HAL
open science

Etude des fluctuations magnétiques de composés à fermions lourds par diffusion inélastique des neutrons

William Knafo

To cite this version:

William Knafo. Etude des fluctuations magnétiques de composés à fermions lourds par diffusion inélastique des neutrons. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2004. Français. NNT : . tel-00008376

HAL Id: tel-00008376

https://theses.hal.science/tel-00008376v1

Submitted on 6 Feb 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

présentée par

William KNAFO

pour obtenir le grade de

DOCTEUR
DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE 1

Spécialité : Physique

Etude des fluctuations magnétiques de composés à fermions lourds par diffusion inélastique des neutrons

Soutenue le 29 octobre 2004 devant la commission d'examen :

C. Lacroix	(Présidente)
H. v. Löhneysen	(Rapporteur)
C. Simon	(Rapporteur)
B. Chevalier	
S. Raymond	
L.P. Regnault	(Directeur de Thèse)

Thèse préparée
au sein du Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité,
du Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée,
au Commissariat à l'Energie Atomique de Grenoble.

Table des matières

Remerciements **5**

Avant-propos **9**

I Introduction générale **11**

1 Physique des composés à fermions lourds **13**
1.1 Présentation du problème 13
1.1.1 Magnétisme localisé 13
1.1.2 Magnétisme itinérant 15
1.1.3 Dualité localisé-itinérant dans les systèmes à fermions lourds 17
1.2 Modèle d'Anderson et effet Kondo 20
1.2.1 Modèle d'Anderson à une impureté 20
1.2.2 Le problème Kondo à une impureté 20
1.2.3 Le réseau Kondo 23
1.3 Corrélations magnétiques et transition de phase quantique 25
1.3.1 Interaction RKKY et diagramme de Doniach 25
1.3.2 Théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant . . 26
1.3.3 Autres scenarii 30

2 Diffusion magnétique des neutrons **33**
2.1 Généralités 33
2.1.1 Présentation 33
2.1.2 Diffusion nucléaire des neutrons 34
2.1.3 Diffusion magnétique des neutrons 34
2.2 Instruments de diffusion inélastique des neutrons 36
2.2.1 Les spectromètres trois axes 36
2.2.2 Les spectromètres à temps de vol 37
2.3 Caractéristiques de la diffusion des neutrons sur les composés à fermions lourds . 40

II Etude par diffusion inélastique des neutrons de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ 43

3 Présentation du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ 45
3.1 Le composé à fermions lourds $CeRu_2Si_2$ . . . 45
3.1.1 Propriétés générales . . . 45
3.1.2 Les fluctuations de spin vues par diffusion des neutrons . . . 48
3.2 Effets du dopage, de la pression et du champ magnétique sur $CeRu_2Si_2$ . . . 51
3.2.1 Effets du dopage et de la pression . . . 51
3.2.2 Effets du champ magnétique . . . 55
3.3 Résumé et motivations . . . 57

4 Etude de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ en sa concentration critique $x_c = 7.5$ % 59
4.1 Etude des fluctuations de spin aux basses énergies et températures . . . 59
4.1.1 Conditions expérimentales . . . 59
4.1.2 Résultats . . . 60
4.2 Etude de la variation avec la température des fluctuations de spin . . . 62
4.2.1 Conditions expérimentales . . . 62
4.2.2 Résultats . . . 63
4.3 Comparaison avec la susceptibilité macroscopique . . . 70

5 Etude du composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$ 73
5.1 Conditions expérimentales . . . 73
5.2 Etude de la variation avec la température des fluctuations de spin . . . 74
5.2.1 Analyse des spectres . . . 74
5.2.2 Effets de la température . . . 78
5.3 Comparaison avec la susceptibilité macroscopique . . . 79

6 Bilan des études sur les fluctuations de spin dans $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ 83
6.1 Comparaison des fluctuations de spin de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ en x_c et $x = 0$ . . . 83
6.1.1 Synthèse des résultats obtenus . . . 83
6.1.2 Discussion . . . 86
6.2 Variation avec x des excitations de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ . . . 93
6.2.1 Fluctuations de spin dans la phase antiferromagnétique : étude des composés de concentrations $x = 13$ et 20 % . . . 93
6.2.2 Fluctuations de spin de part et d'autre de l'instabilité magnétique . . . 96

III Etude par diffusion inélastique des neutrons de $CeIn_{3-x}Sn_x$ 99

7 Présentation du système $CeIn_{3-x}Sn_x$ 101
7.1 $CeIn_3$, un composé à fermions lourds ordonné magnétiquement . . . 101

7.2 $CeIn_3$ sous pression et $CeIn_{3-x}Sn_x$: deux routes vers l'instabilité magnétique du système . . . 104
7.2.1 Effets de la pression sur $CeIn_3$ . . . 104
7.2.2 Les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$ . . . 106
7.3 Motivations de l'étude de $CeIn_{3-x}Sn_x$ par diffusion des neutrons . . . 108

8 Etude du composé ordonné $CeIn_3$ 109
8.1 Conditions expérimentales . . . 109
8.2 Résultats expérimentaux . . . 110
8.2.1 Excitations de champ cristallin . . . 110
8.2.2 Etude de l'onde de spin . . . 113
8.3 Discussion . . . 116
8.3.1 Températures de Kondo . . . 116
8.3.2 Anisotropie et gap de l'onde de spin . . . 118
8.3.3 Comparaison avec $CePd_2Si_2$ . . . 120

9 Etude de $CeIn_{3-x}Sn_x$ en son instabilité magnétique 123
9.1 Mesures préliminaires . . . 123
9.2 Etude de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ par diffusion inélastique des neutrons . . . 125
9.2.1 Conditions expérimentales et traitement des données . . . 125
9.2.2 Excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ . . . 127

Conclusions 135

Annexes 139

A Obtention de lois d'échelles artificielles de la susceptibilité dynamique 139

B Absorption des neutrons 143
B.1 Epaisseur optimale de diffusion des neutrons . . . 143
B.2 Correction d'absorption . . . 145

C Facteur de forme magnétique et facteur de structure nucléaire 147
C.1 Facteur de forme magnétique . . . 147
C.2 Facteur de structure nucléaire . . . 148

Bibliographie 153

Remerciements

Au début de cette thèse, on m'a rapidement affublé du surnom de petit scarabée, Stéphane Raymond étant le Maître qui devait m'enseigner l'art de la neutronique. A la fin de la série "Kung-fu" [1] à laquelle cette citation fait référence, l'élève est suffisamment habile pour pouvoir prendre la pierre de la main même de son Maître. Je remercie Stéphane pour le travail d'encadrement qu'il a fourni lors de ma thèse et pour cette pierre (de $CeRu_2Si_2$) qu'il m'a laissé lui prendre le temps de quelques expériences. Le Grand Maître de cette thèse, Louis-Pierre Regnault, a lui aussi possédé cette même pierre avant que le Maître Stéphane ne devienne Maître. Depuis, le Grand Maître Louis-Pierre a changé d'art martial et essaie d'attraper un ballon des pieds même des attaquants. Je remercie Louis-Pierre pour avoir dirigé ma thèse, mais aussi pour avoir mené avec brio une équipe de football qui restera dans les annales du tournoi inter-services du CEA.

Je remercie particulièrement Jacques Flouquet pour la très grande influence qu'il a eu sur le déroulement de cette thèse, tant sur le plan scientifique que sur le plan humain. Plus qu'un chef, Jacques a été le guide qui m'a initié au culte du Superdoudou, seule divinité rebelle osant encore braver l'Ogre Minatec. Grâce à lui, j'ai compris que la verte prairie où veut aller Superdoudou est hors des sentiers battus, qu'elle est loin de l'abattoir où le méchant Minatec veut amener tous ces moutons.

