2).

Il faut cependant remarquer que le calcul précis du champ critique $H_{c2}(T)$ se fait par la théorie microscopique, mais les formules simples que nous avons données ici donnent le bon ordre de grandeur. Il faut de plus aussi toujours tenir compte de la limite orbitale (à 3D), qui est dominante près de T_c . Le champ critique est comme montré dans la figure I.2. Le calcul de $H_{c2}(T)$ en tenant compte des deux effets se fait par la théorie microscopique.[Werthamer66]

I.3 La supraconductivité non conventionnelle

Nous avons indiqué qu'à la transition supraconductrice la symétrie de jauge est brisée par la cohérence de la phase du paramètre d'ordre. Le groupe de symétrie complet d'un métal est $G \times R \times U(1)$, où G est le groupe ponctuel, R , l'invariance par renversement du temps et $U(1)$ la transformation de jauge. Dans les fermions lourds, le couplage spin-orbite est fort et les degrés de liberté du spin sont liés au réseau: les transformations du spin sont "incluses" dans celles du groupe ponctuel G . Notons que comme la longueur de cohérence des supraconducteurs est bien plus grande que la distance interatomique, il n'est pas nécessaire de considérer la symétrie de translation. Jusqu'à maintenant, nous avons considéré le cas simple, où seulement la symétrie de jauge $U(1)$ est brisée. Cependant, comme dans d'autres transitions de phase, il est tout à fait imaginable que d'autres symétries soient brisées.

Prenons l'exemple d'une transition magnétique. La symétrie brisée est la symétrie par renversement du temps R . Ce qui implique l'apparition d'un ordre magnétique à longue portée. Remarquons que cet ordre magnétique peut être ferromagnétique, antiferromagnétique, hélicoidale, ou autre. Pour certaines de ces combinaisons des moments magnétiques, la symétrie du groupe ponctuel G est aussi brisée.

De la même façon, on peut imaginer des transitions supraconductrices, où en plus de la symétrie de jauge $U(1)$, la symétrie du groupe ponctuel G , ou encore la symétrie par renversement du temps R soit brisée. Les cas où des symétries, en plus de la symétrie de jauge sont brisées, sont des cas dits de **supraconductivité non-conventionnelle**. L'étude de ce type de supraconductivité constitue l'objet de cette thèse.

I.3.1 L'³He superfluide

L'exemple par excellence de ce type de supraconductivité qui a guidé toutes les premières études sur la supraconductivité des fermions lourds est l'³He superfluide. Avant de continuer avec les supraconducteurs, nous allons décrire très brièvement la suprafluidité dans l'³He. Nous essaierons notamment d'éclaircir les notions sur la supraconductivité triplet.

Comme l'³He est un fluide, c'est la symétrie de rotation $SO(3)$, et non par la symétrie du groupe ponctuel G , qui peut être brisée en plus de la symétrie de jauge $U(1)$. Ainsi, on peut décrire la fonction d'onde des paires par des harmoniques sphériques.

Une fonction de type s ($l = 0$) isotrope correspond au cas "conventionnel". Par contre, les fonctions de type p ($l = 1$), où d ($l = 2$) ne sont pas isotropes et correspondent au cas "non-conventionnel". Ces fonctions peuvent changer de signe dans l'espace \vec{k} et produire des zones où le gap suprafluide s'annule. Nous discuterons cela plus en détail en relation avec les supraconducteurs. Pour le moment, nous allons décrire la suprafluidité triplet. Pour les fonctions d'onde paires ($l = 0, 2, \dots$), l'état de spin est un singulet ($S = 0$) et pour des fonction d'onde impaires ($l = 1, 3, \dots$) un triplet ($S = 1$).

L'³He liquide peut être bien décrit à très basses températures par les lois de liquide de Fermi. On trouve de fortes corrélations entre les quasiparticules et aussi des fluctuations de spin ferromagnétiques. Il se trouve que ces excitations magnétiques donnent lieu à une interaction attractive entre les quasiparticules qui favorise la création de paires de Cooper avec une onde de type p ($l = 1$) et un état de spin triplet ($S = 1$). Un état triplet est dégénéré à la fois par ses degrés de liberté orbitaux ($2l + 1 = 3$ pour de la suprafluidité p) et ses degrés de liberté de spin ($S_z = -1; 0; 1$). La fonction d'onde des paires de Cooper est en général une superposition linéaire

des trois états de spin:

$$\Delta(\vec{k}) = \Delta_{1,+}(\vec{k}) |\uparrow\uparrow\rangle + \Delta_{1,0}(\vec{k})(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) + \Delta_{1,-}(\vec{k}) |\downarrow\downarrow\rangle \quad \text{Equation (I.22)}$$

Cette dégénérescence donne lieu à une multiplicité de phases dans le diagramme de phase température-pression-champ magnétique. Par exemple, il se trouve que dans la phase dite *B* de l'³He superfluide, qui est condensée à basse température et champ nul, les trois états de spin sont présents dans le superfluide. A bas champ magnétique le potentiel attractif est tel qu'il favorise l'existence de la phase dite A1. Dans cette phase, seuls les états de spin avec $S_z = 1$ sont condensés: le gap superfluide correspondant à $S_z = 1$ est fini, mais celui correspondant à $S_z = -1$ est nul. Il se trouve que seulement la moitié des atomes d'³He (avec $S_z = 1$) sont condensés en paires de Cooper, ce qui donne une chaleur spécifique à T=0K dans la phase superfluide qui ne chute pas vers zéro mais est la moitié de sa valeur dans la phase normale.

L'exemple de l'³He superfluide nous permet de voir comment une supraconductivité "non-conventionnelle" permet l'existence de plusieurs phases supraconductrices.

Il est utile d'introduire sur l'exemple de l'³He superfluide la notation décrivant un paramètre d'ordre non-conventionnel. Pour un état singulet on écrit :

$$\Delta(\vec{k}) = \Psi(\vec{k}) i\sigma^y \quad \text{Equation (I.23)}$$

et pour un état triplet :

$$\Delta(\vec{k}) = (\vec{\sigma} \cdot \vec{d}(\vec{k})) i\sigma^y \quad \text{Equation (I.24)}$$

où σ^i sont les matrices de Pauli. Un état singulet est alors décrit à l'aide de la matrice de Pauli σ^y :

$$\Delta(\vec{k}) = \begin{pmatrix} 0 & \Psi(\vec{k}) \\ -\Psi(\vec{k}) & 0 \end{pmatrix} \quad \text{Equation (I.25)}$$

et un état triplet en plus par un vecteur $\vec{d}(\vec{k})$:

$$\Delta_{\alpha\beta}(\vec{k}) = \begin{pmatrix} -d_x + id_y & d_z \\ d_z & d_x + id_y \end{pmatrix} \quad \text{Equation (I.26)}$$

Le vecteur \vec{d} contient l'information sur la structure orbitale et sur la structure de spin de l'état en question. La direction de \vec{d} donne l'orientation de l'état de spin, par le fait que \vec{d} est tel que $\vec{d} \cdot \vec{S} = 0$. Par exemple, dans la phase A1 de l'³He superfluide, où seulement $S_z = 1$ est condensée, \vec{d} est perpendiculaire à \vec{S} et on écrit $\vec{d} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{x} + i\hat{y})$, où \hat{x} et \hat{y} sont des vecteurs unitaires dans l'espace de spin. Le gap pour un supraconducteur triplet est défini par le déterminant

de $(\Delta(\vec{k}))(\Delta(\vec{k}))^\dagger$ et on trouve:

$$(\Delta_{\vec{k}})(\Delta_{\vec{k}})^\dagger = \vec{d} \vec{d}^* + i(\vec{d} \times \vec{d}^*) \vec{\sigma} \quad \text{Equation (I.27)}$$

Le spectre d'excitations est donné par :

$$E_{k,\pm} = \sqrt{\varepsilon_k^2 + \left| \vec{d}(\vec{k}) \right|^2 \pm \left| \vec{d}^* \times \vec{d} \right|} \quad \text{Equation (I.28)}$$

On voit qu'il y a deux branches possibles pour le spectre d'excitations. Quand $\left| \vec{d}^* \times \vec{d} \right| \neq 0$, on parle de la suprafluidité "non-unitaire". C'est par exemple le cas pour la phase A1 de l'³He superfluide. Avec la supraconductivité unitaire ($\left| \vec{d}^* \times \vec{d} \right| = 0$), la fonction $\left| \vec{d}(\vec{k}) \right|$ a l'information sur la structure du gap.

Encore un mot sur les paires de Cooper dans un état triplet. Tandis que la susceptibilité des spins dans la phase condensée chute vers zéro dans un état singulet, on peut facilement imaginer que pour un état triplet la susceptibilité des spins reste assez grande dans la phase condensée. Dans certains cas, on peut même trouver qu'elle ne change pas en entrant dans la phase supraconductrice. Les sondes sensibles à la susceptibilité de spins, comme la RMN, ou dans certains cas le champ critique d'un supraconducteur (voir limitation paramagnétique du champ critique), peuvent servir à identifier un état triplet.

I.3.2 Supraconducteurs non-conventionnels.

Pour retourner au cas des supraconducteurs, il faut tout d'abord remarquer que les harmoniques sphériques sont mal adaptées car elles ne correspondent pas à la symétrie du groupe ponctuel G . On retiendra que parler de supraconductivité de type s, d ou p, (de façon stricte) n'a pas de sens physique dans un supraconducteur.

Un supraconducteur non-conventionnel brise des symétries autres que la symétrie de jauge en ayant un paramètre d'ordre qui appartient à une des **représentations irréductibles** non triviales du groupe ponctuel. En effet, la symétrie du groupe ponctuel permet de classer les états possibles pour le paramètre d'ordre comme des états appartenant à ces représentations irréductibles, tout comme dans le cas de l'³He superfluide on peut classer les états en harmoniques sphériques.

En ce qui concerne le spin, le couplage spin-orbite pourrait remettre en cause la classification singulet-triplet. Mais on remarque que les cristaux étudiés possèdent un centre d'inversion, ce qui permet de les séparer en états de **parité paire** où $\Delta(\vec{k}) = \Delta(-\vec{k})$ et en états **impairs** $\Delta(\vec{k}) = -\Delta(-\vec{k})$. Les états pairs sont des états (pseudo-)singulets ($S = 0$) et les états impairs des états (pseudo-)triplet ($S = 1$). Ainsi, pour chaque représentation irréductible du groupe ponctuel, on trouve un état pair et un état impair.

Pour ce qui est de la structure orbitale des fonctions d'onde possibles pour une représentation irréductible, il faut comprendre que la symétrie brisée dans un supraconducteur non-conventionnel est une **combinaison** des symétries de jauge $U(1)$ et de celles des autres groupes. C'est à dire le groupe de symétrie d'un supraconducteur non conventionnel possède des éléments du groupe $G \times R$, combinés à des éléments du groupe $U(1)$. Cela se traduit par le fait que la phase du paramètre d'ordre peut **changer de signe suivant l'orientation du moment \vec{k} en brisant la symétrie du groupe ponctuel**. Pour comprendre cela en détail, il faut donner des arguments

précis de la théorie des groupes. L'article de Gor'kov [Gorkov87] donne comme exemple une des représentations du groupe cubique: les éléments de symétrie **combinés des groupes ponctuels et de jauge** imposent un changement de signe de part et d'autre d'un plan de symétrie, auquel cas le paramètre d'ordre $\Delta_{\alpha\beta}$ s'annule dans ce plan.

On retient alors que la **phase** du paramètre ordre dans un supraconducteur non-conventionnel $\Delta_{\alpha\beta}(\vec{k})$ **dépend de la direction de \vec{k}** . Un changement du signe du paramètre d'ordre implique une annulation de celui-ci, et avec lui une annulation du gap supraconducteur. Ces changements de signe sont définis par la **symétrie** de chaque représentation irréductible du groupe ponctuel. De cette façon, les **zéros du gap supraconducteur sont reliés à la symétrie du paramètre d'ordre**.

Dans le cas de couplage spin-orbite fort, la table I.1 montre quelques fonctions de base des différentes représentations irréductibles du groupe ponctuel D_{4h} . Ce groupe ponctuel est plus simple que le groupe hexagonal de Upt_3 , et les supraconducteurs à haute température critique (dans la version en 2D et moyennant une transition orthorhombique, voir la référence [Scalapino95]) ainsi que Sr_2RuO_4 en font partie. Si l'interaction attractive favorise une des représentations irréductibles parmi celles de la table I.1, on peut écrire en général le paramètre d'ordre comme une combinaison linéaire de toutes les fonctions de base données dans la table I.1, les coefficients de cette combinaison étant d'une part complexes, et d'autre part définis seulement modulo n'importe quelle fonction ayant la symétrie complète du réseau. Pour une connaissance plus précise du paramètre d'ordre, notamment des coefficients de la combinaison linéaire il faut un calcul microscopique. Yip et Garg discutent ce problème en détail.[Yip93]

Considérons la représentation A_{1g} , qui a toute la symétrie du groupe et qui correspond donc à de la supraconductivité conventionnelle. En général, on peut écrire le paramètre d'ordre comme la fonction de base de cette représentation: l'unité 1, multipliée par n'importe quelle fonction de \vec{k} ayant toute la symétrie du réseau tétragonal. On peut ainsi imaginer un cas où la fonction k_z^2 décrirait le paramètre d'ordre: k_z^2 correspond à de la supraconductivité conventionnelle, mais avec des zéros dans le gap imposés par des raisons autres que symétrie.

La représentation B_{1g} correspond à un supraconducteur non-conventionnel et est discutée dans le cadre des supraconducteurs à haute température critique. On remarque que le gap s'annule et change de signe sur des lignes de zéro quand $k_x^2 = k_y^2$. Cela est illustré dans la figure I.3.

La présence de lignes ou points de zéro du gap explique que les propriétés thermodynamiques soient complètement différentes dans un supraconducteur non-conventionnel et dans un supraconducteur conventionnel. Les zéros dans le gap notamment impliquent la présence d'excitations de basse énergie qui se manifestent même à très basse température. Cela donne non pas un comportement exponentiel des propriétés thermodynamiques, comme discuté avec la figure I.1, mais des lois de puissance à basse température. En ce qui concerne la chaleur spécifique, ces lois de puissance dépendent de la forme et de la position des noeuds dans le gap, par exemple $C \propto T^3$ avec un point de zéro, ou $C \propto T^2$ avec une ligne de zéro (dans le cas où le gap a une variation linéaire près des noeuds, voir plus loin dans la page 28). **Les propriétés thermodynamiques sont ainsi sensibles au choix de la représentation irréductible du paramètre d'ordre** par l'intermédiaire des noeuds imposés dans le gap.

Notons que les représentations impaires ($S=1$) sont décrites par le vecteur \vec{d} que nous avons discuté dans le cadre de l' 3He superfluide. Dans la table I.1 la direction du vecteur \vec{d} est donnée par les vecteurs unitaires \hat{x} , \hat{y} où \hat{z} . Ainsi, une des fonctions d'onde possibles pour la représentation A_{1u} est $\hat{z}k_z$. Dans ce cas les spins sont confinés dans le plan a,b (pour que $\vec{d} \cdot \vec{S} = 0$).

Représentation	Parité	Fonctions de base
A_{1g}	$S = 0$	1
A_{1u}	$S = 1$	$\hat{z}k_z; k_x^n + k_y^n; n=1,3$
A_{2g}	$S = 0$	$k_x k_y (k_x^2 - k_y^2)$
A_{2u}	$S = 1$	$\hat{y}k_x - \hat{x}k_y; k_x k_y (\hat{x}k_x - \hat{y}k_y); k_x k_y k_z (k_x^2 - k_y^2)$
B_{1g}	$S = 0$	$k_x^2 - k_y^2$
B_{1u}	$S = 1$	$\hat{z}(k_x^2 - k_y^2)k_z; \hat{x}k_x^n - \hat{y}k_y^n; n=1,3$
B_{2g}	$S = 0$	$k_x k_y$
B_{2u}	$S = 1$	$\hat{y}k_x + \hat{x}k_y; k_x k_y (\hat{y}k_x + \hat{x}k_y); k_x k_y k_z \hat{z}$
E_g	$S = 0$	$k_z k_x; k_z k_x^3$ $k_z k_y; k_z k_y^3$
E_u	$S = 1$	$\hat{z}k_x^{n+1}; \hat{x}k_z k_x^n$ $\hat{z}k_y^{n+1}; \hat{y}k_z k_y^n$; $k_x k_z k_y$; $\hat{y}k_x^n$ $\hat{x}k_y^n$; $n = 0,2$

Table I.1: Des fonctions d'onde des représentations irréductibles du groupe ponctuel D_{4h} d'après Yip et Garg.[Yip93]

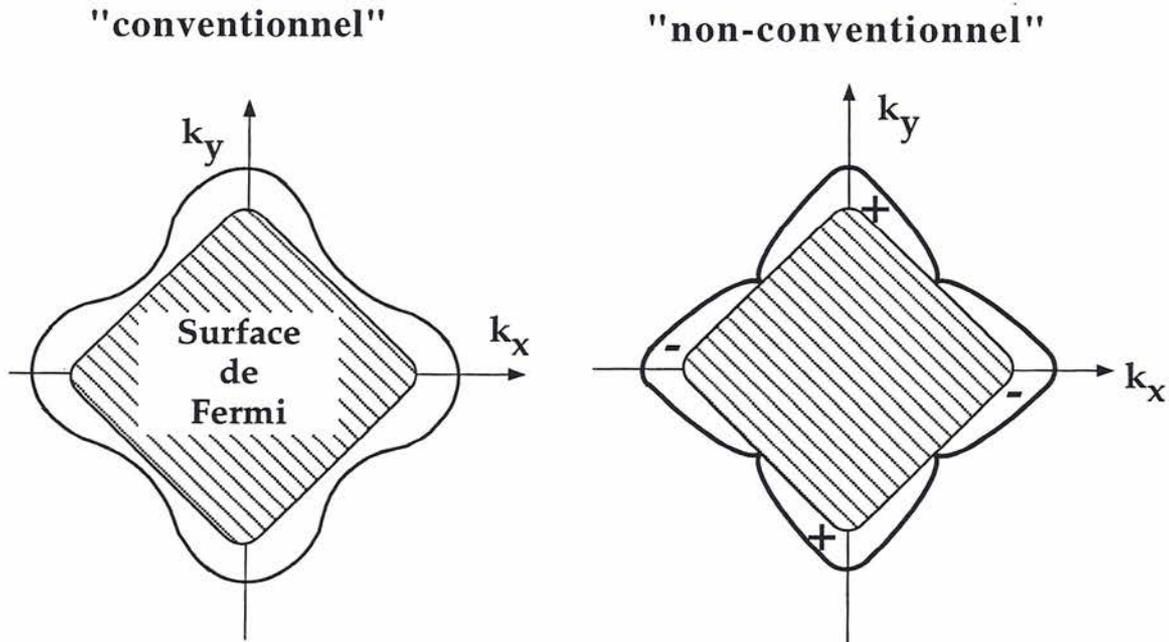


Figure I.3: Le gap supraconducteur dans l'espace réciproque dans le cas d'un réseau tétragonal (cette fois en deux dimensions). A gauche la figure montre un gap classique (conventionnel), et à droite un gap "non-conventionnel" (la représentation B_{1g} du réseau tétragonal). Notons que dans ce cas, la symétrie du groupe ponctuel est brisée par les changements de phase en fonction de la direction du moment angulaire.

I.4 La supraconductivité de UPt_3

Avant de décrire les représentations irréductibles pour UPt_3 et les théories pour expliquer la supraconductivité dans ce composé, il nous faut situer UPt_3 dans le cadre des fermions lourds. La physique des fermions lourds est très riche, ici, nous ne donnerons qu'un aperçu très sommaire. Des revues à ce sujet, sont données par exemple dans les références [Grewe91, Fulde88].

I.4.1 Introduction aux fermions lourds

Les fermions lourds sont des composés métalliques avec des quasiparticules lourdes dont les masses effectives peuvent atteindre mille fois la masse de l'électron libre ($m^* \sim 100$ à $1000 m_e$). On les trouve parmi les composés intermétalliques de terres rares et d'actinides.

L'origine de ces masses effectives élevées est complexe. On considère que ces quasiparticules lourdes sont issues du couplage entre les électrons f qui portent un moment magnétique et proviennent des couches 4f ou 5f incomplètes et les autres électrons qui forment initialement une large bande de conduction. A haute température, les électrons de conduction subissent une forte diffusion par les sites magnétiques réminiscente de l'effet Kondo d'une impureté magnétique dans un métal. L'entropie magnétique reste élevée (une fraction notable de $R \log(2J+1)$, J étant le moment angulaire de l'impureté magnétique) jusqu'à des températures basses, de quelques dizaines de Kelvin, et chute rapidement à plus basse température. Cette chute correspond au passage vers un état avec des quasiparticules lourdes (de masses effectives m^* élevées) induit par des effets de cohérence et l'existence d'un réseau de sites magnétiques bien défini (formé par les atomes de terre rare ou d'actinide). Un état fondamental possible est un état paramagnétique. L'entropie à basse température aura dans ce cas un fort terme linéaire en température $S \propto m^* T$. Un autre état fondamental possible est un état ordonné magnétiquement à longue distance avec une densité d'aimantation principalement localisée sur les sites d'atomes de terre rare ou d'actinide. L'entropie montre dans ce cas une chute en dessous de la température d'ordre magnétique.

La particularité des composés dits à fermions lourds est de correspondre à une situation où, par une faible variation des distances interatomiques (c'est à dire, une faible variation de volume produite par exemple par la pression) on peut transiter facilement d'un état de base (à $T=0K$) magnétique à un état de base paramagnétique ou inversement. Le problème posé est celui du traitement des transitions de phase magnétique-paramagnétique à $T=0K$ (transition de phase "critique quantique" [Millis93]). Pour les métaux de transition à très basse température, ce problème a été traité dans une théorie de "fluctuations de spin autocohérente". C'est une approche semi-phénoménologique, l'application au cas des fermions lourds nécessitant l'introduction de températures caractéristiques fortement renormalisées, pour tenir compte des masses effectives élevées. [Moriya95] La faiblesse des énergies caractéristiques a pour conséquence que les lois simples du régime de liquide de Fermi ne sont observées que dans un domaine restreint aux très basses températures. Ainsi, pour les systèmes très proches de l'instabilité magnétique, on peut observer de fortes déviations à ces lois simples dans une large gamme de température ce qui conduit souvent à qualifier ce régime intermédiaire comme celui d'un "non liquide de Fermi". On trouvera dans les références [Loehneysen96, Kambe97, SpecIssue] des points de vue différents sur ce débat. Une autre approche est celle dite du réseau Kondo où la transition magnétique-paramagnétique est qualitativement décrite par la compétition entre l'effet Kondo et le couplage d'échange entre sites magnétiques induit par les oscillations Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY). [Doniach77]

Remarquons que d'un point de vue microscopique, il n'y a pas de théorie expliquant quantitativement les propriétés des composés à fermions lourds dans une large gamme de température. Il y a cependant un consensus général que dans le cas d' UPt_3 , les électrons f peuvent être considérés comme itinérants, et le régime simple de liquide de Fermi avec des masses effectives élevées

apparaît clairement, comme il sera souligné, à basse température (en dessous de 1.5 K).

Les interactions magnétiques étant importantes dans ces composés, la première découverte de la supraconductivité, faite en 1979 sur le composé $CeCu_2Si_2$ était une surprise.[*Steglich79*] L'anomalie de la chaleur spécifique à T_c montrait sans ambiguïté que ce sont bien les électrons lourds qui s'apparient en paires de Cooper. Par la suite, le domaine a pris de l'ampleur avec la découverte de la supraconductivité dans d'autres composés à fermions lourds, notamment à base d'Uranium: UBe_{13} [*Ott83*], UPt_3 [*Stewart84*] et URu_2Si_2 [*Schlabit86*].

Dans les fermions lourds supraconducteurs on peut envisager une interaction attractive entre les quasiparticules lourdes qui a comme origine les corrélations magnétiques. L'exemple de référence est l' 3He superfluide. Dans ce système, ce sont les fluctuations de spin ferromagnétiques qui stabilisent une suprafluidité "non-conventionnelle" de type p comme nous l'avons discuté auparavant. L'intérêt spécifique d' UPt_3 est d'être un matériau dont on sait synthétiser de gros cristaux de haute pureté. Il autorise donc une grande diversité d'études avec une excellente reproductibilité de résultats entre les différents laboratoires.

I.4.2 Phase normale de UPt_3

UPt_3 cristallise dans une structure hexagonale, comme montré dans la figure I.4. Des mesures de microscopie électronique sur des plaquettes fines de UPt_3 avaient mis en évidence une distorsion du réseau.[*Midgely93*] Cependant, cela n'a jamais pu être mis en évidence par d'autres méthodes (rayons X ou neutrons) sur des échantillons volumiques. Il semble maintenant bien admis que la distorsion publiée soit un effet occasionné par l'amincissement et que le réseau soit bien hexagonal.

La phase normale a été abondamment étudiée par une large variété de techniques. La résistivité, ainsi que l'analyse de la chaleur spécifique à haute température dans un modèle de fluctuations de spin antiferromagnétiques semble montrer que le composé est dans un état paramagnétique assez loin de l'instabilité magnétique.[*Kambe97*]

À basse température, en dessous de 1.5K, la résistivité montre un régime simple de liquide de Fermi $\rho = \rho_0 + AT^2$ avec A de l'ordre du $\mu\Omega cm/K^2$. La bonne qualité des cristaux a permis d'atteindre une résistivité résiduelle bien inférieure au $\mu\Omega cm$. Par comparaison, sur $CeCu_2Si_2$ ou URu_2Si_2 , les expériences sont réalisées sur des échantillons avec des ρ_0 voisins de $10 \mu\Omega cm$.

Dans UPt_3 , la chaleur spécifique est proportionnelle à la température en dessous de 1 K, avec un terme $C/T = \gamma_S = 450 mJ/K^2 cm$ grand. Cette valeur est en accord avec des mesures de la surface de Fermi par l'effet de Haas van Alphen. L'excellente qualité des cristaux a permis d'observer les différentes fréquences de l'effet de Haas van Alphen caractéristiques d'une surface de Fermi complexe avec une large variation anisotrope de la masse effective pouvant atteindre jusqu'à 160 fois la masse de l'électron libre. Les groupes de G. Lonzarich à Cambridge et celui de Onuki au Japon ont pu déterminer complètement la surface de Fermi.[*Taillefer88, Julian92, Onuki96*]

L'ordre antiferromagnétique de UPt_3 .

La surprise concernant le magnétisme est que les expériences de diffusion neutronique faites sur des cristaux de bonne qualité montrent toutes en dessous de $T_N \sim 5K$ un signal caractéristique d'un ordre antiferromagnétique avec de très faibles moments magnétiques ($m_0 = 0.02\mu_B$ par atome d'Uranium à $T \rightarrow 0K$) et un doublement de la cellule unité suivant l'axe b (Fig. I.4). Aucune autre mesure microscopique (RMN, spectroscopie de muons en champ nul) n'a pu détecter de traces d'ordre magnétique à T_N . De même pour les mesures macroscopiques, soit thermodynamiques, soit de transport. Il est aussi remarquable que les mesures de diffraction neutronique sous pression montrent que le signal magnétique (intensité $I \sim m_0^2$) décroît fortement sous pression, alors que la température de transition T_N ne semble pas bouger.[*Aeppli88, Hayden92*] Il n'y a pas actuellement une compréhension complète du magnétisme d' UPt_3 , tant d'un point de vue expérimental que

théorique. Une idée simple, avancée par les auteurs de la référence [Fomin96] serait que de fortes fluctuations magnétiques empêchent l'établissement de l'ordre statique à $T_N = 5K$. Dans ce cadre, l'ordre magnétique réel apparaîtrait à une température bien plus basse, de l'ordre de 20 mK. Ces idées pourraient être un point de départ pour expliquer une anomalie très prononcée dans la chaleur spécifique qui apparaît à très basse température (en dessous de 100 mK) et que nous allons discuter par la suite.

L'établissement d'un ordre magnétique joue souvent un rôle essentiel dans les théories pour expliquer la supraconductivité de UPt_3 . Il nous semble donc important de souligner que la compréhension complète du magnétisme dans UPt_3 est loin d'être atteinte.

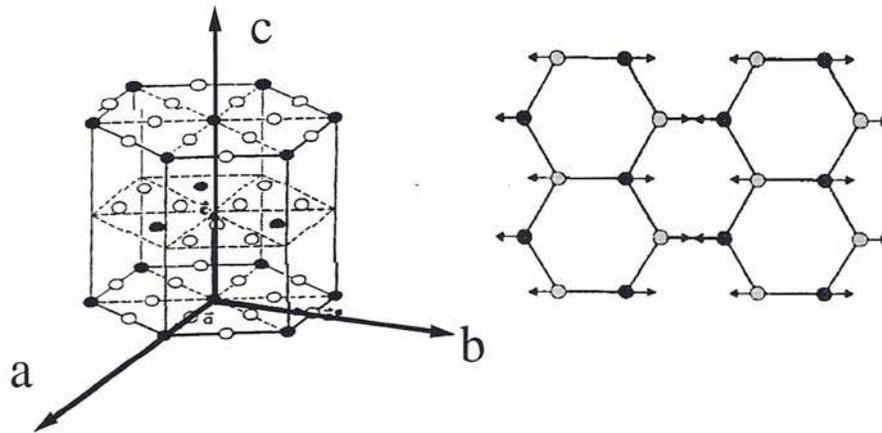


Figure I.4: A gauche, la structure cristallographique de UPt_3 . Les paramètres de maille sont : $a=5.764 \text{ \AA}$ et $c=4.884 \text{ \AA}$. Les atomes en noir représentent les atomes d'Uranium. La partie droite montre la structure de l'ordre antiferromagnétique dans UPt_3 . Cet ordre est dans le plan, suivant l'axe b et porté par les atomes d'uranium (cette fois représentés par des cercles gris et noirs). Les cercles gris représentent ici les atomes d'uranium déplacés d'une distance verticale de $c/2$.

I.4.3 Phase supraconductrice de UPt_3

La résistivité de UPt_3 devient nulle vers 0.5 K. A la transition supraconductrice, la chaleur spécifique montre un premier saut au moment où la résistivité devient nulle, et un deuxième saut à une température légèrement plus basse. Cette double structure en chaleur spécifique a été vue pour la première fois par A. Sulpice et al. [Sulpice86] et retrouvée ensuite dans des expériences faites à Grenoble sur des polycristaux. Les mesures des références [Hasselbach89, Fisher89] sur de bons monocristaux ont montré que cette double anomalie était bien intrinsèque. Ensuite, des expériences de chaleur spécifique sous champ magnétique ont démontré qu'au dessus d'un champ critique H^* , le deuxième saut en chaleur spécifique disparaît.[Hasselbach89] Avec des mesures d'atténuation ultrasonore ou de dilatation thermique, qui montrent une ligne de transition horizontale sous champ magnétique, un diagramme de phase complet comme celui montré dans la figure I.5 a pu être établi.[Adenwalla90, Bruls90]

Depuis 10 ans, de nombreuses mesures thermodynamiques, de transport, de diffusion de neutrons, de spectroscopie de muons, de RMN et de spectroscopie par pointe ont été faites sur UPt_3 . (voir les revues [Loehneysen94] ou [Heffner96]) Elles ont confirmé le diagramme de phase montré dans la figure I.5 et montré que vraisemblablement le gap supraconducteur s'annule sur une ligne de zéros dans le plan de base et probablement aussi sur des points de zéro perpendiculaires au plan de base dans la phase B (la table I.2 resume quelques références sur les expériences concernant

le gap supraconducteur, mise à part la conduction thermique). Ces faits sont impossibles à expliquer avec de la supraconductivité conventionnelle.

Autre que les expériences citées dans la table I.2, des informations sur le paramètre d'ordre ont été aussi cherchés (de façon plus indirecte) par des expériences concernant le comportement du diagramme de phase sous pression [Boukhny94, Boukhny94b, Sieck95], et des expériences de neutrons sur l'observation du réseau de vortex [Kleiman92, Yaron97] ou le comportement de l'ordre antiferromagnétique en fonction de la pression ou du champ magnétique [Aeppli89, Hayden92, Isaacs95, Lussier96b]. Notons qu'on a aussi essayé de détecter l'apparition d'un moment orbital dans la phase supraconductrice, qui signifierait une brisure de la symétrie par renversement du temps, par spectroscopie de muons [Luke93, Dalmas95], ou par des mesures avec une sonde de Hall [Brawner97].

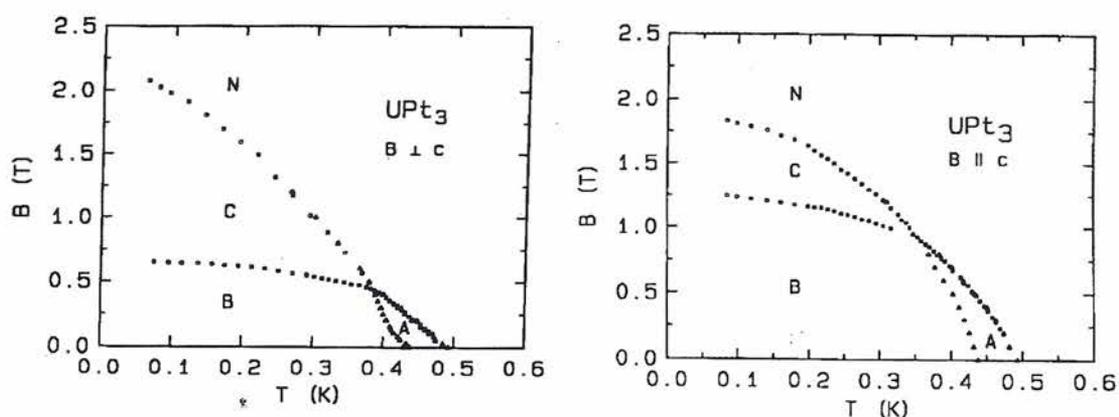


Figure 1.5: Le diagramme de phase de UPt_3 , par N. van Dijk et al. [vanDijk93, vanDijk94], mesuré par différentes techniques.

Donc, le paramètre d'ordre supraconducteur de UPt_3 est tel qu'il favorise l'existence de plusieurs phases supraconductrices et présente une ligne de zéro dans le plan de base.

Deux types d'expériences ont, de plus, sondé l'état de spin des paires de Cooper.

Les premières expériences sont les mesures du champ critique. Par suite des vitesses de Fermi faibles, le champ critique dans les fermions lourds peut être donné par la limitation paramagnétique à basse température. Rappelons aussi que pour un état de spin triplet ($S=1$) la différence des susceptibilités de la phase normale et de la phase supraconductrice peut être faible, contrairement au cas avec un état de spin singulet ($S=0$). Avec $S=1$ on peut même avoir le cas où la susceptibilité des spins est la même dans la phase supraconductrice que dans la phase normale. Dans ce cas, on n'observerait pas de limitation paramagnétique du champ critique. Plus précisément, avec un champ magnétique perpendiculaire au vecteur \vec{d} , l'effet paramagnétique ne serait pas efficace pour détruire la supraconductivité. Avec un champ parallèle au vecteur \vec{d} , la limitation paramagnétique serait efficace. Autrement dit (par définition, $\vec{d} \cdot \vec{S} = 0$), la phase supraconductrice serait facilement polarisable pour un champ parallèle à \vec{S} , sans devoir briser la supraconductivité.

Dans le cadre de UPt_3 , Choi et Sauls ont expliqué le champ critique de UPt_3 par une limitation paramagnétique du champ critique anisotrope. Ces auteurs ont en effet démontré que le champ critique de UPt_3 , qu'on peut voir dans la figure 1.5 (voir aussi [Piquemal87, Shivaram86]) montre une forte courbure suivant l'axe c qui n'est pas présente pour un champ dans le plan. En effet, pour un champ dans le plan, le champ critique est limité par l'effet orbital, mais pour un champ perpendiculaire au plan, l'effet paramagnétique intervient à basse température. D'après Choi et

Expérience	Resultat	Référence
Attenuation ultrasonore	vitesse du son anisotrope ligne de zero points de zéro ?	[Shivaram86]
Longueur de penetration $\lambda(T)$ (par muons)	$\lambda(T)$ anisotrope ligne de zero points de zéro	[Broholm90]
Spectroscopie par pointe	Reflexion d'Andreev ligne de zero points de zéro	expériences: [Goll93, deWilde94, Goll95] théorie: [Bruder90, Goll95]
$H_{c2}(T)$; $H_{c3}(T)$	Effet de brisure de paires d'une surface	expériences: [Behnia90, Keller94, Keller96] théorie: [Samokhin95, Agterberg96, Chen96]
Dopage	Les impuretes non-magnétiques brisent des paires	expériences [Dalichaouch95, Vorenkamp93] théorie voir page 71

Table I.2: Les différentes expériences faites sur $U\text{Pt}_3$ concernant le gap supraconducteur (l'atténuation ultrasonore, la longueur de pénétration et la spectroscopie par pointe) ainsi que les travaux concernant les effets de brisure de paires caractéristiques d'un supraconducteur non-conventionnel (par une surface ou des impuretés non-magnétiques).

Sauls, cela veut dire que la supraconductivité est impaire et que le vecteur \vec{d} est fixé au réseau et parallèle à l'axe c . [Choi91, Choi93] Notons que cette interprétation a été critiquée par Park et Joynt [Park95] qui ont remarqué que la valeur et l'anisotropie de la susceptibilité de Pauli dans la phase normale de UPt_3 n'est pas connu.

Une autre expérience sensible à l'état des spins est la RMN. Le groupe de Kitaoka à Osaka a mesuré le Knight shift en fonction de la température dans toutes les phases supraconductrices de UPt_3 . [Tou96] La dépendance en température du Knight Shift peut dans certains cas être reliée à la susceptibilité des électrons. Les dernières mesures montrent des changements seulement très faibles en entrant dans la phase supraconductrice. Cela voudrait dire que la phase supraconductrice serait facilement polarisable, mais dans toutes les directions du champ magnétique. Le vecteur \vec{d} ne serait alors pas fixé au réseau cristallin et tournerait avec le champ magnétique de façon à en être toujours perpendiculaire. Bien que ces mesures proposent de la supraconductivité impaire, elles sont en désaccord avec la mesure du champ critique sur la direction du vecteur \vec{d} .

Alors, bien qu'il soit aujourd'hui établi que UPt_3 est un supraconducteur non-conventionnel, des problèmes subsistent pour comprendre de façon autocohérente l'ensemble des expériences.

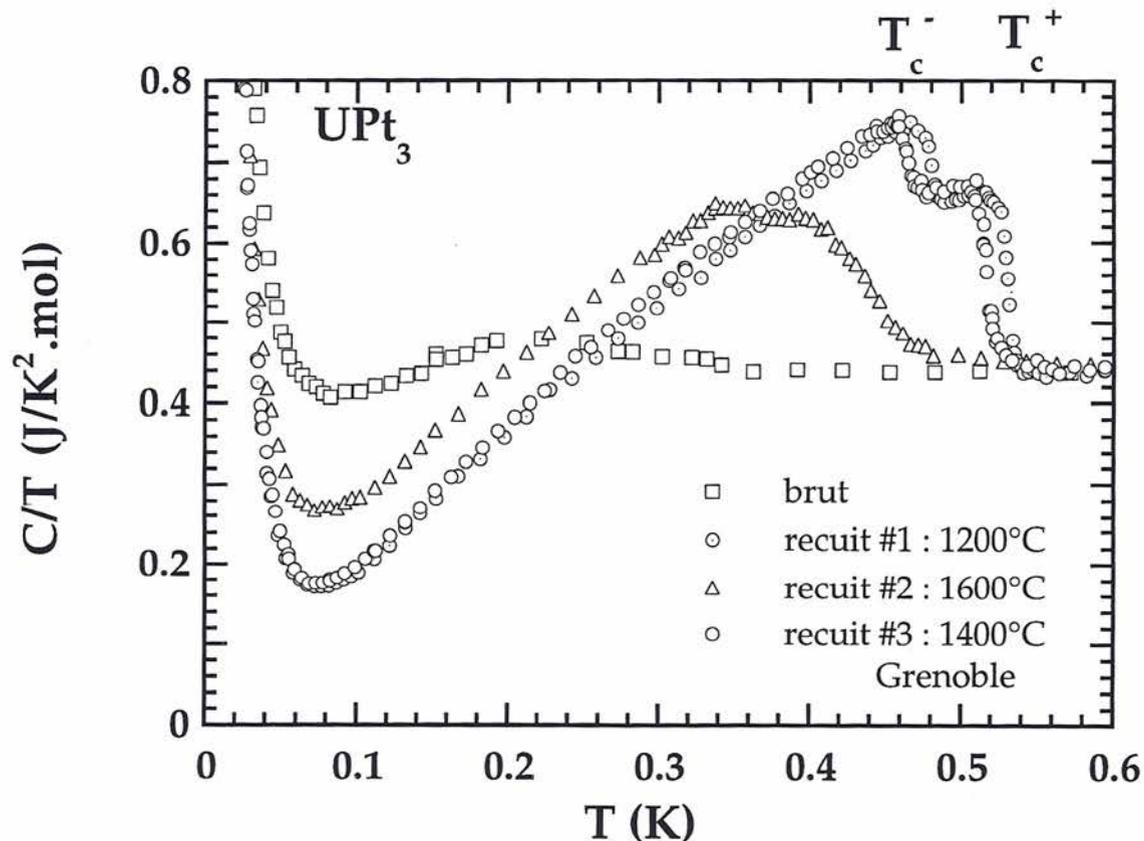


Figure I.6: L'influence du recuit sur la chaleur spécifique de UPt_3 . La supraconductivité est sensible à la température de recuit en ultra vide (ces mesures ont été faites par J.P. Brison, voir référence [Brison94])

Avant de discuter en détail les propositions théoriques pour expliquer la supraconductivité de UPt_3 , je voudrais encore faire deux remarques expérimentales. L'existence du double saut en chaleur spécifique est très sensible à la qualité de l'échantillon. Les mesures présentées dans la figure I.6 démontrent que en changeant la préparation de l'échantillon (température de recuit en ultra vide) on peut faire varier la température critique, ainsi que la raideur des sauts assez facilement. Dans des recuits sous ultra vide, on ne change pas le taux d'impuretés dans

l'échantillon, la supraconductivité est donc très sensible aux changements dans les défauts du cristal.[Brison94]

Dans la figure I.6 on remarque aussi qu'à basse température, la chaleur spécifique présente une remontée grande (en $\frac{C}{T}$). Cette remontée continue jusqu'à 16mK et ne peut pas être expliquée par des contributions hyperfines, tant pour son amplitude que pour sa dépendance en température.[Schubert92, Brison94] Des mesures sous champ magnétique dans la phase normale ne montrent pas de changement remarquable de cette anomalie.[Schubert95] Elle ne semble alors pas être liée à la supraconductivité. Cependant, sa nature n'est pas du tout comprise à ce jour et il se peut que les interactions à l'origine de cet effet aient une influence non négligeable sur la supraconductivité.

Remarquons que sur les bons échantillons on observe que la chaleur spécifique chute environ comme la température au carré à basse température en accord avec une ligne de zéro dans le gap supraconducteur. Cependant, en dessous de 100 mK, l'anomalie masque les comportements de lois de puissance dus au spectre d'excitations du supraconducteur. Nous verrons que ni la conduction thermique κ , ni le champ critique ne semblent être affectés par cette anomalie ce qui peut vouloir dire que les excitations à son origine seraient de nature localisée.

Le but de ce travail est d'étudier le gap supraconducteur par la conduction thermique. En plus de ne pas être sensible aux excitations localisées du système, κ est une sonde directionnelle. En ce sens, elle donne plus d'informations que la chaleur spécifique sur le spectre d'excitations de la phase supraconductrice. La conductivité thermique a été déjà utilisée comme sonde pour obtenir des informations sur la supraconductivité de UPt₃ dans la thèse de K. Behnia. Depuis, de grands progrès ont été faits sur la qualité des échantillons, justifiant de nouvelles études à très basse température. Les améliorations ont porté sur les points suivants:

- les mesures de K. Behnia ont été réalisées sur deux monocristaux avec des provenances différentes coupés l'un suivant l'axe b et l'autre l'axe c. Travailler sur le même cristal, devrait donner des informations plus fiables sur le comportement anisotrope de la conduction thermique.

- ces mesures ont montré des termes résiduels élevées, qui pourraient être dues à des effets d'impuretés.

- les expériences étaient réalisées dans un champ magnétique fini (500 G) dû à la nécessité de supprimer la supraconductivité des contacts thermiques en Indium. Il faut éviter cela pour les mesures aux plus basses températures.

Enfin, nous sommes arrivés à mesurer à champ nul, sous champ magnétique et jusqu'à 16 mK (par rapport à 80 mK, passant de $T_c/8$ à $T_c/30$). Ce qui a permis d'arriver à un régime simple où l'on peut négliger les collisions inélastiques et observer clairement des lois de puissance reliées au gap supraconducteur. Sur la qualité des échantillons, l'effort fait à Grenoble a permis l'obtention de très bons monocristaux. Parallèlement à nos expériences, des mesures semblables ont été faites à Montréal, mais elles sont restées limitées à des températures de 50 mK et à champ nul.

I.4.3.1 Les théories proposées pour expliquer la supraconductivité de UPt₃.

Dans le cadre du composé UPt₃, il est donc aujourd'hui bien établi que c'est un supraconducteur non-conventionnel avec trois phases supraconductrices. Le but principal de cette thèse étant d'obtenir de l'information sur le paramètre d'ordre supraconducteur, nous allons rappeler les théories proposées pour expliquer notamment la multiplicité des phases dans ce composé.

Les théories pour expliquer ce diagramme de phase se basent sur les représentations irréductibles du groupe hexagonal D_{6h} , présentées dans la table I.3. Grossièrement, il y a trois approches différentes.

Deux paramètres d'ordre dégénérés accidentellement.

Une idée pour expliquer un diagramme avec trois phases supraconductrices comme montré dans

Représentation	Parité	Fonctions de base
A_{1g}	$S = 0$	1
A_{1u}	$S = 1$	$\hat{z}k_z; (\hat{x}k_x + \hat{y}k_y); Re(k_+^5 r_+)$
A_{2g}	$S = 0$	$Im(k_+^6)$
A_{2u}	$S = 1$	$Im(k_- r_+); Im(k_+^5 r_+); Im(k_+^6 k_z \hat{z});$
B_{1g}	$S = 0$	$k_z Im(k_+^3)$
B_{1u}	$S = 1$	$Im(\hat{z}k_+^3); Im(r_+ k_+^2 k_z); Im(r_+ k_+^4 k_z)$
B_{2g}	$S = 0$	$k_z Re(k_+^3)$
B_{2u}	$S = 1$	$Re(\hat{z}(k_+^3)); Re(r_+ k_+^2 k_z); Re(r_+ k_+^4 k_z)$
E_{1g}	$S = 0$	Re: $(k_z k_+); (k_z k_-^5)$ Im:
E_{1u}	$S = 1$	Re: $\hat{z}k_+; r_+ k_z; r_- k_+^2 k_z; \hat{z}k_-^5; r_- k_-^4 k_z; r_+ k_-^6 k_z$ Im:
E_{2g}	$S = 0$	Re: $(k_+^2); Im(k_-^4)$ Im:
E_{2u}	$S = 1$	Re: $k_+ r_+; \hat{z}k_+^2 k_z; r_- k_+^3; r_- k_-^3; r_+ k_-^5; \hat{z}k_-^4 k_z$ Im:

Table 1.3: Des fonctions d'onde des représentations irréductibles du groupe ponctuel D_{6h} d'après Yip et Garg ($k_{\pm} = k_x \pm ik_y$ et $r_{\pm} = \hat{x} \pm i\hat{y}$). [Yip93]

la figure I.5 serait que parmi les représentations irréductibles montrées dans la table I.3, deux d'entre elles soient presque dégénérées. Ce modèle présenterait des caractéristiques intéressantes dans l'explication de l'existence du point tétracritique pour toutes les directions du champ magnétique si ces deux représentations irréductibles sont unidimensionnelles, une de type A et l'autre de type B. [Chen93, Chen94] A la première température critique (la phase A), on rentrerait dans la première phase supraconductrice avec une de ces représentations irréductibles. A la deuxième température critique, dans la phase B, l'autre représentation serait alors aussi condensée, et on aurait un mélange des deux. En augmentant le champ magnétique, cette dernière représentation irréductible serait favorisée par rapport à l'autre, et il y aurait une transition vers une troisième phase supraconductrice (voir aussi [Mineev94, Heffner96]).

Modèle avec des symétries élevées.

Une autre possibilité pour expliquer la supraconductivité de ce composé est de supposer que la symétrie du système électronique ne serait pas complètement fixée par le groupe ponctuel, le réseau n'étant vu que comme une petite perturbation au niveau des spins. Ce type de modèle donne alors plus de possibilités pour le paramètre d'ordre que celles énumérées dans la table I.3.

Le modèle le plus développé dans ce cadre est celui du groupe de Machida, qui considère un couplage spin orbite complètement négligeable. [Machida91, Ohmi93, Machida96b] Cela donne des degrés de liberté supplémentaires pour le spin des électrons. Ce type de théorie a des similarités très développées avec l' ^3He superfluide. En effet, ces auteurs proposent de la supraconductivité triplet sans couplage spin orbite, ce qui donnerait des phases supraconductrices avec des états de spin distincts, tout comme nous l'avons discuté dans l'exemple de l' ^3He superfluide.

Les auteurs proposent notamment une supraconductivité non-unitaire pour UPt_3 . Rappelons que la phase A1 de l' ^3He superfluide sous champ magnétique a seulement une partie des spins condensés en paires de Cooper (pour $S_z=1$), ce qui se traduit par une densité d'états résiduelle très grande dans la phase superfluide à $T=0\text{K}$. Dans le cas d' UPt_3 , ce sont les premières mesures sur des échantillons de mauvaise qualité qui ont donné des indications que le paramètre d'ordre pourrait être non unitaire, cependant, les mesures qui ont suivi ont montré le caractère extrinsèque des extrapolations à $T=0\text{K}$ (voir la figure I.6 et la référence [Brisson94]). Les auteurs ont alors proposé une modification de leur théorie, qui serait compatible avec ce fait. Voir pour plus de détails la référence [Machida96b].

Ce type de théorie explique bien l'existence du point tétracritique pour toutes les directions du champ magnétique. De plus, elles proposent que le vecteur \vec{d} ne soit pas fixé au réseau cristallin, ce qui explique bien les mesures récentes du Knight shift dans les phases supraconductrices du groupe de Osaka. [Tou96] Par contre, ces théories ne sont pas capables d'expliquer la limitation paramagnétique **anisotrope** du champ critique, que nous avons discuté auparavant.

Dégénérescence du moment des paires de Cooper.