Je remercie beaucoup Björn Fåk pour m'avoir initié à la très difficile spectrométrie à temps de vol, pour son accueil lors des expériences à ISIS où il travaillait alors, mais aussi pour les diverses discussions que nous avons eu ensemble.

Je tiens aussi à remercier Pierre Haen et Françoise Lapierre pour m'avoir fait profiter de leur connaissance encyclopédique de $CeRu_2Si_2$ et de tous ses dérivés, mais aussi pour m'avoir permis d'utiliser certaines de leurs anciennes courbes. Tous deux ont un sens physique et un sens de l'humour que j'ai beaucoup appréciés.

Je remercie Claudine Lacroix de m'avoir fait l'honneur d'être la présidente du jury de ma thèse, ainsi que Charles Simon et Hilbert von Löhneysen pour avoir accepté d'en être les rap-

1. Kung Fu : L'Intégrale, Warner Home Vidéo

porteurs. Je remercie aussi Bernard Chevalier pour sa participation en tant qu'examinateur dans ce jury.

Je remercie Gérard Lapertot et Karine Mony pour le travail de synthèse et de caractérisation qu'ils ont effectué sur les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$. Je remercie aussi Pascal Lejay pour la qualité de ses monocristaux de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, en notant que leur synthèse a été faite des années avant le début de cette thèse.

Je remercie Jean-Michel Mignot, Mark Adams et Jon Taylor pour leur aide lors d'expériences faites au LLB (Saclay) et à ISIS (Didcot, R.U.). Je remercie Amir Murani pour son aide lors de l'expérience faite sur IN6 à l'ILL, ainsi que Frédéric Bourdarot et Maria-Thereza Fernandez-Diaz pour les expériences faites sur les diffractomètres D9 et D15 à l'ILL. Je remercie aussi Jacques Prévitali, Bruno Vettard, Maurice De Palma et Philippe Boutrouille pour leur support technique lors des expériences faites à l'ILL et au LLB.

Je remercie Daniel Braithwaite, Marie-Aude Méasson et Marie-Josée Blanchard pour m'avoir initié aux mesures de chaleur spécifique, ainsi que Christophe Marin pour ce qui est des mesures de susceptibilité. Je remercie Stephen Yates et Carley Paulsen pour avoir mesuré la susceptibilité de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ à très basses températures, ainsi que Devashibhai Adroja et Brian Rainford pour m'avoir fait parvenir des résultats non publiés concernant les excitations de champ cristallin de $CeRu_2Si_2$.

De nombreuses discussions m'ont permis de mieux comprendre la physique des systèmes à fermions lourds. Je remercie pour cela Mucio Continentino, Mireille Lavagna, Catherine Pépin, Bernard Coqblin, Georg Knebel, Nick Bernhoeft, Sébastien Burdin et Yvan Sidis.

Je tiens finalement à remercier toutes les personnes que j'ai croisées dans le service, notamment Marielle Perrier (pour mes frais de mission...), les chefs Louis Jansen et Jean-Pierre Sanchez, les thésards de comptoir (Corentin, Fred, Rodolphe, Cyrille, Julien...), les post-doc de comptoir (Alessandro, Philipp...), la Bande à Peugnot, les voisins du LCP, les théoriciens et tous ceux que je n'ai pas cités ici.

Pour conclure, je tiens à remercier toute la Démaillère pour son soutien inconditionnel dans cette si fameuse tâche de devenir docteur ingénieur...

Avant-propos

Avant-propos

Les systèmes à électrons fortement corrélés sont des systèmes où localisation et délocalisation électronique sont en forte compétition. Un exemple typique de la manifestation d'une telle compétition est celui de la transition métal-isolant de Mott, où l'augmentation de la distance interatomique favorise la localisation électronique, et peut faire passer un système d'un état métallique où les électrons sont délocalisés à un état isolant où les électrons sont localisés [Mott 90]. Un autre exemple est celui des systèmes à fermions lourds, où des électrons localisés provenant d'orbitales f de terres rares s'hybrident avec des électrons itinérants provenant d'atomes métalliques. Cette hybridation conduit à une renormalisation de la surface de Fermi et à une délocalisation des électrons f. Lorsqu'un paramètre tel que la pression, le dopage ou le champ magnétique sont ajustés, la force de l'hybridation est modifiée et une transition de phase quantique (à $T = 0$) entre un état paramagnétique et un état ordonné magnétiquement peut se produire. Une telle transition caractérise alors une localisation progressive des électrons f, la transition ayant lieu lorsque la compétition entre localisation et délocalisation des électrons f est maximale. Alors que la phase paramagnétique est sujette à un comportement liquide de Fermi, un comportement dit "non liquide de Fermi" est rapporté à l'instabilité magnétique [Stewart 01]. On interprète généralement ce régime comme provenant des effets de la température sur le spectre des excitations, et plus particulièrement sur les fluctuations qui gouvernent la transition [Millis 93, Moriya 95, Si 01, Coleman 02]. Un moyen de caractériser précisément les fluctuations magnétiques d'un système est la diffusion inélastique des neutrons, laquelle permet d'obtenir les spectres des excitations magnétiques en différents vecteurs d'onde $\mathbf{q}$ du réseau réciproque. Afin de comprendre le rôle exact des fluctuations de spin à la transition de phase quantique de composés à fermions lourds, il est nécessaire de faire des études très précises par diffusion inélastique des neutrons, et ce de part et d'autre de l'instabilité magnétique. Pour cela, le spectre des excitations doit être mesuré de manière systématique, c'est à dire en considérant de grandes gammes de températures et d'énergies, ainsi que plusieurs points du réseau réciproque.

Dans le travail présenté ici, on étudie les excitations magnétiques des systèmes à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ et $CeIn_{3-x}Sn_x$ par diffusion inélastique des neutrons, le but étant de caractériser les fluctuations magnétiques à la transition de phase quantique et en son voisinage.

- La première Partie de ce manuscrit consiste en deux Chapitres introductifs. Le Chapitre 1 constitue une introduction à la physique des systèmes à fermions lourds et le Chapitre 2 est

une présentation de la diffusion magnétique des neutrons.

- La deuxième Partie est consacrée à l'étude du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ par diffusion inélastique des neutrons et est constituée des Chapitres 3 à 6. Le Chapitre 3 est une introduction aux propriétés magnétiques du système. Le Chapitre 4 est une étude du composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, qui correspond à l'instabilité magnétique. Une étude des fluctuations magnétiques est faite dans une large gamme de températures et d'énergies et conduit à une saturation des fluctuations de spin aux basses températures, ainsi qu'à un comportement en lois d'échelle de la susceptibilité dynamique aux hautes températures. Dans le Chapitre 5, le composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$ est étudié dans les mêmes conditions que celles du Chapitre précédent, un comportement semblable étant obtenu avec des échelles d'énergies plus grandes. Le Chapitre 6 résume les résultats obtenus sur les fluctuations de spin dans le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$. Une synthèse des spectres obtenus pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ et pour $CeRu_2Si_2$ est d'abord faite, ces résultats étant comparés à d'autres travaux expérimentaux et à certains modèles sur les transitions de phase quantique. Un point est ensuite fait sur les fluctuations de spin des composés de part et d'autre de l'instabilité, où on discute de la criticalité des fluctuations de spin à la transition.