Une possibilité pour avoir un paramètre d'ordre dégénéré qui donne lieu à plusieurs phases supraconductrices est de considérer le moment du centre de gravité des paires de Cooper, qui dans le cas d'un supraconducteur classique est nul (appariement en $(\vec{k}, -\vec{k})$). Les auteurs des références [Coleman93, Heid95] ont démontré qu'il serait possible d'avoir un état non-uniforme avec une impulsion finie $(\vec{k}, -\vec{k} + \vec{Q})$. Le vecteur \vec{Q} peut être lié aux vecteurs caractéristiques de l'ordre antiferromagnétique et produire des changements suivant la direction et la valeur du champ magnétique. De cette façon, on peut imaginer un diagramme de phase comme celui de UPt_3 . Ce type de théorie donne des possibilités intéressantes, mais il n'est pas clair qu'on puisse expliquer les mesures thermodynamiques de cette façon, car elles prédisent de la supraconductivité complètement sans gap.

Modèles à deux dimensions.

C'est sans doute la possibilité la plus explorée pour la supraconductivité de UPt_3 (voir pour les références [Joynt88, Hess89, Joynt90, Sauls94, Sauls96]). Bien qu'il reste encore des problèmes à résoudre, c'est avec ce type de modèle que l'effort le plus remarquable a été fait pour essayer de déterminer la structure du gap supraconducteur dans UPt_3 . Nous allons alors les décrire plus en détail. En effet, l'idée est de supposer que le paramètre d'ordre de UPt_3 serait bidimensionnel. Dans la phase bas champ magnétique basse température B, les deux composantes du paramètre d'ordre seraient condensées (voir table I.3). Le couplage à un phénomène autre que la supraconductivité, qui brise la symétrie du groupe ponctuel, lèverait alors cette dégénérescence.

Le mécanisme peut être l'ordre antiferromagnétique, de façon à ce que dans la phase A, seulement une composante du paramètre d'ordre soit condensée. A plus basse température, le bilan d'énergie provoquerait la condensation de la deuxième composante du paramètre d'ordre et forme la phase B. En appliquant un champ magnétique à cette phase, le bilan énergétique imposerait la condensation de l'autre composante. Par exemple, pour E_{1g} on peut penser que la phase A pourrait être décrite par $\Delta = k_z k_x$, la phase B par $\Delta = k_z k_x + i k_z k_y$ et la phase C par $\Delta = k_z k_y$.

Avec un champ magnétique perpendiculaire au plan de base, ce scénario a du mal à expliquer l'existence d'un point tétracritique, car l'idée est que la dégénérescence des deux composantes soit levée par un effet qui brise la symétrie hexagonale du plan de base, et qui pourrait être l'ordre antiferromagnétique dans le plan de base. Mais plusieurs solutions ont été proposées à ce problème, le point tétracritique pour $H//c$ pourrait donc être expliqué dans le cadre de ce modèle. Une des forces de ce modèle est d'expliquer l'absence de limite paramagnétique pour le champ critique dans le plan en postulant des représentations de parité impaire bidimensionnelles E_{2u} ou E_{1u} , avec des fonctions d'ondes pour lesquelles le vecteur \vec{d} est orienté perpendiculairement au plan de base (par exemple $(k_x + i k_y)\hat{z}$ pour E_{1u} ou $(k_x + i k_y)^2 k_z \hat{z}$ pour E_{2u}).

Notons qu'un problème non négligeable qui se pose avec ce type de modèles, est que la nature de l'ordre antiferromagnétique, nécessaire pour expliquer la levée de la dégénérescence des deux composantes, n'est pas bien établie de façon expérimentale, comme nous l'avons discuté auparavant (voir page 18).

En tous cas, pour le moment, les théories de ce type sont les plus populaires pour expliquer la supraconductivité dans UPt_3 , et nous allons nous baser sur elles pour expliquer nos mesures. Notamment dans le cadre de la conductivité thermique, ce sont les représentations irréductibles E_{1g} et E_{2u} qui ont été très étudiées. [Fledderjohann95, Norman96, Graf96, Graf96b] Ce sont les seules représentations irréductibles à deux dimensions qui imposent un gap supraconducteur avec une ligne de zéro dans le plan de base et un point de zéro perpendiculaire au plan de base (gap "hybride"; notons que dans le cas de E_{1u} , avec un vecteur \vec{d} parallèle à l'axe c, en accord avec le champ critique, on ne peut pas reproduire un gap hybride, voir table I.3).

Rappelons que, à part des considérations de symétrie, aucune autre restriction n'est donnée pour le paramètre d'ordre. Ainsi par exemple pour l'état E_{1g} , d'après Yip et Garg [Yip93] le paramètre d'ordre est donné en général par une combinaison linéaire de $\eta_1(T)F_1(\vec{k})k_z k_x + \eta_2(T)F_2(\vec{k})k_z k_y$ et de $\eta_3(T)F_3(\vec{k})k_z \text{Re}((k_x - i k_y)^5) + \eta_4(T)F_4(\vec{k})k_z \text{Im}((k_x - i k_y)^5)$. Les coefficients de la combinaison linéaire $\eta_i(T)$ peuvent être trouvés seulement par une théorie microscopique, tout comme les fonctions $F_i(\vec{k})$ qui ont toute la symétrie du réseau. Ces fonctions représentent le fait que les arguments de symétrie restreignent les possibilités pour le paramètre d'ordre dans le sens où ils imposent des changements de phase dans certaines opérations du groupe ponctuel. La fonction précise du paramètre d'ordre peut donc être plus compliquée que suggéré par les fonctions de base.

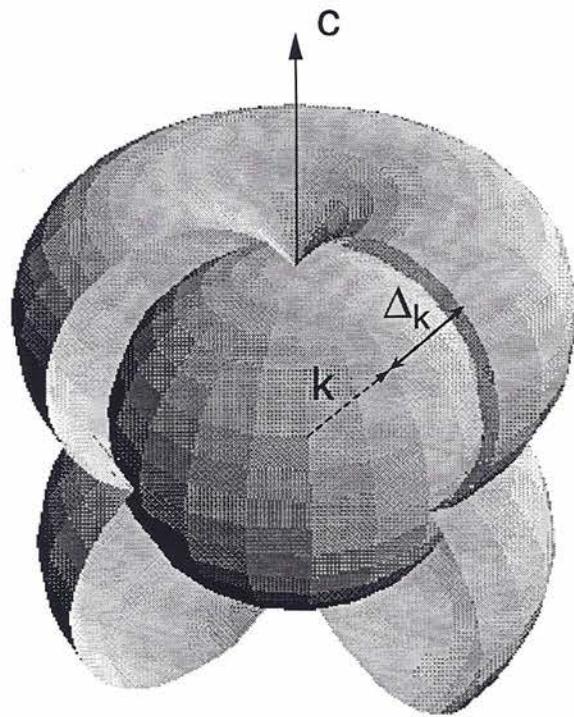
Il serait alors légitime de comparer l'expérience avec la théorie en prenant n'importe quelle

combinaison linéaire. Le problème est alors bien complexe.

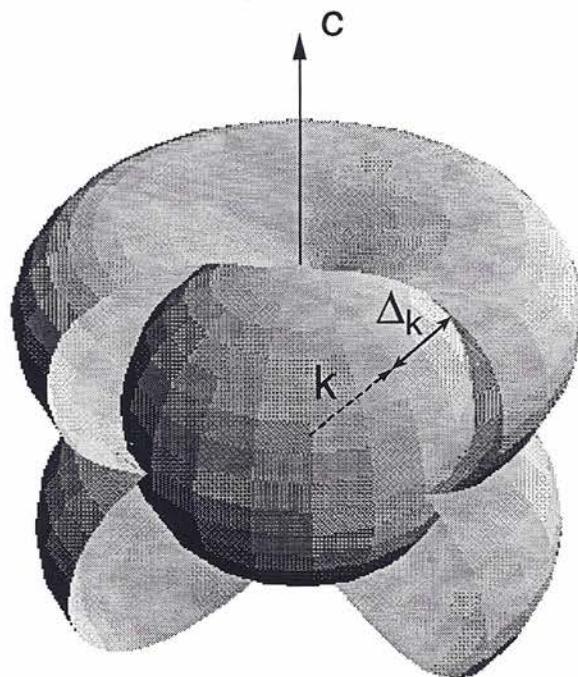
Cependant, pour comparer avec l'expérience, dans un premier temps, on prend la fonction la plus simple qui décrit toutes les caractéristiques du paramètre d'ordre qui sont imposées par symétrie. Dans le cas de E_{1g} nous allons considérer par la suite uniquement la fonction $k_z(k_x + ik_y)$ qui donne une ligne de zéro dans le plan et des points de zéro suivant l'axe c . Si les paramètres η_i et $F_i(\vec{k})$ étaient connus par une théorie microscopique, ils donneraient la pente pour l'approche du paramètre d'ordre à zéro ainsi que la forme du paramètre d'ordre loin des noeuds. Dans l'attente d'une théorie microscopique, ces paramètres sont libres pour la comparaison avec l'expérience.

Dans le cas de la représentation E_{2u} et d'après la table I.3, plusieurs fonctions sont possibles aussi. Le choix de Sauls a été la fonction $\hat{z}k_z(k_x + ik_y)^2$, puisque cette fonction postule un vecteur \vec{d} perpendiculaire au plan de base, compatible avec le champ critique et un gap hybride: cette fonction donne une ligne de zéro et des points de zéro, tout comme dans le cas de E_{1g} . Par contre, les points de zéro sont quadratiques et non pas linéaires, comme c'est possible dans le cadre de E_{1g} .

Bien que cette différence puisse paraître petite, elle **est imposée par symétrie**. La figure I.7 illustre les différences entre les deux modèles dans le cas d'une surface de Fermi sphérique.



E_{1g}



E_{2u}

Figure I.7: Les gaps supraconducteurs proposés dans le cadre des modèles E_{1g} et E_{2u} sont montrés ici de façon schématique pour montrer les différences : l'ordre des zéros aux pôles, sur l'axe c .

CHAPITRE II
TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Chapitre II

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

On sait mesurer la conductivité thermique dans le laboratoire où cette thèse a été réalisée depuis longtemps. Il faut alors cadrer l'apport de cette thèse par rapport aux développements expérimentaux sur cette technique. Dans ce chapitre nous allons décrire l'expérience en indiquant où se trouve l'originalité de notre montage.

Dans UPt_3 beaucoup de mesures de conductivité thermique ont déjà été réalisées à Grenoble. Les auteurs de la référence [Sulpice86] ont mesuré la conductivité thermique dans un polycristal jusqu'à 30 mK. K. Behnia a mesuré dans sa thèse [Behnia90, Behnia91, Behnia92, Behnia92b] la conductivité thermique dans des monocristaux jusqu'à 80 mK, en étudiant aussi la dépendance de κ en fonction du champ magnétique. Toutes ces mesures n'avaient pu être faites à champ nul pour des problèmes de contacts thermiques sur l'échantillon. En effet, ces contacts étaient réalisés en Indium, qui devient supraconducteur en dessous de 3K et conduit alors mal la chaleur. Un faible champ magnétique (500 G) était donc nécessaire pour détruire la supraconductivité des contacts, un paramètre supplémentaire qui compliquait l'interprétation des mesures.

Le problème de la réalisation des contacts non supraconducteurs sur UPt_3 a été résolu avant le début de cette thèse. Par la suite, pendant cette thèse, nous avons conçu un nouveau montage de conductivité thermique avec l'idée de mesurer κ à champ nul, sous champ magnétique et jusqu'aux plus basses températures, sur des échantillons coupés suivant deux directions différentes du **même monocristal**. Les monocristaux de K. Behnia ayant des provenances différentes, des conclusions sur l'anisotropie de κ étaient difficilement possibles.

En parallèle avec notre développement, le groupe de L. Taillefer à Montréal [Lussier94, Lussier96] a réalisé un effort similaire pour pouvoir mesurer κ à champ nul et a été le premier à réaliser cette expérience, jusqu'à 100 mK. [Lussier94] Par la suite, nous avons réalisé cette expérience jusqu'à 30 mK [Huxley95], et le groupe de Montréal a étendu ses mesures jusqu'à 50 mK. [Lussier96]

La particularité principale de notre montage par rapport à tous les travaux réalisés auparavant est au niveau de la thermométrie. En effet, nous avons utilisé des thermomètres de carbone **Matshushita** avec une sensibilité bien plus élevée que ceux de RuO_2 (utilisés dans les autres travaux) et qui fonctionnent bien jusqu'à très basse température. Cette sensibilité bien meilleure n'avait pas été exploitée dans les premières mesures allant jusqu'à 30 mK. Pour cela, nous avons entrepris une deuxième série de mesures dans un cryostat à dilution allant jusqu'à 5 mK et avec une électronique améliorée. Dans ce cryostat, J.P. Brison avait monté auparavant une expérience précise de thermométrie. Comme nous allons le voir, la qualité de l'étalonnage des thermomètres est le point crucial pour la mesure de la conductivité thermique, et l'expérience de thermométrie montée auparavant nous a permis de pousser le montage jusqu'à ses limites. Nous avons ainsi atteint des températures de l'ordre de **15 mK et réalisé aussi des mesures sous champ magnétique** à des températures aussi basses (le groupe de Montréal est arrivé à 50 mK et n'a pas publié de mesures sous champ magnétique, dans la phase mixte). J'espère pouvoir démontrer que cet effort expérimental a apporté de nouveaux résultats pour la physique d' UPt_3 .

En ce qui concerne la technique de mesure de la conductivité thermique, l'apport principal de cette thèse a été l'automatisation de l'expérience de thermométrie et de celle de conductivité thermique. Cela nous a permis de mesurer sous champ magnétique en corrigeant la magnétorésistance des thermomètres (la sensibilité accrue des thermomètres Matshushita se paie par une plus forte variation de la résistance sous champ magnétique). Nous avons aussi utilisé différentes méthodes de mesure suivant les conditions expérimentales. Ceci nous a permis de faire des mesures précises,

et jusqu'à 20 mK, malgré des conditions difficiles. Notamment dans le cas de Sr_2RuO_4 où la résistance des contacts était élevée et les échantillons très petits. Ces mesures (sur Sr_2RuO_4) sont les premières mesures thermiques faites à très basse température sur ce composé.

Dans ce chapitre nous décrirons d'abord l'expérience de thermométrie et ensuite celle de conduction thermique. Le but principal de cette thèse étant de mesurer la conductivité thermique jusqu'aux plus basses températures, nous allons décrire en détail cette technique expérimentale.

II.1 Thermométrie

La base des mesures thermiques est la thermométrie. La connaissance absolue de la température n'est pas facile, surtout en dessous de 1 K. Les auteurs des références [Rusby90, Fogle90] donnent les problèmes que l'on rencontre pour définir une échelle de température en dessous de 1 K. Dans ce chapitre nous décrirons les différents thermomètres utilisés dans cette gamme de température. On distingue deux grands groupes de thermomètres. Les thermomètres primaires donnent une valeur de la température sans nécessité de calibration préalable. Ils sont basés sur des lois physiques bien connues qui peuvent être utilisées comme étalon de température. Le désavantage est qu'ils sont souvent bien plus lourds à utiliser que la seconde classe de thermomètres, les thermomètres secondaires. Ces thermomètres sont des systèmes qui suivent des lois physiques mal déterminées, mais qui sont en général faciles à utiliser. Par contre, il faudra les calibrer par rapport à un thermomètre primaire pour obtenir la température. Nous décrirons seulement les thermomètres utilisés au cours de cette thèse (pour plus d'informations, voir les références [Brison91, Pobell, Lounasmaa]). Tous les thermomètres primaires que nous allons décrire ont été installés et mis au point dans le même cryostat où nous avons par la suite effectué des mesures de conduction thermique. Pendant cette thèse, j'ai automatisé cette expérience de thermométrie, ce qui nous a permis d'augmenter sa souplesse et la rapidité d'étalonnage des thermomètres.

II.1.1 Thermomètres primaires

II.1.1.1 Thermomètre à pression de vapeur d' ^3He

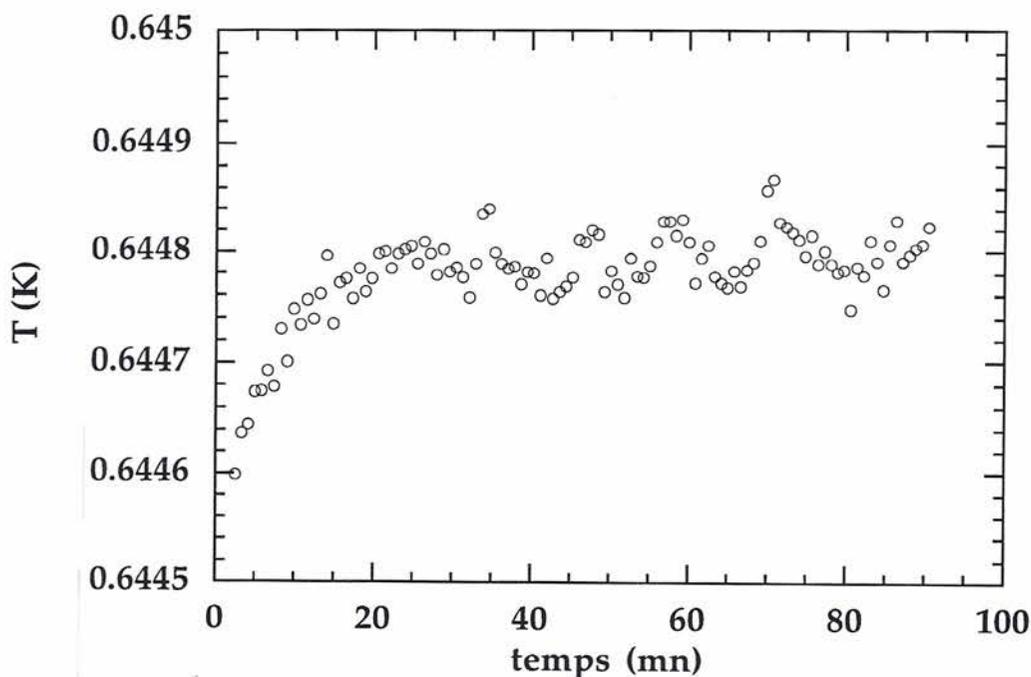


Figure II.1: Un point typique de thermométrie sur le bulbe à ^3He .

La pression de vapeur d'un mélange liquide-gaz en équilibre peut être utilisée comme mesure

de la température et celle d'éléments sélectionnés sert à transmettre l'échelle internationale de température. En mesurant la pression P de vapeur d'un liquide à volume constant, on peut déterminer la température T . Des mesures étalonnées donnent la relation P - T pour chaque mélange utilisé (^3He , ^4He , ..). Dans cette thèse, nous avons utilisé un thermomètre de pression de vapeur d' ^3He liquide. La relation P - T est donnée par l'échelle de température ITS-90 (voir la référence [Rusby90]). La gamme d'utilisation est entre 500 mK, où la pression devient très faible, donc difficile à mesurer, et 3 K (où le liquide s'évapore complètement). Le bulbe à ^3He est rempli de fritté d'argent pour assurer sa thermalisation et un capteur capacitif type BARATRON de MKS mesure la pression à chaud (le zéro du capteur doit être réglé au début de chaque mesure). La difficulté de cette méthode vient du fait que le temps de thermalisation est considérable: à la très grande chaleur spécifique de l' ^3He à basses températures [Pobell], s'ajoute, aux basses pressions, les temps d'équilibrage des pressions entre le bulbe et le baratron.

La solution consiste à remplir la cellule de façon à ce que tout le liquide soit dans le fritté d'argent. L'intérêt est de diminuer le temps d'équilibre, cependant on arrivera difficilement en dessous de quelques dizaines de minutes pour faire un point d'étalonnage en dessous de 1 K. Un grand avantage de ce système est le fait que la courbe d'étalonnage ne varie pas sous champ magnétique. Un point d'étalonnage est montré dans la figure II.1.

II.1.1.2 Points fixes NBS

La transition supraconductrice d'un matériau peut aussi être utilisée comme un point de référence sur l'échelle de température. La susceptibilité montre à la température de transition un signal diamagnétique très étroit en température donnant un point de calibration. Ce type de thermomètres, appelés "point fixes" est très reproductible. Cependant, le champ magnétique doit être très faible ($< 1\mu T$) pour que la température de transition ne bouge pas. Pour cela, on utilise des écrans magnétiques (ruban amorphe), désaimantés avant utilisation et on ne peut utiliser les points fixes en même temps que la bobine de champ magnétique. Nous avons utilisé deux séries de points fixes étalonnés au bureau américain des standards (NBS) avec 7 transitions supraconductrices entre 15mK et 7K.

II.1.1.3 Sel paramagnétique CMN

Un sel paramagnétique CMN suit une loi physique bien connue, mais qui doit être calibrée en quelques points. Ce n'est alors pas vraiment un thermomètre primaire, cependant, nous l'utilisons avec le thermomètre de pression de vapeur d' ^3He et les points fixes pour avoir une échelle de température continue. CMN est l'abréviation de : $2Ce^{3+}(NO_3)_3 \cdot 3Mg(NO_3)_2 \cdot 24H_2O$. [Pobell] C'est donc un sel paramagnétique avec des ions Ce^{3+} qui portent un moment magnétique et sont suffisamment éloignés pour que la température d'ordre soit très basse (≈ 2 mK). La susceptibilité suit une loi de Curie-Weiss jusqu'aux très basses températures :

$$\chi = \chi_0 + \frac{C}{T - T_0} \quad \text{Equation (II.1)}$$

Cela en fait un thermomètre extrêmement sensible, surtout à très basse température, et qui suit une loi physique bien connue. Pour faire un étalonnage nous avons mesuré d'abord le thermomètre de pression de vapeur d' ^3He et les points fixes. La mesure de la susceptibilité du sel CMN donne ensuite une extrapolation entre tous les points d'étalonnage. Les paramètres χ_0 , C et T_0 sont ajustés de façon à obtenir la meilleure concordance entre les différents points d'étalonnage. χ_0 , C et T_0 changent un peu avec le cyclage thermique dû probablement à des changements dans la géométrie

des bobines.

Sous champ magnétique, comme montré dans la figure II.2 les moments magnétiques saturent, et le CMN perd en sensibilité.

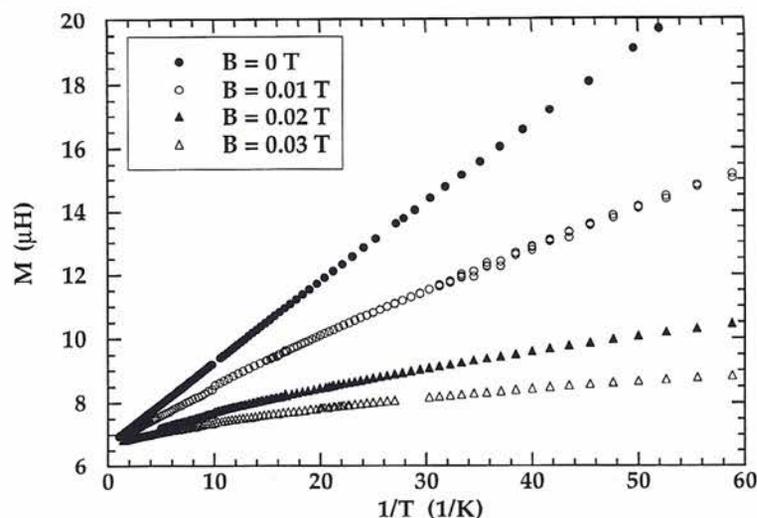


Figure II.2: Des courbes d'étalonnage du sel paramagnétique CMN à champ nul, et sous champ magnétique.

II.1.2 Thermomètres secondaires

Les thermomètres secondaires utilisés au cours de cette thèse sont des thermomètres résistifs. Ces thermomètres sont, en général, des systèmes isolants, mais proches d'une transition vers un état métallique. C'est à dire que les écarts entre les niveaux énergétiques entre lesquels les électrons peuvent sauter est très faible, donnant une résistance qui ne diverge qu'à très basse température. De cette façon, on peut trouver des systèmes dans lesquels la résistance varie jusqu'à 3 ordres de grandeur entre 10 mK et 1 K. Le désavantage de ce type de thermomètres est qu'il faut les étalonner par rapport à des thermomètres primaires et qu'ils ne suivent pas des lois physiques simples (plusieurs mécanismes de conduction, ...).

Pour mesurer ce type de thermomètres nous avons utilisé un Pont (Barras Provence) Hautes-Impédances ainsi qu'un Ohmmètre régulateur ORPX aussi de Barras Provence. Ces appareils font des mesures en alternatif, avec une fréquence de l'ordre de 30 Hz et fonctionnent entre 1M Ω et quelques Ω . Dans des systèmes presque isolants, les parasites à hautes fréquences peuvent facilement chauffer les thermomètres à très basse température. Ainsi, il est nécessaire de filtrer la radiofréquence pour que le thermomètre se refroidisse à la température du cryostat. Nous avons fait cela sur toutes les entrées du cryostat avec des filtres ayant une fréquence de coupure de l'ordre du Megahertz.

II.1.2.1 Résistances en semiconducteurs dopés

Les résistances en Germanium ou en Si dopé avec une concentration de donneurs (p.e. P pour Si ou As pour Ge) près de la transition métal isolant sont couramment utilisées pour les basses températures.[Brisson91, Lounasmaa, Pobell, Suderow92] Ils présentent des caractéristiques R-T acceptables et les étalonnages sont très reproductibles au cyclage thermique. Pour nos mesures, nous avons ainsi utilisé une résistance de Germanium fonctionnant entre 100 mK et 1 K (voir figure II.3). Une fois étalonné, ce thermomètre peut être utilisé comme étalon de température. Cela nous a permis de ne pas avoir à mesurer à chaque fois les thermomètres primaires décrits auparavant.

Cependant, ce thermomètre ne marche pas en dessous de 100 mK. Pour connaître la température

pour $T < 100 \text{ mK}$ nous avons utilisé la linéarité du thermomètre CMN. Le problème qui se pose est que les valeurs pour la formule χ_0 , C et T_0 bougent un peu en fonction du cyclage thermique. Nous sommes alors obligés d'étalonner le CMN à hautes températures ($T > 100 \text{ mK}$) avec le thermomètre de Germanium qui lui, n'a pas bougé avec le cyclage thermique. Cet étalonnage doit être fait au mieux. Comme $M \sim 1/T$ (figure II.2), de faibles erreurs sur la pente de $1/M$ à hautes températures peuvent donner des erreurs grandes à basse température. La meilleure façon de faire est de supposer que T_0 ne varie pas avec le cyclage thermique et prendre la valeur de T_0 trouvée par les étalonnages avec les thermomètres primaires et de n'ajuster que χ_0 et C avec le thermomètre de Germanium.

Nous avons vérifié plusieurs fois avec les points fixes NBS et le thermomètre à pression d' ^3He que l'étalonnage du thermomètre Ge n'a pas bougé avec le cyclage thermique et que la procédure d'étalonnage utilisée était bien correcte. A noter que la magnétorésistance des thermomètres en germanium est non-négligeable, ce qui nous a obligé à placer le thermomètre dans la zone de champ compensé de la bobine.

De cette façon nous avons pu faire des étalonnages fiables de façon rapide sans devoir mesurer à chaque fois les thermomètres primaires décrits auparavant.

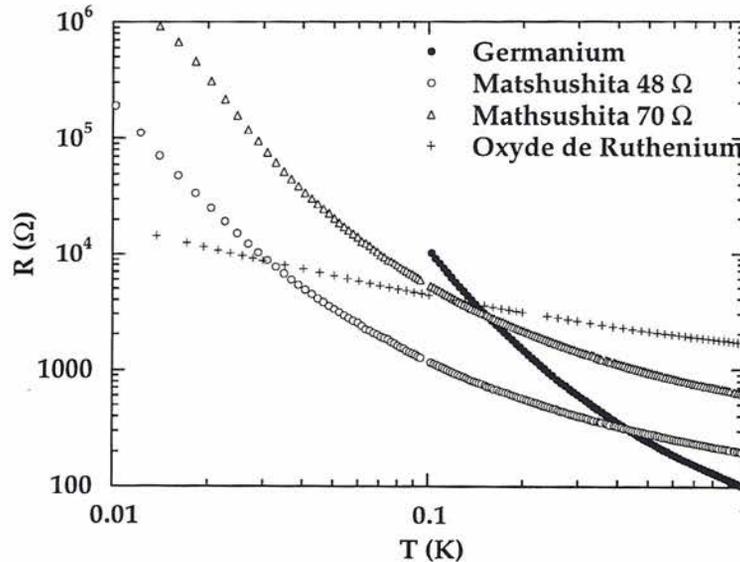


Figure II.3: Des courbes d'étalonnage des résistances en carbone et en Ge dope. A noter la plus grande sensibilité des thermomètres de carbone Matshushita par rapport aux thermomètres en Oxyde de Ruthenium.

II.1.2.2 Résistances en carbone

Pour les plus basses températures, nous avons utilisé des résistances de carbone fonctionnant entre 10 mK et 1 K (Fig. II.3). Les résistances de carbone sont utilisées pour les circuits électroniques et sont faites de grains de carbone (lui-même conducteur) plus ou moins compactés. La conduction se fait par sauts d'électrons entre ces différents grains. Suivant la méthode de fabrication, la courbe R-T change et on peut trouver des groupes de résistances avec les bonnes caractéristiques.

Cependant, contrairement aux résistances de Germanium qu'on achète généralement dans le commerce, il faut suivre une procédure bien définie pour assurer la thermalisation des thermomètres et une reproductibilité au cyclage thermique acceptable. La résistance est laminée à une épaisseur d'environ $300 \mu\text{m}$ et ensuite enveloppée (ou simplement collée) dans une feuille d'argent ou de cuivre qui peut être vissée fortement sur le point froid. La colle (Stycast blanche) réalise le contact

thermique entre la feuille d'argent (nous avons utilisé une feuille de $25\mu\text{m}$ d'épaisseur et d'une pureté de 99.95%) et le thermomètre et assure une bonne tenue des grains de carbone. Une feuille de papier cigarette entre la feuille d'argent et le thermomètre assure l'isolation électrique. Des fils supraconducteurs minces ($\Phi \approx 60\mu\text{m}$) ou des fils en cuivre sont ensuite soudés à l'indium avec le moins d'échauffement possible pour ne pas affecter les grains de carbone. De cette façon, les résistances peuvent être thermalisées jusqu'à 10 mK environ (voir Fig.II.3). Cependant, pour des mesures précises, la reproductibilité au cyclage thermique (changements d'étalonnage de quelques pourcents) est insuffisante et il faut les réétalonner à chaque refroidissement.

Nous avons utilisé une résistance Matshushita fixée à la boîte de mélange pour réguler sur notre cryostat. Nous avons réétalonné ce thermomètre systématiquement à chaque fois que nous avons refroidi. Il est placé, comme la résistance en germanium dans la zone de champ compensé de la bobine de champ magnétique parce qu'il a une magnétorésistance non négligeable. Pour mesurer la conduction thermique nous avons aussi choisi des thermomètres Matshushita. La figure II.3 démontre que ce choix est bien plus avantageux que les thermomètres en Oxyde de Ruthénium, utilisés auparavant par K. Behnia, [Behnia90] et par le groupe de Montréal. [Lussier94, Lussier96] On remarque que la sensibilité des thermomètres Matshushita est bien meilleure.

II.1.3 Etalonnage des thermomètres

II.1.3.1 Etalonnage à champ nul

L'étalonnage correct des thermomètres reste le point crucial pour faire une mesure de conduction thermique. Nous avons assuré l'exactitude de la valeur absolue de la température par l'expérience de thermométrie décrite dans la section précédente. Cela donne confiance en la valeur absolue de la mesure, mais cela ne suffit pas pour augmenter la résolution de l'expérience au maximum. Il faut bien maîtriser la procédure d'étalonnage pour atteindre des faibles niveaux de bruit. L'étalonnage des thermomètres résistifs est souvent représenté par un polynôme:

$$\ln(T) = \sum_{i=0}^n a_i (\ln(R))^i \quad \text{Equation (II.2)}$$

dans la gamme de températures à étudier. La méthode que nous avons choisie a été mise au point par J.P. Brison et L. Puech et permet d'avoir bien plus précisément la température.

Il est mieux d'ajuster à chaque fois qu'on veut savoir $T(R)$ un polynôme de degré n localement sur m points de mesure autour de la résistance en question R . C'est à dire, **pour chaque point de mesure**, ou à chaque fois que nous avons besoin de savoir la température correspondante à une résistance R , nous faisons un nouvel ajustement de la courbe d'étalonnage.

La méthode est raffinée en donnant un poids (gaussien, p.e.) avec une largeur à mi-hauteur de l'ordre de m aux points expérimentaux sur lesquels on fait le polynôme. En jouant sur n , m , le poids, et en contrôlant la dérivée logarithmique de l'étalonnage $d\ln(R)/d\ln(T)$, on peut ajuster au mieux la courbe expérimentale $R(T)$ de façon à moyennner le bruit de la mesure sans pour autant faire d'erreurs sur dR/dT .

La figure II.4 montre un exemple d'ajustement fait avec cette méthode. Cette figure montre notamment l'écart entre la mesure et l'ajustement (ramenée à une erreur en température) ainsi que la dérivée logarithmique de l'ajustement en fonction de la température pour 3 valeurs différentes de n et m . On voit que si on fait un ajustement trop rigide avec par exemple un polynôme d'ordre 2 sur 50 points de mesure autour de chaque point où on veut savoir la température ($n = 2, m = 50$), on n'a pas la bonne allure de l'étalonnage. Si par contre on utilise une procédure trop souple avec

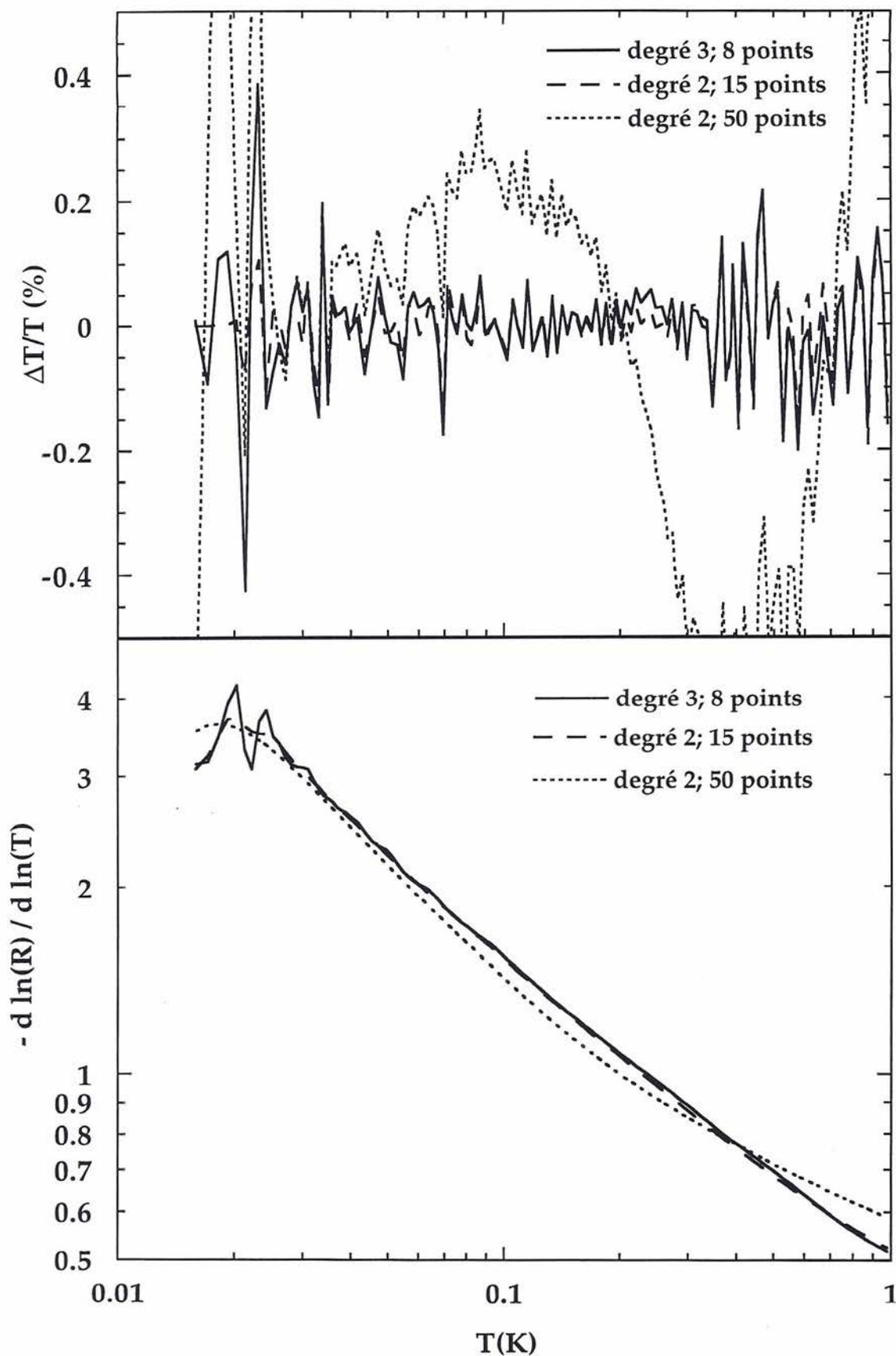


Figure II.4: L'écart entre les points d'étalonnage et l'ajustement (haut). Remarquons que l'erreur de l'étalonnage est de l'ordre de 0.1% pour des paramètres appropriés. Nous avons toujours vérifiée la dérivée de l'étalonnage (bas).

un polynôme d'ordre 3 sur 8 points de mesure ($n = 3, m = 8$), l'ajustement suit trop l'étalonnage et on récupère du bruit supplémentaire (notamment à basses températures) sur la courbe.

La mesure de la conductivité thermique est particulièrement sensible à ces effets. κ est donnée par la mesure d'une puissance P et d'une différence de température ΔT : $\kappa = \frac{l}{S} \frac{P}{\Delta T}$, où $\frac{l}{S}$ est le facteur géométrique. ΔT dépend fortement de la procédure d'étalonnage, notamment de la dérivée logarithmique de l'étalonnage $\Delta T = \frac{\partial T}{\partial R} \Delta R = T \frac{\partial \ln(T)}{\partial \ln(R)} \frac{\Delta R}{R}$. On voit que des courbures "artificielles" de la dérivée logarithmique $\frac{\partial \ln(T)}{\partial \ln(R)}$ dues à un ajustement trop rigide (par exemple $n = 2, m = 50$ dans la figure II.4) donnent des courbures "artificielles" à la courbe de conduction thermique. Par contre, un ajustement qui suit trop l'étalonnage ($n = 3, m = 8$ dans la figure II.4) donne des anomalies et des sauts dans la dérivée qui se rajoutent au bruit de l'électronique (mesure de ΔR) dans la mesure de la conduction thermique.

Cette procédure d'étalonnage est plus complexe que celle utilisée couramment (un polynôme pour toute la gamme de température), et on pourrait croire qu'elle n'apporte pas d'améliorations notables. Cependant, elle a des avantages considérables qui augmentent beaucoup la résolution, la facilité, et la fiabilité de la mesure :

- on peut optimiser les paramètres pour diminuer le bruit de la mesure au minimum tout en vérifiant facilement l'absence d'anomalies dans la dérivée de l'étalonnage
- en automatisant le système d'étalonnage, on peut trouver vite et facilement les bons paramètres (n, m et le poids) pour faire un étalonnage continu dans de grandes plages en température
- pour un thermomètre donné, n, m et le poids ne varient pas en fonction des changements de l'étalonnage, comme le cyclage thermique ou un champ magnétique. Le réétalonnage des thermomètres à chaque refroidissement ne demande plus un grand effort. Aussi, cette procédure est un pas préalable pour automatiser complètement l'étalonnage sous champ magnétique et résoudre le problème de la magnétorésistance des thermomètres permettant d'utiliser des thermomètres avec une bonne sensibilité.

II.1.3.2 Correction de la magnétorésistance

En effet, en pratique une bonne sensibilité des thermomètres en fonction de la température se paie par une plus forte variation de la résistance sous champ magnétique. Dans le cas des thermomètres Matshushita, la résistance des thermomètres varie comme montré dans la figure II.5.

Pour des mesures précises on est obligé de faire un étalonnage systématique à chaque champ magnétique. Cela est réalisé par rapport aux thermomètres de germanium et carbone (préalablement étalonnés à champ nul) qui sont situés dans une zone de champ nul (bobine compensée). Pendant cette thèse nous avons automatisé complètement la procédure d'étalonnage, ce qui était nécessaire pour faire les mesures sous champ magnétique.

Pour mesurer notamment la conductivité thermique, nous avons le plus souvent fait des balayages en température, mais l'automatisation complète de l'expérience nous a permis aussi de faire des balayages en fonction du champ magnétique. Pour faire un balayage en fonction du champ magnétique, la procédure de mesure était la suivante :

- nous avons fait à chaque champ magnétique trois points d'étalonnage et de mesure autour de la température de mesure T_m
- ensuite, le programme refait un nouvel étalonnage avec ces trois points et calculé les trois points de conduction thermique
- un ajustement polynômial entre ces trois points donne la fonction $\kappa(T)$ autour de la température de mesure T_m , ce qui permet de calculer $\kappa(T_m)$
- la résistance (ou température) de régulation est choisie de façon à ce que les trois points faits

au champ suivant soient bien autour de la température voulue T_m .

Nous trouvons exactement le même résultat en faisant des balayages en température complets qu'en utilisant cette procédure de mesure.

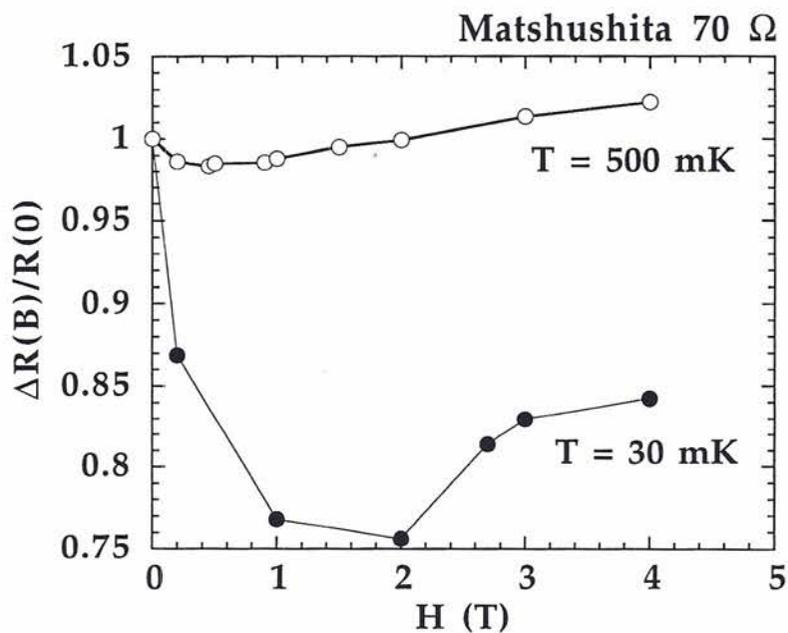


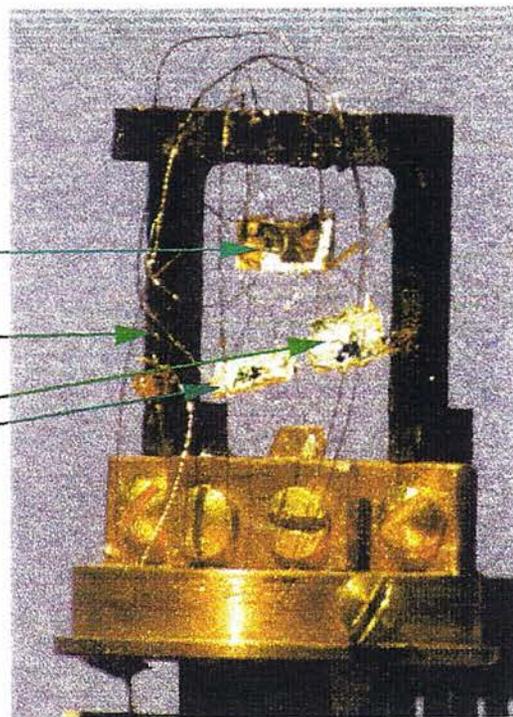
Figure II.5: La résistance des thermomètres Matshushita en fonction du champ magnétique.

Le premier montage de conduction thermique

Chauffage

Cadre en Vespel

Thermomètres



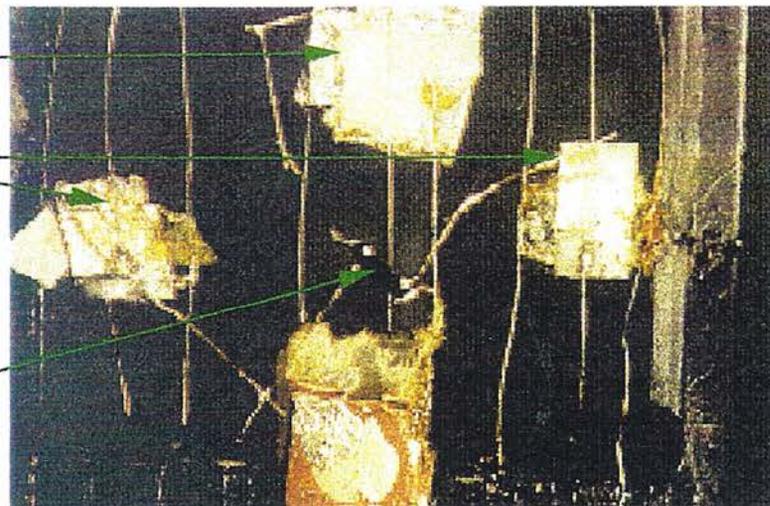
15 mm

Apperçu du deuxième montage de conduction thermique

Chauffage

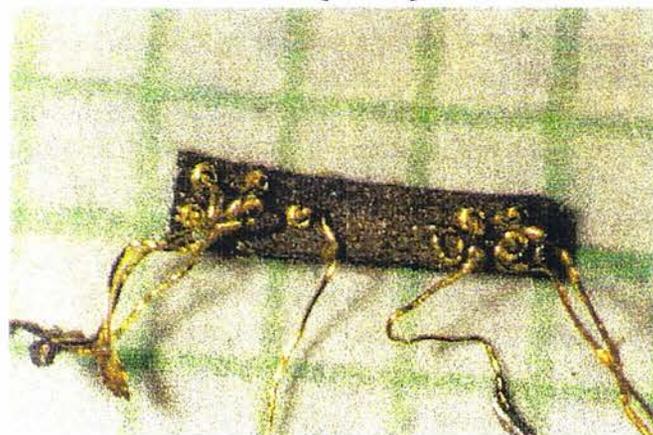
Thermomètres

Echantillon (Sr_2RuO_4)



5 mm

1 mm



Les contacts par soudure à ultrasons sur l'échantillon N°2 de UPt_3

II.2 Conductivité thermique

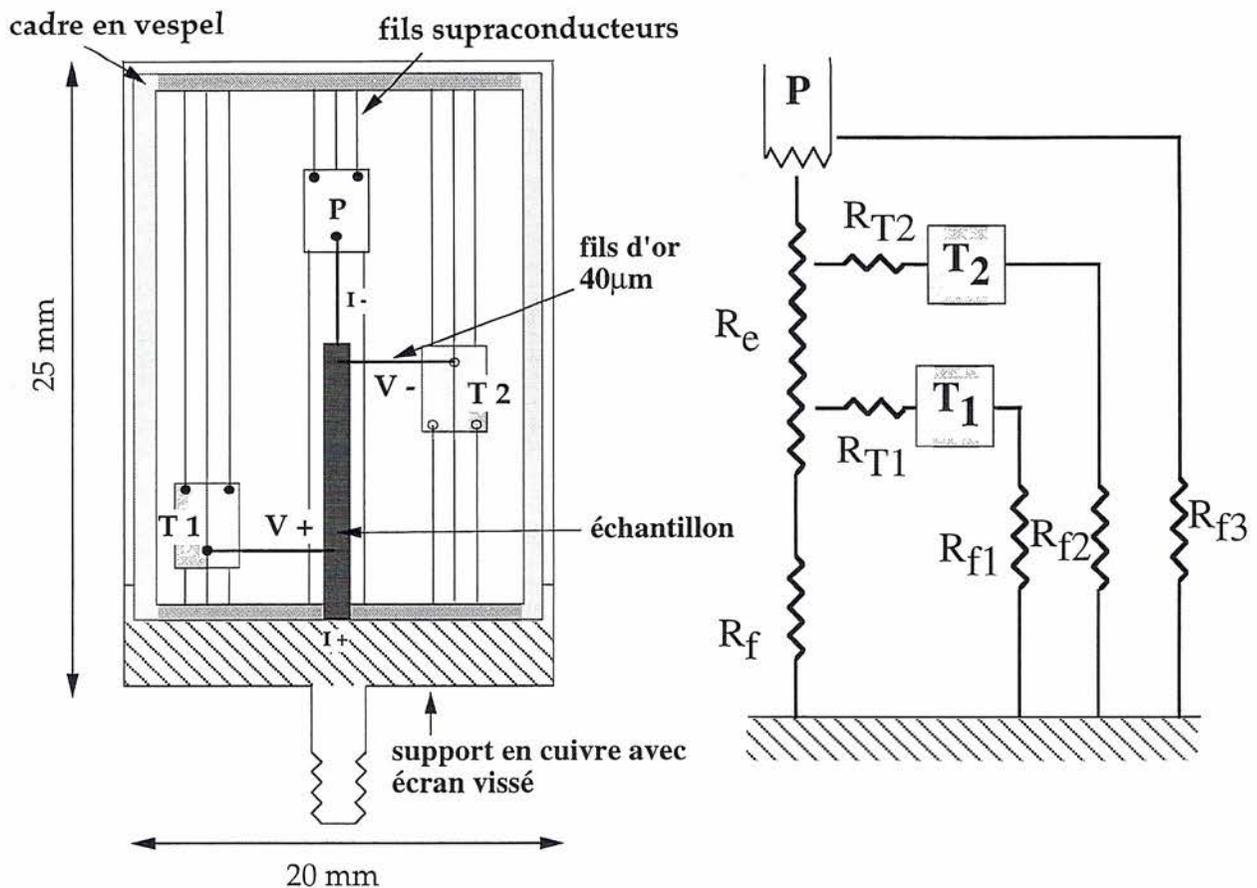


Figure II.6: Notre montage de conductivité thermique montré de façon schématique à gauche, et son schéma équivalent de résistances thermiques à droite. P est le chauffage, T1 et T2 sont les thermomètres en carbone (voir aussi page précédente).

La figure II.6 montre un schéma du montage pour mesurer la conductivité thermique ainsi que son schéma équivalent de résistances. Nous avons réalisé, en collaboration avec A. Huxley, deux montages (voir aussi page précédente). Sur le premier, les thermomètres étaient tenus par de petites tiges en fibre de verre collées avec du vernis General Electric à un cadre en Vespel. Sur le deuxième (figure II.6), ce sont les fils de mesure des thermomètres qui sont collés avec du vernis General Electric au cadre en vespel pour assurer une tenue mécanique. Notons (figure II.6) que nous avons aussi installé des fils supplémentaires pour mesurer la résistivité de l'échantillon en 4 fils (V+, V- et I- dans la figure indiquent les contacts de tension et de courant, le quatrième point est relié à la masse).

Le principe de mesure est simple: un bout de l'échantillon est mis en bon contact thermique avec la source froide, et on chauffe l'autre bout. La différence de température ΔT créé dans l'échantillon est mesuré par deux thermomètres thermalisés en deux points de l'échantillon. Avec des faibles ΔT , la conductivité thermique est donnée par l'équation :

$$\kappa = \frac{l P}{S \Delta T} \quad \text{Equation (II.3)}$$

où S est la section efficace et l la longueur de l'échantillon.

Pour faire une bonne mesure, l'échantillon ne doit être couplé au cryostat qu'à un seul bout. C'est à dire, la résistance thermique de l'échantillon et celle de son contact avec le point froid R_f doivent être beaucoup plus faibles que les résistances de fuite entre les thermomètres ou le chauffage et le point froid, soit $R_e, R_f \ll R_{f1}, R_{f2}, R_{f3}$ (voir figure II.6). Cette condition assure qu'au moment d'envoyer une puissance de chauffage, la chaleur passe à travers l'échantillon et ne s'échappe pas par les fils de mesure des thermomètres et du chauffage.

Les résistances de contact entre l'échantillon et le cryostat R_f et entre les thermomètres et l'échantillon R_{T1} et R_{T2} doivent être le plus faibles possibles, notamment par rapport à R_{f1}, R_{f2} et R_{f3} . De cette façon les thermomètres sont refroidis uniquement par l'intermédiaire des fuites R_{T1} et R_{T2} via l'échantillon (voir figure II.6). Dans le premier montage réalisé, ces résistances sont données par la tige en fibre de verre (diamètre 0.1 mm, longueur 5 mm) collée au thermomètre et au cadre en vespel. Un calcul, pessimiste, puisqu'il néglige les résistances de contact entre la fibre de verre et le vespel à travers le vernis General Electric, donne un ordre de grandeur de $R_{fi} > 5 \cdot 10^6 \frac{1}{T^{1.75}} \frac{K^{1.75}}{W}$ (nous avons pris $\kappa_{fibre\ de\ verre} \lesssim \kappa_{Pyrex} \sim 0.75 \cdot 10^3 \cdot T^{1.75} \frac{W}{K^{2.75}cm}$ [Pobell]).

Dans le deuxième montage, ce sont les fils de mesure des thermomètres qui servent à tenir les thermomètres et font les résistances R_{f1}, R_{f2} et R_{f3} . Ce sont des fils multifilamentaires supraconducteurs fins ($\Phi \approx 60 \mu m$) dans une matrice résistive ($35 \mu\Omega cm$) en Cupro Nickel. Un calcul d'ordre de grandeur (avec la loi de Wiedemann-Franz) en négligeant les résistances de contact, donne $R_{fi} > 6 \cdot 10^6 \frac{1}{T} \frac{K^2}{W}$.

Ces deux techniques donnent des résistances R_{f1}, R_{f2} et R_{f3} beaucoup plus élevées que R_{T1} et R_{T2} à basse température ($T < 4$ K) dans les échantillons que nous avons mesurés pendant cette thèse. Les contacts entre l'échantillon et les fils d'or dans le cas de UPt_3 sont faits par des soudures à ultrason (voir page 39). Ces contacts, donnent une résistance de contact thermique négligeable par rapport au fil d'or lui même. Les fils d'or ont une longueur d'environ 5 mm et un diamètre de $50 \mu m$. On peut estimer leur résistivité à $10^{-8} \Omega cm$ à basse température. Ainsi (avec la loi de Wiedemann-Franz) on obtient $R_{Ti} \sim 3 \cdot 10^3 \frac{1}{T} \frac{K^2}{W}$. Dans le cas de Sr_2RuO_4 cette technique ne fonctionne pas, et les contacts sont faits par de l'époxy d'argent (par A. Mackenzie et A. Tylor de Cambridge), recuite pendant 5 minutes à $500^\circ C$ à l'air pour améliorer la résistance de contact. Cependant, cette résistance est de l'ordre de $10 m\Omega$, ce qui donne une résistance thermique $R_{Ti} \sim 4 \cdot 10^4 \frac{1}{T} \frac{K^2}{W}$.

Toutes ces estimations donnent $R_{Ti} \ll R_f$ et démontrent que notre montage est bien adapté pour les mesures à basse température.

II.2.1 Procédure de mesure

Dans le cas le plus favorable, la procédure de mesure est simple : on régule la température du cryostat, et on mesure R_1 et R_2 avec $P=0$ (voir Fig.II.6). Cela donne un point d'étalonnage par comparaison à des thermomètres étalonnés (voir section II.1). On envoie ensuite une puissance de chauffage P et on re-mesure R_{1Q} et R_{2Q} , puis on change la température et répète la procédure.

D'après l'étalonnage des thermomètres on a T_1, T_2, T_{1Q} et T_{2Q} et la conduction thermique données par la formule :

$$\kappa = \frac{P}{(T_{2Q} - T_{1Q}) - (T_2 - T_1)} \quad \text{Equation (II.4)}$$

La soustraction de $(T_2 - T_1)$ à $(T_{2Q} - T_{1Q})$ permet de corriger les erreurs d'étalonnage (de

l'ordre de 0.1%, voir figure II.4).

Pendant, les choses n'étaient souvent pas si simples, et il a fallu réviser la procédure de mesure suivant l'échantillon mesuré. Les difficultés peuvent apparaître quand l'échantillon conduit très bien la chaleur par rapport à la fuite thermique R_f ($R_e < R_f$). Dans ce cas, la mesure devient compliquée, puisque pour un chauffage donné la plupart de l'écart en température ΔT se fait entre l'échantillon et le cryostat et non pas sur l'échantillon.

Pour illustrer la difficulté de la mesure dans ce cas, prenons un exemple. Pour faire un gradient thermique ΔT_e (faible, de quelques pourcents) dans l'échantillon, il faut appliquer une puissance de $P = \frac{\Delta T_e}{R_e}$ avec R_e la résistance thermique de l'échantillon. Pour connaître le gradient thermique ΔT_f entre l'échantillon et le cryostat causé par la puissance P (qui peut être très grande) on a besoin de la dépendance en température de R_f (si $R_f \gg R_e$), mais on peut estimer un ordre de grandeur en mettant $\Delta T_f \approx P R_f$. On obtient alors le gradient entre l'échantillon et le cryostat $\Delta T_f \approx T_e \approx \frac{R_f}{R_e} \Delta T_e$. Si R_f est environ 100 fois R_e , pour faire un gradient de 5 mK sur l'échantillon, l'échantillon s'échauffe de 500 mK et le cryostat reste à sa température minimale (5 mK dans notre cas). Ce n'est qu'un calcul d'ordre de grandeur, mais cela démontre que sous ces conditions défavorables, il devient impossible de mesurer à une température donnée avec des gradients thermiques dans l'échantillon "élevés" (dans ce cas, plus que 1%). La mesure devient très difficile, puisque les erreurs d'étalonnage (de l'ordre de 0.1%) vont gêner la détermination du gradient de température.

La tableau II.4 résume les caractéristiques des échantillons mesurés.

Echantillon	l (mm)	S (mm ²)	$\frac{l}{S}$ [cm ⁻¹]	$\frac{R_f}{R_e}(100mK)$	$\frac{R_f}{R_e}(100mK; 3T)$	$\rho_0(\mu\Omega cm)$
1 : UPT ₃ axe b	~ 6	~ 0.45x0.45	246	0.1	1.2	0.52
2 : UPT ₃ axe c	~ 1.4	~ 0.5x0.4	72	3	15	0.17
3 : Sr ₂ RuO ₄ 1	~ 0.2	~ 0.16 x 0.03	383	≫100	-	0.5
4 : Sr ₂ RuO ₄ 2	~ 0.67	~ 0.2 x 0.03	883	~10	-	0.8
5 : Sr ₂ RuO ₄ 3	~ 0.7	~ 0.2 x 0.03	900	~10	-	1

Table II.4: Les caractéristiques des échantillons mesurés. Les facteurs géométriques sont obtenus en comparant la résistivité à 300 K à la valeur mesurée pour chaque échantillon. Pour UPT₃ nous avons pris $\rho(300K) = 237 \mu\Omega cm$ dans le plan et $\rho(300K) = 131 \mu\Omega cm$ pour le courant suivant c (voir [deVisser86]). Pour Sr₂RuO₄ le courant est toujours dans le plan et nous avons pris $\rho(300K) = 150 \mu\Omega cm$. [Yoshida96]

Le premier échantillon de UPT₃ était serré mécaniquement au point froid. La résistance thermique de l'échantillon était du même ordre que celle entre l'échantillon et le cryostat. La mesure n'a pas présenté de problèmes particuliers, à part la correction des pertes que nous discutons dans la prochaine section.

Pour le deuxième échantillon de UPT₃, R_e est plus faible par suite d'un facteur géométrique défavorable, et R_f plus grande parce qu'il a fallu contacter l'échantillon au cryostat par quelques fils d'or. A champ nul, aucun problème n'est apparu. Par contre, sous champ magnétique la résistance thermique de l'échantillon devient bien plus petite que la résistance de fuite et la mesure devient difficile, même impossible en dessous de 100 mK et à 3 T.

En ce qui concerne Sr₂RuO₄, il se trouve que ce composé conduit la chaleur beaucoup mieux que UPT₃ à basse température (dans la phase supraconductrice). De plus, les contacts en époxy d'argent entre l'échantillon et le cryostat ne sont pas aussi bons que dans le cas de UPT₃. Ainsi, pour l'échantillon N°1, le rapport R_f/R_e est de l'ordre de 100 à 100 mK et même de 500 vers 700 mK. Pour cet échantillon nous n'avons pas pu faire la mesure.

Pour les échantillons de Sr₂ RuO₄ numérotés 2 et 3, le facteur géométrique était meilleur et le

contact aussi, puisque la surface sur laquelle la "soudure" en epoxy argent était étalée était plus grande.

Dans le cas défavorable où $\frac{R_f}{R_c} \gtrsim 10$, la mesure est possible mais en utilisant une autre procédure. Le problème pour la procédure décrite auparavant est que la température de l'échantillon avec une puissance appliquée $(T_{2Q} + T_{1Q})/2$ est bien plus élevée que la température sans puissance égale à la température du cryostat. Dans ce cas, il ne sert à rien de soustraire $(T_2 - T_1)$ à $(T_{2Q} - T_{1Q})$ puisque l'erreur provenant de l'étalonnage dépend fortement de la température. Ces erreurs sont de l'ordre de 0.1% de la température et sont négligeables si le gradient $(T_{2Q} - T_{1Q})$ est grand (5% par exemple). Par contre, dans des situations défavorables comme celles que nous sommes en train de décrire, on n'arrive souvent pas à faire de gradients plus élevés que 1 ou 2 % de la température. Il est alors nécessaire de soustraire $(T_2 - T_1)$ à $(T_{2Q} - T_{1Q})$ pour pouvoir faire des gradients de l'ordre de 1% ou plus faibles, tout en tenant compte des erreurs d'étalonnage (voir figure II.4).

La solution peut être de faire d'abord une courbe d'étalonnage et ensuite la mesure en appliquant une puissance en continu. Cependant, il est possible que les conditions d'équilibre ne soient pas les mêmes pour les deux balayages en température et des décalages de 0.1% sont facilement imaginables. Ainsi, le mieux est de faire simultanément l'étalonnage et la mesure.

La meilleure façon que nous avons trouvée pour résoudre ce problème est de régler sur R_1 . À puissance nulle le cryostat est à la même température que l'échantillon, et on pourra alors étalonner par rapport aux thermomètres sur le cryostat pour avoir T_1 et T_2 . Quand on met une puissance P , tout le montage s'échauffe, et on doit attendre que le cryostat se refroidisse de façon à ce que R_1 revienne à sa position avant chauffage. La mesure de T_{2Q} donne la conductivité thermique par la formule :

$$\kappa = \frac{P}{(T_{2Q} - T_2)} \quad \text{Equation (II.5)}$$

puisque maintenant $T_1 = T_{1Q}$. Un avantage supplémentaire de cette méthode (apprise de D. Arnaud, SPSMS-DRFMC) est que les erreurs d'étalonnage sont faites seulement sur un des thermomètres, R_2 . Avec cette méthode nous avons pu faire l'expérience sur les échantillons qui conduisent bien mieux la chaleur que leur fuite thermique au cryostat. Quand la situation devient trop défavorable, comme dans l'échantillon N° 1 de Sr_2RuO_4 , ou l'échantillon de UPt_3 coupé suivant l'axe c à forts champs magnétiques et en dessous de 100 mK, la mesure n'est malgré tout plus guère possible. Dans cet échantillon de UPt_3 et à bas champ magnétique nous avons pu appliquer les deux méthodes et vérifier qu'elles donnent bien le même résultat.

Dans les essais pour mesurer l'échantillon N° 1 de Sr_2RuO_4 , nous avons pu mesurer la fuite thermique entre l'échantillon et le cryostat. Cette mesure donne la résistance thermique en fonction de la température à très basse température d'un contact en epoxy argent recuit (fait par A.Mackenzie et A. Tylor, Cambridge). Cette technique donne la meilleure résistance de contact qu'on peut obtenir à ce jour dans des pérovskites lamellaires comme Sr_2RuO_4 , et il nous semble utile de montrer dans la figure II.7 leur comportement en fonction de la température. Notons qu'à basses températures, la courbe s'approche de la loi de Wiedemann-Franz (conduction thermique métallique de l'ordre de une dizaine de milliOhms). A plus haute température, l'époxy argent conduit mieux que la valeur donnée par la loi de Wiedemann-Franz.

II.2.2 Correction des pertes à basses températures

Dans des mesures à très basse température, les pertes apportées par des puissances parasites peuvent ne pas être négligeables et il faut les considérer. Par exemple, l'Uranium dans UPt_3 est radioactif

et produit un effet d'auto-échauffement dans les échantillons mesurés. Cet effet a été estimé et mesuré par les auteurs des références [Schubert92, Brison94, Schubert95] et est de l'ordre de 1nW par gramme d'UPt₃. En thermalisant l'échantillon sur un bout pour faire la mesure de la conductivité thermique, à très basse température, un gradient dû à cette puissance de chauffage apparaît dans l'échantillon. Dans notre cas, ce gradient nous a empêché de faire des mesures en dessous de 15 mK. L'échantillon coupé suivant l'axe c était petit (N° 2, voir table II.4) et ces effets étaient négligeables à partir d'environ 15 mK. L'échantillon d'UPt₃ coupé suivant l'axe b était plus grand, et nous avons retrouvé de façon plus claire un gradient par l'auto-échauffement, qui ne nous a cependant pas empêché de mesurer jusqu'à 15 mK.

Une autre source de pertes peut être l'électronique. Cependant, nous avons pris un soin spécial pour que les puissances parasites dues à des effets d'électronique soient complètement négligeables. Pour cela nous avons mis des filtres haute fréquence (fréquence de coupure d'environ 1MHz) sur toutes les entrées du cryostat pour filtrer la radiofréquence qui pourrait échauffer les thermomètres. Nous avons aussi fait attention d'éviter des boucles de masses ou des courants parasites dans les appareils de mesure. A priori, nous pouvons ainsi négliger cette source de puissances parasites jusqu'à 10 mK.

Cependant, il est nécessaire de se convaincre que de faibles puissances parasites n'influencent pas la mesure si on étalonne les thermomètres par rapport au cryostat dans la même expérience.

On peut démontrer que, à partir du moment où on étalonne les thermomètres par rapport au cryostat, on peut négliger ces pertes. L'étalonnage par rapport au cryostat revient à éliminer tous les gradients de température ne provenant pas de la puissance de chauffage de ΔT_Q . Regardons le cas où la résistance de fuite est négligeable devant la résistance thermique de l'échantillon.

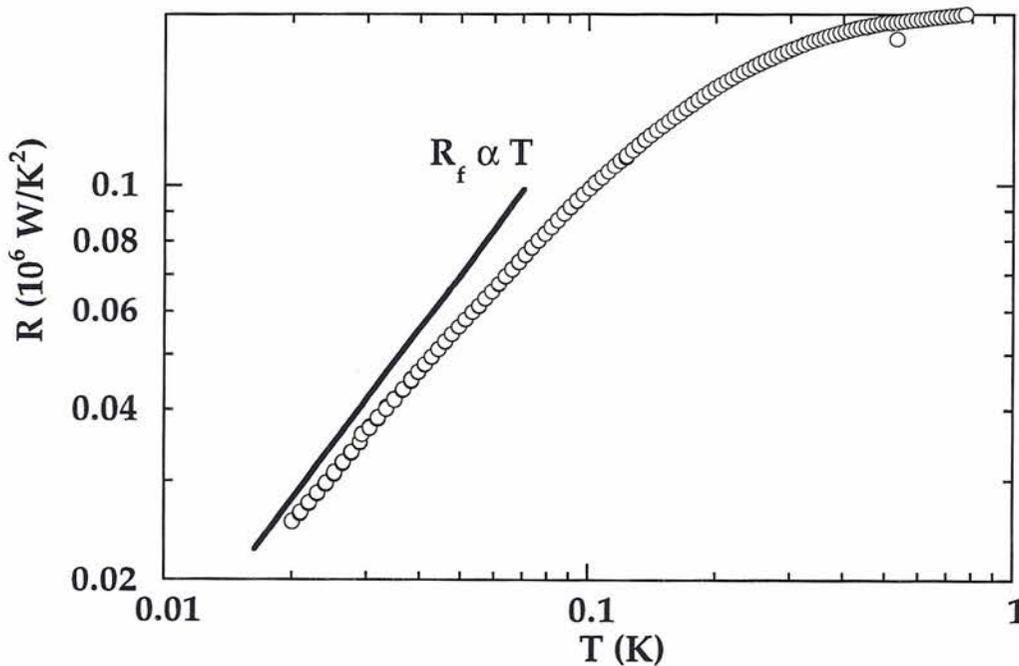


Figure II.7: La résistance thermique d'un contact en epoxy d'argent en fonction de la température.

Avec des puissances parasites P_{par} , la température mesurée T'_V est reliée à la température "vraie" de l'échantillon T_V par l'équation:

$$P_{par} = \frac{S}{l} \int_{T_C}^{T_V} \kappa(T) dT \quad \text{Equation (II.6)}$$

où T_C est la température du cryostat. En étalonnant par rapport au cryostat dans la même expérience, on met $T'_V = T_C$. En supposant une puissance parasite indépendante de la température, ce qui est en général le cas, on peut dériver l'équation précédente et écrire :

$$0 = \frac{S}{l} \left(\frac{dT_V}{dT'_V} \kappa(T_V) - \kappa(T'_V) \right) \quad \text{Equation (II.7)}$$

donc, $\frac{dT_V}{dT'_V} = \frac{\kappa(T'_V)}{\kappa(T_V)}$. Maintenant, la conduction thermique κ' mesurée avec un étalonnage par rapport au cryostat est donnée par :

$$P_{Chauff} = \frac{S}{l} \int_{T'_V}^{T'_V + \Delta T'_V} \kappa'(T) dT \quad \text{Equation (II.8)}$$

et la conduction thermique "vraie" κ par :

$$P_{Chauff} = \frac{S}{l} \int_{T_c=T'_V}^{T_V + \Delta T_V} \kappa(T) dT \quad \text{Equation (II.9)}$$

On peut dériver ces équations par $d(T'_V + \Delta T'_V)$, ce qui revient à faire varier la puissance de chauffage P_{Chauff} à température du cryostat fixe. On obtient notamment :

$$\kappa'(T'_V + \Delta T'_V) = \frac{d(T_V + \Delta T_V)}{d(T'_V + \Delta T'_V)} \kappa(T_V + \Delta T_V) \quad \text{Equation (II.10)}$$

donc, avec $\frac{dT_V}{dT'_V} = \frac{\kappa(T'_V)}{\kappa(T_V)}$ dérivée auparavant, on a :

$$\kappa'(T'_V + \Delta T'_V) = \frac{\kappa(T'_V + \Delta T'_V)}{\kappa(T_V + \Delta T_V)} \kappa(T_V + \Delta T_V) = \kappa(T'_V + \Delta T'_V) \quad \text{Equation (II.11)}$$

donc la conductivité thermique mesurée par un étalonnage par rapport au cryostat κ' est égale à la conductivité thermique "vraie" κ .

C'est encore vrai si la conduction thermique de la fuite n'est plus négligeable mais a la même dépendance en température que celle de l'échantillon. Cela était bien le cas pour l'échantillon N °1 de $U\text{Pt}_3$ coupé suivant l'axe b où nous avons observé des pertes. Pour les autres échantillons les pertes semblent être négligeables. Nous remarquerons cependant que même si la dépendance en température de la conduction thermique de la fuite est voisine de celle de l'échantillon, les erreurs sont aussi négligeables.

Mais la meilleure façon de démontrer cela est de discuter les points expérimentaux. La partie haute de la figure II.8 montre un étalonnage pour une mesure sur l'échantillon de $U\text{Pt}_3$ N °1. Le thermomètre le plus loin du point froid montre une courbure qui pourrait avoir comme origine la

présence de pertes qui chauffent l'échantillon.

Avec une estimation de la conduction thermique de l'échantillon et en supposant une puissance parasite de 60 pW (en accord pour notre échantillon avec l'estimation de 1nW/g citée auparavant), on peut "artificiellement" ramener la courbe d'étalonnage à ce qu'on attendrait en l'absence de pertes. Ainsi, on peut prendre cet étalonnage "corrigé" et recalculer la conduction thermique avec. La partie basse de la figure II.8 montre les points de conduction thermique avant et après l'avoir recalculée. Nous remarquons que nous trouvons **exactement** la même courbe, légèrement décalée en température, quand nous corrigeons les pertes. Ce décalage en température est faible et nous n'en avons pas tenu compte par la suite.

II.2.3 Programme de mesure.

L'automatisation de l'expérience a été possible grâce à la librairie en C réalisée par A. Benoit et L. Puech qui permet d'utiliser facilement le système graphique du Macintosh. Les ajustements pour les étalonnages ont été basés sur le programme d'ajustement inclus dans cette librairie.

Le programme de mesure a été développé sur la base d'un programme réalisé auparavant par J.P. Brison pour la mesure de la chaleur spécifique et de la résistivité. Le programme est organisé en fenêtres et permet maintenant de faire la mesure de la conduction thermique, la résistivité ou la chaleur spécifique, ainsi que des rampes en champ magnétique.

Pour ce qui est de la conduction thermique, plusieurs modes de mesure sont disponibles, qui correspondent aux méthodes citées auparavant. C'est à dire, on peut choisir de réguler sur le cryostat ou sur un des thermomètres qui se situent sur l'échantillon.

Tous les appareils de mesure sont contrôlés depuis l'ordinateur tant pour la mesure de la conduction thermique (ORPX, Pont Barras Provence -sauf le changement de gamme de la résistance-), que pour la thermométrie (Pont de Mutuelle pour mesurer le thermomètre CMN, mesure de la pression sur la cellule d'³He).

Nous avons inclus dans le programme des procédures permettant de moyenner pendant suffisamment de temps pour améliorer la statistique de chaque point. Dans ces moyennes, nous détectons d'éventuelles dérives ou des pics dus à des effets d'électronique et nous enlevons ces points (mauvais) de la statistique. Cela était important quand nous avons utilisé le pont différentiel pour la mesure de la résistance à très basse température.

La mesure est complètement automatisée. On peut aussi programmer des rampes en champ ou en température. Le dépouillement (notamment les étalonnages) est automatique. Il est aussi toujours possible de mesurer en manuel en contrôlant les appareils depuis l'ordinateur, ou de dépouiller en contrôlant les paramètres d'ajustement.

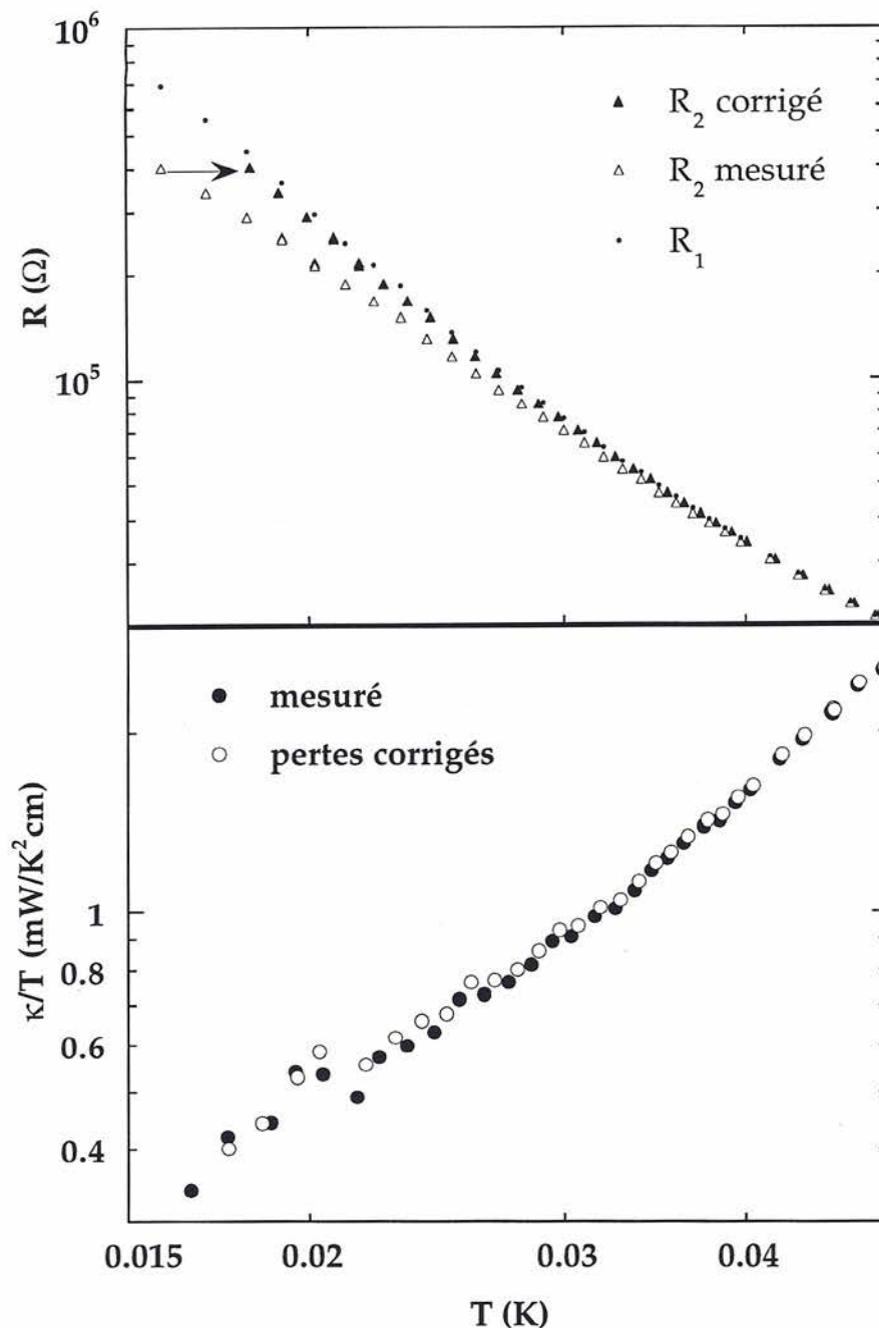


Figure II.8: La partie haute de la figure montre un étalonnage pour l'échantillon N°1 de UPt_3 . Le thermomètre le plus loin du point froid (R_2 dans la figure II.6) montre une courbure qui pourrait venir de la présence de pertes qui chauffent l'échantillon. Nous avons corrigé l'étalonnage comme montré dans la figure et ensuite recalculé la conduction thermique. La partie basse de la figure montre les points de conduction thermique pour les deux étalonnages. Nous remarquons que nous trouvons exactement la même courbe, légèrement décalée en température, quand nous corrigeons les pertes. La courbe que nous présentons ici résulte de la moyenne de deux balayages en température. Celle que nous avons utilisé par la suite pour comparer à la théorie comporte la moyenne avec deux balayages en plus.

II.3 Conclusion

Les points expérimentaux cités dans ce chapitre nous ont permis de faire des mesures précises de conduction thermique de façon systématique jusqu'aux plus basses températures et sous champ magnétique. Dans le cas d'UPt₃ nous étions notamment limités en température par l'auto-échauffement radioactif de l'échantillon.

L'expérience de thermométrie, montée sur le même cryostat, nous a permis de faire des étalonnages précis, ce qui augmente la fiabilité des mesures. La procédure d'étalonnage et la sensibilité des thermomètres nous a permis de pousser la résolution de l'expérience jusqu'à ses limites. Notamment dans le cas de UPt₃ nous avons atteint des niveaux de bruit inégalés jusqu'à maintenant (estimés à être plus faibles que 10% à 16 mK, 3% à 50 mK et 1% à 500 mK). Les courbes que nous allons présenter (à champ nul) sont le résultat de moyennes sur plusieurs balayages en température.

Nous remarquerons aussi que, dans le cas des mesures sur UPt₃, un balayage en température entre 20 mK et 1 K a besoin de 3 jours de temps d'expérience. La réalisation des courbes sous champ magnétique (environ 60 courbes) était alors assez longue. Mais l'automatisation de l'expérience, notamment de la procédure d'étalonnage, nous a permis de faire ces mesures de façon systématique.

Nous avons pu appliquer plusieurs méthodes de mesure qui nous ont permis de mesurer de façon précise même sous des conditions défavorables, notamment dans le cas de Sr₂RuO₄.

CHAPITRE III
LA SUPRACONDUCTIVITE DE UPt_3

Chapitre III

LA SUPRACONDUCTIVITE DE UPt_3

La partie centrale de cette thèse a été l'étude de la supraconductivité du composé à fermions lourds UPt_3 . Dans ce chapitre nous allons décrire les résultats obtenus.

Notre apport sur la physique de ce composé visait à distinguer entre les différents modèles proposés pour la symétrie du paramètre d'ordre. Rappelons que la supraconductivité dans ce composé a été découverte il y a plus de dix ans [Stewart84] et que malgré l'effort entrepris tant d'un point de vue théorique (en bénéficiant du travail accompli dans l' ^3He superfluide) qu'expérimental, ce problème est toujours ouvert.

Nos mesures de conductivité thermique sont destinées à essayer de distinguer entre les modèles déjà présentés dans l'introduction. La conductivité thermique étant une technique compliquée à interpréter, nous allons détailler les développements théoriques qui ont accompagné les développements expérimentaux.

En dehors de la question du paramètre d'ordre de UPt_3 , notons que l'ensemble du travail accompli dans ce composé fait de lui un cas idéal pour tester les propriétés nouvelles associées à la supraconductivité non conventionnelle. En effet, beaucoup de caractéristiques de la phase basse température bas champ magnétique sont connues à ce jour, et son étude peut permettre de tester des effets liés à ce type de supraconductivité. D'ailleurs, la plupart des propositions théoriques relatives à la symétrie du paramètre d'ordre traitent actuellement en parallèle le cas des fermions lourds et celui des oxydes supraconducteurs à haute température critique.

Nous commencerons par décrire brièvement nos mesures du **champ critique**, puis nos mesures de **conductivité thermique à champ nul**. Nous verrons qu'elles ouvrent une nouvelle voie pour différencier entre les modèles proposés et permettent de tester de nouvelles prédictions sur la supraconductivité non-conventionnelle, notamment à très basse température. Cependant, le transport dans la phase supraconductrice n'est pas un sujet facile, et il faudra rappeler les idées théoriques nécessaires pour le comprendre avant de discuter nos résultats. Il se trouve en particulier que pour un supraconducteur non conventionnel la valeur du déphasage caractérisant les collisions joue un rôle particulier, et nous insisterons sur ce point. Par la suite, nous décrirons les effets de brisure de paire par les impuretés et leur importance dans l'interprétation de nos mesures à très basse température.

La mesure de la **conductivité thermique sous champ magnétique** sera discutée aussi en détail, et nous verrons que nous arrivons à interpréter κ sous champ de façon assez complète, ce qui est particulièrement encourageant vu la complexité des processus mis en jeu. En effet, la conductivité thermique dans la phase mixte est encore plus compliquée qu'à champ nul, et nous la discuterons en détail. Nos mesures à très basses températures et sous faibles champs magnétiques montrent de façon particulièrement claire l'effet de la supraconductivité non conventionnelle sur les propriétés thermiques du système.

III.1 Le champ critique de UPt_3

Le champ critique de UPt_3 a été très étudié par les auteurs des références [Piquemal87, Shivaram86, Keller94, vanDijk94] Nous avons entrepris des mesures de champ critique par la transition résistive pour deux raisons. Nous croyons tout d'abord que les résultats publiés jusqu'à maintenant n'ont pas la résolution expérimentale dans la partie très basse température ($T < 100$ mK) qui correspond à celle qu'on peut obtenir à ce jour. Il serait intéressant de voir si un ajustement du champ critique à des mesures plus précises pourrait apporter de nouveaux éléments pour obtenir de l'information sur la supraconductivité de UPt_3 .

La deuxième raison pour effectuer ces mesures a été de tester si le champ critique est affecté par les effets qui dominent la chaleur spécifique à très basse température. Nous avons déjà remarqué que l'origine de l'anomalie présente dans la chaleur spécifique à très basse température (voir la page 22 et les références [Schuberth92, Brison94, Schuberth95]) est un problème qui n'est pas du tout résolu dans UPt_3 . La question par rapport à nos mesures de conductivité thermique à très basse température qui vont suivre est de savoir si les excitations qui donnent cette anomalie influencent aussi la conductivité thermique à très basse température. Il se trouve que l'anomalie n'influence pas le champ critique, et cela rend nos mesures de conductivité thermique à très basse température plus fiables en ce qui concerne les conclusions sur le paramètre d'ordre.

III.1.1 $H_{c2}(T)$ et son interprétation

La mesure du champ critique.

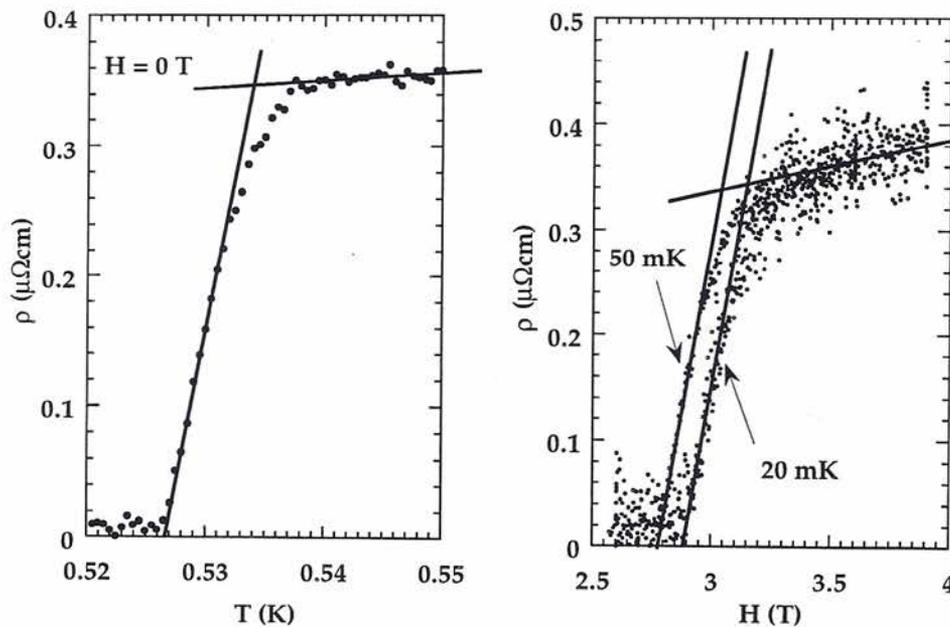


Figure III.1: Des balayages en champ (droite) et en température (gauche). La température de transition est déterminée en traçant une droite sur la partie linéaire de la transition résistive et sur la résistivité dans la phase normale. Le point de croisement de ces droites est pris comme la température critique.

Pour déterminer le champ critique nous avons mesuré la résistivité de l'échantillon N°2 de UPt_3 décrit dans la section II.2.1 (voir page 41) avec un Pont Barras Provence basses Impedances. Le choix de l'échantillon était motivé par la faible largeur de la transition résistive à champ nul ($\sim 1\%$ de la température). Une courbe typique de la résistance en fonction de la température est montrée

dans la figure III.1. Le critère utilisé est le critère dit de "onset" et est aussi illustré dans la figure. Dû à la faible largeur de la transition résistive, d'autres critères donnent bien le même résultat.

Le courant d'injection est maintenu faible de façon à ne pas influencer la largeur de la transition à haute température et de ne pas chauffer l'échantillon aux plus basses températures. Typiquement nous avons utilisé des courants de l'ordre du milliampère ou de quelques dizaines de microampères à basse température. La résolution du Pont est de l'ordre de la dizaine de picovolt, ce qui permet de faire des mesures précises jusqu'aux plus basses températures. À basse température, nous avons fait des balayages en champ magnétique (figure III.1), pour croiser la ligne de transition de façon perpendiculaire dans le plan (T,H). La vitesse de balayage en champ était très faible (3 heures pour aller de 2.5 à 3.5 T vers 20 mK) pour éviter d'éventuels problèmes d'échauffement dus aux courants de Foucault.

Nos mesures sont faites jusqu'à 10 mK. Il n'y a cependant pas de façon expérimentale de vérifier que la température de l'échantillon était bien 10 mK (autrement dit, que l'échantillon est bien à la même température que le thermomètre), puisque les courbes de résistivité ne présentent aucun changement entre 20 et 10 mK dans la barre d'erreur de l'expérience. Ce qui nous assure par contre que l'on est bien vers 10 mK est que dans l'expérience de conductivité thermique, décrite dans le chapitre II, où l'échantillon était thermalisé seulement par un des fils de courant, on a bien refroidi UPT_3 jusqu'à au moins 14 mK, et cela malgré l'autoéchauffement radioactif dû à l'uranium. Comme dans l'expérience de résistivité, par contre, l'échantillon est thermalisé par les quatre fils de contact, on peut espérer être arrivé à le refroidir bien plus bas que 14 mK. Une température minimale de 10 mK est raisonnable.

Les résultats expérimentaux.

Nos mesures sont présentées dans la figure III.2. Le point remarquable est que sur le champ critique nous n'observons **aucun effet de l'anomalie présente en chaleur spécifique**. Cela peut vouloir dire que les excitations qui donnent cette anomalie n'influencent pas la supraconductivité, au moins le champ critique. Ce résultat est cohérent avec le fait que l'anomalie de la chaleur spécifique n'influence pas la conductivité thermique à très basse température.

Un point essentiel pour la physique de UPT_3 est la courbure du champ critique pour $H//c$. En effet, tandis que la pente du champ critique à T_c dH_{c2}/dT est plus grande pour $H//c$ que pour $H//b$, le champ critique à $T=0$ est plus faible pour $H//c$ que pour $H//b$. Cela a été trouvé par Piquemal et al. et par Shivaram et al. [Piquemal87, Shivaram86] Choi et Sauls ont interprété les données de ces derniers avec l'idée que le champ critique à basse température est donné par la limite paramagnétique suivant l'axe c , mais pas pour le champ dans le plan de base.[Choi91, Choi93] Comme nous l'avons remarqué dans l'introduction, cela est très difficile à expliquer avec un appariement conventionnel des électrons et est une indication très forte que l'appariement des électrons est de type triplet, avec le vecteur \vec{d} fixé suivant l'axe c . De cette façon, la limite paramagnétique avec le champ dans le plan serait inefficace, mais pas avec le champ perpendiculaire au plan.

Dans la table III.5 nous donnons les différents paramètres de T_c et de la pente de H_{c2} à T_c pour les différentes phases supraconductrices dans ce composé, extraits de nos données. Le champ critique de la phase A est bien défini près de T_c (voir figure III.2). Pour ce qui est du champ critique de la phase C, les données pour un champ dans le plan peuvent facilement être extrapolées à champ nul pour trouver la température critique $T_{c,PhaseC}$ et la pente du champ critique de la phase C $\left. \frac{\partial H_{c2,PhaseC}}{\partial T} \right|_{T=T_{c,PhaseC}}$ si cette phase existait jusqu'à champ nul. Par contre, pour le champ perpendiculaire au plan l'extrapolation est difficile (voir figure III.2). Nous avons alors supposé que l'anisotropie de la pente à T_c du champ critique était la même pour les deux phases A et C, et ainsi pu trouver la pente du champ critique pour un champ perpendiculaire au plan (la température

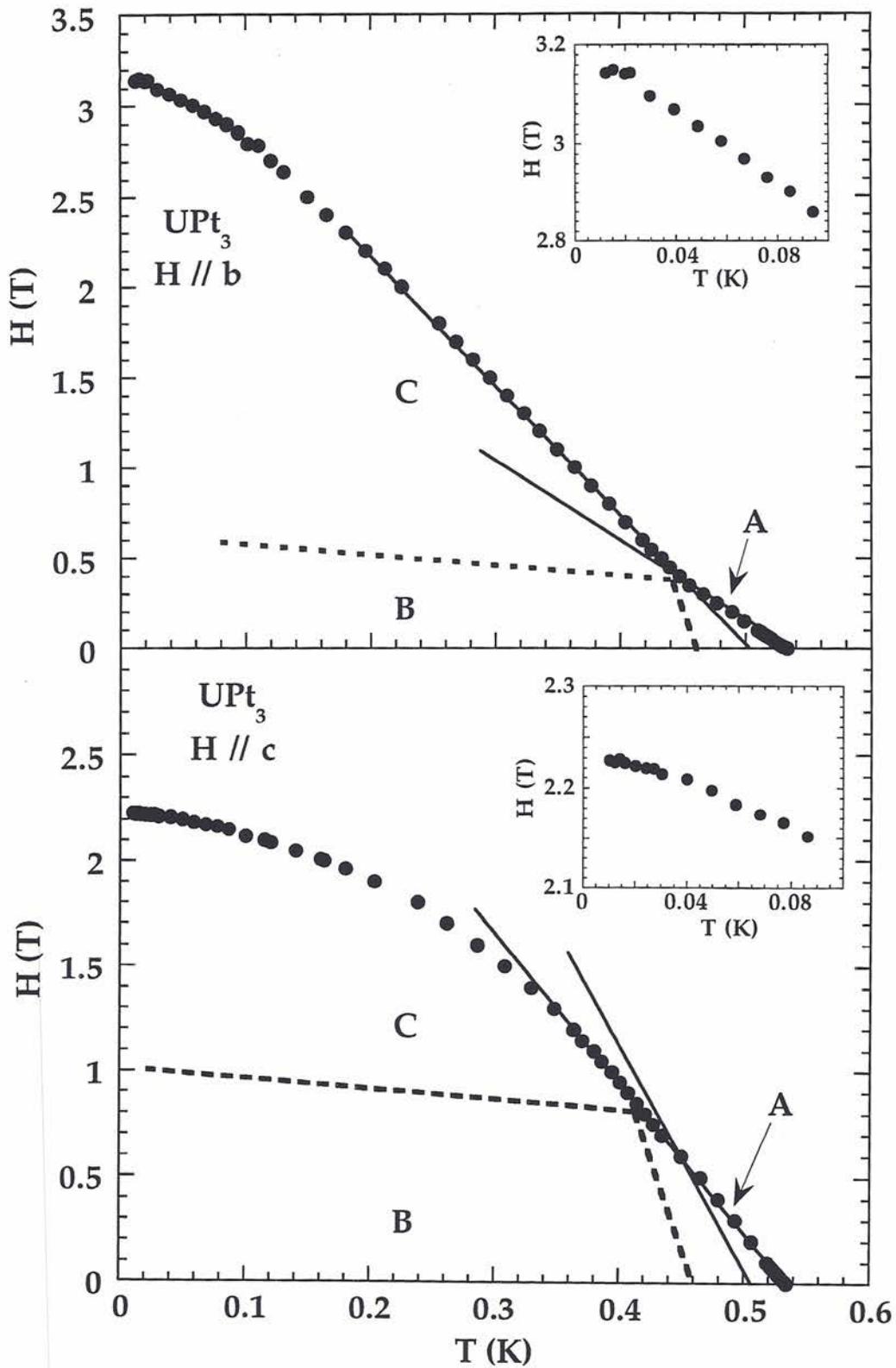


Figure III.2: Le champ critique déterminé par la transition résistive de UPt_3 . Chaque point correspond à un balayage en température à haute température ou à un balayage en champ magnétique à basse température. Les lignes pointillées montrent les lignes de transition qu'on obtient par d'autres méthodes et les lignes droites les pentes du champ critique à T_c obtenues par ces données (voir texte).

critique à champ nul de cette phase $T_{c,PhaseC}$ étant fixée par les données avec le champ dans le plan). Le résultat de ces estimations est donné dans le tableau III.5 et illustré dans la figure III.2.

Phase	direction	T_c	$-dH_{c2}/T_c$
A	plan de base	530 mK	4.5 T/K
A	axe c	530 mK	7.3 T/K
C	plan de base	505 mK	6.7 T/K
C	axe c	505 mK	11 T/K

Table III.5: Les différents paramètres obtenus avec le champ critique. Les paramètres pour la phase C ont été obtenus en supposant que l'anisotropie du champ critique était la même pour les phases A et C (voir texte et droites dans la figure précédente).

La transition résistive dans un supraconducteur avec plusieurs phases.

En plus des mesures présentées dans les figures précédentes nous avons aussi mesuré un échantillon avec une transition résistive plus large (échantillon N°1, voir section II.2.1, page 41), et un courant légèrement plus élevé. La transition résistive de cet échantillon s'élargissait sous champ magnétique, et l'obtention de la température critique par le critère d'onset était fautive, ce qui donne des courbures "artificielles" au champ critique, notamment à bas champ.

Un résultat intéressant est cependant sorti de ces mesures. Comme montré dans la figure III.3, la transition résistive s'élargit sous champ magnétique. Par contre, au niveau de la transition A→C, elle se rétrécit très fortement. A plus forts champs magnétiques (phase C), la transition s'élargit à nouveau comme dans la phase A. La figure III.4 montre la largeur de la transition calculée comme la différence des températures entre le critère de "onset" et la température correspondant à une résistance qui fait 10% de la résistance de la phase normale. On voit clairement que la transition se rétrécit au passage de la phase A à la phase C.

Cependant, la transition résistive est très compliquée à comprendre quantitativement. Il faut tenir compte de plusieurs effets en même temps, notamment des inhomogénéités dans l'échantillon. Une explication simple du rétrécissement de la transition au passage de la phase A à la phase C serait de rappeler que la phase C a un champ critique plus élevé. La différence de champs critiques peut être estimée par le rapport des pentes du champ critique à T_c dans les deux phases (voir table III.5) qui est de l'ordre de 1.6. La transition se rétrécit d'environ un facteur 2, ce qui est en accord avec cette idée. Cependant, il faut remarquer que l'échantillon avec une largeur de la transition résistive plus faible (le N°2, voir section II.2.1, page 41) avec lequel nous avons fait la courbe du champ critique (figure III.2) ne montre pas ces effets, comme présenté dans la figure III.3.

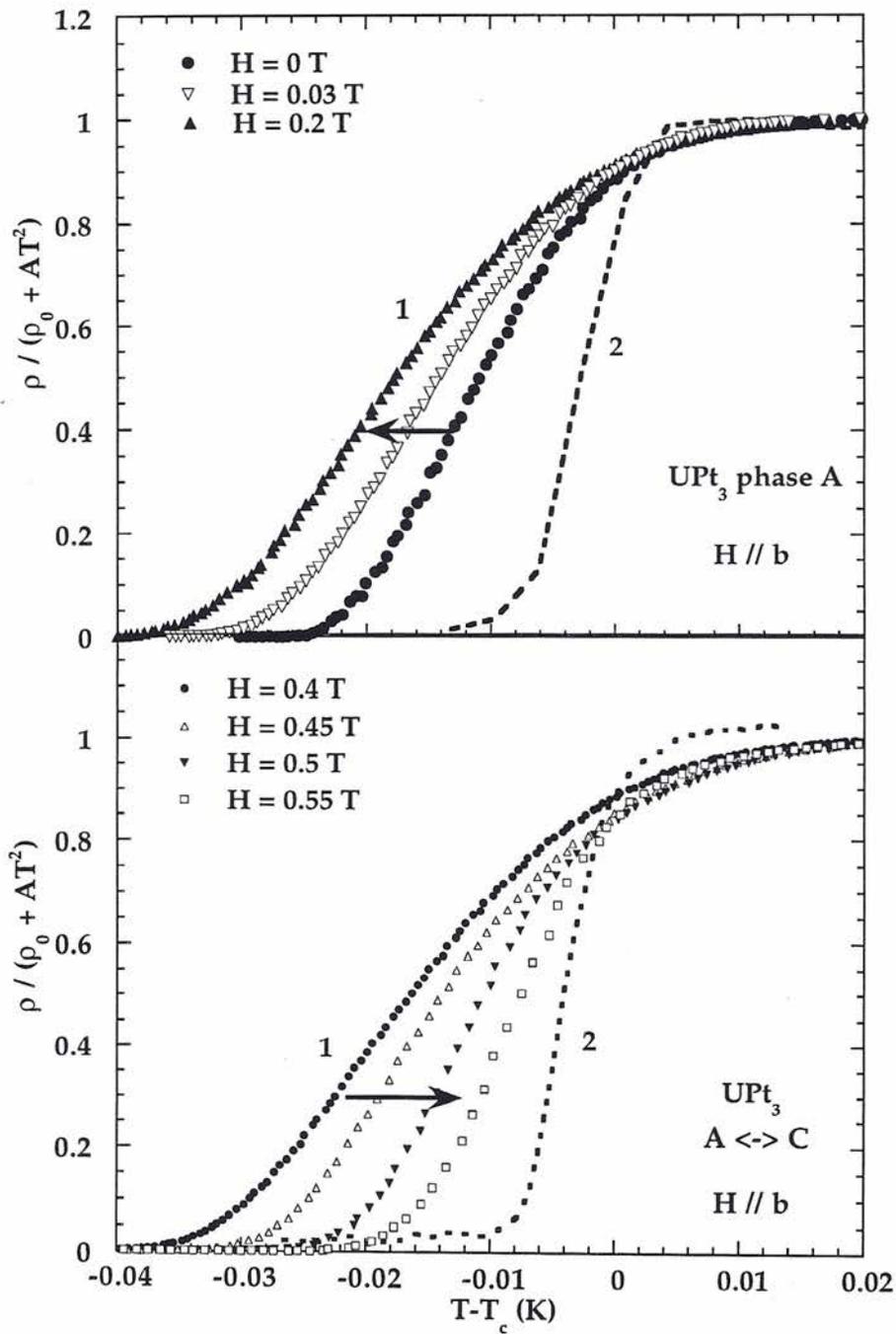


Figure III.3: La transition résistive dans UPt_3 dans les phases A (haut) et au moment de la transition $A \rightarrow C$ (bas). Les mesures ont été faites sur deux échantillons avec des largeurs de transition différentes. Sur l'échantillon N°2 (voir section II.2.1, page 41) avec la largeur de transition la plus étroite on ne voit pas d'effets remarquables, par contre, sur l'échantillon avec la transition la plus large N°1 (voir section II.2.1, page 41) on voit des effets reliés à l'existence de plusieurs phases supraconductrices.