- La troisième Partie correspond à une étude du système $CeIn_{3-x}Sn_x$ par diffusion inélastique des neutrons et est constituée des Chapitres 7 à 9. Le Chapitre 7 sert d'introduction aux propriétés électroniques de ce système. Le Chapitre 8 présente une étude des excitations du composé antiferromagnétique $CeIn_3$: on rapporte l'observation des excitations de champ cristallin et des ondes de spin qui caractérisent la phase ordonnée. Le Chapitre 9 consiste quant à lui en une étude des excitations magnétiques du composé $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ correspondant à l'instabilité magnétique du système.

Première partie

Introduction générale

Chapitre 1

Physique des composés à fermions lourds

Dans ce Chapitre, on présente d'abord les systèmes à électrons très fortement corrélés, l'accent étant mis sur la dualité localisé-itinérant du magnétisme qui les caractérise. Ensuite, on s'intéresse plus particulièrement au modèle d'Anderson et à l'effet Kondo, et on considère finalement les effets des corrélations magnétiques dans ces systèmes souvent proches d'une instabilité magnétique.

1.1 Présentation du problème

1.1.1 Magnétisme localisé

On qualifie un magnétisme de localisé lorsqu'il provient d'électrons portés par des orbitales de très faible extension spatiale, ce qui est généralement le cas des électrons des couches d ou f. De tels systèmes sont soumis à une forte interaction coulombienne U ($U \sim 1/r$, où r est la distance entre deux électrons), à laquelle s'ajoutent les effets du couplage spin-orbite, du champ cristallin et des interactions d'échange. Considérons l'exemple de systèmes d'électrons $4f$. Pour ces composés, les niveaux électroniques sont déterminés dans un premier temps par les règles de Hund, pour lesquelles les effets de l'interaction coulombienne et du couplage spin-orbite sont pris en compte. On estime U à environ 10 eV et l'énergie caractéristique du couplage spin-orbite Δ_{SO} est de l'ordre de 500 meV. Dans un cristal, les effets de champ cristallin agissent en perturbation et lèvent (partiellement ou totalement) la dégénérescence des niveaux de couplage spin-orbite J, l'énergie caractéristique Δ_{CF} du champ cristallin étant de l'ordre de 10-100 meV. Une mise en ordre magnétique du système peut par ailleurs se produire et conduire à une levée de dégénérescence supplémentaire. Ces effets sont résumés sur la Figure 1.1, dans le cas où les niveaux $4f$ sont ceux d'un atome de cérium (dans un état purement localisé). Il y a alors un électron $4f$ par cérium, auquel correspond un niveau de moment orbital $L = 3$, de spin $S = 1/2$ et dont la dégénérescence totale vaut $N = (2L+1)(2S+1) = 14$. Ce niveau est séparé par le couplage spin-orbite en un premier niveau correspondant à un moment angulaire total $J = L - S = 5/2$ (de dégénérescence $N = 2J + 1 = 6$), et un niveau excité correspondant à un

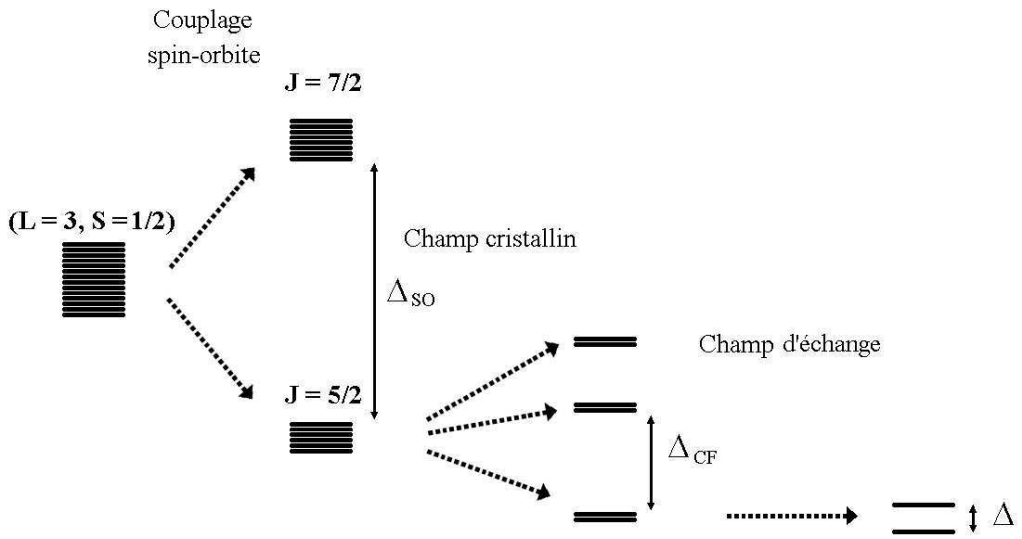

FIG. 1.1 – *Levées de dégénérescence par le couplage spin orbite, par le champ cristallin et par le champ d'échange, des niveaux électroniques $4f$ portés par un atome de cérium dans une limite purement localisée.*

moment angulaire total $J = L + S = 7/2$ (de dégénérescence $N = 2J + 1 = 8$). Les levées de dégénérescence par le champ cristallin et par le champ d'échange dépendent de l'environnement et de l'agencement des atomes de cérium. Dans des composés où les électrons f sont localisés sur des sites de cérium, la susceptibilité a une anisotropie correspondant à celle du champ cristallin : sa dépendance en température suit donc les lois du paramagnétisme de Van Vleck [van Vleck 32]. Pour $T \ll \Delta_{CF}$, on obtient des lois de Curie de la susceptibilité :

$$\chi(T) = \frac{N\mu_{eff}^2}{3k_B T}, \tag{1.1}$$

où N est le nombre d'atomes de cérium et μ_{eff} un moment effectif anisotrope[1]. Pour $T \gg \Delta_{CF}$, la susceptibilité est isotrope et suit une loi de Curie de moment effectif $\mu_{eff} = g_J \mu_B \sqrt{J(J+1)}$. En tenant compte de l'échange, la susceptibilité de la phase paramagnétique de haute température suit alors une loi de Curie-Weiss du type :

$$\chi(T) = \frac{N\mu_{eff}^2}{3k_B(T - \theta_P)}, \tag{1.2}$$

où θ_P est relié aux paramètres d'échange du système.

1. Notons que pour les axes de difficile aimantation, le moment effectif est très faible et seule une contribution constante de la susceptibilité est mesurée aux plus basses températures accessibles [van Vleck 32].