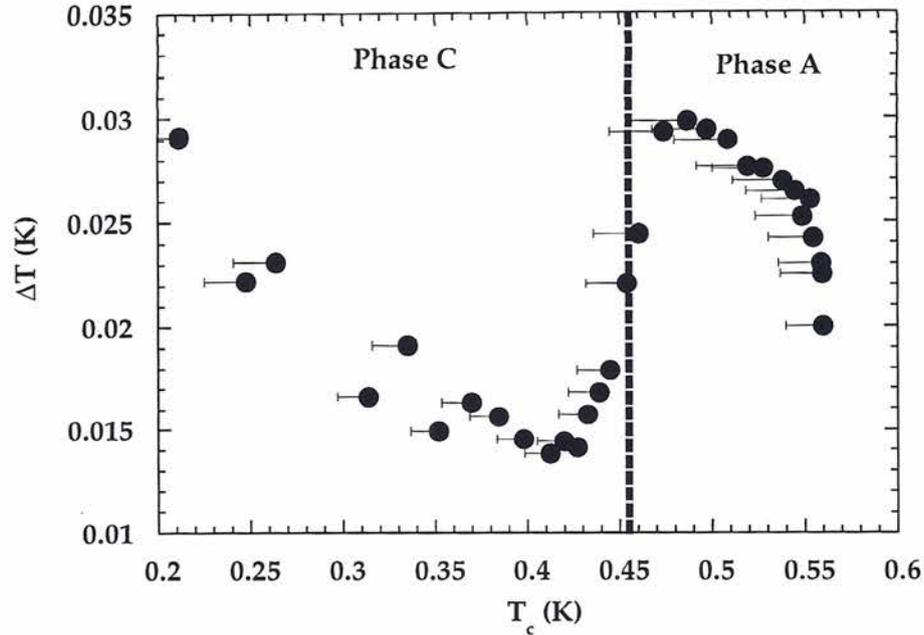


Figure III.4: La largeur de la transition résistive en fonction de la température pour l'échantillon N°1 avec un courant légèrement trop élevé. On voit, comme dans la figure précédente que la transition se rétrécit au passage de la phase A à la phase C. On estime la largeur de la transition par la température critique déterminée par le critère d'onset moins la température pour une résistance qui fait 10% de la résistance dans l'état normal. Les barres horizontales donnent la largeur de la transition résistive pour chaque point (comme T_c est choisi par le critère d'onset, ces barres sont orientés vers les plus basses températures).

Conclusion des mesures de $H_{c2}(T)$.

Nos mesures de champ critique présentent une base expérimentale solide pour une étude plus poussée qui pourrait donner des informations sur le paramètre d'ordre de $U\text{Pt}_3$. En ce qui concerne la partie très basse température notre conclusion est que les excitations qui dominent la chaleur spécifique à ces températures n'influencent pas la supraconductivité, du moins le champ critique, de façon détectable.

III.2 Le paramètre d'ordre supraconducteur étudié par conduction thermique

Le but de nos mesures de conduction thermique est d'obtenir de l'information sur le paramètre d'ordre supraconducteur. Comme la conduction thermique est entièrement dominée par les électrons dans ce composé, elle est très adaptée pour étudier les excitations électroniques dans la phase supraconductrice. Dans les sections suivantes nous allons examiner le comportement de la conduction thermique à champ nul et les informations que nous pouvons obtenir sur le paramètre d'ordre. Il faut cependant tout d'abord se convaincre que κ est vraiment entièrement dominé par les électrons, jusqu'aux plus basses températures.

Conduction thermique par les phonons.

Ce problème a été déjà beaucoup traité dans la littérature dans le cas de UPt_3 . [Behnia90, Lussier94, Lussier96, Huxley95] Le résultat est que la conduction thermique due aux phonons à basse température est négligeable dans ce composé. La formule $\kappa \sim \frac{1}{3} C_p v_p l_p$ donne une estimation simple de la conduction thermique par les phonons quand leur libre parcours moyen est limité par les parois de l'échantillon. Avec la vitesse du son ($v_p \approx 2000 \text{ m/s}$), la chaleur spécifique due aux phonons ($C_p \sim 20 \frac{\text{J}}{\text{K}^4 \text{ m}^3} T^3$) et l'épaisseur de l'échantillon (de l'ordre de 0.4 mm) on trouve $\kappa \approx 50 \frac{\text{mW}}{\text{K}^2 \text{ cm}} T^3$. C'est une estimation qui donne une valeur maximale pour la conduction par les phonons. La diffusion des phonons par les électrons ou les défauts de l'échantillon peut facilement diminuer cette valeur d'un ordre de grandeur. Dans la phase normale, la résistivité résiduelle de UPt_3 étant très faible, la conduction thermique électronique ($\kappa \approx 50 \frac{\text{mW}}{\text{K}^2 \text{ cm}} T$ avec $\rho \approx 0.5 \mu\Omega \text{ cm}$) domine complètement la conduction par les phonons à basse température. Dans la phase supraconductrice, l'ouverture du gap supraconducteur fait chuter κ à basse température, mais il se trouve que la conduction électronique reste toujours au moins un ordre de grandeur plus élevée que la conduction par les phonons dans la phase supraconductrice.

En effet, UPt_3 est un supraconducteur non-conventionnel et la conduction thermique suit des lois de puissance de l'ordre de T^3 avec des coefficients qui impliquent que κ par les phonons reste **toujours** (jusqu'à $T=0$, en principe) négligeable par rapport à la conduction par les électrons.

Rappelons que dans les métaux usuels, pour des échantillons purs, avec des résistivités résiduelles faibles (comme c'est le cas pour UPt_3), κ est dominé par les électrons. Cependant, dans les supraconducteurs conventionnels, à très basses températures, la chute exponentielle de la conduction thermique électronique fait apparaître à nouveau la contribution des phonons. Dans les supraconducteurs à haute température critique, malgré la bonne qualité des échantillons (dans YBaCuO) on observe à basses températures plutôt la contribution des phonons à la conduction thermique. Cela est sûrement dû à une dépendance plus compliquée de la conduction thermique due aux électrons que dans le cas de UPt_3 et aussi à une température de transition deux ordres de grandeur plus élevée. Dans d'autres fermions lourds, comme par exemple URu_2Si_2 ou UBe_{13} , la résistivité résiduelle est un ordre de grandeur plus élevée, ce qui implique une conduction thermique électronique un ordre de grandeur plus faible, et les phonons contribuent de façon non négligeable à la conduction thermique dans la phase supraconductrice.

Avantages de la conduction thermique par rapport à la chaleur spécifique.

Comme cela a déjà été indiqué dans l'introduction, les mesures thermiques sont sensibles au spectre d'excitations dans la phase supraconductrice, donc à la structure du gap supraconducteur. La chaleur spécifique C_p est plus facile à interpréter que la conduction thermique. Cependant il est difficile d'observer des lois simples dans C_p puisque des contributions non liées à la supraconductivité peuvent masquer les lois attendues dans le domaine de températures intéressant. En effet, toutes les excitations (électroniques, magnétiques, ...) du système contribuent à la chaleur

spécifique C_p , par contre, seules les excitations capables de porter la chaleur (dans UPT₃, les électrons) contribuent à la conductivité thermique κ . De plus κ est une sonde directionnelle, ce qui permet, a priori, d'étudier l'anisotropie du gap supraconducteur.

Par contre, l'interprétation de κ est plus compliquée, et nécessite la compréhension des processus de diffusion des électrons par les impuretés. En effet, à très basses températures, κ dépend du taux d'impuretés dans l'échantillon. Du fait du caractère non-conventionnel de la supraconductivité, ces impuretés ont des effets complexes nécessitant un traitement détaillé que nous allons discuter maintenant. Nous verrons que les très basses températures simplifient considérablement les problèmes rencontrés, permettent d'aboutir à des conclusions claires sur le paramètre d'ordre, et ouvrent la voie à des effets nouveaux qui n'étaient pas observés jusqu'à maintenant.

Diffusion des électrons par les impuretés : le déphasage δ .

Pour comprendre de façon qualitative la diffusion des électrons par les impuretés, il est utile de rappeler quelques concepts de la diffusion en général, en allant au delà de la diffusion simple dans la limite de Born.

Si l'on considère les électrons comme des ondes planes de vecteur d'onde k , et on interprète l'impureté comme un centre diffuseur sphérique, on peut développer les ondes planes comme un produit des fonctions radiales $R_l(k, r)$ et des polynômes de Legendre $P_l(\cos(\theta))$:

$$u_k(r, \theta) = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l R_l(k, r) P_l(\cos(\theta)) \quad \text{Equation (III.1)}$$

Loin de l'impureté, $u_k(r, \theta)$ est donné par :

$$\lim_{r \rightarrow \infty} u_k(r, \theta) = e^{ikr} + f(k, \theta) (e^{ikr}/r) \quad \text{Equation (III.2)}$$

où $f(k, \theta)$ est l'amplitude de diffusion et est une fonction du déphasage δ_l :

$$f(k, \theta) = 1/k \sum_l [4\pi(2l+1)^{1/2} \exp(i\delta_l) \sin\delta_l P_l(\theta)] \quad \text{Equation (III.3)}$$

Un ingrédient apparaît dans les formules, le déphasage δ_l . On voit que, avec un déphasage proche de $\pi/2$, l'amplitude de diffusion $f(k, \theta)$ est maximale. On parle de la **diffusion en limite unitaire**. Avec un déphasage proche de 0, l'onde ne change pas considérablement par l'action du potentiel diffuseur à grandes distances, et on retrouve la limite de Born.

Dans un solide, la présence d'un centre de diffusion produit un **déplacement des énergies** du système qui peut être relié au déphasage δ_l . Une impureté introduit un nombre supplémentaire d'états de l'ordre de $2\delta_l/\pi$. Cela se traduit par une augmentation de la densité d'états qui sera grande si la diffusion se fait en limite unitaire. L'explication théorique de l'effet Kondo démontre qu'une impureté magnétique dans un métal diffuse en effet les électrons en limite unitaire ($\delta_0 = \pi/2$) à basses températures et une faible concentration d'impuretés fait remonter la résistivité à très basse température. La densité d'états montre une résonance qui peut se situer au niveau de Fermi avec une largeur de l'ordre de la température de Kondo T_K .

On peut retenir que l'effet des impuretés sur un bain d'électrons quand la diffusion se fait en limite unitaire est double : d'abord, les impuretés sont plus efficaces à diffuser les électrons,

notamment par rapport à la limite de Born, et de plus de nouveaux états plus ou moins liés aux impuretés apparaissent dans le spectre d'excitations au niveau de Fermi.

Dans la phase supraconductrice, les impuretés, en plus de diffuser des électrons, ont un effet de brisure de paires, en créant des états supplémentaires dans le spectre d'excitations. En limite unitaire, ces états créent une **résonance dans la densité d'états au niveau de Fermi**. Nos échantillons sont cependant très purs, et on peut espérer pouvoir séparer les effets de déphasage (sur le libre parcours moyen) et les effets de brisure de paires (sur la densité d'états). Pour cela nous allons tout d'abord rappeler les conclusions théoriques pour la diffusion en limite de Born ou en limite unitaire, et comparer nos résultats aux théories dans la région de température où nous croyons pouvoir négliger les effets de brisure de paires. Ensuite, nous allons rediscuter la théorie en mettant l'accent sur les effets de brisure de paires que nous croyons observer à très basse température.

La théorie a été développée par plusieurs auteurs. Les premières indications selon lesquelles la diffusion peut être en limite unitaire dans les supraconducteurs à fermions lourds ont été données par les auteurs des références [Pethick86, Schmitt86]. Les auteurs des références [Arfi88, Barash96] discutent la conduction thermique plutôt dans la limite où les effets de brisure de paires sont négligeables, et [Lee93, Borkowski95, Balatsky95] discutent plutôt les effets de brisure de paires. Les auteurs des références [Hirschfeld86, Hirschfeld88, Fledderjohann95, Norman96, Graf96, Graf96b] présentent des théories complètes qui tiennent compte en même temps de ces deux effets pour tout type de diffusion (ce qui est le plus correct). Enfin, notons aussi que dans les références les plus récentes, le problème de brisure de paires par les impuretés a été traité aussi bien pour les fermions lourds que pour les supraconducteurs à haute température critique (voir par exemple aussi [Sun95]). Tous ces papiers font appel à des techniques de calcul très spécialisées à base de fonctions de Green. Ici, nous donnerons seulement quelques résultats simples.

III.2.1 Mécanismes de diffusion des électrons par les impuretés : limite unitaire, limite de Born

La valeur du déphasage joue un rôle crucial pour la compréhension de la diffusion des électrons par les impuretés dans un supraconducteur non conventionnel. Tout d'abord, le calcul de la conductivité thermique se réduit (dans un modèle simple où on peut réduire l'équation de Boltzman à une équation linéaire) à la connaissance de la densité d'états et du temps de relaxation. Les effets de diffusion interviennent sur le temps de relaxation, et c'est là où des différences entre des déphasages en limite unitaire et en limite de Born vont apparaître.

Le temps de relaxation en limite de Born.

D'après Pethick et Pines [Pethick86] le temps de relaxation électronique (d'un électron d'impulsion p) due aux collisions électron-impureté dans un supraconducteur conventionnel dans la limite de Born est donné par:

$$\frac{1}{\tau_p} = \left(\frac{1}{\tau_N}\right) \frac{\epsilon_p}{E_p} \quad \text{Equation (III.4)}$$

où τ_N est le temps de relaxation dans la phase normale, et ϵ_p est l'énergie des excitations thermiques par rapport au gap Δ et $E_p = \sqrt{\epsilon_p^2 + \Delta^2}$. La vitesse de ces excitations thermiques est donnée par $v_F \frac{\epsilon_p}{E_p}$. De cette équation on obtient le résultat connu pour des supraconducteurs conventionnels avec un gap bien développé sur toute la surface de Fermi que le libre parcours

moyen des excitations thermiques ($l = v_F \tau$) ne dépend pas de la température et est égal à sa valeur dans la phase normale l_N . La conduction thermique suit la densité d'états à basses températures et présente un comportement exponentiel.

Par contre, pour un supraconducteur non conventionnel de parité impaire, ces mêmes auteurs trouvent:

$$\frac{1}{\tau_p} = \left(\frac{1}{\tau_N}\right) \frac{N_s(E_p)}{N(0)} \quad \text{Equation (III.5)}$$

où $N(0)$ est la densité d'états au niveau de Fermi dans la phase normale et $N_s(E_p)$ dans la phase supraconductrice ($E_p = \sqrt{\epsilon_p^2 + \Delta^2}$). Dans le cas d'un gap avec des lignes de zéro, $N_s(E_p) \propto E$ à basse énergie. On trouve que $1/\tau_p \propto E$, $\tau_p \propto 1/E$ et le libre parcours moyen $l \propto v_F \tau \propto 1/E$. Cela signifie qu'en limite de Born la densité d'états de basse énergie présente dans un supraconducteur non conventionnel fait diverger le libre parcours moyen dans la limite $T \rightarrow 0K$. Les travaux qui ont suivi ont démontré que ce résultat est en général valable dans des supraconducteurs (pairs ou impairs) avec des zéros dans le gap.

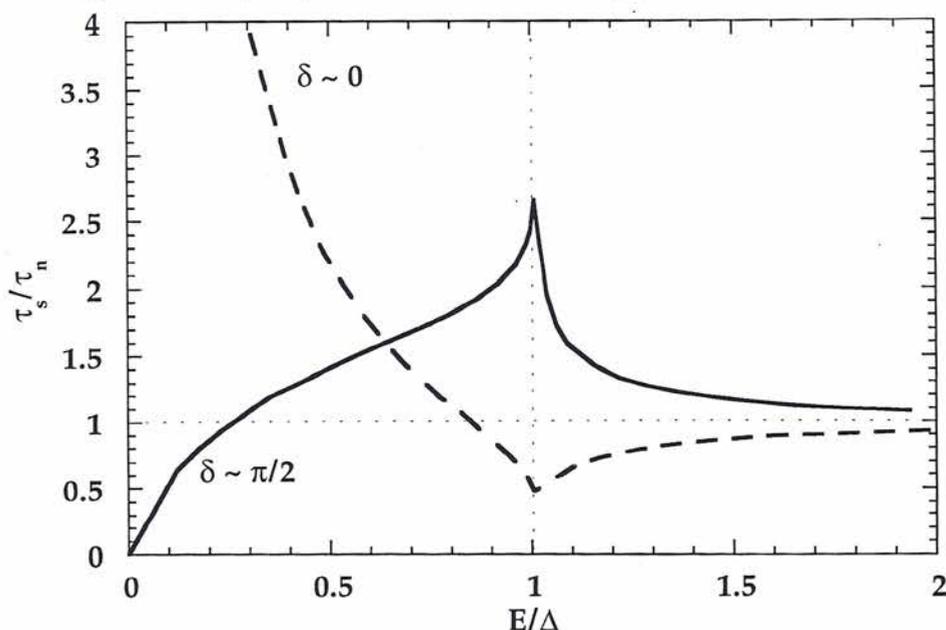


Figure III.5: Le temps de relaxation des excitations thermiques dans la phase supraconductrice calculé par Pethick et Pines [Pethick86] pour un gap hybride avec une ligne de zéro dans le plan et un point de zéro perpendiculaire au plan. Notons que, en limite de Born $\delta \sim 0$, le temps de diffusion diverge à basse énergie. Notons aussi que ces calculs sont faits en négligeant l'effet de brisure de paires par les impuretés. Même avec une faible concentration d'impuretés, cet effet donne une valeur de τ finie à $T=0K$ et arrondit l'anomalie à $E = \Delta$, ce qui donne un temps de relaxation peu dépendant de l'énergie.[Arfi88, Hirschfeld86, Hirschfeld88]

C'est un résultat étonnant qui, en faisant un calcul complet, donne une conduction thermique très élevée, du même ordre que celle trouvée dans la phase normale, dans la phase supraconductrice. Ce résultat théorique n'est pas du tout en accord avec les mesures expérimentales pour lesquelles on observe plutôt des lois de puissance (voir par exemple [Sulpice86]). Pour expliquer ce désaccord, Pethick et Pines [Pethick86] ont proposé de traiter la diffusion electron-impureté non pas en limite

de Born, mais en limite unitaire. Dans ce cas on peut espérer supprimer la divergence du temps de relaxation puisque les impuretés seront plus efficaces pour diffuser les excitations thermiques.

Le temps de relaxation en limite de Unitaire.

Les calculs se compliquent, et un facteur supplémentaire, dépendant de l'énergie, $g(E_p)$ apparaît dans les formules et supprime la divergence du temps de relaxation à basse énergie. Arfi et Pethick [Arfi88] donnent dans ce cas là :

$$\frac{1}{\tau_p} = \left(\frac{1}{\tau_N}\right) \frac{1}{|g(E_p)|^2} \frac{N_s(E_p)}{N(0)} \quad \text{Equation (III.6)}$$

$g(E_p)$ est une intégrale qui tient compte des corrélations supraconductrices dans les processus de diffusion multiple. Dans ce cas, on prédit que la conduction thermique suit des lois de puissance multipliées par des termes logarithmiques à basse température (p.e. $T^3 \ln^2 T$ pour une ligne de zéro) et non pas des lois de puissance pures, comme pour la chaleur spécifique. Cependant, ces termes logarithmiques peuvent être négligés dans des discussions simples. Nous reviendrons sur ce point plus tard. La figure III.5 montre quelques calculs théoriques du temps de relaxation dans les différents cas, et la figure III.6 des calculs de conductivité thermique.

La proposition théorique selon laquelle la diffusion se fait en limite unitaire, doit être justifiée, non seulement par l'observation expérimentale de lois de puissance dans les propriétés thermodynamiques, mais aussi par des arguments physiques. Dans les fermions lourds, il y a des raisons simples pour privilégier une diffusion dans la limite unitaire par rapport à la limite de Born. En effet, il est clair qu'une impureté magnétique dans un métal normal produit une diffusion dans la limite unitaire (effet Kondo). De la même façon on il est raisonnable de penser qu'une impureté non-magnétique dans un réseau Kondo, où il y a un moment magnétique à chaque site du cristal a le même effet, mais en "négatif" (trou Kondo), donc diffuse dans la limite unitaire. De plus, il est raisonnable de penser que dans tous les systèmes avec des électrons fortement corrélés, une impureté, qui crée un défaut dans le réseau, perturbe les corrélations entre électrons responsables de la formation des quasiparticules. Cette impureté aurait un effet diffusif important modélisé par un déphasage en limite unitaire $\delta_l \sim \frac{\pi}{2}$.

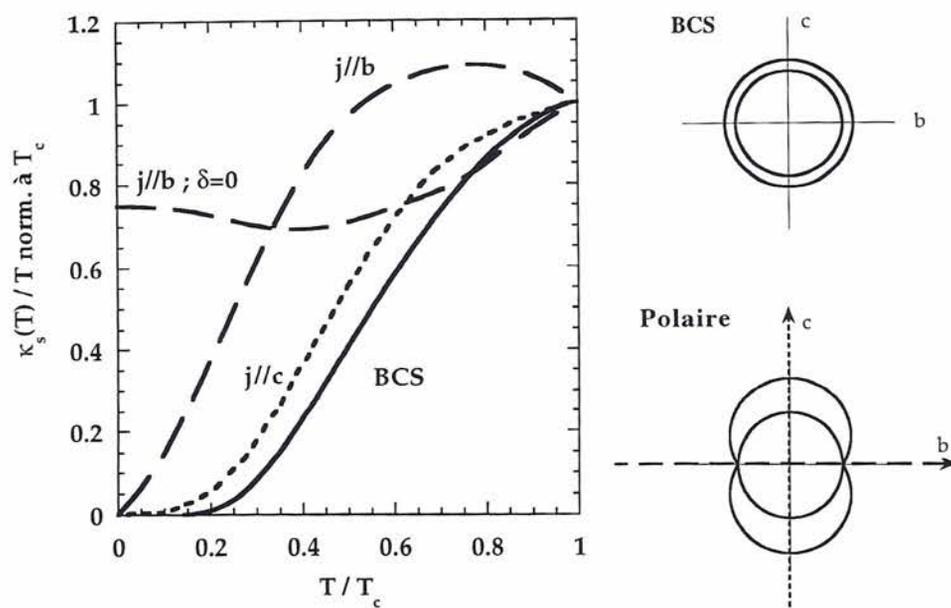


Figure III.6: Les lois prédites pour la conduction thermique d'un supraconducteur non-conventionnel avec un gap polaire (ligne de zéro dans le plan), comparées au cas BCS.[Pethick86] Notons que, en limite de Born, la prédiction théorique pour la conduction thermique dans le plan donne des termes résiduels à $T=0K$ élevés, comparables à la conduction thermique dans la phase normale. Par contre, en limite unitaire, on observe des lois de puissance à basse température qui dépendent de la direction du courant par rapport aux zéros du gap.

III.2.2 Résultats expérimentaux et discussion

La conduction thermique à champ nul est montrée dans la figure III.7 entre 16mK et 1K avec les mesures sous champ dans la phase normale. Les courbes ne présentent pas d'anomalies à la température critique (ni T_c^+ , ni T_c^- , voir aussi la page 22). On peut déjà voir sur cette figure que la conduction thermique à basse température est bien plus élevée que celle qu'on attendrait dans le cas d'un supraconducteur avec un gap complètement développé sur toute la surface de Fermi.

Toute la discussion que nous avons donnée jusqu'à maintenant est valable dans le cas d'une diffusion élastique des électrons par les impuretés. Dans ce cas, dans la phase normale, κ est proportionnel à la température, en suivant la loi de Wiedemann-Franz $\frac{\kappa}{T} = \frac{L_0}{\rho_0}$. Par contre, nos mesures dans la phase normale (à 3T, Fig.III.7) montrent que cette loi n'est suivie qu'en dessous de 100 mK. Cela est dû aux effets de diffusion inélastique. Nous sommes alors obligés de discuter ce type de diffusion avant de passer à l'interprétation de nos mesures.

III.2.2.1 Diffusion inélastique

La résistivité de UPt₃ à champ nul suit la loi de liquide de Fermi $\rho = \rho_0 + AT^2$ en dessous de 1K (avec $\rho_b = (0.52 + 1.44T^2)\mu\Omega cm$ et $\rho_c = (0.17 + 0.53T^2)\mu\Omega cm$). Les échantillons de UPt₃ que nous avons mesurés étant très purs, le régime simple $\rho = \rho_0$ n'est atteint qu'à très basse température. Par exemple, pour le courant dans le plan, vers T_c , $AT_c^2 \sim 0.4\mu\Omega cm$ et vers 100 mK, $AT^2 \sim 0.014\mu\Omega cm$, valeurs à comparer avec $\rho_0 = 0.52\mu\Omega cm$. On voit que ce n'est qu'en dessous de 100 mK qu'on peut espérer suivre la loi de Wiedemann Franz avec des processus de diffusion dominés par les collisions élastiques entre les électrons et les impuretés.

Au dessus de 100 mK, les collisions entre électrons, de nature inélastique, contribuent fortement et elles sont difficiles à traiter. La loi Wiedemann Franz peut cependant être utilisée pour décrire qualitativement la conduction thermique en prenant $\frac{\kappa}{T} = \frac{L}{\rho_0 + AT^2}$, mais avec un nombre $L < L_0$ qui peut dépendre de la température (voir l'introduction, section I.1). La figure III.8 montre nos mesures de $L = \frac{\kappa}{T}\rho(T)$ faites avec un champ magnétique de 3T pour éliminer la supraconductivité. Nous observons qu'à très basse température, $L \rightarrow L_0$. Le fait que nous ne trouvons pas exactement L_0 est probablement dû à l'effet du champ magnétique sur le transport qui complique les choses. En effet, dû à la pureté des échantillons, vers 3 T on peut rentrer dans un régime où la fréquence cyclotron peut devenir du même ordre que le temps de relaxation $\omega_c\tau \sim 1$ et les lois d'un simple régime de collision ne sont plus suivies dans la résistivité, du moins pour un courant dans le plan (figure III.8).

En tout cas, il est clair que les collisions inélastiques expliquent alors la forte variation de la conductivité thermique en fonction de la température dans la phase normale montrée dans la figure III.7. Notons que malgré l'importance des collisions inélastiques au-dessus de 100 mK dans la phase normale, on peut espérer que ces collisions inélastiques soient moins nombreuses dans la phase supraconductrice grâce à l'ouverture du gap supraconducteur. Pour interpréter les données au dessus de 100 mK, il est nécessaire de tenir compte de ce type de diffusion. Fledderjohann et Hirschfeld ont proposé de traiter de façon phénoménologique les collisions inélastiques dans la phase supraconductrice, en extrapolant les coefficients trouvés par la résistivité dans le temps de relaxation de la phase supraconductrice.[Fledderjohann95] Ce traitement, bien que qualitatif est une première approximation.

III.2.2.2 Anisotropie de la conduction thermique et influence de la surface de Fermi

Nous commençons par l'idée de Fledderjohann et Hirschfeld, qui ont proposé l'étude de l'anisotropie de la conductivité thermique,[Fledderjohann95] plutôt que l'analyse des différentes courbes séparément, comme dans les travaux précédents [Behnia91] pour obtenir de

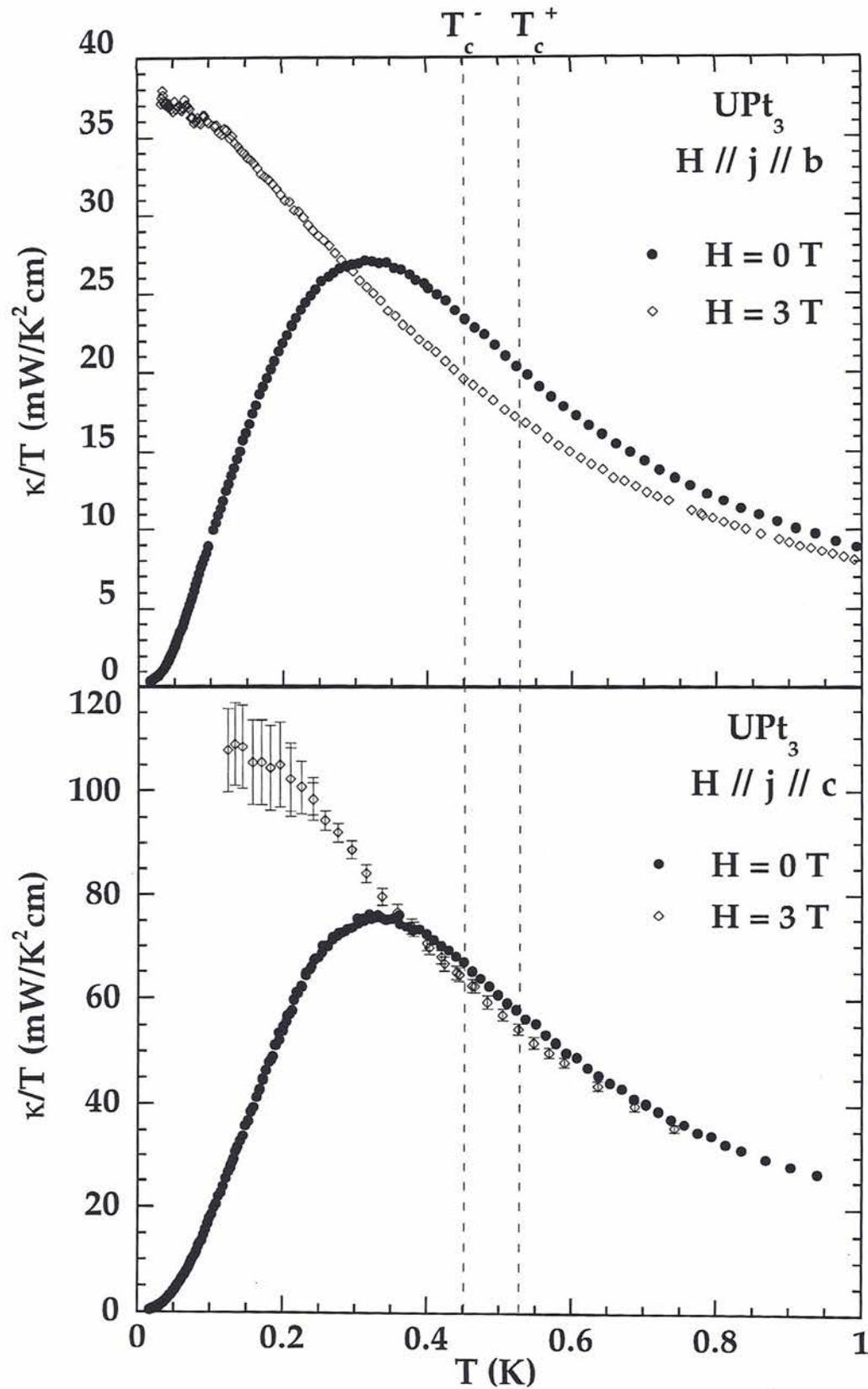


Figure III.7: Nos mesures de conduction thermique suivant les deux axes cristallographiques dans la phase normale (obtenu grâce à un champ magnétique de 3T) et la phase supraconductrice.

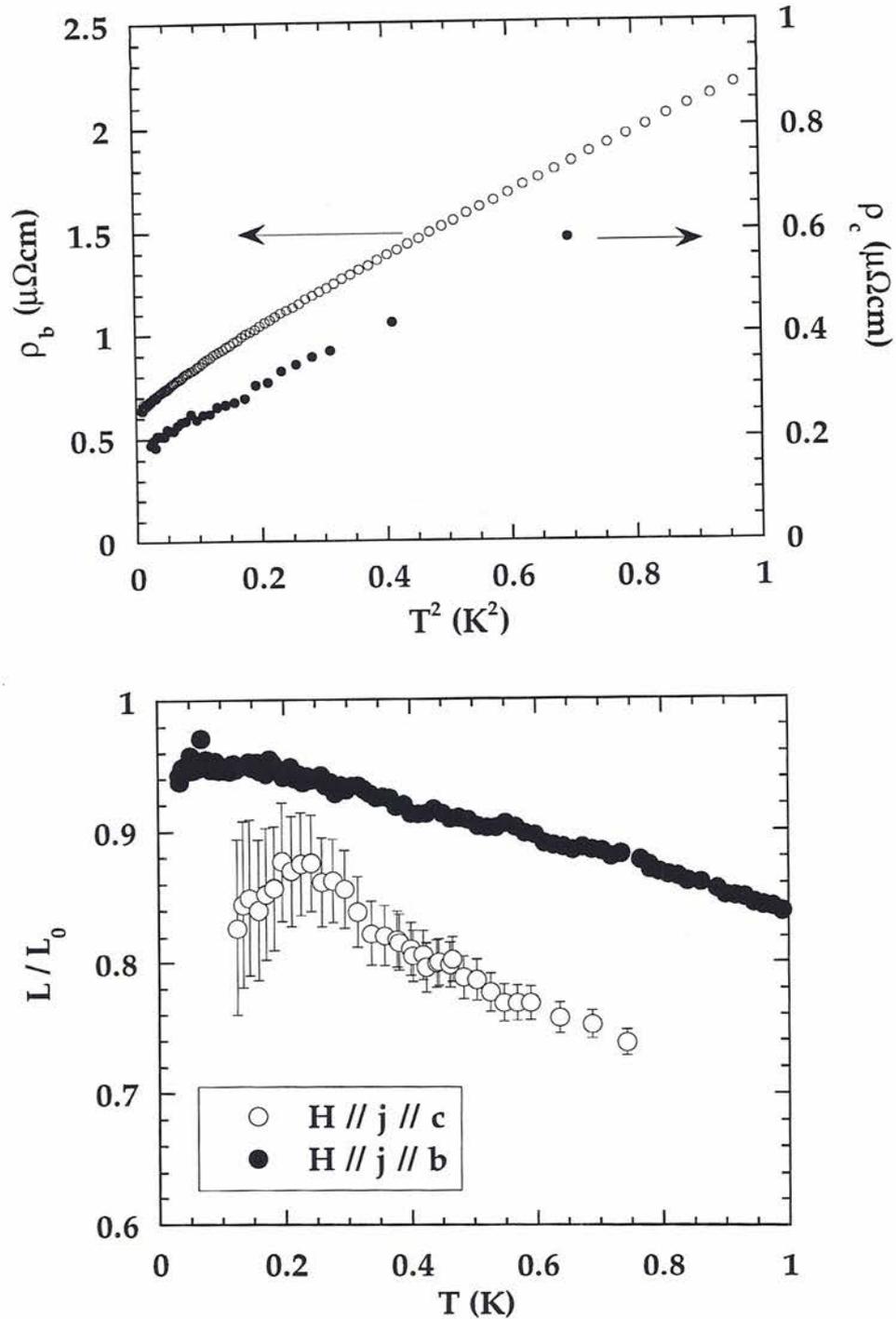


Figure III.8: La partie haute de cette figure montre la résistivité de UPt₃ en fonction de T² sous un champ magnétique de 3 T. Remarquons que la loi simple de liquide de Fermi n'est plus suivie sous champ magnétique, au moins pour un champ dans le plan. La partie basse de la figure montre le nombre de Lorentz $L = \frac{\kappa}{T} \rho$ en fonction de la température dans UPt₃. Le fait que nous ne retrouvons pas le nombre de Lorentz peut être dû aux effets compliqués sous champ magnétique trouvés dans la résistivité.

façon plus sensible l'information sur l'anisotropie du gap supraconducteur. En effet, si la diffusion est isotrope, le temps de relaxation τ est le même pour les deux directions de mesure, et l'anisotropie dans la phase supraconductrice peut refléter la structure du gap supraconducteur. Il faut cependant se convaincre que la diffusion est isotrope.

L'anisotropie de la résistivité et de la conduction thermique dans la phase normale est forte, et mérite une discussion. La table III.6 résume les valeurs trouvées pour chaque échantillon mesuré suivant les deux directions du courant, comparés à la pente du champ critique pour chaque direction du champ. Les deux échantillons proviennent du même cristal, on peut donc faire l'hypothèse que le contenu en défauts et impuretés est le même.

	$\rho_0(\mu\Omega\text{cm})$	$A(\mu\Omega\text{cm}/\text{K}^2)$	$-\frac{dH_{c2}(T)}{dT}$ (T/K; Phase A)	$\Delta\rho$ (mK)
H//j//b	0.52	1.44	4.56	30
H//j//c	0.17	0.53	7.3	8
Anisotropie $v_{F,c}/v_{F,b}$	1.75	1.65	1.6	-

Table III.6: Le rapport des vitesses de Fermi obtenus par la résistivité et le champ critique.

En prenant les valeurs de la résistivité résiduelle, on peut estimer très grossièrement avec la formule $\kappa/T = L/\rho$ et $\kappa = \frac{1}{3}Cv_F^2\tau$ l'anisotropie des vitesses de Fermi v_F . Cela donne $v_{F,i} \propto 1/\sqrt{\rho_{0,i}}$, donc $v_{F,c}/v_{F,b} = \sqrt{\rho_{0,b}/\rho_{0,c}}$. La même chose peut être faite, de façon très grossière, et malgré le fait que la conduction thermique ne suive pas exactement la loi de Wiedemann-Franz, avec le terme en AT^2 de la résistivité. Des pentes du champ critique on peut aussi estimer le rapport des vitesses de Fermi. Pour un supraconducteur anisotrope, on peut estimer que $\frac{H_{c2,c}}{H_{c2,b}} \sim \frac{\xi_c\xi_b}{\xi_b\xi_b} \sim \frac{\xi_c}{\xi_b} \sim \frac{v_{F,c}}{v_{F,b}}$. Bien que ces estimations soient très grossières, il est remarquable que les valeurs de l'anisotropie des vitesses de Fermi trouvées par les différentes méthodes soient toutes très voisines comme montré dans la table III.6.

On serait donc amené à penser que la diffusion des électrons par les impuretés se fait de façon isotrope et notamment le taux d'impuretés serait le même pour les deux échantillons. Cette hypothèse a été émise d'un point de vue expérimental pour la première fois par Lussier et al. [Lussier94, Lussier96] Leurs mesures de conductivité thermique et de résistivité sont faites sur des échantillons de qualité voisine et montrent en effet les mêmes valeurs que celles indiquées dans la table III.6. Nous voudrions cependant indiquer que, à notre avis, les valeurs trouvées par nous mêmes et par Lussier et al. sont de bonnes indications que la diffusion est effectivement isotrope, mais ne constituent pas des **preuves** expérimentales. La nature des défauts ou impuretés dans ce composé est une question ouverte qui nécessite une étude poussée (défauts ponctuels, étendus, impuretés de quel type, ...). Les différences entre la largeur de la transition résistive dans nos échantillons (voir Table III.6) démontre en effet que le problème n'est pas simple.

La diffusion isotrope est une première hypothèse. La comparaison quantitative de l'anisotropie de la conduction thermique avec la théorie est ainsi simplifiée, mais il reste bien sûr important de mieux connaître la nature des défauts ou impuretés. Dans cette hypothèse l'anisotropie de la conduction thermique ne serait sensible qu'à des paramètres de la surface de Fermi, et non pas à des différences dans le temps de relaxation. On peut alors espérer une grande sensibilité de κ_c/κ_b à la structure du gap supraconducteur, plus que des courbes $\kappa(T)$ à elles toutes seules.

Les premiers calculs de Flederdjohann et Hirschfeld étaient en effet très encourageants pour espérer connaître le paramètre d'ordre par l'anisotropie de la conduction thermique. [Fledderjohann95] Ces calculs, faits pour les modèles E_{1g} et E_{2u} (voir chapitre I) sont montrés dans la figure III.9 avec nos mesures et celles effectuées par Lussier et al. [Lussier94, Lussier96] Le résultat remarquable des calculs est que κ_c/κ_b est très différent dans le cas de E_{1g} et de E_{2u} .

En effet, la densité d'états dans le cas d'un noeud quadratique (E_{2u}) et non pas linéaire (E_{1g}) est très grande et comparable à la densité d'états due à une ligne de zéro. Cela donne une anisotropie indépendante en fonction de la température dans le cadre du modèle E_{2u} (voir aussi la page 28).

Nos résultats expérimentaux montrent que κ_c/κ_b reste constant en fonction de la température jusqu'à environ $0.7T_c^-$ (nous avons pris $T_c^- \sim 0.48K$, où κ_c/κ_b chute fortement. Qualitativement, ce résultat est le même que les mesures de Lussier et al. [Lussier94, Lussier96] Il y a cependant des différences que nous attribuons à la barre d'erreur des mesures de ces auteurs qui est plus grande que la nôtre (voir Chapitre II) et probablement à des différences dans la thermométrie. Nous notons aussi que l'affirmation de ces auteurs selon laquelle l'anisotropie chute en dessous de T_c^- et non pas à T_c^+ n'est pas vérifiée dans nos mesures. Les nôtres montrent une anisotropie qui chute en dessous de $0.7T_c^-$ environ. Un point original de notre travail est que, grâce à notre résolution expérimentale, nous observons une légère cassure de pente à T_c^+ montrée dans la figure III.10. A très basses températures ($T < 30mK$, voir figure III.9), une région complètement inexplorée pour la conduction thermique jusqu'à maintenant, nous observons une chute notable de l'anisotropie, que nous allons discuter plus loin.

Nos résultats expérimentaux ne sont en accord avec aucun des premiers calculs. [Fledderjohann95] Ces premiers calculs ont été faits en prenant des harmoniques sphériques simples pour le paramètre d'ordre. Cependant, comme nous l'avons discuté dans le premier chapitre, le paramètre d'ordre est en général une combinaison linéaire de fonctions d'onde qui génèrent chaque représentation irréductible. Ainsi, il y a beaucoup d'autres possibilités pour le paramètre d'ordre dans E_{1g} ou E_{2u} . Même en prenant des combinaisons linéaires qui donneraient un gap hybride, et seraient dominées par des harmoniques sphériques simples, on peut encore multiplier ces fonctions par des fonctions arbitraires qui ont toute la symétrie du réseau.

Ces fonctions ou la combinaison linéaire ne peuvent pas être connues sans théorie microscopique. Norman et Hirschfeld [Norman96] ont en effet démontré par la suite qu'en prenant des fonctions de base plus complexes que des harmoniques sphériques pour le paramètre d'ordre, le résultat théorique varie considérablement.

L'approche de Norman et Hirschfeld est de calculer la conduction thermique pour des combinaisons de fonctions qui génèrent la représentation irréductible de chaque modèle (E_{1g} et E_{2u}). Ils ont trouvé que la conduction thermique dépend fortement des fonctions d'onde choisies pour décrire le paramètre d'ordre. Notamment, la très forte différence trouvée par les auteurs de la référence [Fledderjohann95] entre l'anisotropie dans le cas de E_{1g} et E_{2u} est complètement perdue quand on utilise des fonctions d'onde autres que des harmoniques sphériques simples. Ainsi, bien que les auteurs de la référence [Norman96] démontrent que la conductivité thermique est en accord avec un gap hybride avec une ligne et un point de zéro, on ne peut pas distinguer entre E_{1g} et E_{2u} sur la base des mesures existantes.

Remarquons cependant que la ligne et le point de zéro sont des caractéristiques "intrinsèques" des modèles E_{1g} et E_{2u} . Le gap près des noeuds est alors bien décrit par des fonctions simples (avec encore des paramètres libres correspondants à la pente du gap près des noeuds). On peut ainsi espérer qu'à très basse température, où l'énergie est trop faible pour créer des excitations thermiques loin des noeuds du gap la connaissance du paramètre d'ordre loin de ces noeuds n'est pas nécessaire et on peut espérer comprendre les résultats sans avoir besoin de connaître en détail ces fonctions d'onde compliquées.

Comparaison aux premières mesures par K. Behnia.

Avant de discuter nos mesures à très basse température, il est utile de comparer nos résultats à ceux obtenus pendant la thèse de K. Behnia. Tous les résultats sont montrés dans la figure III.11, ainsi que dans le tableau qui suit et qui compare les résistivités résiduelles et les températures critiques des échantillons mesurés dans les deux travaux.

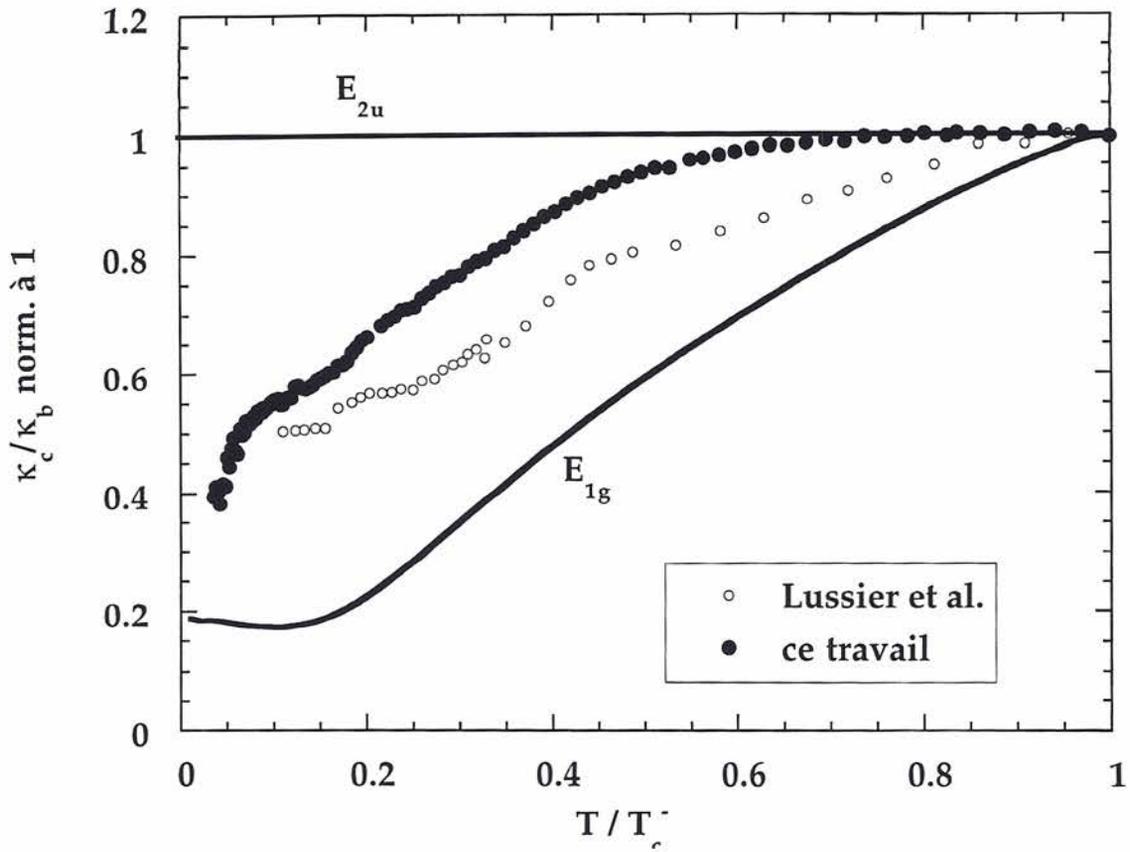


Figure III.9: Nos mesures d'anisotropie normalisées à 1 à 480 mK (T_c^-), la température de condensation de la phase bas champ basse température B. Nous montrons aussi les mesures de Lussier et al. [Lussier94, Lussier96] et les calculs théoriques préliminaires de Fleddejohn et al. [Fledderjohann95]

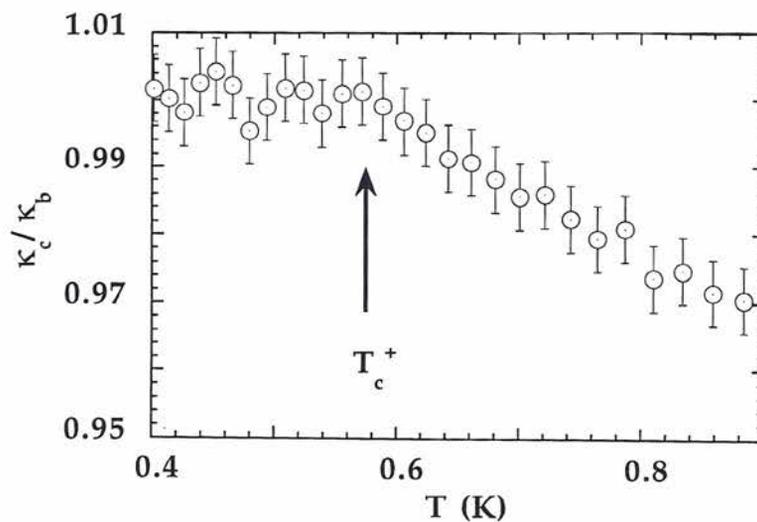


Figure III.10: Un agrandissement de l'anisotropie près de la température critique où l'échantillon devient supraconducteur T_c^+ . Notre faible barre d'erreur nous permet d'observer une anomalie à T_c^+ .

Echantillon	$\rho_0(\mu\Omega cm)$	$A(\mu\Omega cm/K^2)$
ce travail, j//b	0.52	1.44
ce travail, j//c	0.17	0.53
K. Behnia et al., j//b	0.8	1.5
K. Behnia et al., j//c	0.85	0.6

Il faut d'abord remarquer que les mesures de K. Behnia sont effectuées avec un champ magnétique de 500 G (voir Chapitre II). Nous verrons dans les prochaines sections que même un champ magnétique aussi faible a un effet très notable sur la conduction thermique. Cet effet dépend de la température dans les échantillons propres (30% à 100 mK, et pas d'effet à T_c). Dans des échantillons moins bons, cet effet est plus faible, comme démontré par K. Behnia lui même. Les échantillons mesurés par K. Behnia étaient un échantillon pur (comparable aux nôtres) coupé suivant l'axe b, et un échantillon moins pur, coupé suivant l'axe c. Nous pouvons alors estimer grossièrement que la conduction thermique à champ nul serait environ 30% supérieure à sa valeur mesurée par K. Behnia à 100 mK pour l'échantillon coupé suivant b, mais environ pareille pour l'échantillon coupé suivant c. Pour ce qui est de l'anisotropie, cela donnerait une anisotropie à champ nul non négligeable, et plus faible que 1, comme nous l'observons dans nos mesures.

Notons que l'échantillon le moins pur de K. Behnia, coupé suivant l'axe c, montre des termes résiduels ($\kappa/T(T \rightarrow 0K)$) élevés. Avec des taux d'impuretés élevés, on peut facilement imaginer des collisions en dehors de la limite unitaire, ce qui peut compliquer beaucoup la conduction thermique et donner des extrapolations finies à basse température qui ne seraient pas seulement liées à des effets de brisure de paires. Notons aussi que dans nos échantillons où les résistivités résiduelles sont plus faibles, les collisions inélastiques donnent une plus grande contribution à la conductivité thermique.

III.2.2.3 Lois de puissance

Nous allons analyser maintenant nos mesures aux très basses températures, montrées dans la figure III.12. Dans cette figure, nous traçons κ/T en fonction de T^2 . Nous observons une droite qui indique que, en dessous de 80 mK et jusqu'à 30 mK, κ suit une loi de puissance comme T^3 pour les deux axes mesurés. En traçant κ/T en fonction de T^2 , à basse température, nous trouvons des droites avec des extrapolations négatives, comme montré dans la figure III.12. Cela signifie que l'anisotropie (figure III.9) n'est pas constante en fonction de la température malgré le fait que les deux courbes suivent la même loi de puissance. En dessous de 30 mK, les courbes dévient de ces lois et tendent vers une extrapolation positive à $T=0K$. Ce changement de régime donne une anisotropie qui varie fortement en fonction de la température en dessous de 30 mK.

Nous allons analyser dans cette section les mesures entre 80 mK et 30 mK et dans la section suivante les mesures en dessous de 30mK.

Deux points facilitent énormément l'analyse des données dans cette gamme de température. D'un coté, la diffusion inélastique est complètement négligeable. D'un autre coté, les vecteurs d'onde des électrons qui contribuent à la conduction de chaleur vont être préférentiellement dans les directions du noeud du gap, puisque ils ne vont pas avoir suffisamment d'énergie thermique $k_B T$ pour se situer dans les zones où le gap est grand. Comme nous l'avons discuté, dans le cas de la diffusion unitaire des électrons par les impuretés, on s'attend à voir à basse température des lois de puissance, multipliées par des termes logarithmiques reliés à la structure du gap supraconducteur. En principe, cela est en accord avec le fait que nous n'observons pas de lois de puissance pures et il est utile d'essayer de comparer avec la théorie de façon plus quantitative.

Barash et Svidzinskii ont analysé ces lois plus précisément dans le cadre de E_{1g} et E_{2u} [Barash96]. Ils remarquent, en accord avec les calculs précédents de Fledderjohann et Hirschfeld [Fledderjohann95], que la différence entre les lois de puissance prédites pour E_{1g} et E_{2u}

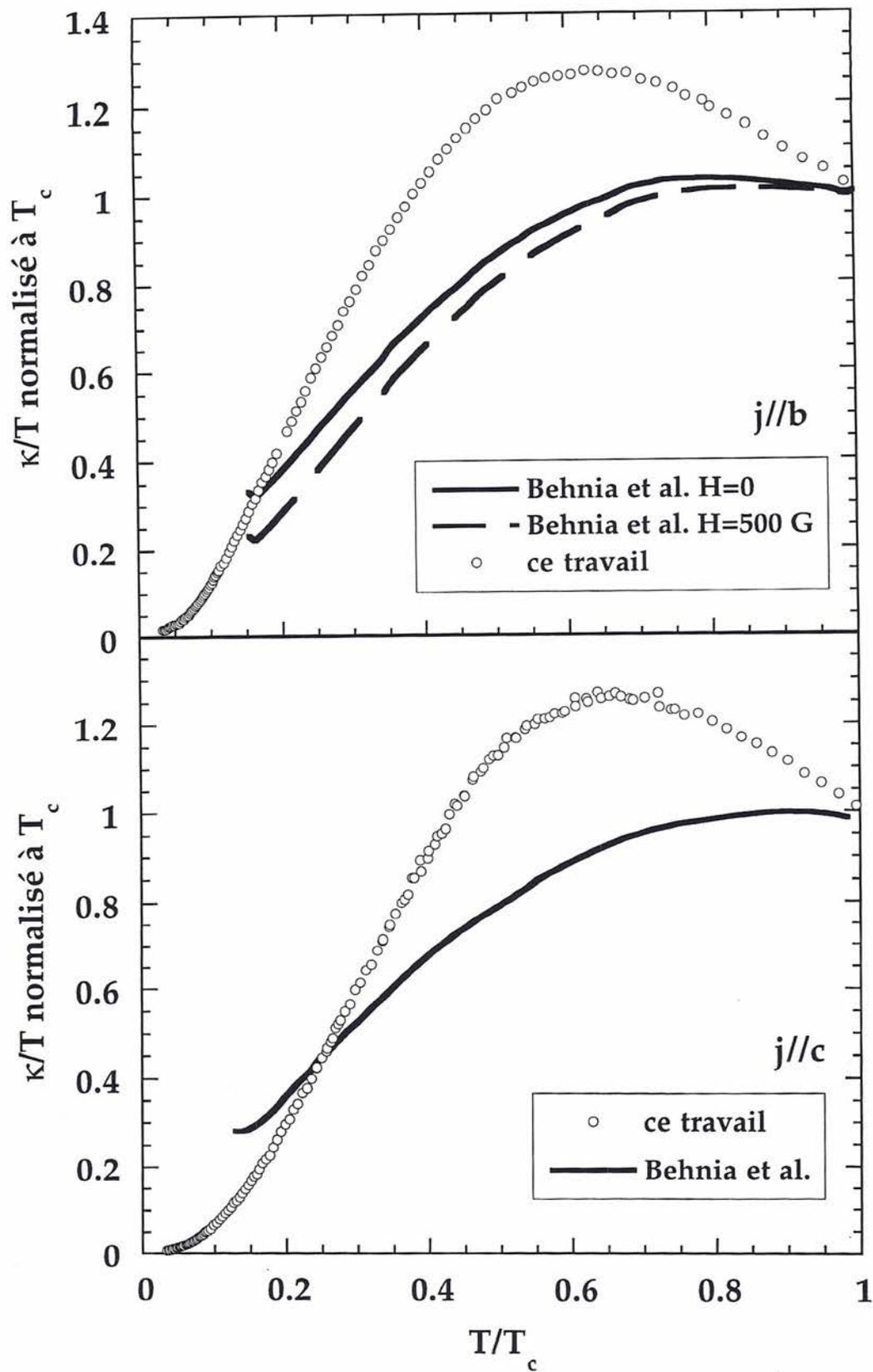


Figure III.11: Les mesures de conduction thermique de K. Behnia et al. Ces mesures sont faites avec un champ magnétique de 500G, qui diminue la conduction thermique de 30% dans l'échantillon mesuré pour l'axe b mais pas pour celui mesuré suivant l'axe c (voir texte).

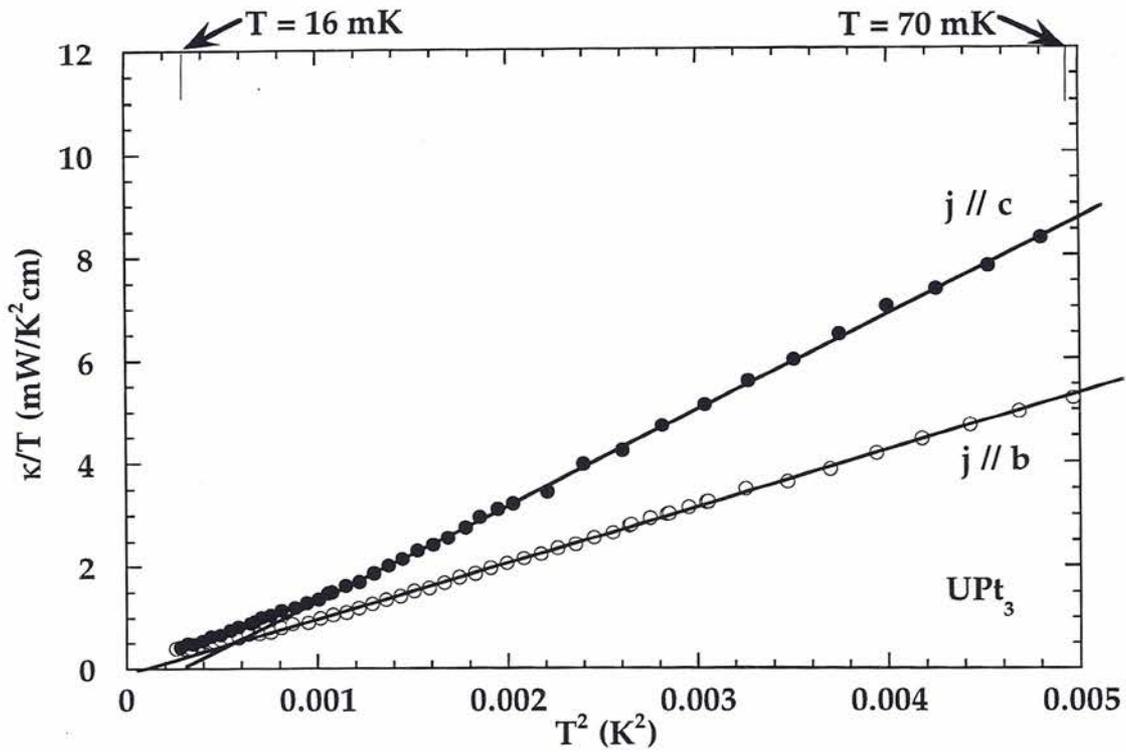


Figure III.12: Nos mesures à très basse température, qui montrent clairement des lois de puissance.

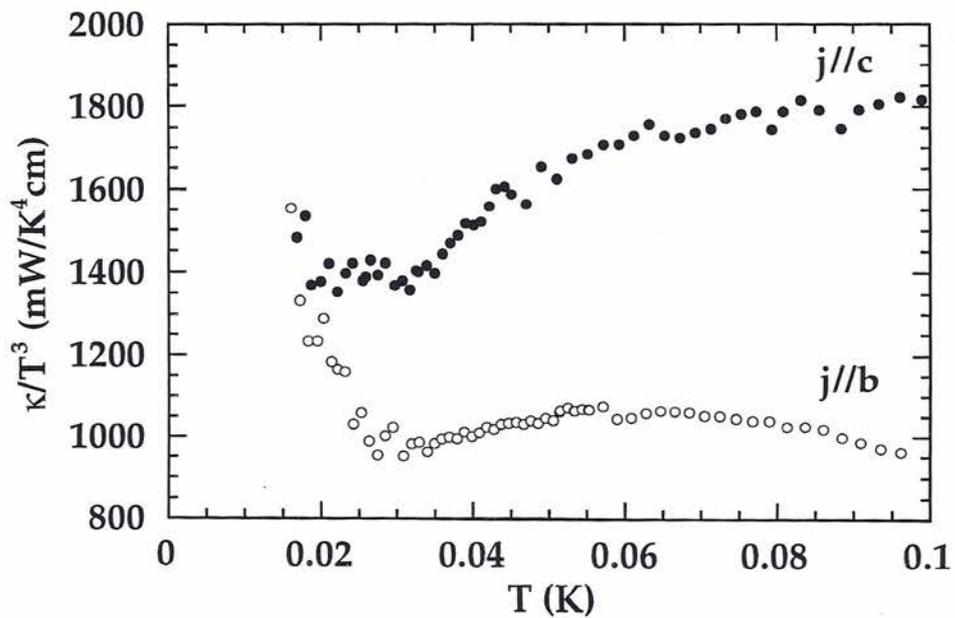


Figure III.13: La conduction thermique divisée par T^3 en fonction de la température.

proviennent de facteurs logarithmiques. Cela pourrait paraître étrange, puisque le fait d'avoir un point de zéro quadratique donne une quantité d'excitations thermiques comparable à celle trouvée pour une ligne de zéro et plus grande qu'avec un point de zéro linéaire. Mais il se trouve que l'influence de la ligne de zéro sur la conduction thermique masque ces effets. Néanmoins, on peut essayer de voir si on peut distinguer entre les deux modèles sur la base des lois de puissance, nos mesures étant de toute façon en accord avec un gap hybride. Barash et Svidzinskii ont proposé des formules relativement simples qui pourraient être utilisées en dessous de 80 mK (avec des paramètres a, b, c qui dépendent de la forme précise du paramètre d'ordre) [Barash96] :

- pour $j//b$: $\kappa_b = T^3(a_b + b_b \ln^2(T/\Delta_0) + c_b \ln(T/\Delta_0))$ pour E_{1g} et E_{2u} .

- pour $j//c$:

$\kappa_c = T^3(a_c + b_c \ln^2(T/\Delta_0) + c_c \ln(T/\Delta_0))$ for E_{2u} ,

$\kappa_c = a_c T^3$ for E_{1g} .

On voit que la différence entre les deux modèles apparaît suivant l'axe c et est seulement donnée par des facteurs logarithmiques. Nous avons essayé d'ajuster nos données à cette formule, pour voir si nous pouvions expliquer de façon plus quantitative nos observations. La difficulté de cet ajustement est mieux expliquée dans la figure III.13 où nous avons tracé κ/T^3 en fonction de la température. Les courbes, toujours entre 30 mK et 80 mK ont une courbure positive qui est impossible d'expliquer avec les formules de Barash et Svidzinskii si ce n'est avec des coefficients b négatifs (ou des coefficients c positifs), ce qui pour le moment n'est pas expliqué par la théorie. On peut espérer que la courbure observée dans la figure III.13 qui n'est pas expliquée par les formules de Barash et Svidzinskii est due aux effets qui apparaissent à plus basse température que nous discutons dans la prochaine section. Les effets de brisure de paires par les impuretés que nous observons en dessous de 30 mK sont aussi très sensibles à la structure du paramètre d'ordre.

III.2.3 Effets de brisure des paires par les impuretés

Nous allons maintenant discuter la partie très basse température de nos mesures qui montre les effets d'impuretés sur la supraconductivité de $U\text{Pt}_3$. Mais d'abord nous allons rappeler quelques concepts nécessaires pour comprendre ces effets qui donnent des prédictions précises et très sensibles au choix du paramètre d'ordre. Rappelons qu'une impureté dans un supraconducteur, en plus d'être un centre diffuseur pour les excitations thermiques a un effet de brisure de paires.

Effets des impuretés magnétiques dans un supraconducteur conventionnel.

Une impureté non magnétique dans un supraconducteur conventionnel n'a aucun effet sur la supraconductivité. Par contre, il est bien connu qu'une impureté magnétique a un effet de brisure des paires. Ces effets se traduisent par l'apparition d'une densité d'états finie au niveau de Fermi. Si la diffusion se fait dans la limite de Born (Abrikosov-Gorkov, voir p.e. [deGennes]), la variation du spectre d'excitations avec le nombre d'impuretés se fait de façon douce, donnant de la supraconductivité sans gap dans la limite d'impuretés concentrées. Pour des déphasages proches de $\pi/2$, les auteurs des références [Zittartz70, Zittartz72] ont démontré que des niveaux résonants sont créés dans le gap. Dans le cas de la diffusion en déphasage unitaire pur, on a une résonance au niveau de Fermi.

Effets d'impuretés non-magnétiques dans un supraconducteur non conventionnel.

Pour un supraconducteur non conventionnel, par contre, même les impuretés non magnétiques peuvent briser des paires.

Une image simple (due à Sauls et Rainer [Sauls96]) pour illustrer ces effets est donnée dans la figure III.14. En effet, l'impulsion de l'électron peut changer de direction dans le processus de collision avec l'impureté. L'impulsion après collision peut avoir une direction pour laquelle

le paramètre d'ordre a un signe opposé à celui pour l'impulsion avant la collision. Il se trouve que cela peut avoir un effet de brisure de paires, qui n'existe pas dans les supraconducteurs conventionnels, puisque dans ceux-ci il n'y pas de changement de signe du paramètre d'ordre. Cet effet de brisure de paires se traduit par la création d'un état lié à l'emplacement de l'impureté. Dans le cas de la diffusion dans la limite unitaire, ces états liés contribuent à la densité d'états au niveau de Fermi (état lié virtuel), qui va induire une densité d'état locale finie. Cette densité d'états locale a été calculée par les auteurs de la référence [Balatsky95] et dépend de la forme du gap supraconducteur.

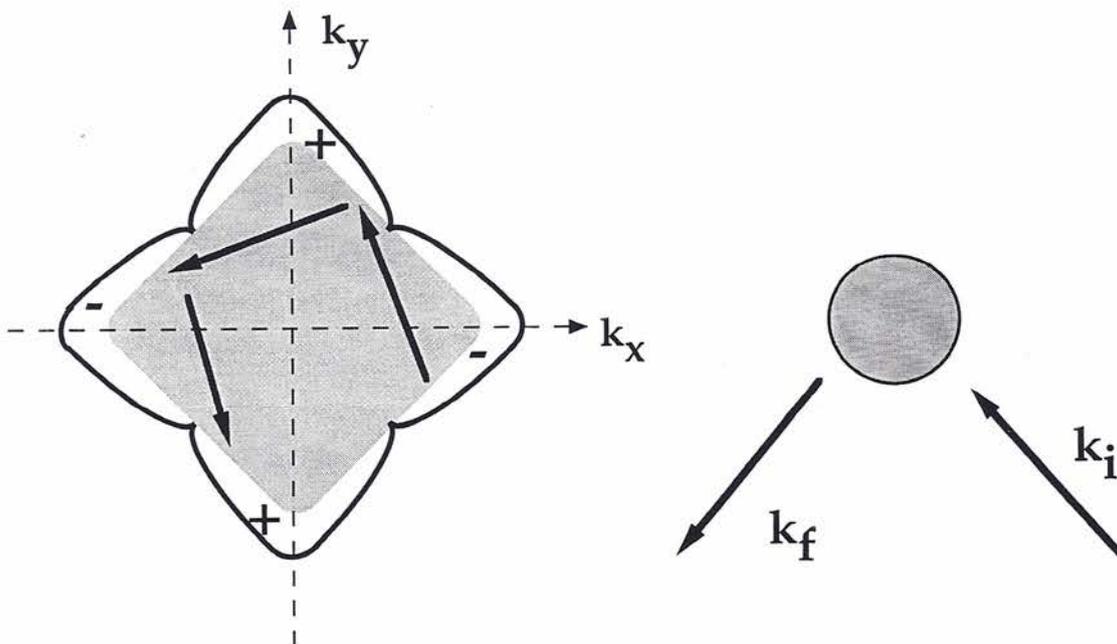


Figure III.14: Une illustration très simplifiée de la diffusion des électrons par les impuretés. Dans une diffusion élastique entre un électron et une impureté, lors du changement de direction du moment orbital de l'électron, le paramètre d'ordre peut avoir un signe opposé pour k_i et pour k_f . Cela a un effet de brisure de paires, tout comme une impureté magnétique dans un supraconducteur conventionnel. La grande différence entre la limite unitaire et la limite de Born est la création d'un état lié par l'impureté, qui va à apparaître sur la densité d'états sous forme d'une résonance au niveau de Fermi. La figure montre ces effets dans l'exemple du gap supraconducteur proposé pour les supraconducteurs à haute température critique (voir l'introduction). Les mêmes raisonnements sont valables pour UPt_3 , ou d'autres supraconducteurs avec des zéros dans le gap. (voir la référence [Sauls96])

Avec un nombre suffisant d'impuretés, et une température plus élevée que l'écartement entre les différents niveaux énergétiques, ces états liés peuvent créer une bande électronique. Cette bande électronique aura, comme nous le verrons par la suite des propriétés très spéciales, liées au fait que c'est une bande électronique dans la phase supraconductrice avec des électrons localisés dans l'espace \vec{k} autour des noeuds du gap. Cette bande d'électrons donne une conduction thermique métallique à très basse température. Les auteurs des références [Lee93, Balatsky95] ont considéré une transition métal isolant dans cette "bande" qui pourrait apparaître en diminuant le nombre d'impuretés ou la température.

Nous allons discuter maintenant nos mesures dans le régime où nous croyons observer la

conduction thermique due à cette bande électronique. Nous retiendrons cependant que les effets de brisure de paires par les impuretés (non-magnétiques) peuvent se voir dans des mesures macroscopiques, et sont directement liés **aux changements du signe du paramètre d'ordre**. Cela explique le très grand intérêt que ce sujet a suscité chez les théoriciens. En effet, les effets discutés auparavant pourraient aussi exister dans le cas (même étrange) où le gap s'annule sans changer de signe, et alors, sans brisure de symétrie du groupe ponctuel. Mais les effets des impuretés vont refléter dans des mesures macroscopiques de l'information microscopique sur le changement de phase.

Dans le cadre de cette thèse nous n'avons pas eu d'évidence microscopique que cette bande d'électrons existe et qu'elle reflète le changement de la phase du paramètre d'ordre. Nous avons plutôt eu les premières manifestations de cette bande électronique sur des échantillons néanmoins très purs. Cela permet maintenant de fixer les conditions pour mieux observer ces effets et ouvre la voie à une étude plus poussée, en contrôlant la nature et le taux des défauts ou d'impuretés.

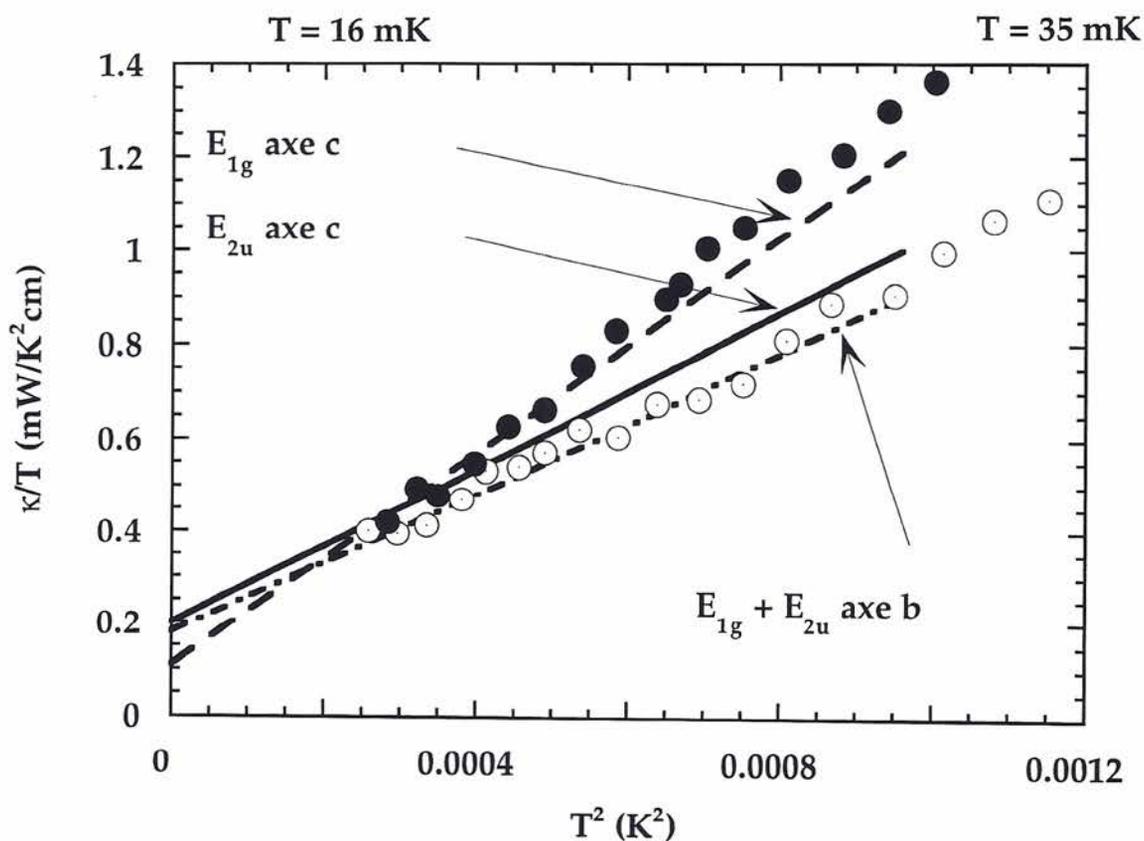


Figure III.15: Nos mesures de conduction thermique à très basse température.

III.2.4 Mesures expérimentales à très basse température

Nos mesures à très basse température sont montrées dans la figure III.15. En dessous de 30 mK, nous observons un changement de régime dans les courbes, et une extrapolation finie à $T=0K$. C'est une indication de l'existence d'une conduction thermique métallique ($\kappa/T = const.$) dans la phase supraconductrice. Cependant, nous ne sommes pas allés à des températures suffisamment basses pour observer clairement un régime $\kappa \propto T$. Nous observons plutôt des comportements comme $\kappa \propto \alpha T + \beta T^3$. Les auteurs des références [Hirschfeld88, Lee93, Norman96, Graf96, Graf96b] ont calculé précisément la conduction thermique due à la bande d'électrons discutée au paragraphe

précédent.

Notamment P.A. Lee [Lee93] a remarqué que dans le cas d'un gap avec une ligne de zéro l'extrapolation à $T=0$ de κ/T **ne dépend pas du nombre d'impuretés**. Cet effet correspond à l'existence d'une bande électronique dont la conduction électronique ne dépend pas du nombre d'impuretés !

Ce résultat est issu de calculs microscopiques complexes. Dans une image simple, une impureté va à avoir un effet de brisure de paires et "produire" un électron pour conduire la chaleur, qui va ensuite être diffusé par une autre impureté. Il est alors imaginable que les effets d'augmentation de la densité d'états au niveau de Fermi compensent les effets de la diminution du temps de collision par l'ajout d'une impureté.

Les auteurs des références [Graf96, Norman96] ont examiné plus en détail le cas d'un gap hybride, comme celui de UPt_3 . La conduction thermique dans le plan κ_b est prédite *indépendante* (ou faiblement dépendante) du nombre d'impuretés, à cause de la ligne de zéro dans le *plan de base*. Il en est de même pour la conduction thermique *perpendiculaire au plan* κ_c dans le cadre du modèle E_{2u} , où le gap s'annule de façon *quadratique* suivant c (page 28). Dans le cadre de E_{1g} où le gap s'annule de façon linéaire (page 28), par contre κ_c est *sensible au nombre d'impuretés*. Les auteurs de la référence [Norman96] ont notamment calculé de façon précise la variation de κ_c/κ_b en fonction du taux d'impuretés.

Nous n'avons mesuré que deux échantillons suivant des directions cristallographiques différentes, donc nous n'avons pas pu mesurer la dépendance de κ_c et κ_b en fonction du taux d'impuretés. Néanmoins, Graf et al. [Graf96] ont donné des expressions précises pour la conduction thermique dans la bande d'impuretés. En effet, à température finie, l'approximation du premier ordre qui donne $\kappa/T \propto const.$ n'est pas valable. Le développement de Sommerfeld de ces équations donne plutôt des lois $\kappa/T = \alpha + \beta T^2$ avec des coefficients α et β bien définis et qui dépendent notamment de la pente du gap près des noeuds μ , des vitesses de Fermi $v_{F,i}$, du gap supraconducteur Δ et de la densité d'états au niveau de Fermi $N(E_F)$:

	α_b	β_b	α_c	β_c
E_{1g}	$\frac{v_{F,b}^2 \hbar}{4\mu_{ligne} \Delta_0} \gamma_S$	$\frac{7\pi^2 k_B^2}{\alpha_b 60\gamma^2}$	$\frac{v_{F,c}^2 \hbar}{3(\mu_{point} \Delta_0)^2 \gamma_S \gamma}$	$\alpha_c \frac{7\pi^2 k_B^2}{60\gamma^2} \frac{5}{2}$
E_{2u}	„	„	$\frac{v_{F,c}^2 \hbar}{6\mu_{point} \Delta_0} \gamma_S$	$\alpha_c \frac{7\pi^2 k_B^2}{60\gamma^2} \frac{2}{2}$

Table III.7: Les coefficients pour la conduction thermique à très basse température par Graf et al. [Graf96b]

Nous remarquons:

- Pour $j//b$:

κ_b est identique pour E_{1g} et E_{2u} car les deux modèles prédisent une ligne de zéro dans le plan. Comme cela a déjà été indiqué, α_b est universel, c.a.d. indépendant du taux d'impuretés n_i , mais dépendant de la forme du paramètre d'ordre près des noeuds par le paramètre μ_{ligne} qui modélise la pente du gap près des noeuds. β_b dépend du taux d'impuretés comme $\beta_b \propto \alpha_b/\gamma^2$ où γ est la largeur de la bande d'impuretés. La largeur en énergie de la bande formée par les impuretés est reliée au taux d'impuretés par la formule $\gamma \simeq \sqrt{\pi\Gamma/2\Delta_0}$, où Γ est proportionnel au nombre d'impuretés ($\Gamma \simeq n_{imp}/\pi N(E_F)$) et est le paramètre qui décrit l'effet de brisure de paires (notons qu'on exprime souvent Γ en Kelvin, après multiplication par \hbar/k_B [Hirschfeld86, Fledderjohann95, Norman96, Graf96]).

- Pour $j//c$:

Ici, comme nous l'avons déjà remarqué, les résultats sont différents pour E_{1g} et E_{2u} . Pour E_{1g} , $\alpha_c \propto \gamma$ et $\beta_c = 2.5 \frac{\beta_b}{\alpha_b} \alpha_c$, mais pour E_{2u} , $\alpha_c \propto \alpha_b$ est indépendant du nombre d'impuretés et $\beta_c = \frac{\beta_b}{\alpha_b} \alpha_c$.

Nous avons ajusté tout d'abord nos points pour $j//b$. Cela donne les paramètres $\alpha_b = 0.18 \frac{mW}{K^2 cm}$ et $\beta_b = 750 \frac{mW}{K^5 cm}$. α_b a été estimé par Graf et al. avec $v_{F,b} \sim 3km/s$, $\gamma_S \sim 10kJ/K^2 m^3$ et la pente du gap près des noeuds $\mu_{ligne} = 2$ et ils ont trouvé $\alpha_b \sim 1 \frac{mW}{K^2 cm}$, du même ordre que ce que nous trouvons.

γ , la largeur de la bande induite par les impuretés, peut alors être obtenue par $\frac{\beta_b}{\alpha_b} \simeq \frac{7\pi^2 k_B^2}{60\gamma^2}$ [Graf96]. Nous trouvons 16mK, qui est **du même ordre de grandeur** que la température à laquelle nous observons une extrapolation finie à $T=0K$.

Constatons que les lois prédites par Graf et al. sont suivies qualitativement dans cette gamme de température; cela est très encourageant et démontre que nous observons effectivement les effets de brisure de paires par les impuretés. Avec les paramètres α_b et β_b fixés par l'ajustement pour $j//b$, nous pouvons essayer d'ajuster la courbe pour $j//c$.

Comme montré dans la table III.2.4, une fois que α_b , β_b et γ sont connus, le seul paramètre ajustable pour les mesures suivant l'axe c est l'extrapolation à $T=0K$ des points pour $j//c$: α_c . Le coefficient β_c devant le terme en T^2 dans la formule $\kappa/T = \alpha_c + \beta_c T^2$ est fixe (ne dépend que de α_b et β_b) et est 2.5 fois plus grand dans le cas de E_{1g} que pour E_{2u} . En effet, Graf et al. trouvent pour E_{2u} $\frac{\beta_c}{\alpha_c} = \frac{\beta_b}{\alpha_b}$, mais pour E_{1g} $\frac{\beta_c}{\alpha_c} = 2.5 \frac{\beta_b}{\alpha_b}$. Le coefficient β dépend donc fortement de la façon dont le gap s'annule suivant l'axe c . L'idée qu'on trouve des résultats comparables à ceux trouvés dans le cas d'une ligne de zéro pour un point de zéro qui s'annule de façon quadratique, mais pas un point de zéro qui s'annule de façon linéaire aide à comprendre ce résultat : la courbe prédite pour E_{2u} et $j//c$ est voisine de celle prédite pour $j//b$ mais pas la courbe prédite pour E_{1g} et $j//c$. Comme montré dans la figure, nos points expérimentaux présentent des différences notables suivant la direction du courant et sont plutôt en accord avec E_{1g} . Remarquons que nous trouvons $\alpha_c \sim 0.11 \frac{mW}{K^2 cm}$ pour E_{1g} et $\alpha_c \sim 0.2 \frac{mW}{K^2 cm}$ pour E_{2u} , alors que avec la vitesse de Fermi $v_{F,c} = 5km/s$ et la pente du gap près des noeuds $\mu_{point} \sim 2/3$ pour E_{1g} et $\mu_{point} \sim 4$ pour E_{2u} (voir [Graf96]) on peut estimer $\alpha_c \sim 0.15 \frac{mW}{K^2 cm}$ pour E_{1g} et $\alpha_c \sim 0.7 \frac{mW}{K^2 cm}$ pour E_{2u} , des valeurs aussi du même ordre que celles que nous trouvons par nos ajustements.

Il faut cependant voir que ces ajustements ont des limitations. Tout d'abord, la nature des impuretés n'est pas connu, il n'est donc pas évident que la largeur de bande γ soit la même pour les deux échantillons mesurés, bien qu'issus du même cristal, comme discuté auparavant (page 65). D'un point de vue plus naïf, si on soupçonne la validité de ces hypothèses, la valeur de γ que nous avons mesuré est à la limite de la température à laquelle nous sommes arrivés (16 mK). Ce qui peut vouloir dire que pour les échantillons que nous avons mesurés, les prédictions théoriques de Graf et al. devraient être valables seulement à des températures encore plus basses ($T < \gamma$). Donc ces ajustements ne sont pas complètement fiables.

Il faut remarquer aussi que la valeur de γ pose des problèmes. En effet, des mesures près de T_c , on peut extraire le temps de relaxation due aux collisions electron-impureté, et estimer γ . D'après [Graf96] on peut estimer γ par $\gamma \sim 0.2 \sqrt{\Gamma \mu_{ligne} \Delta_0}$. Γ est le temps de relaxation par les impuretés et peut être estimé à partir des valeurs dans la phase normale par $\Gamma = \frac{\hbar}{2k_B T} = \frac{1}{6} v_{F,b}^2 N(E_F) L_0 / \rho_{0,b}$, ce qui donne avec $N(E_F) \sim 10^4 J/m^3$ obtenu par chaleur spécifique et $v_{F,b} \sim 3.3km/s$, $\Gamma \sim 30mK \sim 0.05T_c$. On trouve $\gamma \sim 50mK$ ce qui est bien plus élevé que ce que nous trouvons à très basse température. Il est alors difficile d'ajuster en même temps nos expériences à très basse température et la partie près de T_c . En effet, la théorie de

Norman et Hirschfeld [*Norman96*] , et aussi celle des auteurs de la référence [*Graf96*] couvre tous les effets, tant de diffusion des électrons par les impuretés en limite unitaire, que de brisure de paires. Ces auteurs n'arrivent pas à ajuster $\kappa(T)$ dans toute la gamme de températures. Jusqu'à maintenant ces théories n'ont pas pu expliquer ce désaccord. Cependant, nous voudrions remarquer qu'il serait intéressant d'ajuster nos mesures, en commençant par expliquer la partie très basse température, qui est la plus simple à interpréter.

En tout cas le point remarquable de cette analyse est que la conduction thermique à très basse température est une sonde expérimentale puissante qui donne des informations précises sur le gap supraconducteur.

III.3 Conclusion des mesures à champ nul

Nous avons principalement comparé nos mesures à deux modèles, E_{1g} et E_{2u} . Bien que nous n'arrivons pas à distinguer entre les différences fines de la structure du gap, nous voudrions remarquer que sur la base de nos mesures, on peut exclure d'autres structures du gap, notamment avec des points cubiques et non pas quadratiques ou linéaires suivant l'axe c . [Graf96] Par contre, on ne peut pas exclure d'autres modèles qui prédisent une structure du gap hybride.

Dans ce cadre, notre résultat s'ajoute comme évidence expérimentale d'un gap hybride aux mesures de K. Behnia et al. [Behnia91, Behnia92, Behnia92b] et de B. Lussier et al. [Lussier94, Lussier96] ou d'autres mesures sensibles au gap supraconducteur.

Cependant, le point original par rapport aux travaux précédents est que nous arrivons à résoudre de façon claire **toutes les échelles d'énergie nécessaires pour comprendre la conduction thermique** κ . Il est remarquable que nous ayons observé, dans la même expérience et sur des échantillons purs, la forme de $\kappa(T)$ près de T_c , la partie, plus simple, où on observe des lois de puissance et l'effet de brisure de paires par les impuretés.

Un ajustement de nos données en faisant un lien entre les trois régimes pourrait donner de nouvelles conclusions. Cependant, vu les complications rencontrées, notamment en ce qui concerne les différents temps de relaxation obtenus dans la partie très basse température, par rapport à la partie haute température, il est peut être plus simple pour le moment d'étudier l'effet des impuretés sur la conduction thermique à basse température [Norman96, Graf96].

En effet, le résultat original est que nous avons observé la conduction des électrons induits par les impuretés dans un échantillon très propre. Le fait de trouver **une extrapolation finie de κ/T à $T=0K$** est une originalité de ce travail. Cette thèse ouvre alors la voie à **des recherches plus poussées en contrôlant la nature et le taux d'impuretés**. Il faut remarquer que pour réaliser cette étude il faut des échantillons purs, pour que les résultats soient comparables (même T_c , diffusion toujours en limite unitaire, ...), donc des échantillons avec des taux d'impuretés légèrement différents de ceux que nous avons eu (par exemple, une résistivité résiduelle 2 ou 3 fois plus élevée ou plus basse). Nous avons essayé de faire de tels échantillons, mais ce travail est loin d'être trivial. En faisant par exemple varier la température du recuit on trouve soit des échantillons trop mauvais (résistivité dix fois plus élevée), soit des échantillons de la même qualité que ce que nous avons eu. Une possibilité intéressante qui devrait être entreprise après la fin de cette thèse est l'irradiation des échantillons par des électrons pour créer des défauts de façon contrôlée (en collaboration avec F. Rullier-Albenque de l'école Polytechnique). Une autre serait la mesure de whiskers qui pourraient avoir une meilleure qualité que ce que nous avons maintenant. Nous sommes aussi en contact avec A. de Visser (Université Amsterdam) pour mesurer un échantillon légèrement dopé au Palladium (0.1 %).

III.4 Le paramètre d'ordre supraconducteur étudié par conduction thermique dans l'état mixte

Les mesures de conduction thermique dans la phase mixte montrent un comportement riche. Comme nous avons vu dans l'Introduction (page 9), la phase mixte d'un supraconducteur est compliquée. Même dans un supraconducteur conventionnel, les choses se compliquent beaucoup par l'apparition des vortex. La conduction thermique électronique est très influencée par les vortex. Nous allons tout d'abord rappeler la situation expérimentale dans les supraconducteurs conventionnels. Cela va nous aider à voir ce qui est différent dans UPt_3 , et servira de guide pour la discussion.

Pour discuter les mesures dans UPt_3 , nous allons tout d'abord rappeler l'effet des vortex sur le transport de chaleur, les mesures près de H_{c2} et finalement, la partie bas champ magnétique basse température qui fait le lien avec le problème du paramètre d'ordre discuté auparavant.

III.4.1 Introduction

L'interprétation des mesures de conduction thermique dans les supraconducteurs classiques n'était pas facile, puisqu'il fallait séparer la contribution électronique de la contribution des phonons. Cependant, il était souvent possible de déterminer $\kappa(H)$ due aux électrons. Voir pour les références par exemple [Lowell70, Chakalskii78, Vinen71] pour des travaux expérimentaux et [Cleary68, Cleary70] pour des travaux théoriques, ainsi que le livre cité dans la référence [SaintJames].

III.4.1.1 La conduction thermique dans des supraconducteurs conventionnels

Contribution du coeur des vortex : limite propre - limite sale.

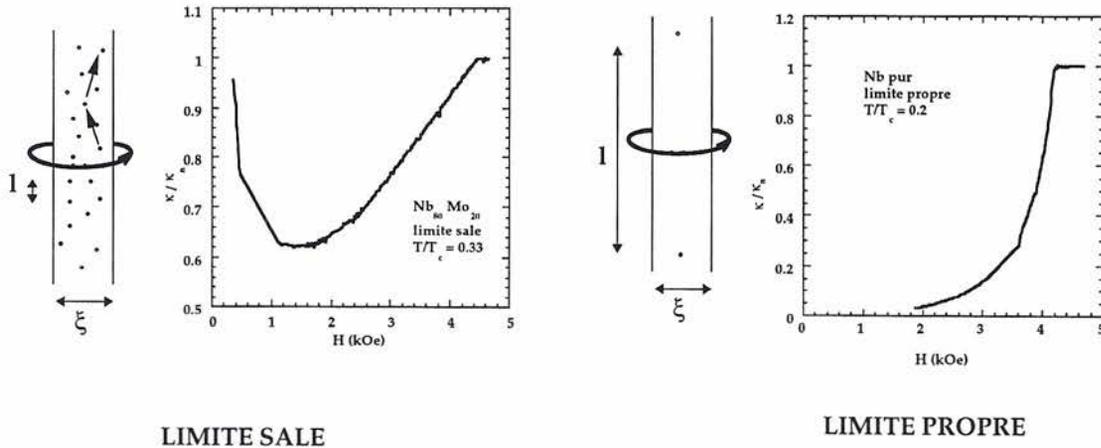
Tout d'abord, des différences apparaissent si le libre parcours moyen l est plus petit que la longueur de cohérence ξ ou pas (limite sale $l \ll \xi$ ou limite propre $l \gg \xi$). Le principal effet du champ magnétique étant l'introduction de vortex dans l'échantillon, la première chose à se demander est la contribution à la conduction thermique des électrons ("normaux") dans les vortex, notamment dans le cas où les vortex sont parallèles au courant de chaleur.

Comme montré dans la figure III.16, dans la limite propre, ces électrons ont une conduction thermique beaucoup plus faible que dans la phase normale, puisque la taille des vortex, de l'ordre de ξ est bien plus petite que le libre parcours moyen dans la phase normale l . De cette façon, ces excitations conduisent mal la chaleur.

Comme discuté dans l'introduction, en dehors du coeur des vortex, et jusqu'à un rayon de l'ordre de la longueur de pénétration λ , des courants superfluides circulent pour écranter le champ magnétique qui entre dans le coeur du vortex. Dans un supraconducteur conventionnel le spectre d'excitations n'est pas influencé par cet effet. C'est à dire, la conduction thermique qui est due aux excitations thermiques de la phase supraconductrice, n'est pas influencée considérablement par l'effet du champ magnétique. Donc, contrairement à la chaleur spécifique, qui augmente de façon proportionnelle au champ magnétique à cause des électrons des coeurs de vortex, la conduction thermique est approximativement indépendante du champ magnétique jusqu'à des valeurs du champ proches de H_{c2} . κ ne suit alors pas du tout le comportement de la chaleur spécifique C_p , du fait que les électrons au coeur des vortex ne contribuent pas à la conduction de chaleur (voir figure III.16).

Dans la limite sale, $\xi > l$, la situation est différente : la conduction thermique des électrons au coeur des vortex est comparable à la conduction thermique des électrons dans la phase normale, et on ne peut plus négliger ce type de conduction. Dans ce cas, la conduction thermique suit à

peu près la chaleur spécifique en étant proportionnelle au nombre des vortex. Il faut noter que dans les supraconducteurs conventionnels, les phonons ne sont pas négligeables, notamment dans la limite sale, ce qui complique la discussion. Cependant, à fort champ, on observe clairement un comportement proportionnel au champ magnétique, en contraste avec ce qu'on voit dans la limite propre (voir figure III.16).



Lowell, Sousa (1970)

Figure III.16: Le comportement en général de la conduction thermique sous champ magnétique. Dans la limite propre, les électrons dans les vortex ne contribuent pas à la conduction thermique. $\kappa(H)$ est alors dominé par les excitations thermiques de la phase supraconductrice, qui sont diffusées par les vortex, de façon à donner un comportement comme montré dans la figure (droite). Dans la limite sale, par contre κ est proportionnel au champ magnétique, à cause de la conduction des électrons normaux dans les vortex. Notons que dans ce cas, à bas champ magnétique, les phonons ont une contribution non-négligeable qui rend l'interprétation difficile. Néanmoins, les auteurs ont toujours observé cette différence entre la limite sale et la limite propre dans la conduction thermique électronique des supraconducteurs conventionnels.

Diffusion des excitations thermiques par les vortex - dépendance angulaire.

Dans le cas d'un supraconducteur conventionnel dans la limite propre, il ne reste que les excitations thermiques de la phase supraconductrice pour conduire la chaleur. Ces excitations, par contre, sont diffusées par les vortex, ce qui donne une diminution de $\kappa(H)$ à faible champ magnétique. La diffusion des excitations thermiques par les vortex n'est pas un effet simple. Notamment parce que les vortex présentent une structure compliquée, avec des courants superfluides qui augmentent considérablement quand on se rapproche du coeur des vortex.

Ce type de diffusion par les vortex dépend de la direction relative du courant et du champ magnétique, comme montré dans la figure III.17. A bas champ magnétique, quand les vortex sont perpendiculaires au courant, ils sont plus efficaces pour diffuser les excitations thermiques que quand ils sont parallèles au courant. Donc, $\kappa(j \perp H) < \kappa(j \parallel H)$. Par contre, près de H_{c2} , les choses sont un plus compliquées. En effet, près de H_{c2} et à haute température, les excitations thermiques de la phase supraconductrice sont nombreuses donc on trouve le même comportement qu'à bas champ magnétique $\kappa(j \perp H) < \kappa(j \parallel H)$. Par contre, à basse température près de H_{c2} , ce sont les excitations qui se propagent perpendiculairement aux vortex qui l'emportent, et κ est plus grande quand le courant est perpendiculaire aux vortex $\kappa(j \perp H) > \kappa(j \parallel H)$. Cela est montré dans la figure III.17, voir [Lowell70] et références incluses.

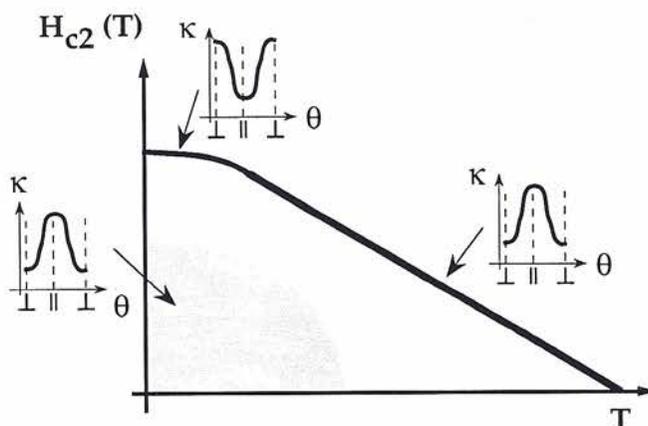


Figure III.17: Le comportement de la conductivité thermique en fonction de l'angle entre le courant de chaleur et le champ magnétique (voir p.e. [Lowell70]).

Anomalie près de $H_{c2}(T)$.

Tandis qu'à champ nul, on n'observe pas d'anomalie à la température critique, sous champ magnétique une cassure de pente apparaît. De la même façon, une anomalie apparaît en $\kappa(H)$ et la dérivée de κ en fonction du champ $d\kappa/dH$ est reliée au gap supraconducteur par la théorie de Caroli et Cyrot [Caroli65] dans la limite sale et par la théorie de Maki [Houghton71, Maki67] dans la limite propre.

Une explication très simplifiée de cette dépendance de $d\kappa/dH|_{H_{c2}(T)}$ (ou $d\kappa/dT|_{T_c(H)}$) au gap supraconducteur, est la suivante : à champ constant et en descendant la température, le gap apparaît dans le spectre d'excitations et est modulé dans l'espace, avec des zéros là où des vortex vont se former à plus bas champ (voir l'introduction I.2.2). Cet effet change de façon drastique la variation en température du transport de chaleur et donne une anomalie sur κ au moment de la transition supraconductrice sous champ magnétique, tant en croisant la ligne de transition à champ magnétique constant qu'à température constante. La pente de κ près de la transition est dominée par l'apparition d'un gap modulé dans l'espace.

III.4.1.2 La conduction thermique dans la phase mixte de UPt_3 .

UPt_3 est un supraconducteur clairement dans la limite propre ($l \sim 5000\text{\AA}$ comparé à $\xi_0 \sim 150\text{\AA}$). Ce composé présente de la supraconductivité non-conventionnelle avec un gap hybride et un diagramme de phase complexe avec 3 phases supraconductrices. Connaissant la situation dans les supraconducteurs conventionnels, nous nous attendons à observer des particularités dans UPt_3 dans les trois régimes suivantes : (i) près de $H_{c2}(T)$ sur la pente de la conductivité thermique, (ii) sur la diffusion des électrons par les vortex et (iii) à très basse température, dues à la présence des excitations de basse énergie. Dans les régimes (i) et (ii), nous allons voir qu'il y a des différences, mais elles ne sont pas fondamentales. Par contre, le régime (iii) montre des effets nouveaux.

En tout cas, le comportement général dans le diagramme de phase H-T est très riche (pour ne pas dire très compliqué) dû au jeu complexe entre ces trois régimes. Les figures III.18 et III.19 montrent quelques unes de nos mesures en fonction de la température (III.18) ou du champ magnétique (III.19).

Il est remarquable qu'en traçant les températures auxquelles nous trouvons des anomalies (voir les figures III.18 et III.19) sous champ magnétique nous retrouvons le diagramme de phase de UPt_3 , comme montré dans la figure III.20, avec notamment la ligne de transition $B \rightarrow C$. κ ne montre pas la ligne $A \rightarrow B$, probablement parce que la gamme de températures pour l'existence de la phase A est très faible et cette transition est donc difficile à mesurer.

$\kappa(H)$ montre clairement la diffusion des électrons par les vortex (voir minimum en $\kappa(H)$ pour $T \geq 100\text{mK}$ montré dans la figure III.19). Cependant, à très basse température, nous n'observons plus un minimum en $\kappa(H)$ correspondant à la diffusion des électrons par les vortex, mais une augmentation continue de $\kappa(H)$. Cela semble être propre à UPt_3 . Nous allons alors séparer la discussion de nos mesures dans les trois régimes mentionnés auparavant:

- Nous discuterons tout d'abord la diffusion des excitations thermiques par les vortex à angle fixe, et en tournant l'échantillon dans un champ magnétique (régime ii.).
- Ensuite, nous discuterons les mesures près de H_{c2} , en relation notamment avec la dépendance en fonction du paramètre d'ordre de la dérivée de la conduction thermique par rapport à la température ou au champ magnétique (régime i.).
- La partie bas champ basse température est la plus originale et nous allons démontrer par la suite qu'elle **confirme l'effet des zéros dans le gap supraconducteur sur la conduction thermique** (régime iii.).

Les effets au dessus de 100 mK et 500 Gauss (diffusion electron-vortex, anomalies près de H_{c2}) ont été mesurés par K. Behnia pendant sa thèse (K. Behnia a étudié, en plus, des différentes configurations des directions du champ magnétique et du courant). L'originalité de ce travail est surtout dans les mesures à très basse température. Cependant, notre travail à plus haute température apporte des mesures plus précises et sur de meilleurs échantillons que celles faites auparavant, ce qui nous a conduit à observer des effets nouveaux.

Nous remarquerons que nous n'avons observé aucun effet d'irréversibilité sur la conductivité thermique (K. Behnia non plus). Nous avons eu toujours les mêmes résultats, indépendamment de l'histoire de l'échantillon en fonction du cyclage thermique ou du champ magnétique (en refroidissant sous champ ou en changeant le champ dans la phase supraconductrice), sauf à des champs magnétiques très faibles, comparables à H_{c1} (de l'ordre de 100 G à $T=0\text{K}$). Cela contraste avec des mesures d'aimantation, qui montrent des effets d'irréversibilité non-négligeables. Il faut comprendre cela, notamment en relation avec la diffusion des électrons par les vortex. Alors, la conductivité thermique est une sonde très intéressante pour l'étude de la phase mixte.