1.1.2 Magnétisme itinérant

Contrairement au magnétisme localisé pour lequel les niveaux électroniques sont parfaitement bien définis, le magnétisme itinérant est un magnétisme de bande pour lequel les niveaux sont fortement élargis. Sur la Figure 1.2 a), on représente un métal comme constitué de deux bandes de spin "up" et "down". Les abscisses représentent la densité d'états $\rho(E)$ et la largeur de bande vaut $E_F = k_B T_F$, où T_F est la température de Fermi du système électronique. Comme on le montre sur la Figure 1.2 b), l'application d'un champ $\mathbf{H}$ revient à peupler la bande de spin parallèles au champ au détriment de la bande de spin anti-parallèles. Pour des champs faibles $\mu_B \mathbf{H} \ll E_F$ et des basses températures $T \ll T_F$, le système est dans son régime liquide de Fermi et est caractérisé par la susceptibilité paramagnétique de Pauli :

$$\chi_P = \frac{3N\mu_{eff}^2}{2k_B T_F}, \tag{1.3}$$

où N est le nombre d'électrons de conduction et μ_{eff} est le moment porté par un électron. Dans ce régime, la chaleur spécifique est linéaire en température et vaut :

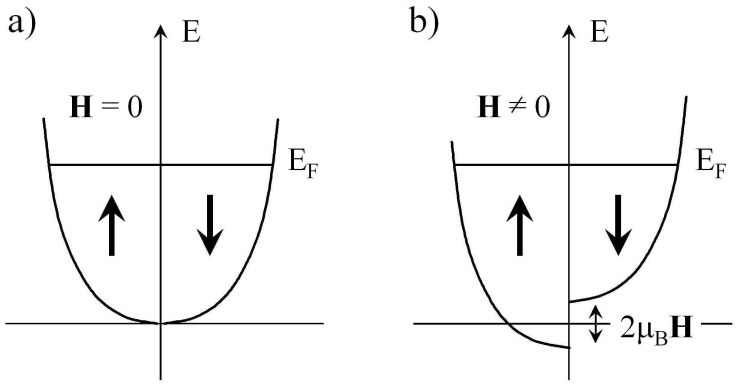

FIG. 1.2 – *Effet d'un champ magnétique* $\mathbf{H} \ll E_F/\mu_B$ *à une température* $T \ll T_F$ *sur un système électronique de type Pauli.*

$$C(T) = \frac{N\pi^2 k_B}{2T_F} T. \tag{1.4}$$

La résistivité électrique suit quant à elle une loi quadratique de la température selon :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2, \text{ avec } A \propto \frac{1}{T_F^2}, \tag{1.5}$$

du moins lorsque les effets dominants ne varient pas avec le vecteur d'onde. Dans un système liquide de Fermi, on définit les rapports de Wilson R_W et de Kadowaki-Woods R_{KW} par :

$$R_W = \frac{\chi_P/\mu_{eff}^2}{C/(\pi^2 k_B^2 T)} \quad \text{et} \quad R_{KW} = \frac{A}{(C/T)^2}, \tag{1.6}$$

et on s'attend à ce que l'universalité du comportement liquide de Fermi se manifeste par une valeur unique de ces ratios pour des systèmes où les interactions sont faibles.

En considérant la répulsion coulombienne $U(r) = I\delta(r)$ entre deux électrons de conduction, où r est la distance entre les deux électrons et δ est une fonction de Dirac, Stoner obtient que la susceptibilité du système s'écrit sous la forme :

$$\chi_S = \frac{\chi_P}{1 - I\chi_P}. \tag{1.7}$$

où χ_P est la susceptibilité de Pauli. Une instabilité magnétique est obtenue pour $I\chi_P = 1$ où la susceptibilité de Stoner χ_S diverge. Pour $I\chi_P > 1$, le système est dans un état fondamental ordonné ferromagnétiquement et la formule (1.7) n'est plus valable.

Dans sa théorie des fluctuations de spin, Moriya fait une description des systèmes électroniques itinérants en considérant la susceptibilité dynamique $\chi(\mathbf{q},\omega)$ des vecteurs $\mathbf{q}$ proches du vecteur d'onde de l'instabilité magnétique [Moriya 85]. Il obtient qu'à l'instar de la susceptibilité statique d'un système localisé, la susceptibilité statique $\chi(\mathbf{q})$ d'un système itinérant suit une loi de Curie-Weiss aux hautes températures (lorsque T est grand par rapport à la température d'ordre T_N ou T_c). Alors qu'un système localisé est caractérisé par des niveaux électroniques et par un spectre d'excitations relativement bien définis, un système itinérant est caractérisé par des bandes électroniques et donc par des spectres d'excitations très amortis (c'est à dire très élargis en énergie). Bien que ces deux types de systèmes aient des propriétés dynamiques très différentes, leurs propriétés statiques de hautes températures sont finalement assez similaires, des lois de Curie-Weiss de la susceptibilité statique étant obtenues dans les deux cas. Dans sa théorie, Moriya met clairement en évidence que les fortes fluctuations de spin des systèmes électroniques itinérants font i) que leurs moments à saturation, c'est à dire les moments ordonnés pour $T \to 0$, sont plus faibles que les moments effectifs déduits des lois de Curie-Weiss de haute température, et ii) que leurs températures d'ordre sont plus faibles que celles attendues dans des cas parfaitement localisés. A l'opposé, on parle de système purement localisé lorsque

les fluctuations de spin sont très faibles et que le moment à saturation est quasiment égal au moment effectif. C'est par exemple le cas des terres rares classiques, où coexistent un système d'électrons f très localisés et un système d'électrons de conduction très délocalisés. Ces deux systèmes n'interfèrent quasiment pas (seulement via l'échange RKKY entre les électrons f par l'intermédiaire des électrons de conduction) et le magnétisme provient alors du système localisé des électrons f.

1.1.3 Dualité localisé-itinérant dans les systèmes à fermions lourds

Les systèmes à fermions lourds sont généralement constitués d'un réseau d'atomes de terres rares et d'atomes métalliques. Ils sont le lieu d'une forte compétition entre localisation et délocalisation des électrons provenant des couches f des atomes de terres rares, du fait de leur hybridation par effet Kondo avec les électrons de conduction des atomes métalliques. La modification d'un paramètre ajustable, tel que la pression, le dopage ou le champ magnétique, permet de changer le rapport des forces relatives à la localisation et à la délocalisation électronique. Lorsque la localisation des électrons f augmente, une transition de phase quantique (c'est à dire à température nulle) peut ainsi avoir lieu entre une phase d'état fondamental paramagnétique et une phase d'état fondamental ordonné magnétiquement. Un exemple de transition de phase quantique est montré sur la Figure 1.3, où est tracé le diagramme de phase de $CePd_2Si_2$ sous pression [Mathur 98]. Alors que ce composé est ordonné antiferromagnétiquement à pression ambiante, il devient paramagnétique pour des pressions supérieures à la pression critique $p_c \simeq 27$ kbar. Pour des pressions $p \gtrsim 33$ kbar, un comportement liquide de Fermi est obtenu aux basses températures [Demuer 01]. Dans l'insert de cette Figure, on voit que lorsque le système

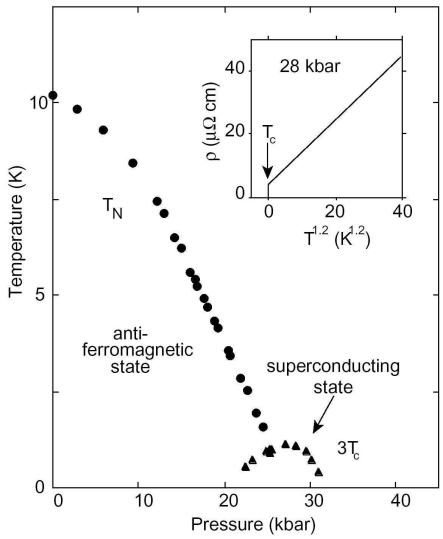

FIG. 1.3 – *Diagramme de phase de $CePd_2Si_2$ sous pression [Mathur 98]. T_N est la température de Néel de la phase antiferromagnétique et T_C est la température de transition supraconductrice.*

est à sa pression critique, sa résistivité ne suit pas la loi quadratique en T attendue pour un liquide de Fermi. A la place, un comportement en $T^{1.2}$ est mis en évidence et traduit le régime dit "non liquide de Fermi" de ce système. Notons aussi qu'une poche de supraconductivité se développe au voisinage de la transition de phase quantique. A l'instar de $CePd_2Si_2$, le voisinage de l'instabilité magnétique d'un système à fermions lourds est souvent caractérisé par un comportement non-liquide de Fermi, plus rarement par l'apparition de supraconductivité. On rapporte ainsi divers comportements "non liquide de Fermi" de la chaleur spécifique, de la susceptibilité et de la résistivité, qui sont caractérisés par des lois de puissance ou en logarithmique de T [Stewart 01]. L'apparition de la supraconductivité est plus sensible à la qualité du cristal et n'a été observée que dans des composés très propres. En effet cette supraconductivité est non-conventionnelle, en opposition à la supraconductivité conventionnelle de type BCS, où l'appariement des paires de Cooper se fait par le média des phonons, et est défavorisée par un trop grand désordre cristallin. L'origine du comportement non-liquide de Fermi, tout comme celle de la phase supraconductrice, sont probablement liées à la forte augmentation des fluctuations à l'approche de la transition de phase quantique [Hertz 76, Millis 93, Moriya 00, Monthoux 01].