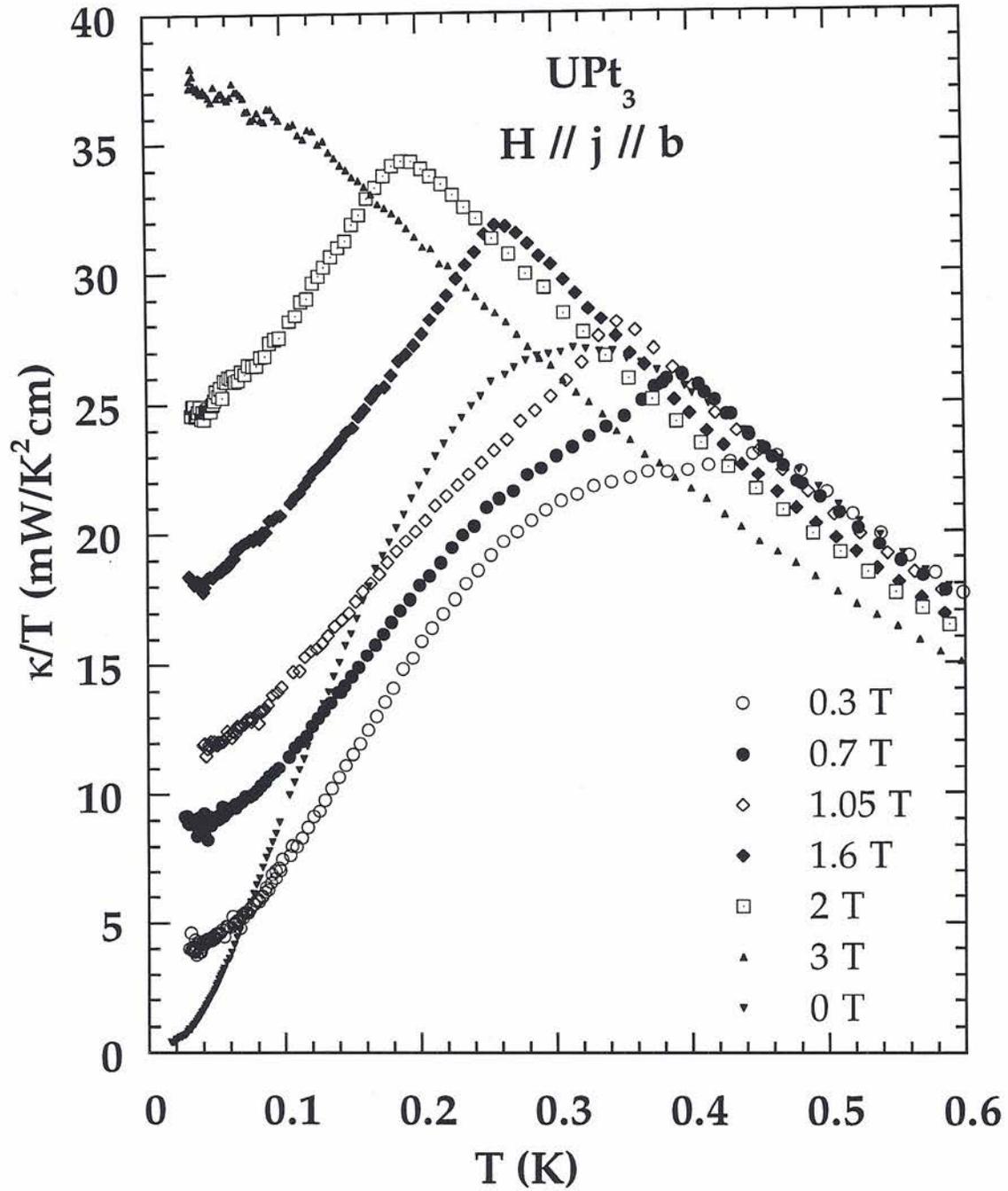


Figure III.18: Quelques unes des nos courbes de conduction thermique en fonction de la température sous champ magnétique. La température critique (T_c^+) est de 530 mK.

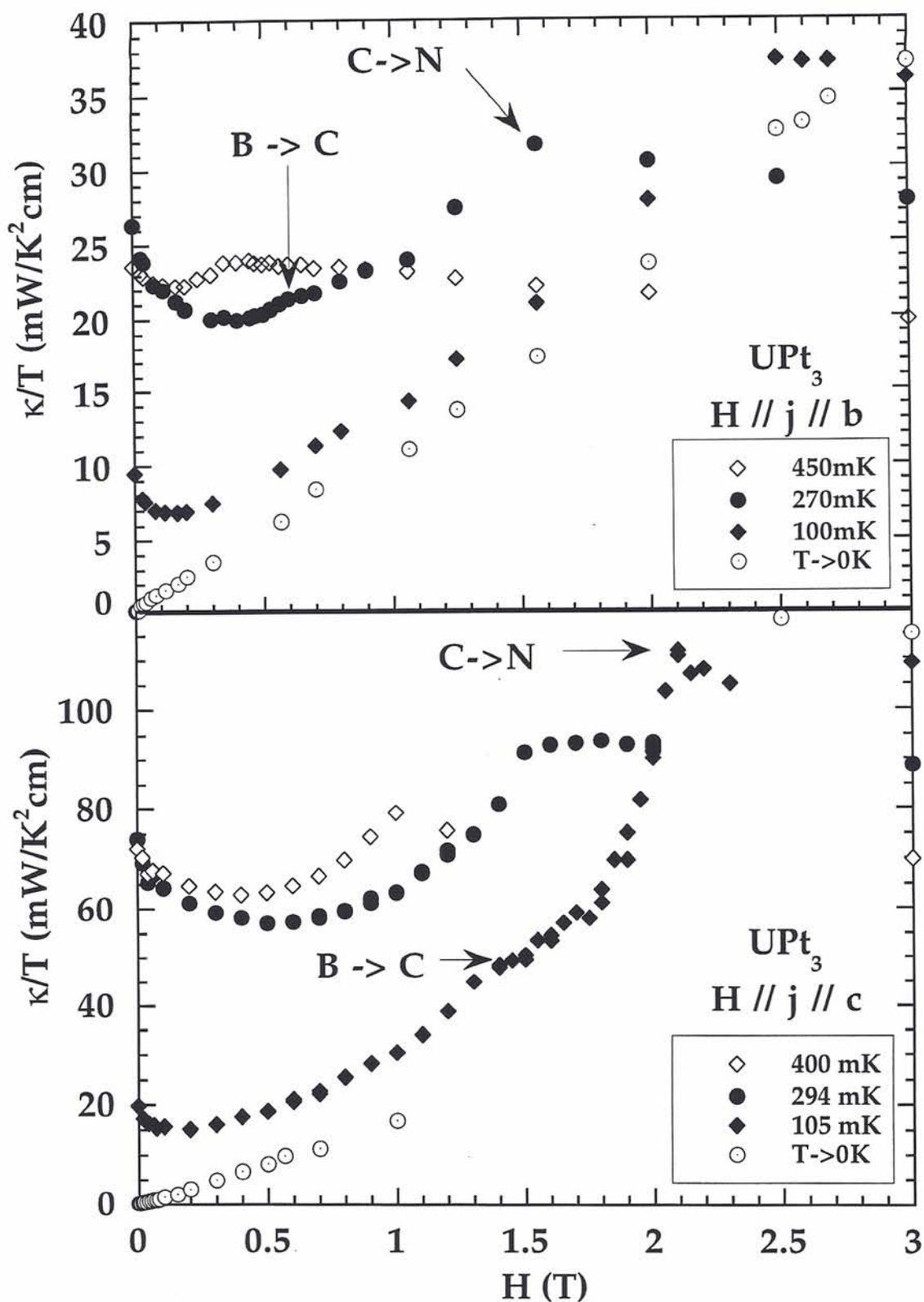


Figure III.19: Quelques unes de nos mesures de conduction thermique en fonction du champ magnétique à différentes températures. Les flèches montrent les différentes transitions de phase : entre les phases B et C et entre la phase C et l'état normal. Remarquons que dans l'état normal, nous trouvons une légère descente de la température due à la magnétorésistance de ce composé.

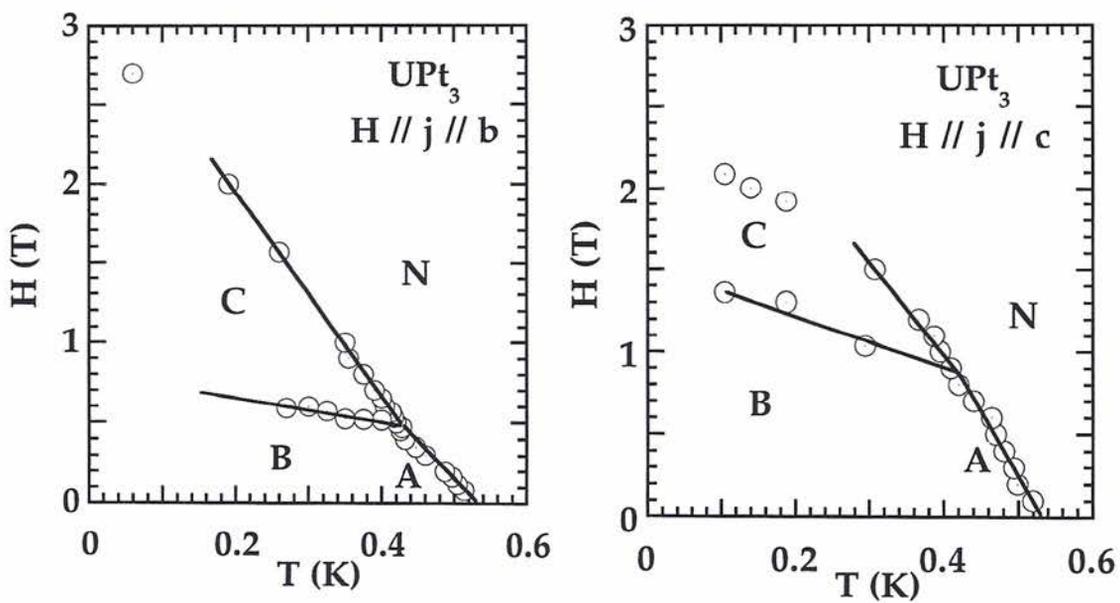
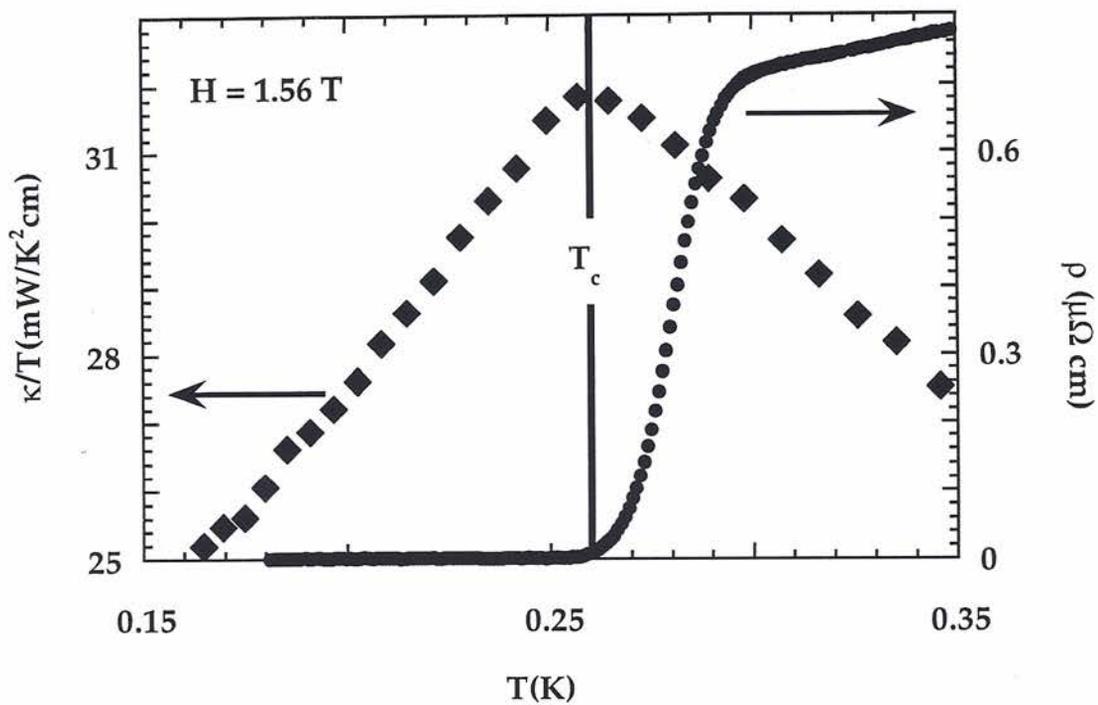


Figure III.20: La partie haute de la figure montre la comparaison d'une courbe de conduction thermique et une courbe de resistivité. La partie basse, le diagramme de phase obtenu par les anomalies de conduction thermique montrées dans les figures précédentes.

III.4.2 Effets de vortex sur le transport de chaleur

III.4.2.1 Mesures à angle fixe

Les effets de vortex sur le transport de chaleur sont visibles clairement à bas champ. Comme montrée dans la figure III.19, pour $T \geq 100mK$ la conduction thermique descend à bas champ dû à l'apparition des vortex qui diffusent les excitations thermiques présentes à champ nul, comme dans les supraconducteurs classiques. Dans les supraconducteurs conventionnels, ce type de diffusion donne lieu à une loi simple. [Lowell70, Chakalskii78] Cette loi propose une résistivité thermique $W = 1/\kappa$ dans la phase mixte plus grande que dans la phase Meissner par un facteur proportionnel au champ magnétique, et au diamètre de diffusion effectif des vortex a :

$$W = W_0 \left(1 + \frac{Bl_0a}{\phi_0} \right) \quad \text{Equation (III.7)}$$

l_0 est le libre parcours moyen des excitations thermiques à champ nul. Nous n'observons pas de comportement linéaire de W en fonction du champ magnétique, comme montré dans la figure III.21. En supposant, malgré tout, que ce serait la partie très bas champ qui est linéaire en fonction du champ magnétique, on peut estimer la dépendance de l_0a en fonction de la température. Lorsque le maximum de $W(H)$ (minimum de $\kappa(H)$) tend à disparaître, la pente initiale en fonction du champ magnétique (donc l_0a) monte considérablement en descendant la température. l_0a atteint $1.5 \cdot 10^{-10} cm^2$ à 100 mK. Quand le maximum en $W(H)$ (minimum de $\kappa(H)$) disparaît à très basses températures, la pente initial dW/dH devient négative. Cela reste à comprendre, la formule étant peut être trop simple pour décrire les processus mis en jeu. La figure III.22 donne la conduction thermique normalisée aux valeurs dans la phase normale en fonction du champ magnétique normalisé à $H_{c2}(T)$ pour le courant et le champ dans le plan.

Il est à signaler, que Houssa et Ausloos [Houssa97] en ajustant récemment nos courbes de la figure III.21 pour des températures ($T > 100mK$) où le maximum en $W(H)$ existe, trouvent que l'anisotropie de la dépendance en fonction du champ magnétique de la conductivité thermique favorise de façon claire le paramètre d'ordre E_{2u} . Nous ne discuterons pas cette théorie qui n'est apparue que très récemment.

III.4.2.2 Mesures en tournant le champ magnétique.

Avec H. Aubin et K. Behnia du Laboratoire de Physique des Solides à Orsay, nous avons effectué à Orsay des mesures de conductivité thermique en fonction de l'angle entre les vortex et le courant de chaleur. La technique expérimentale est décrite dans la référence [Aubin97]. Ces études étaient motivées par les travaux récents faits à Orsay sur les supraconducteurs à haute température critique, où H. Aubin et al. [Aubin97] ont trouvé des signes très clairs de la structure du paramètre d'ordre de YBaCuO sur la dépendance angulaire de la conductivité thermique. L'idée est que, étant donné que les excitations thermiques de la phase supraconductrice se propagent préférentiellement dans la direction des noeuds du gap, une anisotropie doit apparaître selon que les vortex sont parallèles ou perpendiculaires aux noeuds du gap. Dans UPt_3 nous avons mesuré la conductivité thermique pour le courant dans le plan de base, et un champ tournant dans le plan de base, et entre le plan de base et l'axe c .

Champ tournant dans le plan de base.

Comme montré dans la figure III.23, pour un champ tournant dans le plan de base, nous

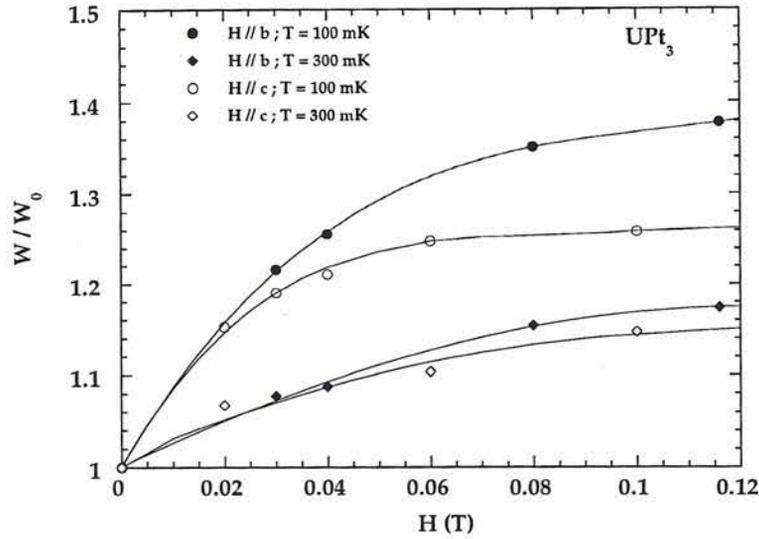


Figure III.21: Nos mesures de conduction thermique en fonction du champ magnétique à bas champ. À noter que cette région de champ n'était pas explorée par K. Behnia et al. [Behnia91]. Notamment, ces auteurs ont proposé une dépendance linéaire pour la résistivité thermique en fonction du champ magnétique, sur la base des mesures pour $H > 500\text{G}$ (0.05 T). Cette courbe a été ajustée récemment par Houssa et Ausloos [Houssa97] avec un modèle qui décrit la diffusion des électrons par les vortex. Ces auteurs trouvent que ce type de diffusion est sensible au gap supraconducteur, et que le comportement anisotrope que nous trouvons ici est en faveur d'un paramètre d'ordre E_{2u} .

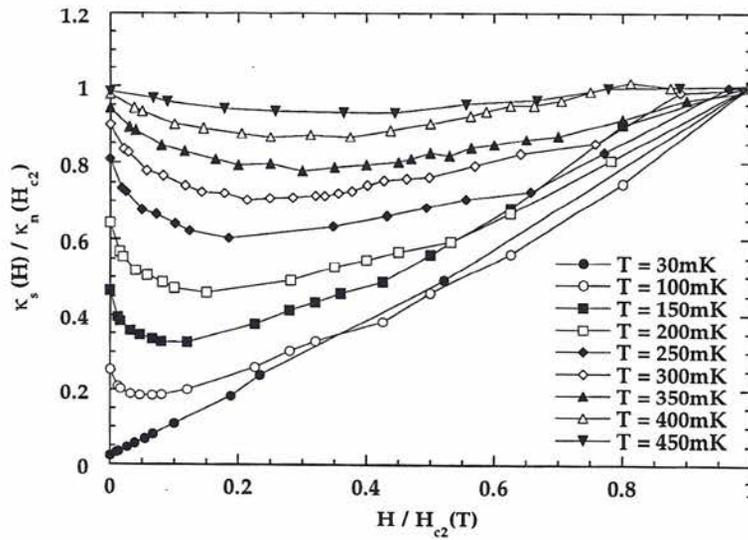


Figure III.22: La conduction thermique dans la phase mixte de UPt_3 pour un champ magnétique et un courant dans le plan. On peut voir l'évolution du minimum présent à bas champ magnétique sur la conduction thermique en fonction de la température. Notons que le minimum disparaît à basse température.

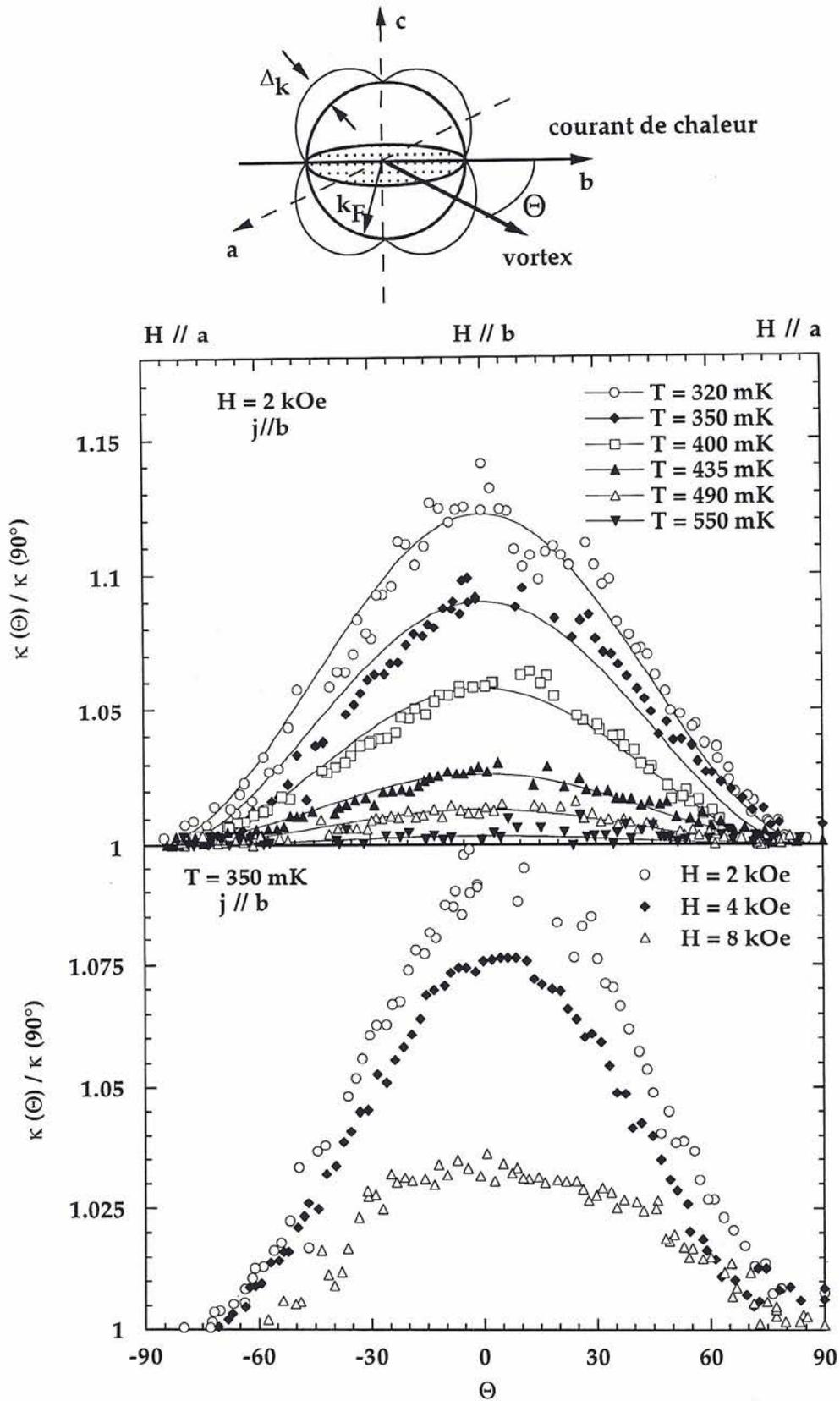


Figure III.23: Ces mesures ont été faites avec H. Aubin et K. Behnia à Orsay et montrent les variations de la conduction thermique en fonction de l'angle entre le courant de chaleur et les vortex. Comme montré dans la figure au dessus, les vortex tournent dans le plan de base.

observons une anisotropie "classique". C'est à dire, κ est plus faible quand les vortex sont perpendiculaires au courant de chaleur (voir Fig. III.17). Ce n'est pas étonnant de ne pas voir d'effets particuliers liés au gap supraconducteur, comme Aubin et al. [Aubin97] l'ont vu dans YBaCuO, puisque, comme démontré par nos mesures à champ nul, le paramètre d'ordre a une ligne de zéros dans le plan de base et ne présente pas de structure particulière dans le plan. De plus, les températures de mesure sont assez élevées par rapport à T_c ($T_c/2$), ce qui signifie qu'il y a beaucoup d'excitations thermiques en dehors des noeuds du gap.

On remarquera que la diffusion des électrons par les vortex est dominé par la présence des vortex, et non pas par la direction relative du courant de chaleur par rapport à la position des vortex. Par exemple, à 100 mK κ diminue (au plus bas) de 30% sous l'application d'un champ magnétique parallèle au courant ($H \parallel j$). Avec les vortex perpendiculaires au courant ($H \perp j$), cet effet est de 45%, donc, la diffusion électron vortex dépend surtout de la présence des vortex, même s'ils sont parallèles au courant de chaleur. Cela reste à expliquer d'un point de vue théorique. A noter aussi que nous n'avons pas observé les effets vus sur les supraconducteurs conventionnels près de la ligne $H_{c2}(T)$ à basse température (voir figure III.17). Nous n'avons peut-être pas assez de résolution expérimentale. De plus, à fort champ et basse température, il n'est pas facile de séparer les effets de la magnetorésistance anisotrope (que nous avons aussi observée dans nos mesures, bien sûr) des effets de la phase supraconductrice.

Champ en dehors du plan de base.

Nous avons aussi réalisé des expériences avec un champ magnétique qui tourne en dehors du plan de base, mais avec les vortex toujours perpendiculaires au courant de chaleur. Le résultat est montré dans la figure III.24. Le résultat est plus complexe. Nous observons une conduction thermique plus faible quand le champ est dans le plan à bas champs, et l'effet est inversé à fort champ magnétique. Nous ne comprenons pas encore l'effet à faible champ, mais nous notons que l'anisotropie est dans le même sens que l'anisotropie de la pente du champ critique à T_c .

L'effet à fort champ est en accord avec l'idée (présentée dans le cadre du champ critique et dans la prochaine section) que quand le champ est suivant la direction où le champ critique est gouverné par la limite de Pauli, la conduction thermique varie fortement près de H_{c2} . Des effets similaires sont observés dans URu₂Si₂. [Behnia92]

III.4.2.3 Conclusion.

Comme conclusion de cette section, je voudrais remarquer que nos mesures montrent les mêmes caractéristiques qualitatives que ce qu'on voit dans la diffusion électron-vortex dans les supraconducteurs conventionnels. De façon quantitative, il y a cependant des effets inexplicés. Nous espérons, qu'ils poussent à mieux étudier la diffusion des excitations thermiques par les vortex.

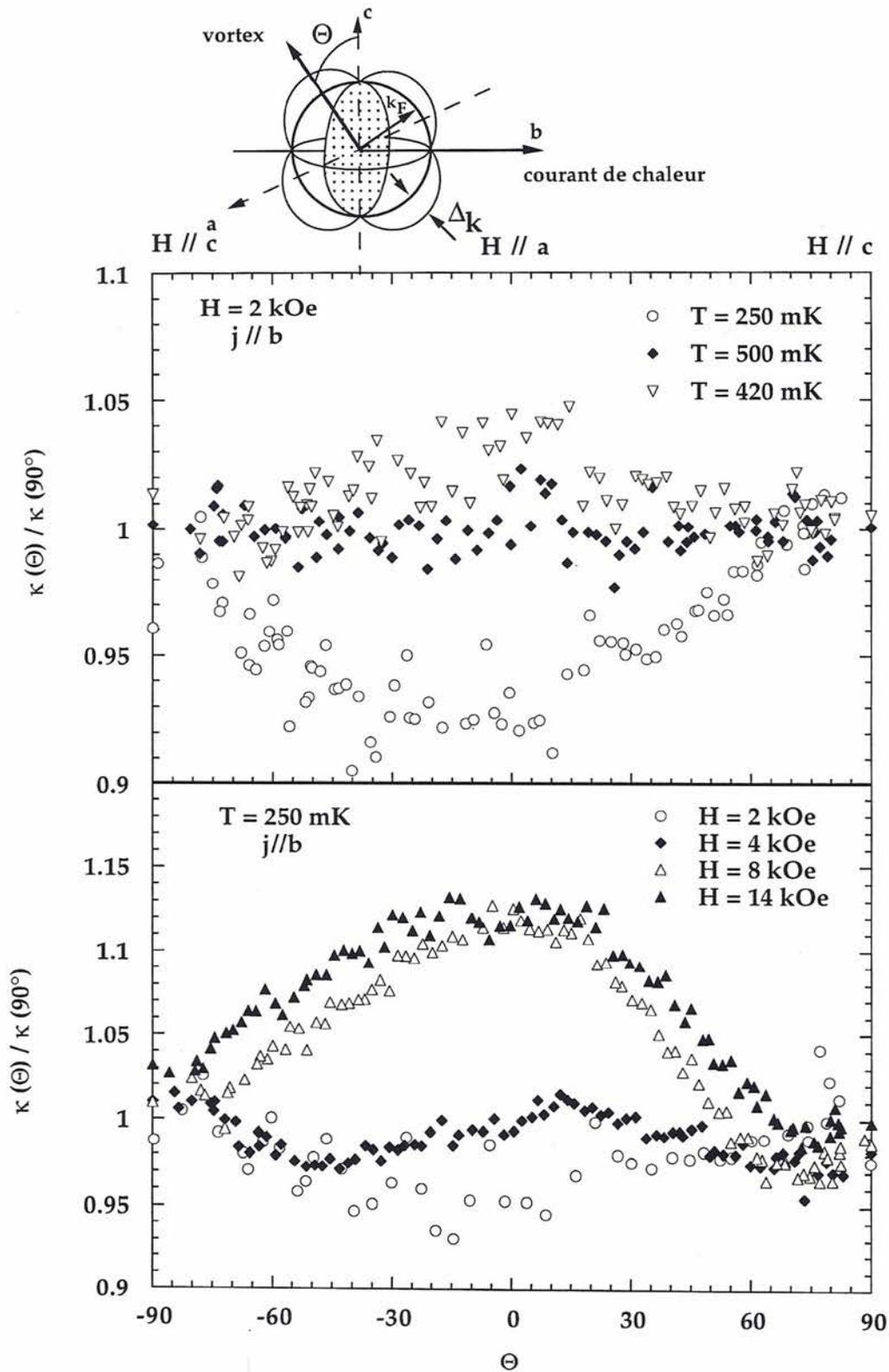


Figure III.24: Ces mesures ont été faites avec H. Aubin et K. Behnia à Orsay. Par rapport à la figure précédente, l'angle entre le courant de chaleur et les vortex est maintenant fixe. Les vortex sont tournés en dehors du plan de base et sont toujours perpendiculaires au courant comme montré dans la figure au dessus.

III.4.3 Mesures près de H_{c2}

III.4.3.1 La conduction thermique près de $T_c(H)$: changement du paramètre d'ordre à la transition de phase A-C.

À des températures proches de la transition supraconductrice à champ nul, la conduction thermique ne présente pas d'anomalie. Par contre, sous champ magnétique, une anomalie apparaît à $T_c(H)$.

Des calculs ont été faits par Yin et Maki [Yin93] pour décrire cet effet, et K. Behnia les a utilisés pour décrire ses mesures de κ sous champ magnétique. [Behnia91, Behnia92, Behnia92b] Notre apport a consisté à tracer de façon plus précise $d\kappa/dT$ en fonction du champ magnétique. Le résultat remarquable est de constater que $d\kappa/dT$ présente **une anomalie prononcée au moment du passage de la phase A à la phase C** dans le diagramme de phase de UPt_3 . Cet effet est clairement observé, et visible directement sur les courbes $\kappa(T)$, comme montré dans la figure III.25. La figure III.26 montre nos mesures de $d\kappa/dT(H)$ (à $T_c(H)$). Le saut trouvé s'explique par un **changement de la structure du paramètre d'ordre** dans la transition de phase $A \rightarrow C$.

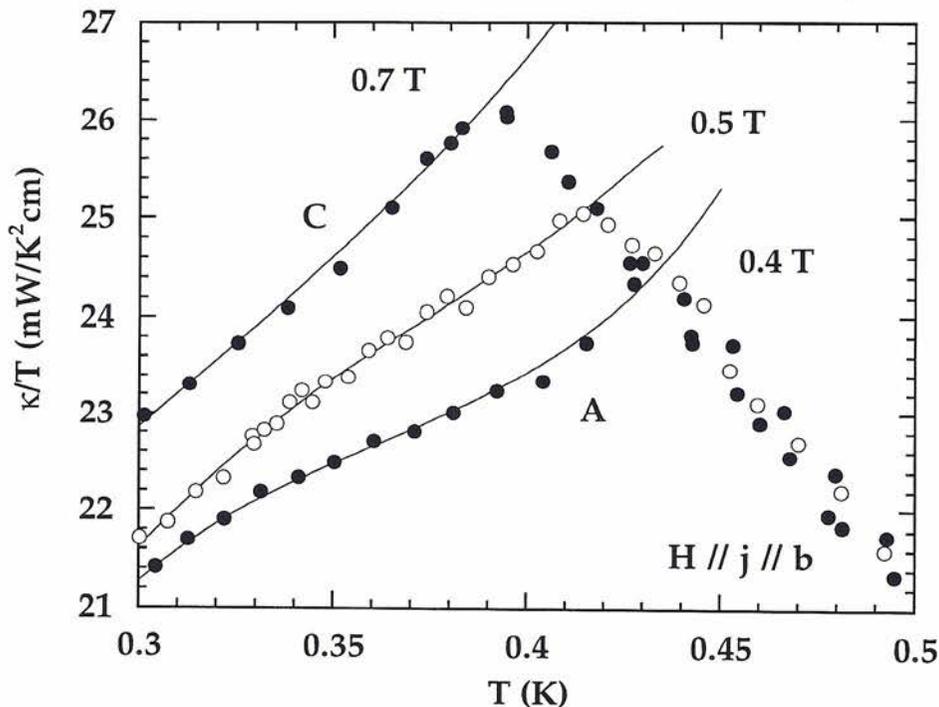


Figure III.25: Le saut de la dérivée $d\kappa/dT$ est vu sur les courbes "brutes", ce qui augmente la fiabilité des courbes montrées dans la figure suivante.

La structure du gap supraconducteur dans les phases A et C est méconnue, et il serait intéressant de reprendre les calculs de Yin et Maki [Yin93] pour les appliquer à nos mesures. Cependant, jusqu'à maintenant, ces calculs ne tiennent pas compte de l'existence de plusieurs phases supraconductrices.

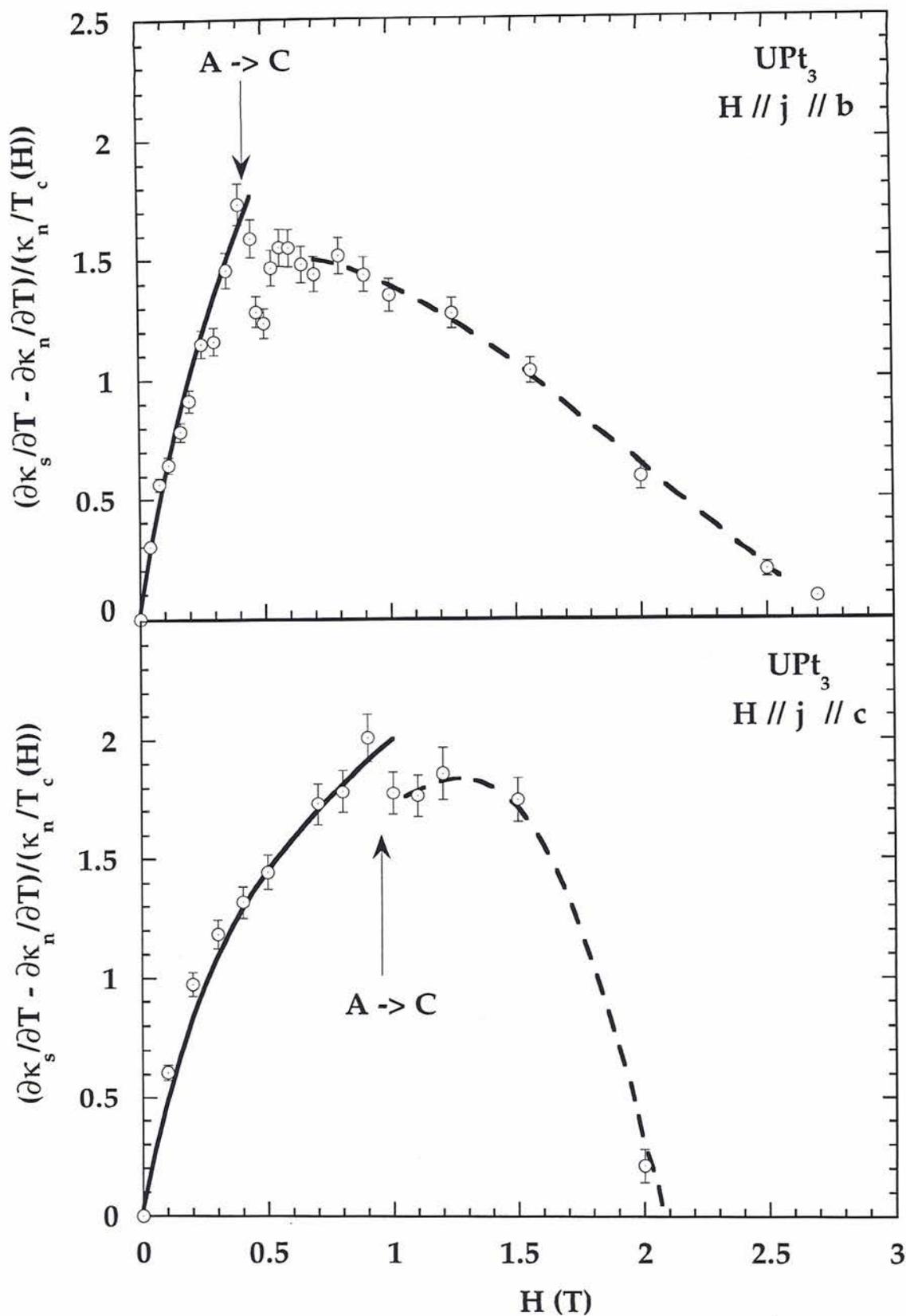


Figure.III.26: La dérivée de la conduction thermique en fonction du champ magnétique pour un champ dans le plan et perpendiculaire au plan de base. $d\kappa/dT$ présente un saut en passant de la phase A à la phase C pour toutes les directions du champ magnétique. Cela est une indication très forte que la structure du gap supraconducteur change quand on passe d'une phase à l'autre.

III.4.3.2 La conduction thermique près de $H_{c2}(T)$: limitation paramagnétique du champ critique à basses températures.

Comme montré dans la figure III.19, à basse température (notamment dans la limite $T \rightarrow 0K$) la conduction thermique est grossièrement linéaire en fonction du champ magnétique pour un champ dans le plan. On peut écrire $\frac{(\kappa_b/T)_s(H)}{(\kappa_b/T)_n}(T \rightarrow 0K) = \alpha_b H$ avec $\alpha_b \sim \frac{1}{H_{c2,b}}$. Pour un champ perpendiculaire au plan la conduction thermique à **bas champ** est aussi linéaire en fonction du champ magnétique, et on peut écrire $\frac{(\kappa_c/T)_s(H)}{(\kappa_c/T)_n}(T \rightarrow 0K) = \alpha_c H$ avec $\alpha_c < \alpha_b$. Par contre, à **fort champ**, près de H_{c2} et basses températures on observe une brusque remontée de $\kappa_c/T(H)$ vers la valeur dans la phase normale, ce qui donne une situation inversée par rapport aux bas champs. On trouve $d\kappa_c/dH \gg d\kappa_b/dH$ près de H_{c2} comme montré dans la figure III.27. Cet effet avait déjà été remarqué par K. Behnia et al. [Behnia92, Behnia92b] et, d'après ses expériences, il ne dépend que de la direction du champ magnétique et non pas de la direction du courant.

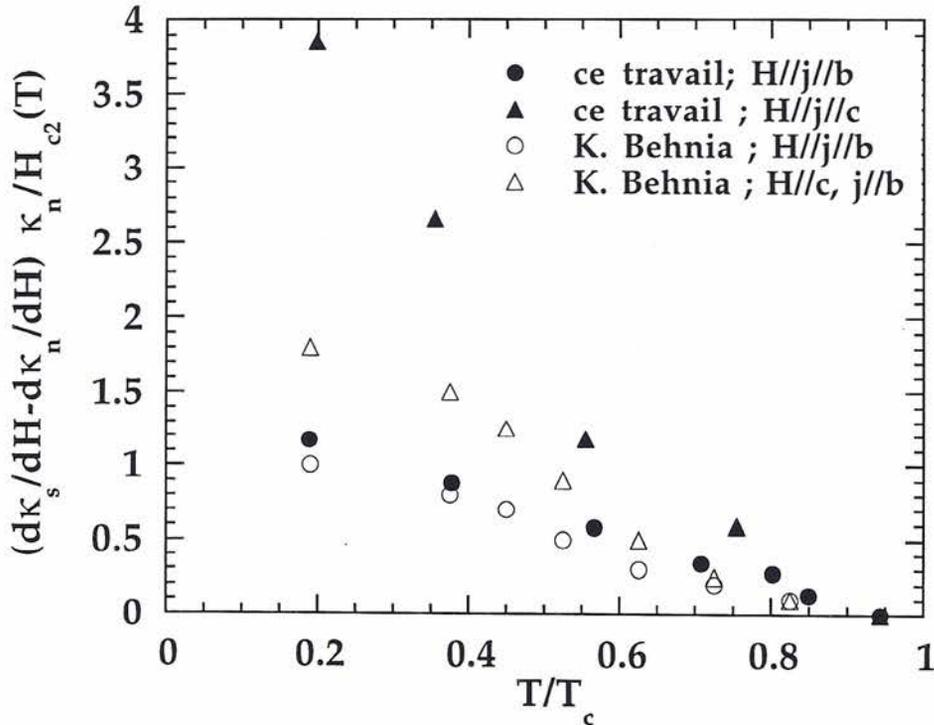


Figure III.27: La dérivée de la conduction thermique (renormalisée pour donner une fonction sans unités) près de la transition vers l'état normal en fonction de la température à plusieurs champs magnétiques. L'anisotropie à basses températures est remarquable, et probablement due à la limitation du champ magnétique par l'effet paramagnétique suivant l'axe c . Notons aussi que les mesures de K. Behnia, sur un échantillon d'une qualité moins bonne que le nôtre montre une anisotropie moins forte.

Avant d'examiner ce changement brusque de $\kappa_c/T(H)$ près de H_{c2} , il est utile d'essayer de comprendre le comportement à bas champ. Le fait que la conduction thermique est proportionnelle au champ magnétique pour un champ dans le plan et pour un champ perpendiculaire au plan à bas champ, ou on peut négliger la limitation paramagnétique du champ critique, fait penser qu'on peut également écrire $\alpha_c \sim \frac{1}{H_{c2,orbitale,c}}$ avec $H_{c2,orbitale,c}$ le champ critique suivant l'axe c donné par la limite orbitale. Pour tester cette hypothèse, il nous faut tout d'abord estimer le champ

critique suivant l'axe c $H_{c2,orbitale,c}(0)$ si il n'y aurait pas de limitation paramagnétique suivant cette axe. Cela peut être fait par l'anisotropie de la pente du champ critique à $T_c(H=0)$, ou la limite paramagnétique est négligeable, et on trouve $H_{c2,orbitale,c}(0) \sim \frac{\partial H_{c2,c}/\partial T|_{T_c}}{\partial H_{c2,b}/\partial T|_{T_c}} H_{c2,orbitale,b}(0) \sim 5.1$ *Tesla*. Avec nos données expérimentales dans la limite $T \rightarrow 0K$ et en dessous de 1 *Tesla*, montrés dans le figure III.28, nous trouvons $\alpha_b = 0.3 \frac{1}{\text{Tesla}} = \frac{0.9}{H_{c2,b}(0)}$, et $\alpha_c = 0.15 \frac{1}{\text{Tesla}} = \frac{0.8}{H_{c2,orbitale,c}(0)}$. L'anisotropie de la dépendance en champ de la conduction thermique dans $U\text{Pt}_3$ à bas champ est en effet expliquée, au moins en partie, par l'anisotropie du champ critique. Cependant, des calculs plus poussés sont nécessaires pour confirmer définitivement cette hypothèse, notamment le fait que la conduction thermique soit lineaire en champ pour un champ critique limité par l'effet orbitale dans $U\text{Pt}_3$ (nous discuterons cela dans la prochaine section).

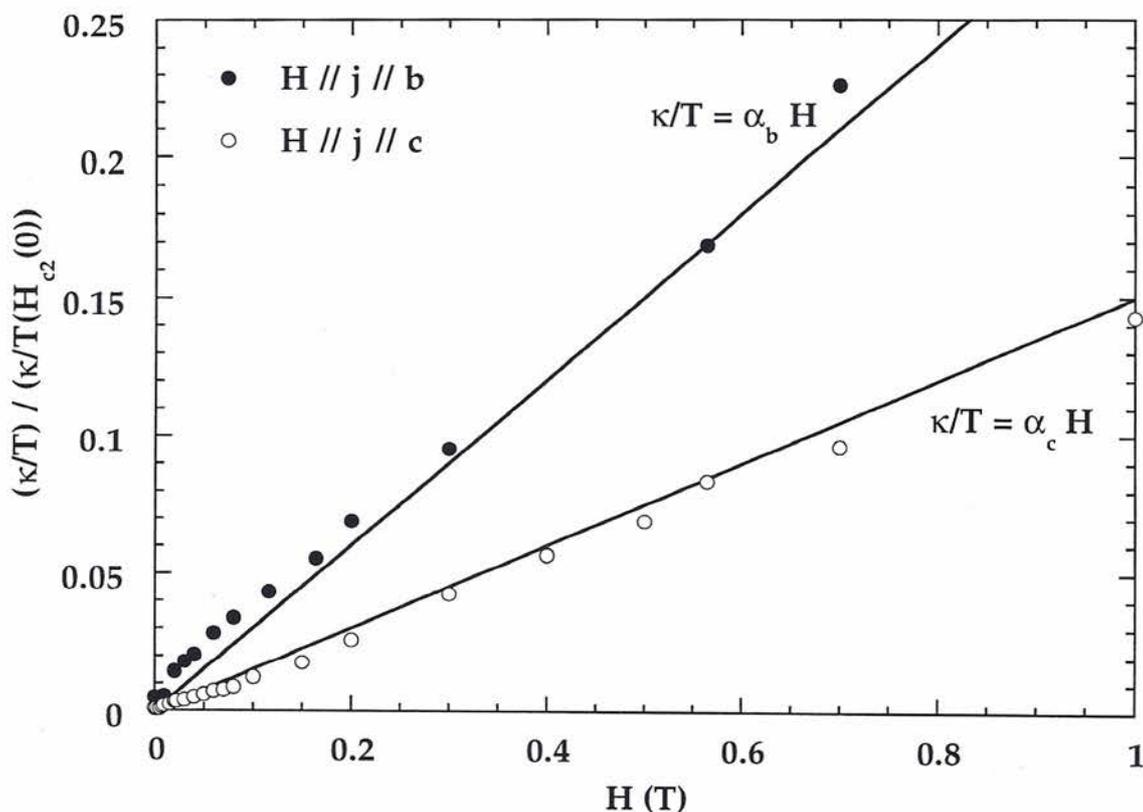


Figure III.28: L'estimation par l'anisotropie du champ critique (voir texte) donne une anisotropie du comportement en champ magnétique à bas champ qui est grossièrement en accord avec ce qu'on trouve expérimentalement. Cela peut vouloir dire que la courbure de $\kappa(H)$ à plus forts champs magnétiques est due à la limitation anisotrope du champ critique. Remarquons cependant qu'à très bas champ, comme montré dans l'insert l'anisotropie du comportement en champ magnétique semble être plus élevée, ce qui reste à comprendre.

En ce qui concerne le comportement près de H_{c2} , la forte augmentation de $\kappa_c/T(H)$ près de H_{c2} suivant l'axe c semble alors être dû à la limitation paramagnétique du champ critique suivant cette axe. Notons que, si le champ critique est limité par l'effet paramagnétique, la phase normale "arrive" à un champ plus **faible** que celui correspondant à la limitation orbitale et donne de cette façon une dépendance plus forte de la conduction thermique en fonction du champ magnétique près de H_{c2} pour rejoindre la valeur dans la phase normale (voir figure III.19). Cela implique que

$d\kappa/dH$ près de H_{c2} est très élevé pour un champ suivant l'axe c . Vraisemblablement, la conduction thermique n'a pas la même forme dans le cas d'une limitation du champ critique par la limite orbitale que par l'effet paramagnétique.

Il faut remarquer les mesures d'aimantation de Tenya et al. [Tenya96, Tenya96b] Ces auteurs ont réussi à extraire la partie réversible de l'aimantation en fonction du champ magnétique dans UPt_3 . Près de H_{c2} , $M(H)$ se comporte de façon différent suivant la direction du champ magnétique, en ayant une pente $\frac{dM}{dH}$ près de H_{c2} beaucoup plus élevée pour un champ suivant l'axe c que pour un champ dans le plan. Ces différences, montrées dans la figure III.29 peuvent être attribuées à la limitation par l'effet paramagnétique du champ critique suivant c . [Tenya96, Tenya96b] L'aimantation, tout comme la conduction thermique, montre donc aussi près de H_{c2} pour $H//c$ un comportement très différent de celui observé pour un champ dans le plan. L'analyse théorique est maintenant à faire.

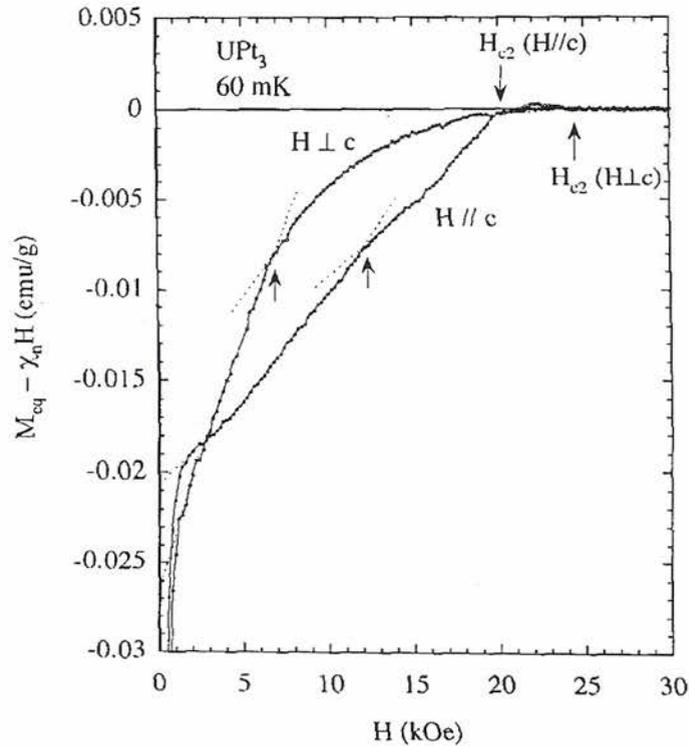


Figure III.29: Tenya et al. [Tenya96, Tenya96b] ont réussi à extraire la partie réversible de l'aimantation d' UPt_3 et mesuré $M(H)$ avec un champ dans le plan et un champ perpendiculaire au plan. Ces mesures montrent aussi des comportements différents près de H_{c2} suivant si le champ magnétique est appliqué dans le plan ou suivant l'axe c . Les flèches dans la figure correspondent aux transitions B-C et aux champs critiques suivant la direction du champ.

III.4.4 Bas champ magnétique basse température : la conduction thermique et la structure du gap supraconducteur

Les mesures à bas champ magnétique et basse température vont montrer en effet aussi que le gap supraconducteur a au moins une ligne de zéro.

Avant de discuter nos mesures, nous voudrions décrire quelques résultats théoriques récents concernant les propriétés de la phase mixte d'un supraconducteur non-conventionnel.

III.4.4.1 Introduction aux lois d'échelle sous champ magnétique dans un supraconducteur non conventionnel.

Le comportement des propriétés thermodynamiques sous champ magnétique est très différent dans un supraconducteur non conventionnel et dans un supraconducteur classique, car dans le premier, le spectre d'excitations (en dehors des coeurs de vortex) est profondément modifié dans l'état mixte. [Volovik93, Won96, Barash96, Kopnin97, Simon97]

En effet, le champ magnétique dans chaque vortex est écranté du supraconducteur par des supercourants qui circulent autour des coeurs des vortex. Le champ magnétique décroît, avec les supercourants, quand augmente la distance ρ au centre des vortex. Ces supercourants sont non nuls pour une distance de l'ordre de quelques fois la longueur de pénétration λ .

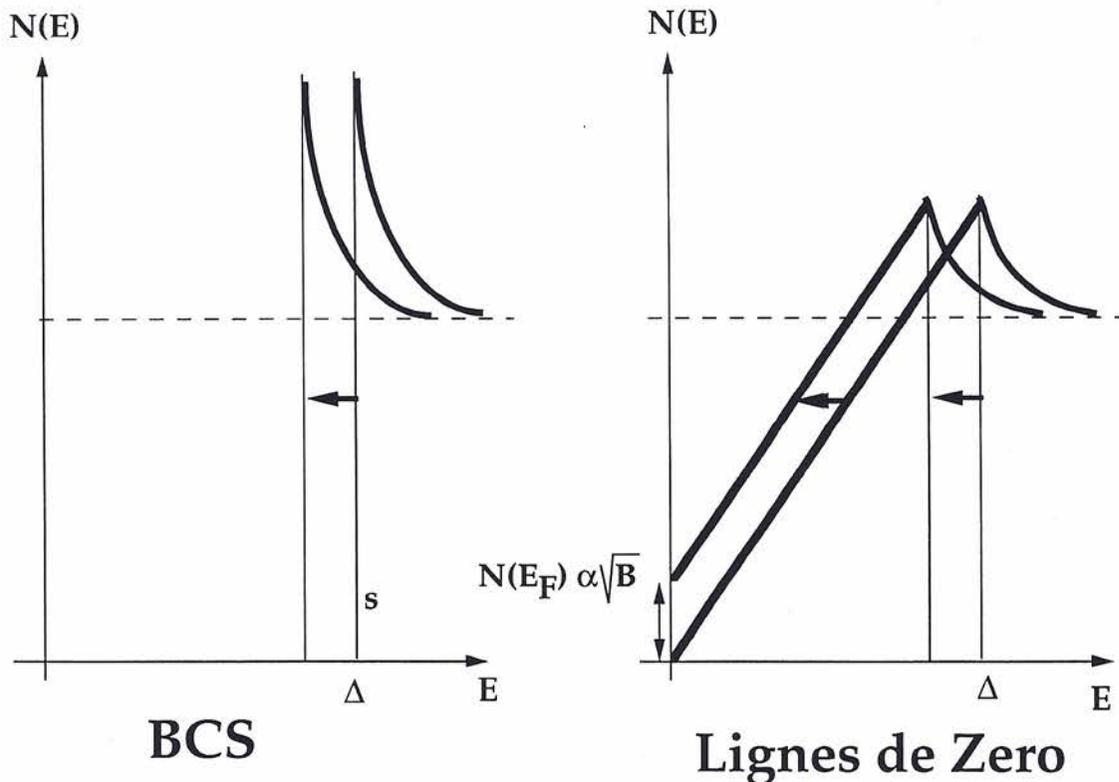


Figure III.30: La densité d'excitations dans le cas d'un supraconducteur non conventionnel est particulièrement affectée par la présence des supercourants dans le bain supraconducteur.

Pour ce qui concerne tout d'abord les excitations au coeurs des vortex, où le paramètre d'ordre s'annule on considère grossièrement qu'elles sont de voisines de celles de la phase normale. Ces excitations contribuent à la chaleur spécifique, et donnent une augmentation proportionnelle au volume occupé par les vortex, donc au nombre des vortex. La contribution à la chaleur

spécifique provenant des coeurs de vortex est alors proportionnelle au champ magnétique et s'écrit : $C(H) = C_n \frac{H}{H_{c2}}$.

Les excitations thermiques de la phase supraconductrice autour des coeurs des vortex sont influencées par les supercourants d'écrantage. Les supercourants influencent le spectre d'excitations, par le déplacement des énergies d'un facteur de l'ordre de $\vec{k} \cdot \vec{v}_S$ (déplacement de Doppler). Le spectre d'excitations thermiques est alors déplacé par rapport à celui dans la phase Meissner :

$$E = \pm \sqrt{\varepsilon_k^2 + \Delta_k^2} + \vec{k} \cdot \vec{v}_S \quad \text{Equation (III.8)}$$

Pour un supraconducteur conventionnel, ce terme $\vec{k} \cdot \vec{v}_S$ est en général négligeable devant le gap et aucun changement notable se produit sur la densité d'états. La chaleur spécifique sous champ magnétique est alors dominée par les excitations normales dans les coeurs des vortex et proportionnelle au champ magnétique, comme nous l'avons remarqué. La conduction thermique, comme nous l'avons aussi remarqué, dans la limite propre, ne bouge pas considérablement sous champ magnétique puisque les excitations dans les coeurs des vortex restent localisées.

Dans le cas d'un supraconducteur non conventionnel avec des noeuds dans le gap, le spectre d'excitations est bien différent et présente notamment des excitations de basses énergies. Comme montré dans la figure III.30 de façon schématique, dans le cas d'une ligne de zéro, $N(E) \propto E$ à basse énergie (sans tenir compte des effets de brisure de paires). Le déplacement du spectre d'excitations par la présence des supercourants autour des vortex ne peut plus être négligé, et cela change complètement les propriétés thermodynamiques. Dans le cas de la chaleur spécifique, en tenant compte de la vitesse superfluide imposé par l'état mixte, Volovik a trouvé un comportement de la densité d'états pour un supraconducteur avec une ligne de zéro variant comme \sqrt{H} dans la limite $T \rightarrow 0K$. Le résultat remarquable est que cette loi en \sqrt{H} **domine** à bas champ la contribution à la chaleur spécifique des électrons provenant des coeurs des vortex, qui est linéaire en champ.

En ce qui concerne la conduction thermique dans la limite propre, le déplacement du spectre d'excitations doit influencer particulièrement la conduction thermique dans l'état mixte, puisque les électrons dans les vortex restent localisés. Cependant, bien qu'il soit clair que $\kappa(H)$ ne suit pas la chaleur spécifique $C(H)$, il n'y a pas de prédictions pour l'effet du déplacement en énergie du spectre d'excitations sur la conduction thermique.

Dernièrement Kopnin et Volovik, et Simon et Lee [Volovik93, Kopnin97, Simon97] ont étudié plus généralement le comportement d'échelle des propriétés thermodynamiques d'un supraconducteur non conventionnel. En effet, la prédiction d'une chaleur spécifique en \sqrt{H} était une prédiction simple dans la limite $T \rightarrow 0K$, mais le changement du spectre d'excitations par l'apparition des courant superfluides devrait aussi influencer fortement le comportement à température finie. Il faut rappeler que la dépendance en \sqrt{H} de la densité d'états provient de la forme et la dépendance en champ de la vitesse superfluide des supercourants autour des vortex.

Le résultat remarquable de ces auteurs est que le comportement en champ magnétique et en température des propriétés thermodynamiques est gouverné par **un seul paramètre** x dans la limite bas champ magnétique et basse température ($H \ll H_{c2}$ et $T \ll T_c$). Ce paramètre x est donné par la formule $x = \frac{T}{T_c} \sqrt{\frac{H_{c2}}{H}}$. Il existe donc une loi d'échelle, qui est donnée, dans l'exemple de la chaleur spécifique, par $C/T^n = f(x)$. $f(x)$ et n sont tels qu'à champ nul, on retrouve la loi de puissance $C(T, 0) \propto T^n$, et à température nulle, mais sous champ magnétique on retrouve la première prédiction de Volovik sur un comportement en $C(0, H) \propto \sqrt{H}$. Donc, dans le cas

d'une ligne de zéro, $C/T^2 = f(x)$ et pour $x \rightarrow \infty$ ($\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} \ll \frac{T}{T_c} \ll 1$), $f(x) \rightarrow const.$ et on retrouve $C(0, T) \propto T^2$. Pour $x \rightarrow 0$ ($\frac{T}{T_c} \ll \sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} \ll 1$), $f(x) \rightarrow 1/x$ et la chaleur spécifique varie en fonction du champ magnétique comme $\frac{C(H,0)}{T} \propto \sqrt{H}$. Le paramètre x gouverne alors à lui tout seul les effets du changement du spectre d'excitations dans le diagramme de phase H-T. Ces auteurs ont calculé la fonction $f(x)$ dans le cas de la chaleur spécifique en distinguant les différents régimes en fonction de la valeur de x . Simon et Lee [Simon97] ont aussi calculé la conductivité thermique, mais on soupçonne une erreur, car leurs résultats impliquent une conduction thermique proportionnelle à la température à champ nul $\kappa \propto T$. Ce qui n'est pas en accord avec les prédictions faites auparavant sur κ dans le cas d'une ligne de zéro et de la diffusion dans la limite unitaire.

Nous notons que des mesures de chaleur spécifique dans la phase supraconductrice ont été réalisées dans UPt_3 par Ramirez et al. [Ramirez95]. Ces auteurs ont mesuré la chaleur spécifique en fonction du champ magnétique $C/T(H)$ entre 150 mK et 400 mK. Leurs courbes à plus basse température (150 mK) montrent grossièrement un comportement comme prédit par Volovik $C/T \propto \sqrt{H}$ pour le champ dans le plan et le champ perpendiculaire au plan. Cependant, nous avons déjà remarqué que pour discuter la chaleur spécifique, il faut tenir compte des contributions qui ne proviennent pas des excitations thermiques de la phase supraconductrice, comme celles qui donnent l'anomalie à basse température dans UPt_3 , montrée dans la page 22. Ramirez et al. [Ramirez95], par contre, n'ont pas du tout analysé cette anomalie en fonction du champ magnétique qui influence très fortement la chaleur spécifique. Le comportement trouvé peut alors tout à fait être dû à cette anomalie et non pas intrinsèque aux excitations de la phase supraconductrice. De plus, la température de mesure est trop élevée ($150\text{mK} \sim T_c/3$) pour montrer des effets clairs liés au gap supraconducteur, et les courbes publiées ne suivent pas des lois d'échelle.

En retournant à la conduction thermique, le problème est qu'il n'y a pas de prédictions théoriques. Cependant, en rappelant la formule pour le temps de relaxation de la diffusion des électrons en limite unitaire : $\frac{1}{\tau_p} = \left(\frac{1}{\tau_N}\right) \frac{1}{|g(E_p)|^2} \frac{N_s(E_p)}{N(0)}$ (page 60) il est possible de spéculer un changement du temps de relaxation avec le spectre d'excitations, donc un changement du temps de relaxation dû aux collisions electron-impureté sous champ magnétique. Ce type de conduction thermique peut alors devenir bien compliqué et dépendre du champ magnétique.

Il est utile de mentionner ici le travail de Bahlouli et Arfi [Bahlouli87], qui ont calculé la conduction thermique sous l'action d'un supercourant dans l'échantillon, mais pas dans le cas où les supercourants ont la structure spatiale compliquée imposée par le réseau de vortex. Le changement du spectre d'excitations donne des effets notables sur la conductivité thermique. La théorie de Volovik tient compte des courants superfluides autour des vortex, et de leur dépendance en fonction du champ magnétique. Le point manquant est de généraliser à la conductivité thermique la théorie du changement du spectre d'excitations dû aux courants superfluides autour des vortex.

En ce qui concerne nos expériences on peut tenter d'extrapoler les résultats des auteurs de [Kopnin97, Simon97] pour la chaleur spécifique à la conductivité thermique en espérant que κ suit une loi d'échelle comme $\kappa/T^n = g(x)$ où T^n est le comportement en loi de puissance à champ nul et $g(x)$ une loi d'échelle. Rappelons que κ ne suit pas de lois de puissance parfaites. Nous avons alors cherché une loi d'échelle de façon expérimentale pour différentes valeurs de n et de x .

III.4.4.2 Résultats expérimentaux à bas champ magnétique et basse température

La condition pour observer des effets liés aux excitations de basses énergies dues à la présence de zéros dans le gap, notamment pour les lois d'échelle concerne les très basses températures et les bas champs magnétiques ($\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}}; \frac{T}{T_c} \ll 1$). Une partie de nos mesures à très basse température et à bas champ magnétique sont montrées dans la figure III.31.

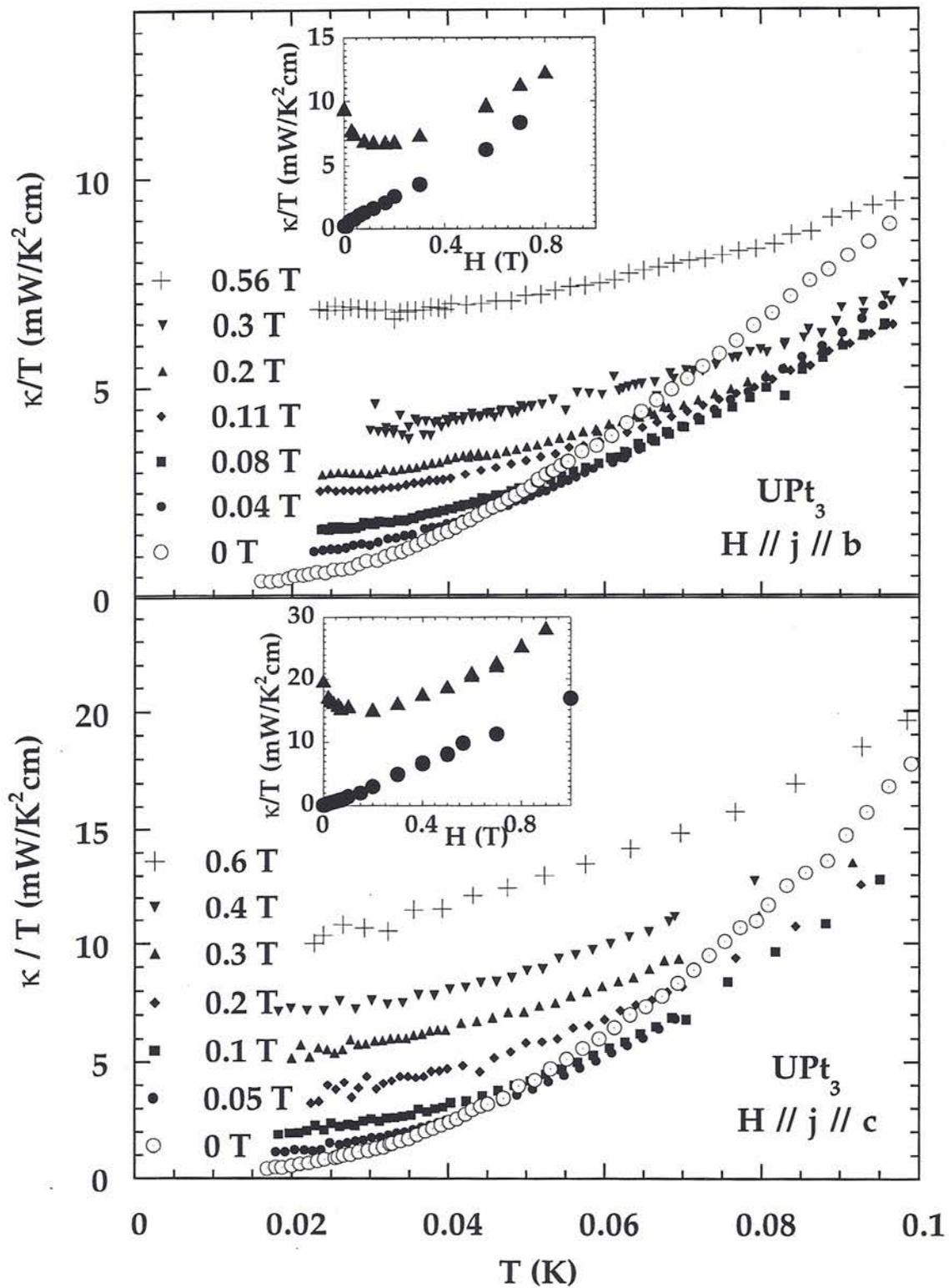


Figure III.31: Nos mesures de conduction thermique a très basse température et sous champ magnétique. Les inserts montrent la dépendance en fonction du champ magnétique, à $T \rightarrow 0$ K et à 100 mK discuté auparavant.

Pour chercher maintenant les lois d'échelle, nous avons tracé la conduction thermique divisée par T^n pour différentes valeurs de l'exposant n en fonction du paramètre d'échelle avec $x = \frac{T}{T_c} \sqrt{\frac{H_{c2}}{H}}$. Nous trouvons que κ suit bien des lois d'échelle avec $\frac{\kappa}{T^{2.7}}$ pour $H//j//b$ et $\frac{\kappa}{T^{3.1}}$ pour $H//j//c$, comme montré dans la figure III.32, où nous avons tracé les mêmes courbes que dans la figure III.31 mais pour $\frac{T}{T_c} < 0.5$ et $\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} < 0.5$ et de façon appropriée pour montrer la loi d'échelle.

Ces lois de puissance sont voisines des lois de puissance que nous trouvons à champ nul, ce qui à notre avis constitue **la preuve expérimentale que nos mesures sous champ magnétique sont aussi compatibles avec une ligne de zéro dans le gap supraconducteur.**

Il est instructif de voir le domaine de validité des lois d'échelle. Pour cela, nous avons tracé dans les figures les données à bas champ et basse température ($\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} < 0.4$; $\frac{T}{T_c} < 0.2$) comme des symboles pleins et à fort champ ($\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} > 0.4$) comme des croix et à haute température ($\frac{T}{T_c} > 0.2$) comme des symboles ouverts. En effet, les lois d'échelle sont obéies jusqu'à des champs magnétiques assez grands ($\sqrt{\frac{H}{H_{c2}}} < 0.4$), par contre, à des températures même plus faibles que $0.2\frac{T}{T_c}$.

Cela peut être dû tout simplement au fait que, déjà à champ nul, κ ne suit pas des lois de puissance parfaites. Notamment au dessus de 100 mK ($\frac{T}{T_c} \sim 0.2$) les courbes ne suivent plus de lois de puissance du tout. Cependant, il est remarquable que pour un champ magnétique donné, la température T^* à laquelle les courbes semblent ne plus obéir à la loi d'échelle correspond environ au point de croisement des courbes sous champ magnétique avec la courbe à champ nul de façon à ce que $\kappa(H=0; T < T^*) < \kappa(H; T < T^*)$ et $\kappa(H=0; T > T^*) > \kappa(H; T > T^*)$. Une théorie reste à faire pour élucider ces points.

En tout cas, les lois d'échelle que nous trouvons, en décrivant le régime intermédiaire entre les mesures à champ nul et sous champ magnétique, démontrent que le comportement linéaire de κ en fonction du champ magnétique que nous observons dans la limite $T \rightarrow 0K$ est lié à la structure du gap supraconducteur. Pour le courant et le champ dans le plan, ce comportement reste jusqu'à $H_{c2}(0)$.

Il faut souligner que ces comportements d'échelle sont sensibles au choix des paramètres n et x . Les courbes se séparent vite, en changeant n ou x . La figure III.33, montre les mêmes points expérimentaux, mais tracés en fonction de $x = \frac{T}{T_c} \frac{H_{c2}}{H}$. Nous observons que cette fois-ci, la loi d'échelle n'est pas suivie à basse température et bas champ magnétique.

Remarquons que les courbes vont montrer des points communs si on les trace de façon appropriée. Par exemple, si on trace κ/T^2 en fonction de $x = \frac{T}{T_c} \frac{H_{c2}}{H}$, on trouvera que les courbes vont avoir des points en commun à très basse température et forts champs magnétiques, reflétant la relation $\kappa/T(H) \propto 1/x \propto H$. Mais les courbes ne vont jamais montrer une loi d'échelle dans le sens où elles ne vont pas tomber l'une sur l'autre comme c'est le cas avec les paramètres appropriés d'échelle.

En effet, il faut remarquer que la loi d'échelle décrit le comportement compliqué de l'extrapolation à $T=0K$ de κ/T en même temps que la variation en fonction du champ magnétique des coefficients des lois de puissance. Le problème à résoudre par la suite sera de comprendre les lois de puissance que nous trouvons, notamment en relation avec le comportement à champ nul. Pour le courant perpendiculaire au plan, $T^{3.1}$ décrit bien les mesures à champ nul. Pour le courant dans le plan, la loi de puissance $T^{2.7}$ ne décrit pas bien la courbe à champ nul, mais là effets de brisure de paires par les impuretés sont beaucoup plus importants que pour le courant perpendiculaire au plan.

Un autre point remarquable est que nous trouvons des lois d'échelle voisines pour les deux

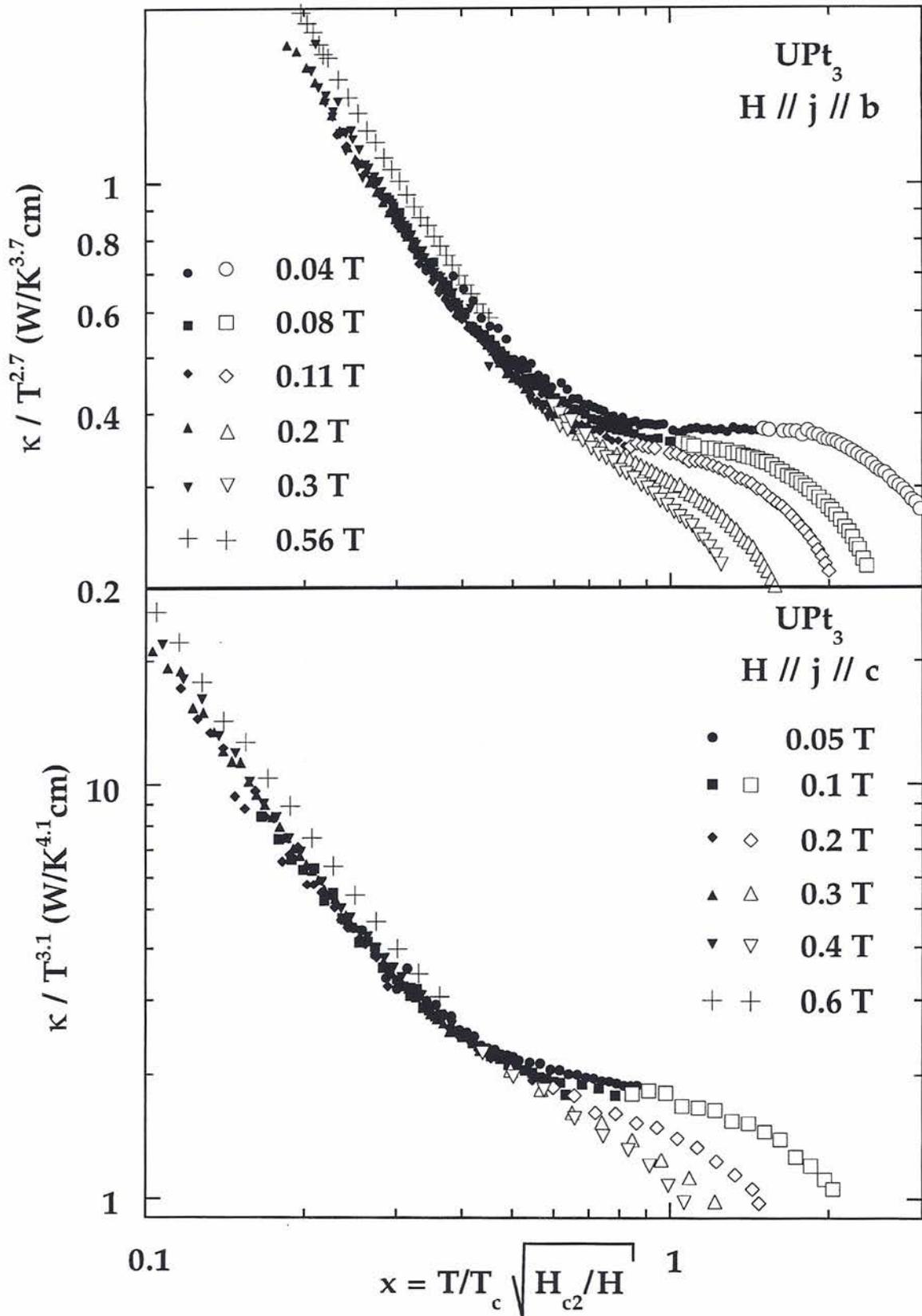


Figure III.32: Les mêmes courbes que dans la figure précédente, mais cette fois pour $T/T_c < 0.5$ et $\sqrt{H/H_{c2}} < 0.5$. Pour clarifier la figure, nous utilisons pour $T > 0.2T_c$ des symboles ouverts et fermés pour $T < 0.2T_c$. Les croix sont pour $\sqrt{H/H_{c2}} > 0.4$. La loi d'échelle est parfaitement suivie à bas champ magnétique et basse température.

directions du courant mesurées. Cela peut vouloir dire que les lois d'échelle sont sensibles aussi à des points de zéro dans le gap supraconducteur. Si cela est confirmé par des calculs théoriques, en plus de confirmer les résultats à champ nul, les lois d'échelle donneraient une nouvelle façon de tester le gap supraconducteur.

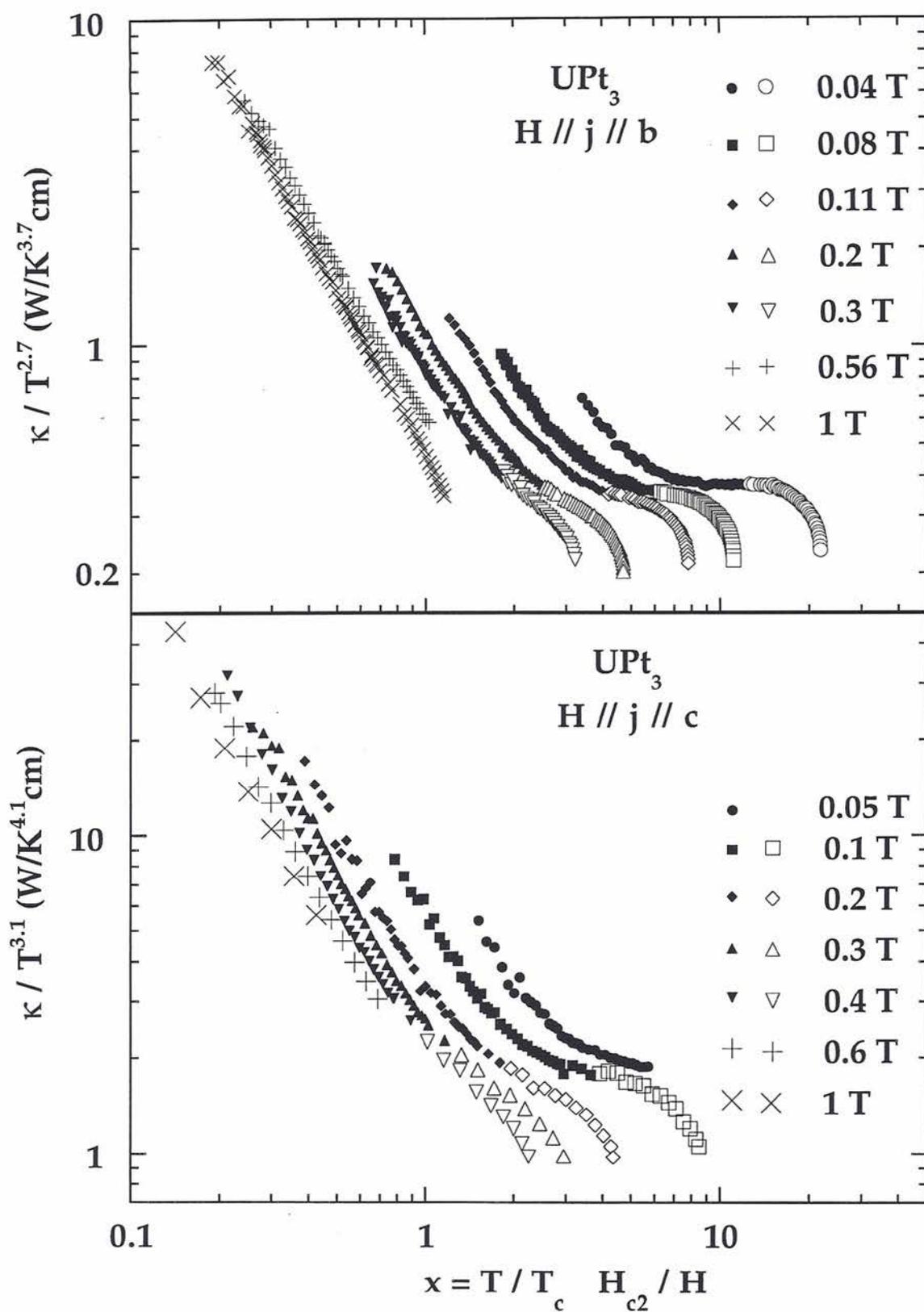


Figure III.33: Les mêmes courbes que dans la figure précédente, mais avec un autre paramètre d'échelle x , plus "classique". Nous voyons que cette fois la loi d'échelle n'est pas suivie.

III.5 Conclusion des mesures sous champ magnétique

Nous avons observé différents régimes de comportement en fonction du champ magnétique et de la température. Le point particulier est que nous trouvons partout des comportements réversibles, c'est à dire les mêmes résultats en changeant le champ dans la phase supraconductrice ou dans la phase normale. Cela est en accord avec les mesures de K. Behnia.[Behnia90]

Aussi en accord avec la thèse de K. Behnia est la dépendance de κ près de H_{c2} . Le fait de trouver des valeurs de $d\kappa/dH$ plus grandes quand le champ est parallèle à l'axe c peut être interprété comme une indication que le champ critique est limité par Pauli suivant cette direction.

Un point remarquable a été celui de trouver un saut dans la dérivée $d\kappa/dT$ au moment de la transition $A \rightarrow C$, ce qui est une démonstration que la structure du paramètre d'ordre change sur cette transition de phase. Nos mesures à bas champ et à des températures intermédiaires montrent la diffusion des électrons par les vortex.

À très basse température, nous trouvons que le déplacement de Doppler du spectre d'excitations caractéristique pour un supraconducteur avec une ligne de zéro dans le gap domine le comportement de la conductivité thermique qui suit des lois d'échelle dépendant du paramètre $x = \frac{T}{T_c} \sqrt{\frac{H_{c2}}{H}}$. Cela est une nouvelle indication forte de l'existence de la ligne de zéro dans le gap supraconducteur.

Bien qu'il faille encore des calculs théoriques pour rendre plus facile l'interprétation des mesures, notamment pour faire le lien entre les différents régimes, nous trouvons que la conduction thermique sous champ magnétique est une sonde expérimentale très puissante pour l'étude de la supraconductivité dans la phase mixte, à condition qu'elle soit dominée par la contribution électronique. Par rapport à la chaleur spécifique, l'avantage principal est l'absence de contributions dues à des excitations localisées, et par rapport à des mesures magnétiques, l'absence d'effets irréversibles. Il reste cependant à expliquer, pourquoi la diffusion électron-vortex ne dépend pas de l'histoire magnétique de l'échantillon. Ce type de diffusion est manifestement peu sensible au niveau d'ordre du réseau de vortex.

III.6 Conclusion des mesures sur UPt_3

En ce qui concerne le champ critique, nos mesures, jusqu'à 10 mK, ne montrent pas d'effet remarquable de l'anomalie qui domine la chaleur spécifique à très basse température.

Les mesures de conductivité thermique à très basse température, donnent des indications très fortes sur la structure du gap supraconducteur. Ces indications n'auraient pas pu être obtenues sans un développement théorique parallèle à nos mesures que nous avons décrit en détail.

Il faut remarquer que toutes nos mesures de conduction thermique, tant en champ nul que sous champ magnétique indiquent que le gap supraconducteur de UPt_3 est hybride.

En ce qui concerne les mesures en champ nul, nous avons trouvé les premières indications expérimentales de l'existence d'une bande électronique induite par l'effet de brisure de paires dû aux impuretés dans le cas d'un supraconducteur ayant une ligne de zéro avec changement de signe de la phase du paramètre d'ordre. Les mesures suivantes sur des échantillons avec des taux d'impuretés différents pourraient donner en effet une preuve plus définitive de l'existence de cette bande, mais aussi de ce changement de signe du paramètre d'ordre. Cela pourrait donner un test supplémentaire pour connaître la nature des zéros suivant l'axe c .

Les mesures sous champ magnétique montrent le changement du paramètre d'ordre dans la transition de phase $A \rightarrow C$ de ce composé. Nous trouvons un comportement de la conductivité thermique près de H_{c2} différent dans le cas d'un champ magnétique dans le plan que perpendiculaire au plan. Dans l'attente de modèles théoriques, nous lions cette différence à l'effet paramagnétique observé sur le champ critique suivant l'axe c .

A des champs magnétiques intermédiaires nous observons clairement l'effet des vortex sur la conduction thermique, que nous avons étudiée avec le champ magnétique parallèle au courant de chaleur et en tournant le champ magnétique par rapport au courant. Des études théoriques supplémentaires sont nécessaires pour expliquer de façon quantitative nos mesures. Des calculs récents [Houssa97] semblent démontrer que la diffusion des excitations thermiques par les vortex est sensible au paramètre d'ordre supraconducteur.

Les mesures à très basse température et bas champ magnétique présentent des lois d'échelle caractéristiques pour un supraconducteur avec une ligne de zéro dans le gap. C'est la première fois que ces lois d'échelle, qui décrivent le changement du spectre d'excitations dans un supraconducteur non conventionnel dû aux courants superfluides autour des vortex, ont été observées. Cela donne une nouvelle sonde pour tester la structure du gap supraconducteur.

CHAPITRE IV
LA SUPRACONDUCTIVITE DE
 Sr_2RuO_4

Chapitre IV

LA SUPRACONDUCTIVITE DE

Sr_2RuO_4

Nous avons aussi effectué des mesures de conductivité thermique sur un autre composé supraconducteur, Sr_2RuO_4 . La supraconductivité dans ce composé a été découverte récemment. [Maeno94] Un grand intérêt lui a été porté, puisque c'est le seul pérovskite lamellaire connu à ce jour qui est supraconducteur en absence de plans de CuO_2 . En effet, tous les supraconducteurs à haute température critique ont des plans de CuO_2 et une structure cristallographique de type pérovskite.

Les particularités de ce composé, qui ont en partie motivé notre étude, sont la disponibilité de monocristaux et la bonne compréhension de la phase normale. En effet, nous verrons que les lois caractéristiques d'un liquide de Fermi sont très bien suivies et que la surface de Fermi a été entièrement déterminée par le groupe de Cambridge. [Mackenzie96, Mackenzie96b]

Suite aux premières mesures dans la phase supraconductrice suggérant une supraconductivité non-conventionnelle, les théoriciens se sont intéressés à ce composé (par exemple les références [Rice95, Sigrist96, Machida96, Agterberg97]). Cependant, les expériences dans la phase supraconductrice s'avèrent moins concluantes que celles de la phase normale.

Nous avons mesuré pour la première fois la conductivité thermique dans la phase supraconductrice de ce composé. Les échantillons ont été fournis par Y. Maeno de l'université de Kyoto et sélectionnés et contactés par A. Mackenzie de Cambridge. Ce sont des échantillons extrêmement petits mais avec de bons facteurs géométriques (voir page 41). Cependant, leur très grande pureté fait que la résistivité résiduelle est faible ($\rho < 1\mu\Omega\text{cm}$; voir page 41) et donc leur conduction thermique très bonne. Les contacts thermiques entre l'échantillon et le cryostat, bien que très bons par rapport à ce qu'on fait en général dans les pérovskites lamellaires ($10\text{m}\Omega$ de résistance de contact), conduisent beaucoup moins bien la chaleur que l'échantillon lui-même. Cela rend la mesure difficile, comme nous l'avons expliqué dans le chapitre II. Nous avons dû pousser les possibilités de notre expérience à ses limites pour arriver à faire la mesure. Nous avons réussi à atteindre des températures très basses, comme 20 mK. Cela montre la fiabilité de notre montage expérimental.

Cependant, en ce qui concerne les résultats physiques, on doit regretter l'impossibilité d'avoir eu des échantillons de qualité suffisante pour donner des conclusions claires, comme dans UPt_3 . En effet, nous verrons que la phase supraconductrice est particulièrement sensible aux défauts. Malgré cela, nos mesures donnent de premières indications sur la phase supraconductrice de ce composé. Nous allons comparer nos mesures à celles faites au début de la recherche sur UPt_3 , et montrer que la situation est très voisine. Il faut améliorer la qualité des échantillons pour aller au delà des premières conclusions.

Tout d'abord, nous allons donner une introduction à la phase normale de ce composé. Par la suite, nous discuterons les propriétés de la phase supraconductrice, et nous passerons dans la troisième section à nos résultats expérimentaux.

La situation expérimentale dans ce composé ne nous permet pas de faire une analyse détaillée. Nous décrivons nos résultats expérimentaux, qui sont les premières mesures faites à basse température sur ce composé.

IV.1 La phase normale de Sr_2RuO_4

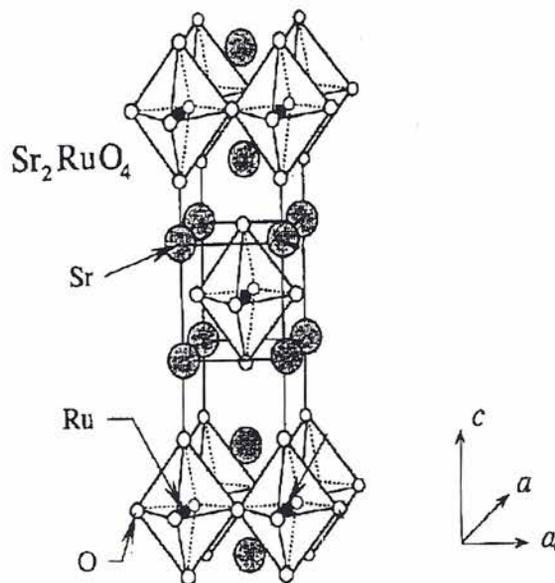


Figure IV.1: La structure cristallographique de Sr_2RuO_4 . C'est une structure pérovskite, qui reste tétragonale jusqu'à très basse température, contrairement à certains supraconducteurs à haute température critique qui présentent une transition vers une structure orthorhombique en fonction de la température (comme par exemple $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$).

Sr_2RuO_4 est un composé qui présente une structure pérovskite, comme montré dans la figure IV.1. La structure est la même que celle de la famille du composé supraconducteur à haute température critique $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$. Le composé sans dopage de cette famille, La_2CuO_4 est un isolant, par contre, Sr_2RuO_4 est un bon métal. Les quatre électrons de valence des atomes de Ruthénium, ainsi que la plus faible distance entre les atomes de Ruthénium et ceux d'oxygène par rapport à la distance entre atomes de Cu et de O dans La_2CuO_4 en sont la cause. Cependant, Sr_2RuO_4 est un métal proche d'une transition vers un isolant de Mott, comme le démontre le fait que le composé voisin Sr_2FeO_4 est un bon isolant de Mott.

La résistivité dans le plan et perpendiculaire au plan est montrée dans la figure IV.2.[Yoshida96] Il est remarquable qu'elle soit très anisotrope. A basse température on trouve un comportement métallique (loi de liquide de Fermi en dessous de 20 K) suivant les deux axes cristallins avec une résistivité résiduelle très anisotrope (d'un facteur 400). Sr_2RuO_4 est donc un métal très anisotrope[Yoshida96].

La chaleur spécifique montre aussi un régime de liquide de Fermi normal, avec un terme électronique $\frac{C}{T}$ élevé de $40 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$, très voisin à ce qu'on trouve dans des fermions lourds (p.e. dans URu_2Si_2 $\frac{C}{T}$ est de l'ordre de $65 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$), et 4 fois plus élevée que celui estimé par des calculs de bandes.[Maeno96] Le terme A de la loi de liquide de Fermi est aussi renormalisé par rapport à celui attendu dans des calculs de bandes en accord avec la relation de Kadowaki-Woods.[Maeno96] La susceptibilité montre une renormalisation du même ordre que celle de la chaleur spécifique.[Kitaoka97, Ishida97, Ishida97b]

Ces auteurs ont lancé l'hypothèse qu'il y aurait de fortes fluctuations de spin de type ferromagnétique. Cette hypothèse est basée sur des mesures de susceptibilité de Pauli et sur le fait que le composé voisin SrRuO_3 est un bon ferromagnétique. Ces fluctuations ferromagnétiques

n'ont cependant pas été observées dans des mesures microscopiques pour le moment. Si cela est confirmé, cela constituerait une différence remarquable par rapport aux composés à fermions lourds ou aux supraconducteurs à haute température critique, où l'on observe en général la supraconductivité en présence de corrélations antiferromagnétiques.

La renormalisation des masses effectives a été confirmée par des mesures de surface de Fermi par Mackenzie et al. [Mackenzie96, Mackenzie96b]. La bonne qualité des échantillons ($\rho_0 < 1 \mu\Omega\text{cm}$ dans le plan) a permis la détermination totale de la surface de Fermi par des oscillations quantiques en susceptibilité (de Haas van Alphen) et en résistivité (Shubnikov de Haas). Le résultat est montré dans la figure IV.3. Sr_2RuO_4 a essentiellement 3 bandes, deux électroniques, et une de trous qui ont une forme cylindrique. [Mackenzie96, Mackenzie96b] Remarquons que les masses effectives de ces bandes sont renormalisées d'un facteur 3 par rapport aux calculs de bandes.

La faible résistivité résiduelle en fait un bon candidat pour obtenir des résultats intéressants en conduction thermique, puisque cela implique qu'on peut probablement négliger la conduction thermique due aux phonons, tout comme dans UPt_3 .

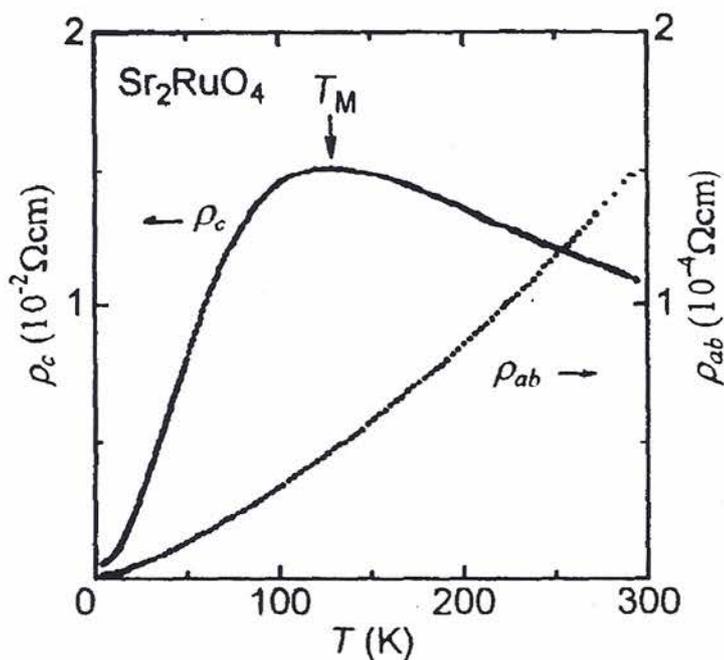
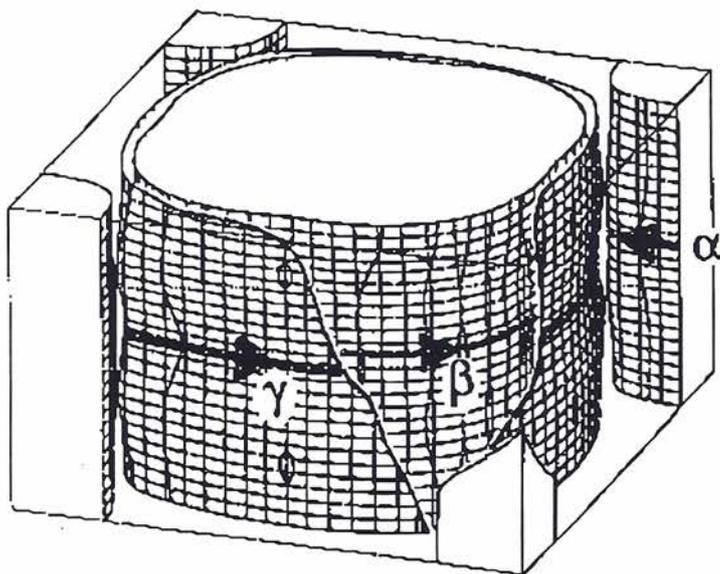


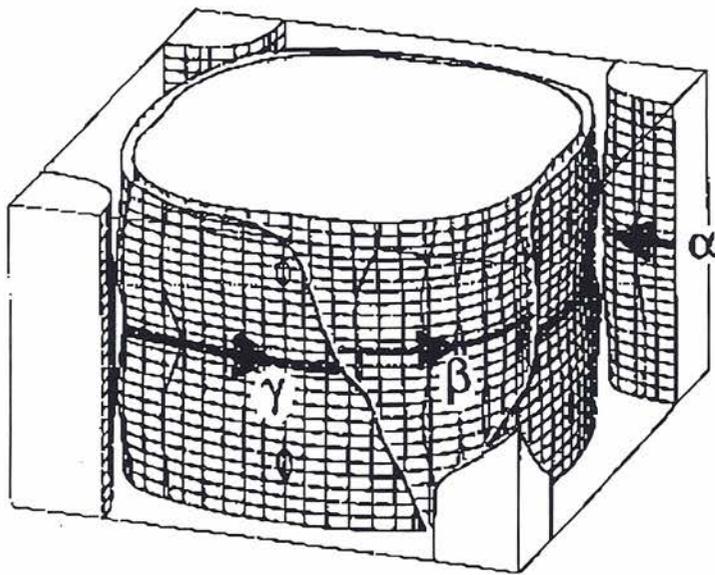
Figure IV.2: La résistivité anisotrope de Sr_2RuO_4 . Remarquons l'anisotropie très importante. Sr_2RuO_4 suit très bien la loi de liquide de Fermi en dessous de 20 K pour les deux directions du courant. (d'après [Yoshida96]).



G.J. McMullan, M.P. Ray

T. Oguchi
 Phys. Rev. B
 51 (1995) 1385.

Figure IV.3: La surface de Fermi de Sr_2RuO_4 a été complètement mesurée par A. Mackenzie et al. à Cambridge. (cette figure nous a été envoyée par S. Julien, voir aussi les références [Mackenzie96, Mackenzie96b] et [Oguchi95] pour les calculs des bandes) Il y a trois bandes, deux électroniques (β et γ), et une de trous (α), toutes cylindriques, en accord avec les propriétés anisotropes trouvées dans ce composé.



G.J. McMullan, M.P. Ray

T. Oguchi
 Phys. Rev. B
 51 (1995) 1385.

Figure IV.3: La surface de Fermi de Sr_2RuO_4 a été complètement mesurée par A. Mackenzie et al. à Cambridge.(cette figure nous a été envoyée par S. Julien, voir aussi les références [Mackenzie96, Mackenzie96b] et [Oguchi95] pour les calculs des bandes) Il y a trois bandes, deux électroniques (β et γ), et une de trous (α), toutes cylindriques, en accord avec les propriétés anisotropes trouvées dans ce composé.

IV.2 La phase supraconductrice de Sr_2RuO_4

Bien que la phase normale de ce composé soit bien connue maintenant, la phase supraconductrice présente des questions encore ouvertes. En effet, il se trouve que la supraconductivité est très sensible à la qualité de l'échantillon. En général, la température critique se situe vers 1 Kelvin, allant jusqu'à 1.4 Kelvin pour les meilleurs échantillons. [Maeno96, Yoshida96, Yoshida96b]

Le champ critique a été mesuré par Yoshida et al. [Yoshida96b]. Pour un champ dans le plan, $H_{c2}(0)$ est d'environ 1 T, et pour un champ perpendiculaire au plan, d'environ 0.04 T. Il est remarquable que Sr_2RuO_4 est presque de type I pour un champ perpendiculaire au plan ($\kappa \sim 1.2$) et de type II pour un champ dans le plan ($\kappa \sim 31$).

La longueur de cohérence ξ est de 30 Å perpendiculaire au plan et de 1000 Å dans le plan. Sr_2RuO_4 est alors un supraconducteur très anisotrope, mais à 3 dimensions, puisque la distance entre couches (environ 13 Å, voir la figure IV.1) est plus petite que la longueur de cohérence perpendiculaire aux plans. La longueur de cohérence dans les plans est bien plus élevée que celle trouvée dans les supraconducteurs à fermions lourds (de l'ordre de 150 Å pour UPt_3) ou dans les supraconducteurs à haute température critique (en général de l'ordre de quelques dizaines d'Angstrom).

Le libre parcours moyen électronique, estimé par les mesures de de Haas van Alphen est du même ordre (~ 1000 Å) que les longueurs de cohérence pour un échantillon avec ρ_0 de l'ordre de $1 \mu\Omega\text{cm}$, indiquant que les échantillons sont entre la limite propre et la limite sale.

Notons aussi que le champ critique est limité par l'effet orbital, et ne montre aucun signe d'une limitation par l'effet paramagnétique pour toutes les directions du champ magnétique. En effet, la pente du champ critique donne des valeurs pour la masse effective en accord avec les mesures de chaleur spécifique et de l'effet de Haas van Alphen et est trop faible pour arriver à la limite de Pauli (1.84T/K pour un facteur gyromagnétique $g=2$; voir chapitre I).