Que ce soit dans la phase ordonnée magnétiquement où dans la phase paramagnétique, les électrons f des systèmes à fermions lourds ont en général un caractère itinérant assez marqué. En effet, le moment de la phase ordonnée sature pour $T \rightarrow 0$ en une valeur plus petite que celle attendue pour un système d'électrons f parfaitement localisés. La valeur réduite du moment résulte des fortes fluctuations de spin qui subsistent dans la phase ordonnée et est une manifestation du caractère itinérant du magnétisme du système (cf. Section 1.1.2 et Référence [Moriya 85]). Dans la phase paramagnétique, un comportement liquide de Fermi est obtenu et indique clairement la nature itinérante du système. Le liquide de Fermi a une température caractéristique fortement renormalisée, la température de Kondo T_K, dont la faible valeur est associée à une grande masse effective des électrons qui le composent[2]. Pour cette raison, on dit que ces systèmes sont "à fermions lourds". On montre sur les Figures 1.4 a) et b) que le comportement liquide de Fermi de composés à fermions lourds est caractérisé par des rapports de Wilson R_W et de Kadowaki-Woods R_{KW} qui varient peu en fonction de la nature des composés, dont les masses effectives varient sur plus de deux décades [Lee 86, Tsujii 03]. Des déviations à ces lois universelles sont cependant obtenues i) dans le tracé de la Figure 1.4 a) pour des composés de grande masse effective où se développent des corrélations magnétiques, et ii) dans la Figure 1.4 b) pour les systèmes à valence intermédiaire où R_{KW} est beaucoup plus faible que pour les composés à fermions lourds (cf. Section 1.2.1 et Référence [Tsujii 03]).

En plus de se comporter comme un liquide de Fermi fortement renormalisé, l'état résultant de l'hybridation a aussi certaines des propriétés caractéristiques d'un système d'électrons f localisés. En effet, le couplage spin-orbite et le champ cristallin ont des températures caractéristiques plus grandes que la température de Kondo T_K, de telle sorte qu'aux basses températures on

2. Dans la Section 1.2, on considérera avec plus de détails comment l'interaction Kondo entre les électrons localisés et les électrons de conduction conduit à l'obtention d'un liquide de Fermi fortement normalisé.

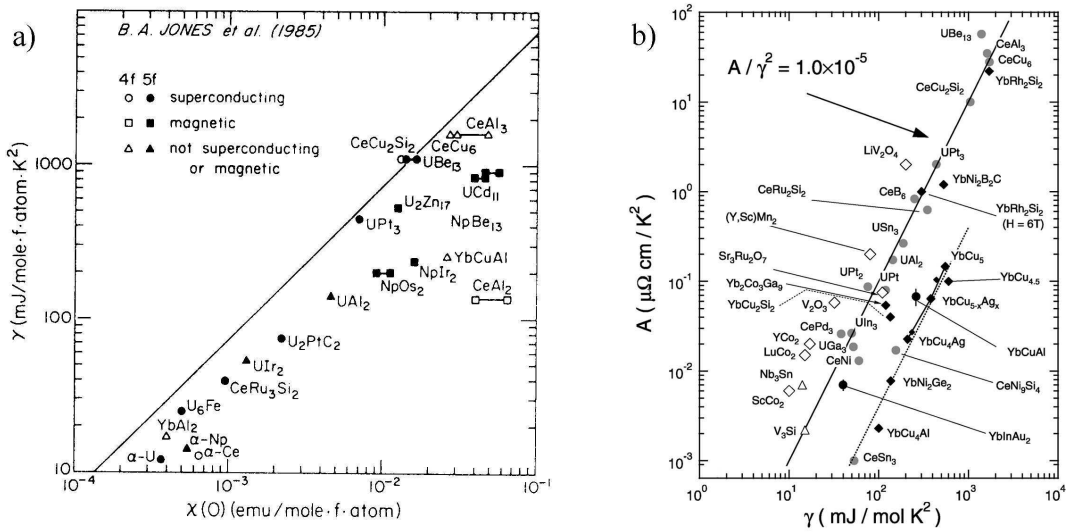

FIG. 1.4 – *a) Tracé de $\gamma = C/T$ en fonction de $\chi(0)$ pour divers composés à fermions lourds [Lee 86]. La ligne correspond au rapport de Wilson $R_W = 1$. b) Tracé de A en fonction de γ. La ligne continue correspond au rapport de Kadowaki-Woods $R_{KW} \approx 1.10^{-5}$ $\mu\Omega.cm.mol^2.K^2mJ^{-2}$ alors que celle en tirets correspond à $R_{KW} \approx 4.10^{-7}$ $\mu\Omega.cm.mol^2.K^2mJ^{-2}$ [Tsujii 03].*

distingue les différents niveaux de couplage spin-orbite et de champ cristallin correspondant aux électrons f. Alors que dans un système complètement localisé les niveaux sont très bien définis en énergie, ils correspondent ici à des bandes de largeur de l'ordre de T_K. Dans la Section 2.3, on montrera comment la dualité localisé-itinérant des systèmes à fermions lourds se manifeste dans les spectres d'excitations obtenus par diffusion inélastique des neutrons.

1.2 Modèle d'Anderson et effet Kondo [Hewson 93, Andrei 83, Bickers 87a, Bickers 87b, Tsunetsugu 97, Tsvelick 83]

Dans cette Section, nous présentons dans un premier temps le modèle d'Anderson à une impureté. Ensuite nous considérons le régime Kondo de ce modèle et nous présentons finalement quelques propriétés attendues pour un réseau d'impuretés Kondo.