Les courbes de chaleur spécifique publiées jusqu'à maintenant montrent des sauts faibles ($0.5 \Delta T/T_c$ par rapport à $1.43 \Delta T/T_c$ dans la théorie BCS) et des extrapolations à $T=0\text{K}$ assez élevées, bien que ces courbes n'aient été mesurées que jusqu'à 500 mK ($T_c/2$). La mesure de $1/T_1T$ a été faite par résonance quadrupolaire sur les noyaux de Ruthénium à champ nul (figure IV.4); $1/T_1T$ montre les mêmes caractéristiques que la chaleur spécifique en ce qui concerne l'extrapolation à $T=0\text{K}$ des mesures. [Kitaoka97, Ishida97, Ishida97b]

Les auteurs des références [Maeno96, Yoshida96, Yoshida96b] notent que cette densité d'états élevée dans la phase supraconductrice semble persister même dans les meilleurs échantillons. Cette affirmation est à confirmer par des mesures jusqu'aux très basses températures sur de meilleurs échantillons.

Tous ces mesures ont suscité un grand intérêt chez les théoriciens, qui ont proposé divers scénarios pour expliquer ces comportements. Les propositions théoriques ont des similitudes avec le cas de UPt_3 . En effet, Sr_2RuO_4 ayant un groupe ponctuel tétragonal, des modèles pour la supraconductivité de ce composé sur la base des représentations irréductibles du groupe tétragonal (voir aussi Chapitre I) ont été proposés par Sigrist et al. [Sigrist96, Agterberg97, Rice95] Pour expliquer les extrapolations élevées à $T=0\text{K}$ dans la phase supraconductrice trouvées par chaleur spécifique, ces auteurs ont proposé dernièrement que les électrons de bandes différentes soient liés à différents gaps supraconducteurs. Dans le cadre de Sr_2RuO_4 cela pourrait donner des changements de régime en fonction de la fenêtre en température mesurée. Ils prédisent une chaleur spécifique d'environ la moitié de celle de la phase normale à basse température jusqu'à $0.1T/T_c$, puis une chute exponentielle vers zéro à très basse température ($<0.1T/T_c$).

Une autre approche par le groupe de Machida et al. est de postuler un couplage spin orbite négligeable et d'utiliser les degrés de liberté du spin pour favoriser un état supraconducteur triplet. [Machida96] L'état proposé par ces auteurs aurait beaucoup de similitudes avec la phase

A1 de l' ^3He superfluide sous champ magnétique, où seulement la moitié des électrons serait condensée.

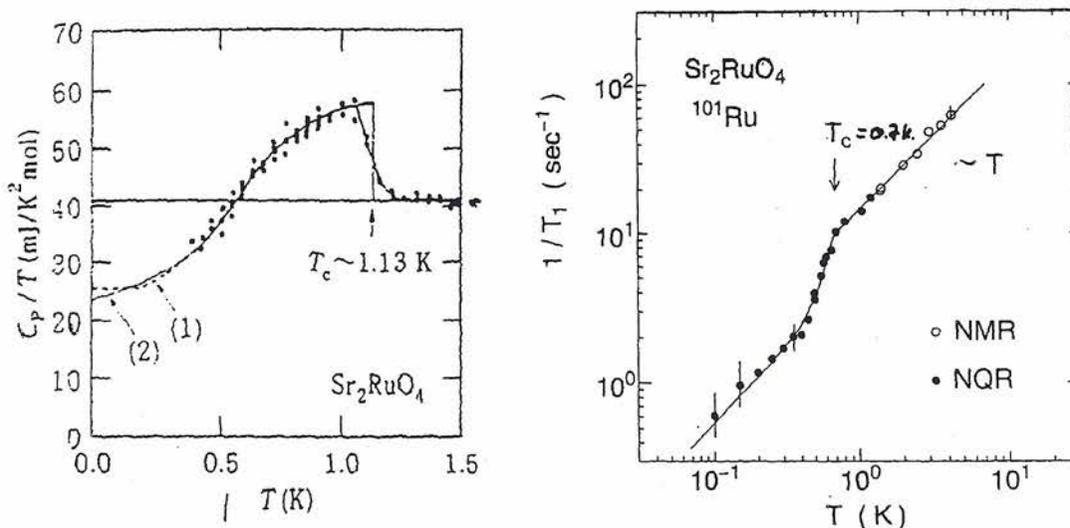


Figure IV.4: La chaleur spécifique d'un monocristal de Y. Maeno (d'après [Maeno96]), ainsi que les mesures de RMN de Ishida et al. [Ishida97, Ishida97b]. Le grand terme résiduel en chaleur spécifique est même trouvé dans des échantillons ayant des températures de transition assez élevées. Remarquons que le saut en chaleur spécifique à la transition est faible ($0.5 \Delta C/C$ par rapport à 0.8 dans UPt_3 ou 1.43 dans la théorie BCS). Les mesures de RMN montrent aussi des termes électroniques résiduels dans la phase supraconductrice.

IV.3 Mesures de conduction thermique

Nous avons disposé de trois échantillons pour mesurer la conduction thermique de ce composé. Ces trois monocristaux clivés dans le plan à partir du même échantillon ont tous des résistivités résiduelles ainsi que des températures critiques différentes, comme le montre la figure IV.5.

Nous n'avons pu mesurer la conductivité thermique que pour deux d'entre eux suite aux difficultés expliquées dans le chapitre II.

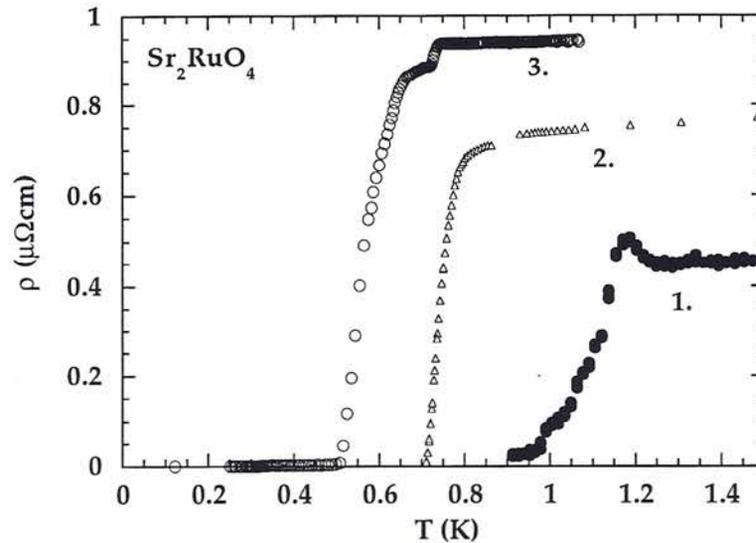


Figure IV.5: La résistivité des échantillons que nous avons mesurés. Nous n'avons pu mesurer en conduction thermique que les deux échantillons ayant les résistivités résiduelles les plus élevées. Notons la largeur de la transition. Nous n'observons pas de terme en AT^2 (il est présent à plus haute température jusqu'à 20 K). Aussi, malgré la haute pureté des échantillons la supraconductivité semble être particulièrement affectée par la qualité de l'échantillon. Les échantillons sont numérotés par rapport au tableau discuté dans le chapitre II (page 41).

Avant de discuter nos mesures de conduction thermique, nous notons qu'il est très particulier d'avoir une dépendance aussi importante des caractéristiques supraconductrices pour des échantillons aussi purs ($\rho_0 < 1\mu\Omega cm$!), donc avec des libres parcours moyens qui indiquent qu'on est dans la limite propre. Cela pourrait s'expliquer dans le cadre du modèle BCS "conventionnel" que si les impuretés qui donnent la résistivité résiduelle étaient de nature magnétique. La forte sensibilité aux défauts est une première indication d'une supraconductivité non conventionnelle.

Nos mesures de conductivité thermique sont montrées dans la figure IV.6. Le point remarquable est que nous trouvons une conduction thermique proportionnelle au carré de la température en dessous de T_c . Le calcul du nombre de Lorentz $L = \frac{\kappa}{T}\rho$, montré dans la figure IV.6 donne 1.2, ce qui est proche de 1 et démontre que la conduction se fait principalement par les électrons. Le fait de ne pas trouver exactement L_0 reste à comprendre et pourrait être dû à une conduction thermique parallèle à la conduction électronique par exemple due aux phonons. Cependant, il est remarquable que nous trouvons la même valeur pour les deux échantillons. Si l'écart était dû à une conduction thermique parallèle par les phonons, on s'attendrait à observer des différences dans L , puisque la conduction thermique électronique est différente pour les deux échantillons et qu'il n'y a pas de raison pour que la conduction thermique par les phonons change suivant la qualité de l'échantillon.

Dans la phase supraconductrice, nous trouvons une conduction thermique proportionnelle à T^2 et des extrapolations finies de κ/T à $T=0K$ qui sont très élevées et qui dépendent de la qualité de l'échantillon. Notre expérience est la première expérience de conduction thermique faite dans ce

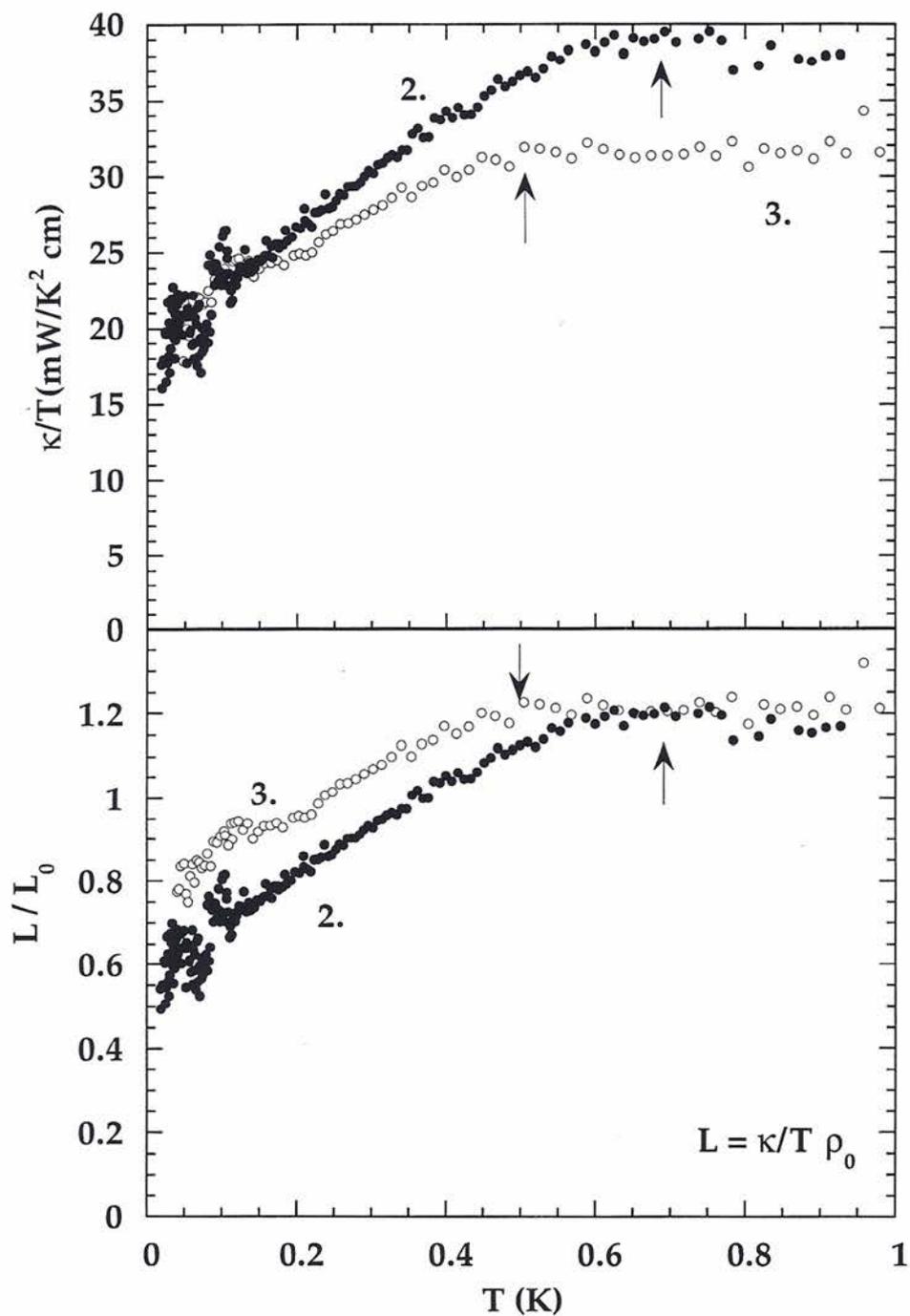


Figure IV.6: Nos mesures de conductivité thermique en fonction de la température. Remarquons que nous trouvons une conduction thermique proportionnelle au carré de la température dans les deux échantillons mesurés. Le terme résiduel de κ/T à $T=0\text{K}$ dépend fortement de la qualité de l'échantillon. Les flèches donnent la température correspondant au bas de la transition résistive.

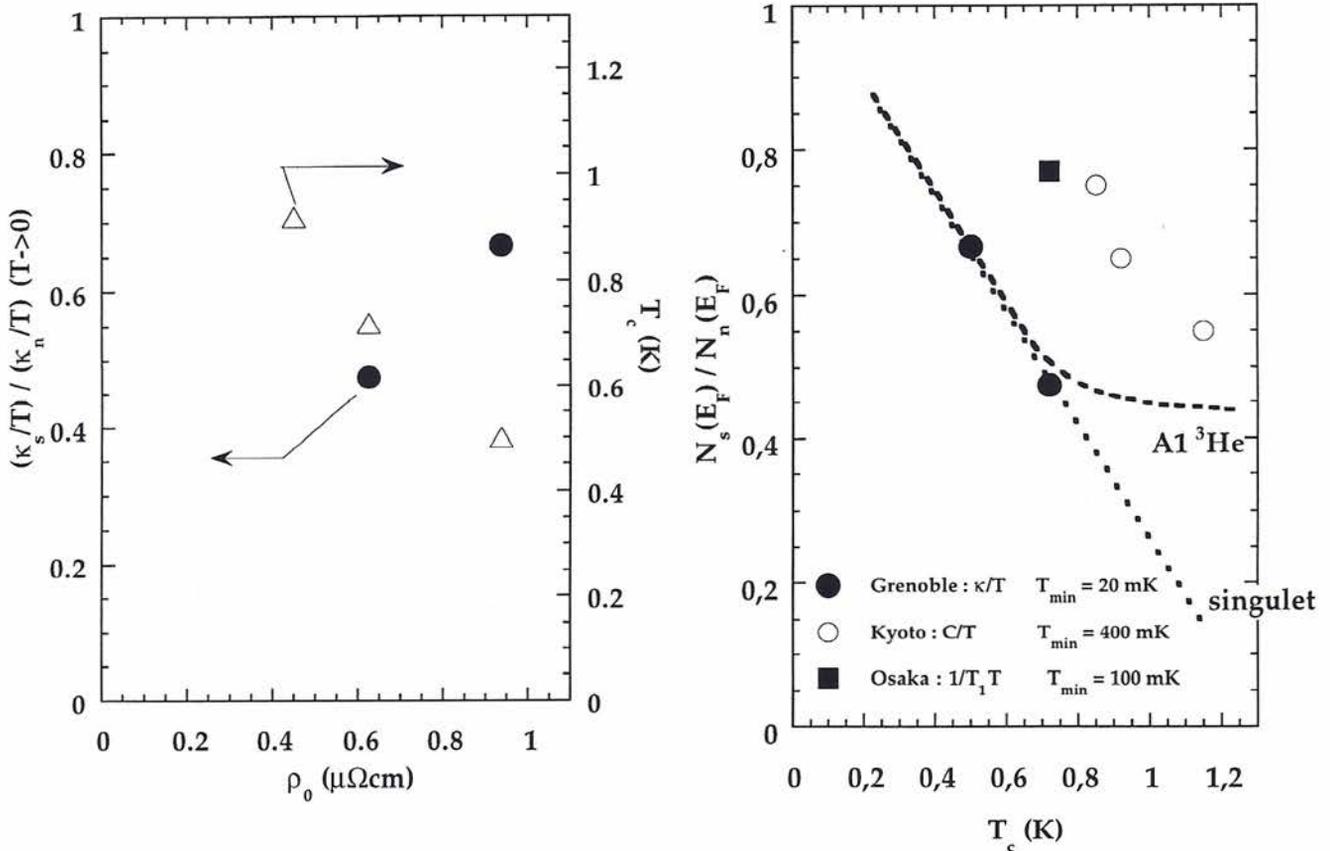


Figure IV.7: À gauche, nous montrons le terme résiduel et la température critique des échantillons mesurés en fonction de la résistivité résiduelle. A droite, la densité d'états résiduelle dans la phase supraconductrice estimée par nos mesures de conduction thermique jusqu'à 20 mK, pour des mesures de chaleur spécifique jusqu'à 500 mK, et des mesures de RMN jusqu'à 100 mK en fonction de la température critique pour chaque échantillon mesuré. Bien que la conduction thermique ne donne pas vraiment la densité d'états, et que les mesures de chaleur spécifique et de RMN soit faites à des températures assez hautes, la possibilité de trouver une valeur intrinsèque finie de la densité d'états à $T=0\text{K}$ reste ouverte. Une variation de la densité d'états comme attendu dans le cas d'un paramètre d'ordre analogue à celui de la phase A1 de l' ^3He superfluide donnerait une extrapolation comme indiquée dans la figure. La prédiction pour un paramètre d'ordre plus classique de type singulet est aussi marquée.

composé, mais aussi la première expérience faite jusqu'à très basse température (20 mK). Notons que nous n'observons pas d'effondrement de κ/T lié à une double structure du gap telle que prédit par Sigrist et al. pour $T_c/10$. [Agterberg97]

Cette extrapolation finie indique une densité d'états très élevée au niveau de Fermi dans la phase supraconductrice. Par contre, pour le moment il est impossible de dire si c'est un effet intrinsèque. Remarquons la relation entre la résistivité résiduelle, la température critique ainsi que l'extrapolation à $T=0K$ de la conductivité thermique montré dans la partie gauche de la figure IV.7. On peut aussi tenter de comparer les extrapolations à $T=0K$ de la chaleur spécifique, de la RMN et de la conductivité thermique. La partie droite de la figure IV.7 montre cette comparaison. La possibilité d'une valeur finie de $N_s(E_F)/N_n(E_F)$ à $T \rightarrow 0K$ pour $\rho_0 \rightarrow 0$, c'est à dire pour une température critique T_c maximale reste à confirmer grâce à une amélioration des matériaux.

Notons aussi qu'à ce niveau nous ne pouvons pas distinguer entre les effets de brisure de paires par les impuretés ou les effets dus à des noeuds dans le gap. On serait tenté de dire que la loi $\kappa \propto T^2$ que nous trouvons est due à des noeuds dans le gap, mais il n'est pas sûr que cette loi soit due à une forme précise de la densité d'états au niveau de Fermi. De plus, nous ne sommes pas certains que la diffusion des électrons par les impuretés soit vraiment en limite unitaire, comme c'est le cas pour UPt_3 .

Il est aussi utile de comparer la situation expérimentale actuelle dans ce composé aux premières mesures sur UPt_3 . La figure IV.8 montre la chaleur spécifique mesuré par J.P. Brison sur des monocristaux de UPt_3 de qualité différente (déjà montrée dans le chapitre I, page 22) ainsi que les mesures de Y. Maeno sur des monocristaux de Sr_2RuO_4 ayant une température critique de l'ordre de 1.1 K. Remarquons qu'il n'est pas facile de comparer les mesures, notamment parce que la double transition qu'on trouve dans UPt_3 "élargit" de façon artificielle la transition. Ainsi, on pourrait toujours affirmer que la largeur de l'échantillon de Sr_2RuO_4 montré dans la figure IV.8 est suffisamment faible pour dire que l'extrapolation finie à $T=0K$ est intrinsèque. Dans le cas de UPt_3 , l'extrapolation finie à $T=0K$ a disparu sur les échantillons de meilleure qualité. Bien qu'on puisse avoir bon espoir que cette extrapolation reste dans de meilleurs échantillons de Sr_2RuO_4 , on ne peut pas encore exclure le contraire. En ce qui concerne la conduction thermique, la comparaison avec UPt_3 n'apporte pas d'éléments nouveaux. Dans Sr_2RuO_4 , même dans les meilleurs échantillons, le terme en AT^2 de la resistivité est négligeable en dessous de 1K. Ainsi, les collisions inelastiques sont complètement négligeables dans la phase supraconductrice; cela devrait beaucoup faciliter la comparaison à la théorie.

composé, mais aussi la première expérience faite jusqu'à très basse température (20 mK). Notons que nous n'observons pas d'effondrement de κ/T lié à une double structure du gap telle que prédit par Sigrist et al. pour $T_c/10$. [Agterberg97]

Cette extrapolation finie indique une densité d'états très élevée au niveau de Fermi dans la phase supraconductrice. Par contre, pour le moment il est impossible de dire si c'est un effet intrinsèque. Remarquons la relation entre la résistivité résiduelle, la température critique ainsi que l'extrapolation à $T=0K$ de la conductivité thermique montré dans la partie gauche de la figure IV.7. On peut aussi tenter de comparer les extrapolations à $T=0K$ de la chaleur spécifique, de la RMN et de la conductivité thermique. La partie droite de la figure IV.7 montre cette comparaison. La possibilité d'une valeur finie de $N_s(E_F)/N_n(E_F)$ à $T \rightarrow 0K$ pour $\rho_0 \rightarrow 0$, c'est à dire pour une température critique T_c maximale reste à confirmer grâce à une amélioration des matériaux.

Notons aussi qu'à ce niveau nous ne pouvons pas distinguer entre les effets de brisure de paires par les impuretés ou les effets dus à des noeuds dans le gap. On serait tenté de dire que la loi $\kappa \propto T^2$ que nous trouvons est due à des noeuds dans le gap, mais il n'est pas sûr que cette loi soit due à une forme précise de la densité d'états au niveau de Fermi. De plus, nous ne sommes pas certains que la diffusion des électrons par les impuretés soit vraiment en limite unitaire, comme c'est le cas pour UPt_3 .

Il est aussi utile de comparer la situation expérimentale actuelle dans ce composé aux premières mesures sur UPt_3 . La figure IV.8 montre la chaleur spécifique mesuré par J.P. Brison sur des monocristaux de UPt_3 de qualité différente (déjà montrée dans le chapitre I, page 22) ainsi que les mesures de Y. Maeno sur des monocristaux de Sr_2RuO_4 ayant une température critique de l'ordre de 1.1 K. Remarquons qu'il n'est pas facile de comparer les mesures, notamment parce que la double transition qu'on trouve dans UPt_3 "élargit" de façon artificielle la transition. Ainsi, on pourrait toujours affirmer que la largeur de l'échantillon de Sr_2RuO_4 montré dans la figure IV.8 est suffisamment faible pour dire que l'extrapolation finie à $T=0K$ est intrinsèque. Dans le cas de UPt_3 , l'extrapolation finie à $T=0K$ a disparu sur les échantillons de meilleure qualité. Bien qu'on puisse avoir bon espoir que cette extrapolation reste dans de meilleurs échantillons de Sr_2RuO_4 , on ne peut pas encore exclure le contraire. En ce qui concerne la conduction thermique, la comparaison avec UPt_3 n'apporte pas d'éléments nouveaux. Dans Sr_2RuO_4 , même dans les meilleurs échantillons, le terme en AT^2 de la resistivité est négligeable en dessous de 1K. Ainsi, les collisions inelastiques sont complètement négligeables dans la phase supraconductrice; cela devrait beaucoup faciliter la comparaison à la théorie.

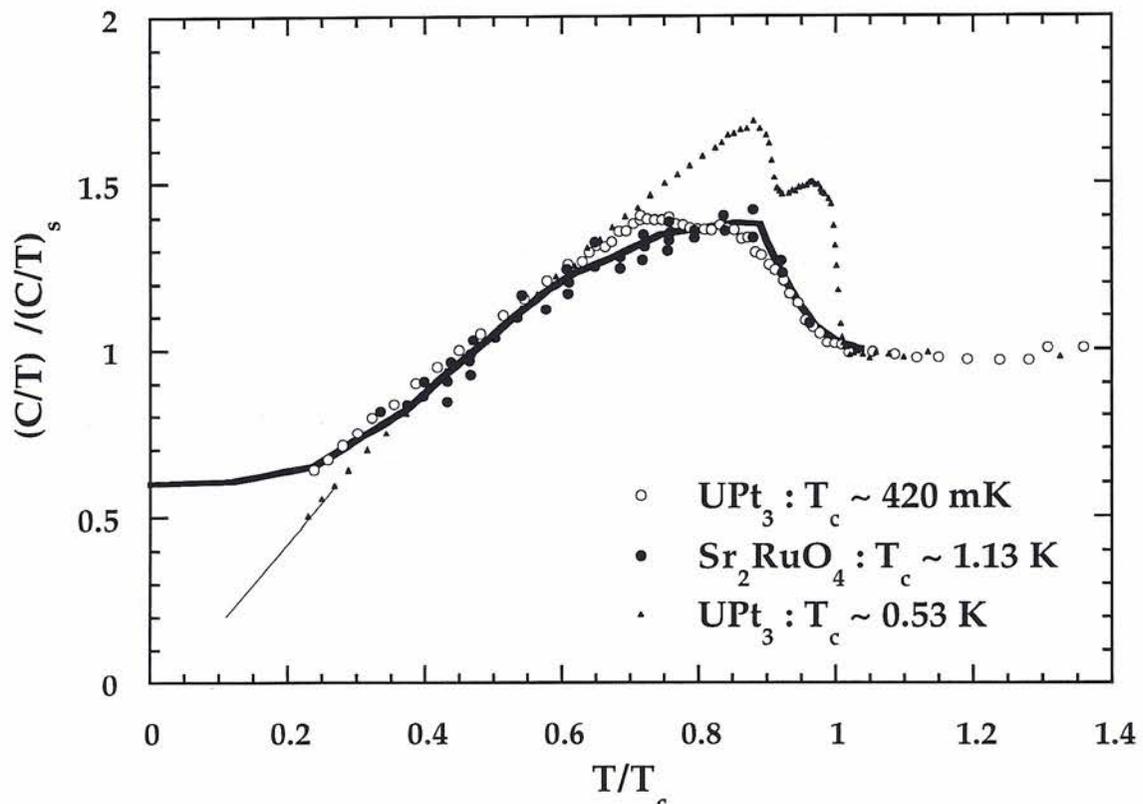


Figure IV.8: La chaleur spécifique de UPt_3 mesurée par J.P. Brison [Brison94] (nous présentons seulement les points au dessus de 100 mK) et celle de Sr_2RuO_4 mesurée par Y. Maeno et al.[Maeno96] Le trait plein est une extrapolation à $T=0$ K fait par Y. Maeno en utilisant la conservation de l'entropie jusqu'à $T=0$ K sur leur courbe de chaleur spécifique. Remarquons que cette extrapolation pourrait aussi être valable pour l'échantillon de UPt_3 de moindre qualité. On voit que des mesures sur de meilleurs cristaux sont nécessaires pour savoir si cette extrapolation est intrinsèque ou pas.

IV.4 Conclusion des mesures sur Sr_2RuO_4

Le point remarquable est la relation claire entre $\kappa/T(T \rightarrow 0K)$, ρ_0 et T_c qui est assez difficile à expliquer dans le cadre le plus simple pour la supraconductivité. Une étude poussée sur la nature des impuretés est nécessaire pour déterminer si elles sont magnétiques ou pas. Si ce sont des impuretés non-magnétiques, cela donnerait une première indication que la supraconductivité est non conventionnelle.

Il est clair aussi que des mesures de chaleur spécifique sur les meilleurs échantillons jusqu'à très basse température sont nécessaires. Maeno et al. ont publié des mesures sur des échantillons qui présentent des températures critiques de l'ordre de 1.4 K et qui montreraient aussi des extrapolations élevées à $T=0K$. [Maeno96]

Nous avons défini les conditions expérimentales pour pouvoir mesurer la conduction thermique dans Sr_2RuO_4 et fait les premières mesures sur des échantillons d'excellente qualité en ce qui concerne la phase normale. Par contre, la sensibilité de la supraconductivité dans ce matériau aux défauts rend nécessaire la continuation des travaux sur de meilleurs échantillons. Les résultats sont encourageants pour la poursuite de l'étude, puisqu'on devrait pouvoir déterminer si Sr_2RuO_4 est ou non un supraconducteur non-conventionnel avec un appariement pair ou impair.

CHAPITRE V
CONCLUSION GENERALE

Chapitre V

CONCLUSION GENERALE

Nos mesures de conductivité thermique à champ nul et sous champ magnétique nous ont permis de donner une vue d'ensemble sur la supraconductivité non conventionnelle de UPt_3 .

Les mesures à champ nul montrent les lois de puissance attendues pour un gap avec des lignes et des points de zéro ainsi que les effets de brisure de paires par les impuretés. En ce qui concerne le gap supraconducteur de UPt_3 , nous pouvons affirmer que c'est un gap hybride, avec une ligne dans le plan de base et des points de zéro suivant l'axe c . La nature de ces points de zéro (quadratiques ou linéaires) reste par contre controversée.

Nos mesures sous champ magnétique démontrent aussi qu'il y a au moins une ligne de zéro dans le gap supraconducteur. Cependant, la conductivité thermique de la phase mixte des supraconducteurs reste une sonde compliquée à interpréter. Pendant cette thèse nous avons étudié en détail la conduction thermique dans tout le diagramme de phase de ce composé. Cela nous a permis de séparer des régimes différents, sur lesquels on voit les particularités associées à la supraconductivité non conventionnelle de UPt_3 . La partie près de $H_{c2}(T)$ montre le changement du paramètre d'ordre au passage de la phase A à la phase C. A plus bas champ magnétique nous observons l'effet de diffusion des excitations thermiques par les vortex. Finalement, à très basse température et bas champ magnétique, nous observons clairement l'effet de la ligne de zéro dans le gap supraconducteur sur la conduction thermique. Cela permet de dire que cette technique expérimentale est capable de nous donner une vue d'ensemble sur la supraconductivité non-conventionnelle de UPt_3 .

De plus, nous avons fait des mesures de conduction thermique jusqu'à très basses températures sur Sr_2RuO_4 , le seul perovskite lamellaire supraconducteur connu à ce jour sans plan CuO_2 . Nous avons confirmé les extrapolations finies élevées, trouvées dans la phase supraconductrice par des mesures de chaleur spécifique jusqu'à des températures bien plus élevées, au moins pour les échantillons mesurés. Nos mesures sont un point de départ pour une étude sur de meilleurs cristaux qui pourrait donner des conclusions importantes sur la nature de la supraconductivité dans ce composé. Les hypothèses proposent un paramètre d'ordre impair.

Deux points originaux de cette thèse méritent d'être soulignés et ouvrent la voie à des nouvelles études qui permettraient d'obtenir de l'information sur la structure du gap supraconducteur dans UPt_3 , et plus généralement sur les propriétés de transport des supraconducteurs non-conventionnels.

En effet, l'extrapolation finie à $T=0K$ de la conduction thermique d' UPt_3 est la première indication (dans des échantillons purs) de l'existence d'une bande métallique dans l'état supraconducteur créé par l'effet de brisure de paires dû aux défauts et impuretés. Les propriétés de cette bande, dépendent directement du changement de signe du paramètre d'ordre sur les noeuds du gap. La suite des mesures pourra déterminer ces propriétés, notamment pour savoir si la conduction thermique par cette bande est indépendante du nombre d'impuretés, comme prévu par les calculs théoriques dans le cas d'une ligne de zéro dans le gap.

De l'autre côté, la découverte des lois d'échelle pour la conduction thermique sous champ magnétique démontre que, au moins pour la conduction thermique, les propriétés de la phase mixte des supraconducteurs non-conventionnels sont dominées par le déplacement Doppler du spectre d'excitations par les courants superfluides autour des coeurs de vortex. C'est la première mise en évidence expérimentale claire de ces effets d'échelle prédits récemment pour des supraconducteurs avec une ligne de zéro dans le gap. Le développement des calculs théoriques devrait permettre une meilleure comparaison avec l'expérience.

REFERENCES

REFERENCES

- Abrikosov A.A.*, "Fundamentals of the theory of Metals", North Holland (1988).
- Adenwalla S.W.*, Lin S.W., Ran Q.Z., Zhao Z., Ketterson J.B., Sauls J.A., Taillefer L., Hinks D.G., Levy M., Sarma B.K. Phys. Rev. Lett. **65**, 2298 (1990).
- Aeppli G.*, Bucher E., Broholm C., Kjems J.K., Baumann J., Hufnagl J. Phys. Rev. Lett. **60**, 615 (1988).
- Aeppli G.*, Bishop D., Broholm C., Bucher E., Siemensmeyer K., Steiner M., Stusser N., Phys. Rev. Lett. **63**, 676 (1989).
- Agterberg D.F.* Walker M.B., Phys. Rev. B **53** (1996).
- Agterberg D.F.*, Rice T.M., Sigrist M., Phys. Rev. Lett. 3374, **78** (1997).(voir cond-mat/9702148)
- Arfi B.*, Pethick C.J. Phys. Rev. B **38**, 2312 (1988).
- Ashcroft N.W.*, Mermin N.D., "Solid State Physics" (1988).
- Aubin H.*, Behnia K., Ribault M., Gagnon R., Taillefer L., Phys. Rev. Lett., 2624, **78** (1997).(voir aussi cond-mat/9611063)
- Balatsky A.V.*, Salkola M.I., Rosengren A. Phys. Rev. B, 15547 (1995).(voir aussi cond-mat/9407102)
- Bahlouli H.*, Arfi B. J. of Low Temp. Phys., **5/6**, 327 (1987).
- Barash Yu. S.* and Svidzinskii A.A., Phys. Rev. B **53**, 15254 (1996).(voir aussi cond-mat/9601066)
- Behnia K.*, Thèse, Univ. Joseph Fourier Grenoble (1990).
- Behnia K.*, Taillefer L., Flouquet J., Jaccard D., Maki K., Fisk Z., J. Low Temp. Phys. **84**, 261 (1991).
- Behnia K.*, Jaccard D., Taillefer L., Flouquet J. and Maki K., J. of Mag. and Mag. Mat. **108**, 133 (1992).
- Behnia K.*, Jaccard D., Sierro J., Lejay P., Flouquet J. Physica C **196**, 57 (1992).
- Borkowski L.S.*, Hirschfeld P.J., Putikka W.O. Phys. Rev. B, **52**, R3856 (1995).
- Boukhny M.*, Bullock G.L., Shivaram B.S. Phys. Rev. Lett. **73**, 1707 (1994).
- Boukhny M.*, Bullock G.L., Shivaram B.S. Phys. Rev. B **50**, 8985 (1994).
- Brawner D.A.*, Ott H.R., Fisk Z. Physica B **230-232**, 338 (1997).
- Brison J.P.*, "Thermometrie" dans "Detection de rayonnement à très basse température" Ecole d'automne d'Aussois, Decembre 1991.
- Brison J. P.*, Keller N., Lejay P., Tholence J.L., Huxley A., Bernhoeft N., Buzdin A.I., Fak B., Flouquet J., Schmidt L., Stepanov A., Fisher R.A., Philips N.E., Vettier C. J. Low Temp. Phys. **95**, 145 (1994).
- Broholm C.*, Aeppli G., Kleiman R.N., Harshman D.R., Bishop D.J., Bucher E., Williams D.LI., Ansaldo E.J., Heffner R.H., Phys. Rev. Lett. **65**, 2062 (1990).
- Bruls G.*, Weber D., Wolf B., Thalmeier P., Lüthi B., de Visser A., Menovsky A., Phys. Rev. Lett. **65**, 2294 (1990).
- Bruder C.* Phys. Rev. B **41**, 4017 (1990).
- Caroli C.*, Cyrot M., Phys. Cond. Matt. **4**, 285 (1965).
- Chakalskii B.K.*, Redko N.A., Shalty S.S., Azhazha V.M., Sov. Phys. JETP **48**(4), Oct. 1978.
- Chen D.*, Garg A., Phys. Rev. Lett. **70**, 1689 (1993).
- Chen D.*, Garg A., Phys. Rev. B **49**, 479 (1994).

Chen D.C., Garg A., Phys. Rev. B **53**, 374 (1996).
Choi C.H., Sauls J.A. Phys. Rev. Lett. **66** , 484 (1991).
Choi C.H., Sauls J.A. Phys. Rev. B **48** , 13684 (1993).
Cleary R. M. Phys. Rev., **175**, 587 (1968).
Cleary R. M. Phys. Rev. B, **1**, 169 (1970).
Coleman P., Miranda E., Tsvetik A., Phys. Rev. Lett. **70**, 2960 (1993).
Dalichaouch Y., de Andrade M.C., Gajewski D.A., Chau R., Visani P., Maple M.B. Phys. Rev. Lett. **75**, 3938 (1995).
Dalmas de Reotier P., Huxley A.D., Yaouanc A., Flouquet J., Bonville P., Imbert P., Pari P., Gubbens P.C.M., Mulders A.M., Phys. Lett. A **205**, 239 (1995).
deGennes P.G. "Superconductivity of Metals and Alloys" Addison Wesley 1989.
de Visser A., Thèse, Univ. Amsterdam (1986).
de Wilde de Wilde Y., Heil J., Jansen A.G.M., Wyder P., Deltour R., Assmus W., Menovsky A., Sun W., Taillefer L. Phys. Rev. Lett., **72**, 2278 (1994).
Doniach S. Physica B, **91**, 231 (1977).
Fisher R.A., Kim S., Woodfield B.F., Philipps N.E., Taillefer L., Hasselbach K., Flouquet J., Giorgi A.L., Smith J.L. Phys. Rev. Lett. **62**, 1411 (1989).
Fledderjohann A., Hirschfeld P.J. Solid State Commun. **94**, 163 (1995).
Fomin I.A., Flouquet J. **98**, 795 (1996).
Fomin W.E., Colwell J.H., Soulen R.J. J. **165-166**, 33 (1990).
Fulde P., Keller J., Zwickyagl, Solid State Physics, 41 ed. F. Seitz et D. Turnbull et H. Ehrenreich (Academic Press) New York (1988).
Goll G., Löhenysen H.v., Yanson I.K., Taillefer L. Phys. Rev. Lett. **70**, 2008 (1993).
Goll G., Bruder C., Lohneysen H.v., Phys. Rev. B **52**, 6801 (1995).
Gor'kov L.P., Sov. Sci. Rev. A. Phys. Vol. 9, 1-116, (1987).
Graf M. J., Yip S.K., Sauls J.A. Phys. Rev. B **53**, 15147 (1996).(voir aussi cond-mat/9512054)
Graf M.J., Yip S.K., Sauls J.A. J. Low Temp. Phys. **102**, (1996).(voir aussi cond-mat/9509046)
Grewe N., Steglich F., Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths **14**, 343 (Elsevier, Amsterdam 1991).
Hasselbach K., Taillefer L., Flouquet J. Phys. Rev. Lett. **63**, 93 (1989).
Hayden S. M., Taillefer L., Vettier C., Flouquet J., Phys. Rev. B **46** 8675 (1992).
Heffner R. H., Norman M. Comments in Cond. Matt. Phys. **17**, 361 (1996).
Heid R., Bazaliy Ya. B., Martisovits V., Cox D.L., Phys. Rev. Lett. **74**, 2571 (1995).
Hess D., Tokoyasu T., Sauls J.A., J. Phys. Cond. Matt. **1**, 8135 (1989).
Hirschfeld P.J., Vollhardt D., Wölfle P., Solid State Commun. **59**, 111 (1986).
Hirschfeld P.J., Wölfle P., Einzel D. Phys. Rev. B, **37**, 83 (1988).
Houghton A., Maki K. Phys. Rev. B, **4**, 843 (1971).
Houssa M.,Ausloos M., à apparaître dans Phys. Rev. Lett.
Huxley A.D., Suderow H., Brison J.P., Flouquet J., Phys. Lett. A **209** 365-372 (1995).
Isaacs E.D., ZschackP., Broholm C.L., Burns C., Aeppli G., Ramirez A.P., Palstra T.T.M., Erwin R.W., Stucheli N., Bucher E. Phys. Rev. Lett. **75**, 1178 (1995).

Ishida K., Kitaoka Y., Asayama K., Ikeda S., Nishizaki S., Maeno Y., Yoshida K., Fujita T., preprint.

Ishida K., Kitaoka Y., Asayama K., Ikeda S., Nishizaki S., Maeno Y., Yoshida K., Fujita T., preprint.

*Joynt R., Mineev V.P., Volovik G.E., Zhitomirsky M.E. Phys. Rev. B **42**, 2014 (1990).*

*Joynt R. Sup. Sci. Tech. **1**, 210 (1988).*

*Julian S.R., Teunissen P.A.A., Wiegers S.A.J. Phys. Rev. B **46**, 9821 (1992).*

*Kambe S., Flouquet J., Haargreaves T. J. of Low Temp. Phys., **108** (1997).*

*Keller N., Tholence J.L., Huxley A., Flouquet J., Phys. Rev. Lett. **73**, 2364 (1994).*

*Keller N., Tholence J.L., Huxley A., Flouquet J., Phys. Rev. B **54**, 13188 (1996).*

Kitaoka Y., Ishida K., Asayama K., Ikeda S., Nishizaki S., Maeno Y., Yoshida K., Fujita T., preprint.

*Kleiman R.N., Broholm C., Aeppli G., Bucher E., Stucheli N., Bishop D.J., Clausen K.N., Mortensen K., Pedersen S., Howard B., Phys. Rev. Lett. **69**, 3120 (1992).*

*Kopnin N.B., Volovik G.E. JETP Lett. **64**, 690 (1996).*

*Leggett A.J., Rev. of Mod. Phys. **47**, 331-414 (1975).*

*Lee P.A., Phys. Rev. Lett. **71**, 1887 (1993).*

*Löhneysen, H.v., Physica B **197**, 551 (1994).*

*Löhneysen, H.v., Physica B **223-224**, 471 (1996).*

Lounasmaa O.V., "Experimental Principles and Methods below 1 K", Academic Press (1974).

*Lowell J., Sousa J.B., J. Low Temp. Phys. **3** (1970).*

*Luke G.M., Deren A., Le L.P., Wu W.D., Uemura Y.J., Bonn D.A., Taillefer L., Garrett, Phys. Rev. Lett. **71**, 1466 (1993).*

*Lussier B., Ellman B., Taillefer L., Phys. Rev. Lett. **73**, 3294 (1994).*

*Lussier B., Ellman B., Taillefer L., Phys. Rev. B **53**, 5145 (1996).*

*Lussier B., Taillefer L., Buyers W.J.L., Mason T.E., Petersen T., Phys. Rev. B **54**, R6873 (1996).*

*Machida K., Ozaki M., Phys. Rev. Lett. **66**, 3293 (1991).*

*Machida K., Ozaki M., Ohmi T., J. Phys. Soc. of Japan **65**, p. 3720 (1996).*

*Machida K., Ohmi T., J. Phys. Soc. Jap., **65**, 3456 (1996).*

*Maeno Y., Hashimoto H., Yoshida K., Nishizaki S., T. Fujita, J.G. Bednorz, F. Lichtenberg, Nature **372**, p. 532 (1994).*

*Maeno Y., Nishizaki S., Yoshida K., Ikeda S., Fujita T., Journal of Low Temp. Phys., **105**, p. 1577 (1996).*

*Mackenzie A.P., Julian S.R., Diver A.J., McMullan G.J., Ray M.P., Lonzarich G.G., Hussey N.E., Maeno Y., Nishizaki S., Fujita T., Phys. Rev. Lett., **76**, pp. 3786 (1996).*

*Mackenzie A.P., Julian S.R., Diver A.J., Lonzarich G.G., Hussey N.E., Maeno Y., Nishizaki S., T. Fujita, Physica C, **263**, pp. 510-515 (1996).*

*Midgely P.A., Hayden S.M., Taillefer L., Bogenberger B., v. Löhneysen H., Phys. Rev. Lett. **70**, 678 (1993).*

*Maki K. Phys. Rev. **158**, 397 (1967).*

*Millis A.J. Phys. Rev. B, **48**, 454 (1993).*

*Mineev V.P. Ann. Phys. Fr. **19**, 367 (1994).*

Miyake K., Schmitt-Rink S., Varma C.M., Phys. Rev. B **34**, 6554 (1986).

Moriya T. et Takimoto T., J. Phys. Soc. Jap., **64**, 960 (1995).

Norman M. R., Hirschfeld P. J., Phys. Rev. B, **53**, 5706 (1996).

Oguchi T., Phys. Rev. B **51**, p. 1385 (1995).

Ohmi T., Machida K., Phys. Rv. Lett. **71**, 625 (1993).

Onuki Y., Settai R., Aoki H., Physica B **223-224**, 141 (1996).

Ott H.R., Rudiger H., Fisk Z., Smith J.L., Phys. Rev. Lett., **50**, 1595 (1983).

Park K.A. and Joynt R., Phys. rev. Lett. **74**, 4734 (1995).

Pethick C.J. and Pines D., Phys. rev. Lett. **57**, 118 (1986).

Piquemal F., Flouquet J., Tholence J.L., Franse J.J.M. et Menovsky A., J. of Mag. and Mag. Mat. **63 & 64**, 469-471 (1987).

Pobell F., "Matter and Methods at Low Temperatures", Springer (1996).

Ramirez A.P., Stücheli N., Bucher E., Phys. Rev. Lett. **74**, 1218 (1995).

Ravex A., Flouquet J., Tholence J.L., Jaccard D., Meyer A., J. Magn. Magn. Mat., **63-64**, 400 (1987).

Rice T.M., Sigrist M., J. of Phys. Cond. Matt. **7** L643 (1995).

Rusby R.L. of Physica B **165-166** 35 (1990).

Saint-James D., Thomas E.J. et Sarma G. "Type II Superconductivity", Pergamon Press (1969).

Samokhin K.V. JETP **80**, 515 (1995).

Sauls J.A. Adv. Phys. **43**, 113 (1994).

Sauls J.A., Rainer D. Proc. of Low Temp. Phys. Conf. Prague (1996).(voir aussi cond-mat/9610033)

Scalapino D. Physics Reports **250**, 329 (1995).

Schlabitz W., Baumann J., Pollit B., Rauchschalbe U., Mayer H.M., Alheim U., Bredl C.D. Zeitschrift für Physik B, **62**, 171 (1986).

Schmitt-Rink S., Miyake K. and Varma C.M., Phys. Rev. Lett. **57**, 2575 (1986).

Schuberth E.A., Strickler B., Andres K., Phys. Rev. Lett. **68**,117 (1992).

Schuberth E.A. et al. Z. Physik B **97**, 55 (1995).

Sieck M., Löhneysen H.v., Taillefer L. Physica B **206-207**, 603 (1995).

Shivaram B.S., Jeong Y.H., Rosenbaum T.F., Hinks D.G. Phys. Rev. Lett. **56**,3120 (1986).

Shivaram B.S., Rosenbaum T.F., Hinks D.G. Phys. Rev. Lett. **57**,1259 (1986).

Sigrist M., Zhitomirsky M.E., Journal of the Phys. Soc. of Japan **65**, p. 3452-3455 (1996).

Sigrist M., Ueda K., Rev. Mod. Phys. **63**, 239 (1991).

Simon S.H., Lee P.A., Phys. Rev. Lett. **76** (1997); Commentaire de Kopnin et Volovik et reponse de Simon et Lee, a apparaitre dans Phys. Rev. Lett. **78**. Simon and Lee ont obtenu un facteur supplementaire de l'ordre de T_c/E_F , ce qui est corrigé dans le commentaire et la reponse a leur papier. (voir aussi cond-mat/9611133)

Special Issue of Journal of Physics Cond. Matt., **48** (1996).

Steglich F., Aarts J., Bredl C.D., Meshede D., Franz W., Schafer J., Phys. Rev. lett. **43**, 1892 (1979).

Stewart G.R., Fisk Z., Willis J.O. and Smith J.L. Phys. Rev. lett. **52**, 679 (1984).

Suderow H., Diplomarbeit TU Karlsruhe, Univ. Joseph Fourier Grenoble (1992).

- Sulpice A., Gandit P., Chaussy J., Flouquet J., Jaccard D., Lejay P. and. Tholence J.L., J. Low Temp. Phys.*, **62**, 39 (1986).
- Sun Y., Maki K. Europhys. Lett.* **32**, 355 (1995).
- Taillefer L., Lonzarich G.G. Phys. Rev. Lett.* **60**, 1570 (1988).
- Tenya K., Ikeda M., Tayama T., Kuwahara K., Amitsuka H., Sakakibara T., Yamamoto E., Maezawa K., Kimura N., Settai R., Onuki Y., Physica B* **230-232** 345 (1996).
- Tenya K., Ikeda M., Tayama T., Sakakibara T., Yamamoto E., Maezawa K., Kimura N., Settai R., Onuki Y., Phys. Rev. Lett.* **77**, 3193 (1996).
- Tinkham M., "Introduction to Superconductivity", Mc Graw-Hill.*
- Tou H., Kitaoka Y., Asayama K., Kimura N., Onuki Y., Yamamoto E., Maezawa K., Phys. Rev. Lett.* **77**, 1374 (1996).
- van Dijk N.H., Ph.D. Thesis, Univ. Amsterdam (1994).*
- van Dijk N.H., de Visser A., Franse J.J.M., Holtmeier S., Taillefer L. Physica B* **199-200**, 159 (1994).
- Vinen W.F., Forgan E.M., Gough C.E., Hood M.J., Physica* **55** (1971).
- Vollhardt D., Wölfle P. "The Superfluid Phases of ^3He ", Taylor and Francis (1990).*
- Vollhardt D., "Pair Correlations in Superfluid ^3He ", à publier dans "Pair Correlations in Many Fermion Systems Plenum Press.(voir aussi cond-mat/9706100)*
- Volovik G.E., JETP Lett.*, **58**, 6 (1993).
- Vorenkamp Vorenkamp T., Aronson M.C., Koziol Z., Bakker K., Franse J.J.M., Smith J.L. Phys. Rev. B* **48**, 6373 (1993).
- Werthamer N.R., Helfand E., Hohenberg P.C., Phys. Rev. B* **147**, 295 (1966).
- White R.M., "Quantum Theory of Magnetism", Springer Series in Solid State Sciences (1983).*
- Won H., Maki K., Phys. Rev. B*, **53**, p. 5927 (1996).
- Yaron U., Gammel P.L., Boebinger G.S., Aeppli G., Schiffer P., Bucher E., Bishop D.J., Broholm C., Mortensen K., Phys. Rev. Lett*, **78**, p. 3185 (1997).
- Yin G., Maki K., Phys. Rev. B* **47**, 892 (1993).
- Yip S., Garg A., Phys. Rev. B* **48**, 3304 (1993).
- Yoshida K., Maeno Y., Nishizaki S., Ikeda S., Fujita T., Journal of Low Temp. Phys.*, **105**, p. 1593 (1996).
- Yoshida K., Maeno Y., Nishizaki S., Fujita T., Physica C* **263**, p. 519-522 (1996).
- Ziman J.M., "Principles of the Theory of Solids", Cambridge University Press (1972).*
- Zittartz J., Müller-Hartmann E., Z. Phys.* **232**, 11 (1970).
- Zittartz J., Bringer A., Müller-Hartmann E., Solid State Comm.* **10**, 513 (1972).