1.2.1 Modèle d'Anderson à une impureté

Le Hamiltonien d'Anderson permet de décrire l'hybridation entre une impureté magnétique et une bande d'électrons de conduction. Dans le cas d'une impureté magnétique de type f, on écrit ce Hamiltonien sous la forme :

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}} c^{\dagger}_{\mathbf{k}\sigma} c_{\mathbf{k}\sigma} + \epsilon_f \sum_{\sigma} f^{\dagger}_{\sigma} f_{\sigma} + U n_{f\uparrow} n_{f\downarrow} + \sum_{\mathbf{k}\sigma} \left(V_{\mathbf{k}} f^{\dagger}_{\sigma} c_{\mathbf{k}\sigma} + V^{*}_{\mathbf{k}} c^{\dagger}_{\mathbf{k}\sigma} f_{\sigma} \right), \tag{1.8}$$

où $c_{\mathbf{k}\sigma}$ et $c^{\dagger}_{\mathbf{k}\sigma}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation d'un électron de conduction de spin σ et de moment $\mathbf{k}$, f_{σ} et $f^{\dagger}_{\sigma}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation d'un électron f de spin σ, $n_{f\uparrow}$ et $n_{f\downarrow}$ sont les nombres d'électrons f de spin "up" et "down", et où $\epsilon_{\mathbf{k}}$ et ϵ_f sont respectivement les énergies d'un électron de conduction de moment $\mathbf{k}$ et d'un électron f. $V_{\mathbf{k}}$ est le potentiel d'hybridation pour un moment $\mathbf{k}$ et U est l'interaction coulombienne. Lorsque $U = 0$, l'hybridation conduit à un état final de largeur égale à :

$$\Delta = \pi \rho(E_F) |V_{\mathbf{k}}|^2, \tag{1.9}$$

où $\rho(\epsilon)$ est la densité des électrons de conduction d'énergie ϵ, et où E_F est l'énergie de Fermi de la bande de conduction. Lorsque l'impureté est un atome de cérium, le niveau f a une énergie ϵ_f légèrement inférieure à l'énergie de Fermi E_F de la bande de conduction. Du fait de l'interaction coulombienne U, le nombre n_f d'électrons portés par les orbitales $4f$ doit être inférieur à 1. Lorsque l'hybridation V est importante, c'est à dire lorsque $\Delta > E_F - \epsilon_f$, un état de valence intermédiaire est obtenu pour lequel on a alors n_f nettement inférieur à 1. Par contre, lorsque l'hybridation est suffisamment faible pour que $E_F - \epsilon_f > \Delta$, on a alors $n_f \lessapprox 1$, ce qui correspond à la limite Kondo du Hamiltonien d'Anderson. Dans la Section suivante, on s'intéresse plus particulièrement à ce régime Kondo pour lequel un comportement à fermions lourds est obtenu.

1.2.2 Le problème Kondo à une impureté

Dans la limite Kondo $n_f \lessapprox 1$, le modèle d'Anderson (1.8) est équivalent au modèle d'échange s-d, où le Hamiltonien d'interaction vaut :

$$H = \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} J_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \left(S^{+} c^{\dagger}_{\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}'\uparrow} + S^{-} c^{\dagger}_{\mathbf{k}\uparrow} c_{\mathbf{k}'\downarrow} + S_z (c^{\dagger}_{\mathbf{k}\uparrow} c_{\mathbf{k}'\uparrow} c^{\dagger}_{\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}'\downarrow}) \right). \tag{1.10}$$

S^+, S^- et S_z sont les opérateurs correspondant au spin S d'une impureté et $J_{\mathbf{kk'}}$ est l'échange entre le moment local de l'impureté et les électrons de conduction. Notons que les paramètres du Hamiltonien s-d sont reliés à ceux du Hamiltonien d'Anderson par les relations de Schrieffer-Wolff :

$$J_{\mathbf{kk'}} = \frac{V_{\mathbf{k}}^* V_{\mathbf{k'}}}{2} \left\{ \frac{1}{U + \epsilon_f - \epsilon_{\mathbf{k'}}} + \frac{1}{\epsilon_{\mathbf{k}} - \epsilon_f} \right\}. \tag{1.11}$$

La résolution du problème Kondo à une impureté conduit à l'obtention d'un régime de couplage fort aux basses températures, pour lequel le système a un comportement liquide de Fermi caractérisé par une température $T_l \ll T_F$, où T_F est la température de Fermi de la bande de conduction non-hybridée. Pour des températures inférieures à T_l, la susceptibilité est alors égale à :

$$\chi = \frac{N\mu_{eff}^2}{3k_B T_l}, \tag{1.12}$$

où $\mu_{eff} = 2\mu_B\sqrt{S(S+1)}$ est le moment porté par l'impureté. Pour $T \gg T_l$, le système est dans un régime de couplage faible et la susceptibilité varie selon une loi de Curie corrigée par des termes en $1/(ln(T/T_K))^2$. Elle s'écrit alors sous la forme :

$$\chi = \frac{N\mu_{eff}^2}{3k_B T} \left(1 - \frac{1}{(ln(T/T_K))^2} + o\left(\frac{1}{(ln(T/T_K))^2} \right) \right). \tag{1.13}$$

On peut relier la température de Kondo T_K caractéristique du régime haute température à la température T_l caractérisant le régime de basse température en utilisant le rapport $W = T_K/T_l$, dont la valeur est universelle. Dans la suite de ce manuscrit, nous considérerons que $W = 1$ afin d'alléger les notations et de ne pas alourdir les discussions. Ainsi, on appellera température de Kondo la température caractéristique T_l du régime couplage fort de basse température et on notera cette température T_K.

Sur la Figure 1.5, on montre la densité d'états du niveau f résultant de l'interaction Kondo avec la bande des électrons de conduction, pour des températures $T \ll T_K$, $T > T_K$ et $T_K \ll T \ll \Delta$. Dans ces trois régimes, les niveaux d'énergies ϵ_f et $\epsilon_f + U$, qui sont peuplés lorsqu'il y a respectivement un et deux électrons sur l'orbitale f, ont une largeur Δ provenant de l'hybridation avec la bande de conduction. Aux basses températures, l'effet Kondo conduit à la formation d'une résonance, dite d'Abrikosov-Suhl, au niveau de Fermi E_F et dont la largeur est de l'ordre de T_K. Ce pic est à l'origine du comportement liquide de Fermi d'énergie caractéristique $k_B T_K$ obtenu pour $T < T_K$. Pour $T > T_K$, l'intensité de la résonance chute lorsque T augmente et le couplage caractérisant le système diminue alors fortement.

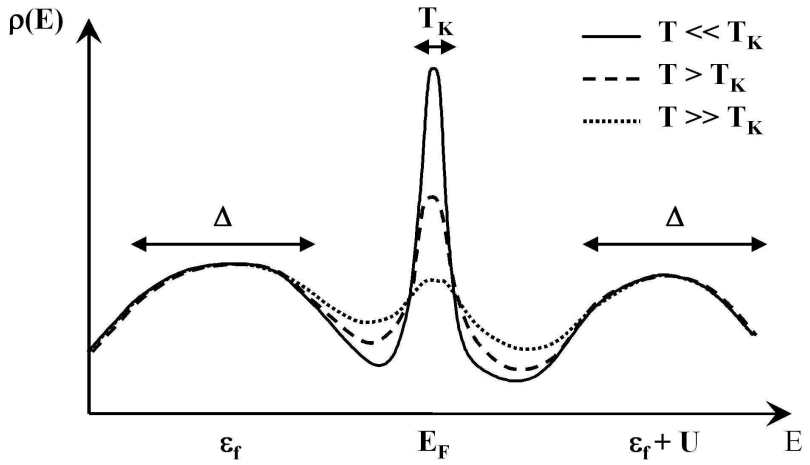

FIG. 1.5 – *Densité d'états $\rho(E)$ du niveau f d'un système à une impureté pour $T \ll T_K$, $T > T_K$ et $T_K \ll T \ll \Delta$, où T_K est la température de Kondo et où Δ est la largeur de l'hybridation des niveaux f.*

Dans le modèle *s-d*, le moment localisé correspond à un spin $S = 1/2$ de dégénérescence $N = 2S + 1 = 2$. Dans le modèle de Coqblin- Schrieffer, le problème Kondo est généralisé à N quelconque. La température de Kondo dépend alors de la dégénérescence N du multiplet à laquelle elle est associée et s'exprime selon :

$$T_K \sim Dexp\left(-\frac{1}{N\rho(E_F)J}\right), \tag{1.14}$$

où D et $\rho(E_F)$ sont respectivement la largeur de la bande de conduction (supposée rectangulaire et demi-remplie) et sa densité d'état au niveau de Fermi, et où J est l'échange entre le moment localisé et les électrons de conduction. Dans un système constitué d'un multiplet de dégénérescence totale N séparé en différents multiplets d'énergie Δ_i et de dégénérescence N_i, on peut donc définir différentes températures de Kondo selon le groupe de niveaux considéré. Ainsi, aux basses températures le système est dans son état fondamental, le multiplet d'énergie $\Delta_0 = 0$ et de dégénérescence N_0, et il a une température de Kondo égale à :

$$T_K \sim Dexp\left(-\frac{1}{N_0\rho(E_F)J}\right). \tag{1.15}$$

Aux hautes températures $T \gg \Delta_i$, le système recouvre sa dégénérescence totale N et est alors caractérisé par la température de Kondo dite "hautes températures" :

$$T_K^h \sim Dexp\left(-\frac{1}{N\rho(E_F)J}\right). \tag{1.16}$$

On relie la température de Kondo hautes températures T_K^h à la température de Kondo T_K du

multiplet fondamental par [Hanzawa 85] :

$$T_K^h = \sqrt[N]{T_K^{N_0} \prod_i \left(\Delta_i^{N_i}\right)}. \tag{1.17}$$

Lorsque le moment localisé provient d'une impureté de cérium, on doit alors considérer un niveau de couplage spin-orbite $J = 5/2$ dont la dégénérescence $N = 6$ est généralement levée par le champ cristallin. Ainsi, dans le cas où le champ cristallin conduit à trois doublets d'énergies $\Delta_0 = 0$, Δ_1 et Δ_2, la formule (1.17) donne :

$$T_K^h = \sqrt[3]{T_K \Delta_1 \Delta_2}. \tag{1.18}$$

1.2.3 Le réseau Kondo

Lorsqu'un système est constitué d'un réseau d'impuretés Kondo, un phénomène de cohérence peut se produire et conduire à des propriétés de basses températures différentes de celles d'une impureté Kondo. C'est le cas par exemple de la résistivité électrique. Dans un système composé d'impuretés Kondo isolées les unes des autres, la résistivité électrique sature dans le régime liquide de Fermi de basse température selon la loi quadratique :

$$\rho(T) = \rho_0 - A'T^2, \tag{1.19}$$

où $A' > 0$ varie comme $1/T_{K,imp}^2$, $T_{K,imp}$ étant la température de Kondo d'une impureté. La cohérence d'un réseau d'impuretés Kondo se manifeste par un maximum de la résistivité qui, au lieu de saturer aux basses températures, atteint un maximum puis diminue lorsque T est abaissée. Le régime liquide de Fermi de basse température est alors caractérisé par la résistivité quadratique :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2, \tag{1.20}$$

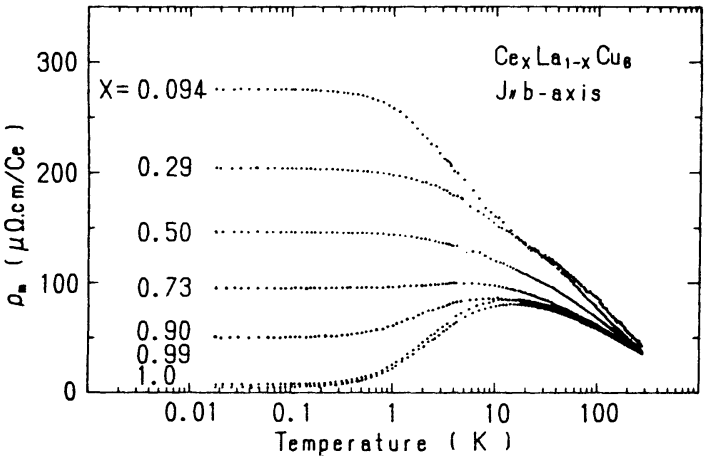

FIG. 1.6 – *Variation avec T de la résistivité électrique des alliages $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ [Ōnuki 87].*

où $A > 0$ varie comme $1/T_{K,res}^2$, $T_{K,res}$ étant la température de Kondo d'un réseau d'impuretés. On montre sur la Figure 1.6 les courbes des résistivité électriques obtenues pour les alliages $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ [$\bar{O}$nuki 87]. Dans ces composés, un comportement cohérent de basse température est obtenu pour les concentrations x proche de 1 alors qu'un comportement incohérent caractérise le système lorsque x s'éloigne notablement de 1.

La cohérence d'un réseau Kondo peut par ailleurs conduire à l'apparition d'un "pseudo-gap" dans la résonance d'Abrikosov-Suhl qui se développe aux basses températures au voisinage de l'énergie de Fermi E_F. On montre sur la Figure 1.7 l'allure de la densité d'état alors attendue pour un réseau d'impuretés où l'effet Kondo est cohérent.

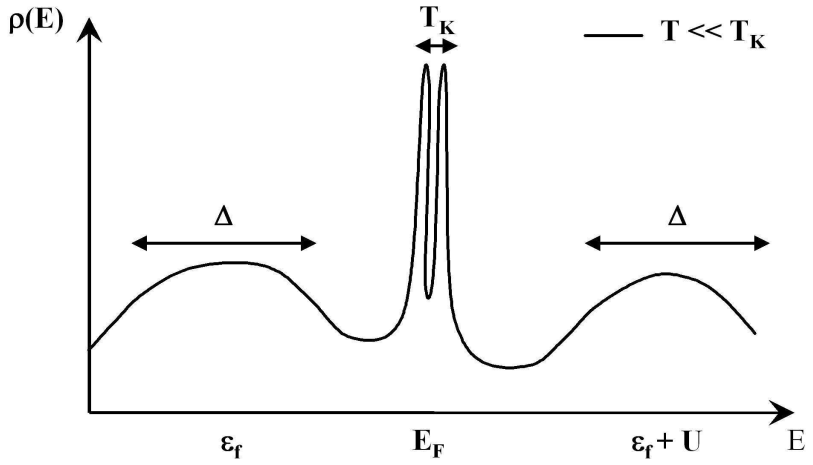

FIG. 1.7 – *Densité d'états $\rho(E)$ du niveau f d'un réseau Kondo dans son régime cohérent de basses températures*

Dans la Section suivante, nous considérons un autre effet qui se manifeste dans un réseau d'impuretés Kondo : le développement de corrélations magnétiques, qui mène sous certaines conditions à l'apparition d'un ordre magnétique.

1.3 Corrélations magnétiques et transition de phase quantique

Dans cette Section, nous considérons les effets des corrélations sur un réseau d'impuretés Kondo. Dans un premier temps, on présente la compétition entre l'effet Kondo et les interactions Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) dans une image de Doniach. Ensuite on rappelle quelques résultats des théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant. On conclut en évoquant d'autres descriptions possibles des transitions de phase quantique d'un système à fermions lourds.

1.3.1 Interaction RKKY et diagramme de Doniach

Nous avons vu qu'un système Kondo est caractérisé par un couplage direct entre électrons localisés et électrons de conduction. Ce couplage peut s'écrire sous la forme $J\mathbf{Ss}$, où J est l'échange, $\mathbf{S}$ est le spin d'un électron localisé et $\mathbf{s}$ est celui d'électron de conduction (cf. Formule (1.10)). D'après la Formule (1.14), l'effet Kondo a une énergie caractéristique :

$$k_B T_K \sim \frac{1}{\rho(E_F)} \exp\left(-\frac{1}{N\rho(E_F)J}\right), \tag{1.21}$$

où N est la dégénérescence et $\rho(E_F)$ est la densité d'état au niveau de Fermi. Dans un réseau d'impuretés Kondo, le système est caractérisé par une seconde échelle d'énergie :

$$k_B T_{RKKY} \sim \rho(E_F) J^2. \tag{1.22}$$

Cette énergie est celle de l'interaction RKKY entre les moments localisés, qui consiste en un échange indirect entre les électrons localisés médié par les électrons de conduction. L'interaction RKKY a une action opposée à celle de l'effet Kondo : alors que l'effet Kondo tend à faire disparaître le magnétisme du système via un écrantage des moments localisés par les électrons de conduction, l'interaction RKKY favorise l'échange entre sites magnétiques et tend à faire apparaître un ordre magnétique.

Sur la Figure 1.8 est tracé le diagramme de Doniach [Doniach 77], où une comparaison de l'évolution des températures caractéristiques T_K et T_{RKKY} en fonction du paramètre $\rho(E_F)J$ est faite. Une valeur critique $(\rho(E_F)J)_c$ est définie à l'intersection des deux courbes et correspond à l'instabilité magnétique du système. Pour $\rho(E_F)J < (\rho(E_F)J)_c$, on a $T_{RKKY} > T_K$ et le système est dans un état fondamental ordonné magnétiquement. Pour $\rho(E_F)J > (\rho(E_F)J)_c$, on a $T_K > T_{RKKY}$ et le système est dans un fondamental paramagnétique; il a alors un comportement liquide de Fermi. Le voisinage de l'instabilité magnétique correspond au régime Kondo à fermions lourds du système. Pour les faibles valeurs de $\rho(E_F)J$, on a $T_K \to 0$ et le système est alors dans un régime localisé. A l'opposé, les grandes valeurs de $\rho(E_F)J$ correspondent à de grandes valeurs du paramètre d'hybridation V (cf. Formule(1.11)), pour lesquelles le système est alors dans un régime à valence intermédiaire (cf. Section 1.2.1).

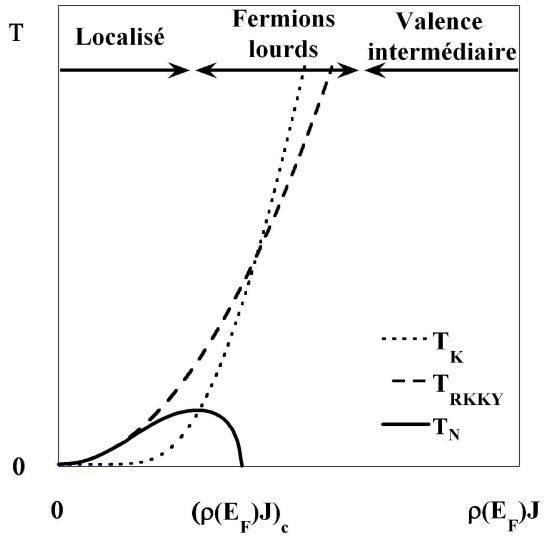

FIG. 1.8 – *Diagramme de Doniach d'un composé à fermions lourds [Doniach 77]. T_K est la température de Kondo, T_{RKKY} est la température caractéristique de l'effet RKKY et T_N est la température de Néel du système lorsqu'il s'ordonne.*

1.3.2 Théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant

1.3.2.1 Présentation

Les systèmes à fermions lourds sont caractérisés par la présence d'une instabilité magnétique séparant une phase liquide de Fermi fortement renormalisée d'une phase ordonnée magnétiquement. Dans les théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant [Hertz 76, Millis 93, Continentino 01], la modification d'un paramètre ajustable δ permet de changer continûment les propriétés du système et de provoquer une transition de phase quantique, c'est à dire une transition à température nulle, en une position $\delta = \delta_c$. La transition entre le régime ordonné magnétiquement obtenu pour $\delta < \delta_c$ et le régime liquide de Fermi obtenu pour $\delta > \delta_c$ est du second ordre. Elle est gouvernée par des fluctuations quantiques, en opposition à la nature classique des fluctuations d'une transition de phase activée thermiquement, et elle est caractérisée par une divergence des fluctuations pour $\delta \to \delta_c$ et $T \to 0$. Les fluctuations critiques correspondent aux fluctuations magnétiques de même vecteur d'onde $\mathbf{k}$ que celui avec lequel le système s'ordonne pour $\delta < \delta_c$. Une dimension effective $d^* = d+z$ caractérise les fluctuations du système, où z est l'exposant critique dynamique et où d est la dimension spatiale. On rappelle que le temps de relaxation τ et la longueur de corrélation ξ des fluctuations sont liés par $\tau = \xi^z$.

La Figure 1.9 montre le diagramme de phase obtenu par Millis dans le cas de fluctuations de dimension spatiale $2 < d < z + 2$ [Millis 93]. Différents régimes sont obtenus avec les

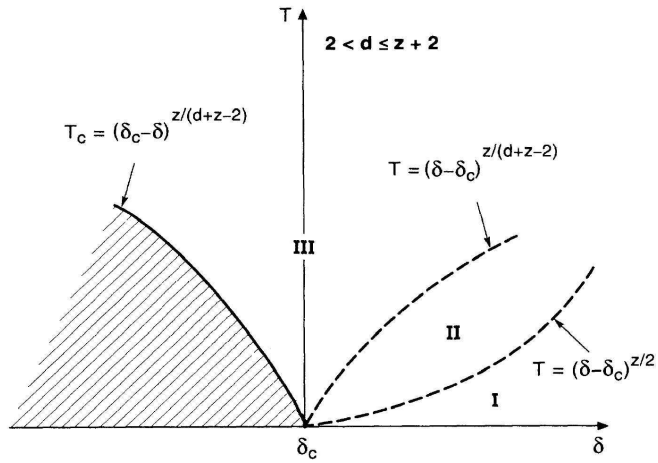

FIG. 1.9 – *Diagramme de phase obtenu par Millis lorsqu'on fait varier un paramètre de contrôle δ, pour $2 < d < z+2$ [Millis 93]. La région I correspond au régime "quantique désordonné", la région II au régime classique perturbatif et la région III au régime classique gaussien. La région hachurée représente la phase ordonnée.*

températures caractéristiques :

$$\begin{aligned} T_c = &\quad (\delta_c - \delta)^{z/d+z-2}, \\ T_I = &\quad (\delta - \delta_c)^{z/2}, \\ \text{et} \quad T_{II} = &\quad (\delta - \delta_c)^{z/d+z-2}. \end{aligned} \tag{1.23}$$

T_c est la température en dessous de laquelle l'ordre magnétique s'établit pour $\delta < \delta_c$. Pour $\delta > \delta_c$ et $T < T_I$, le système est dans le régime I qu'on appelle "quantique désordonné" où il se comporte comme un liquide de Fermi. Le coefficient de Sommerfeld γ de la chaleur spécifique et le taux de relaxation dépendent de T au dessus des températures T_I et T_{II}, respectivement. Le régime II obtenu pour $T_I < T < T_{II}$ correspond au régime classique perturbatif et le régime III obtenu au dessus de T_{II} est le régime classique gaussien. Dans ce dernier régime, les effets de la température sur les fluctuations de spin permettent d'obtenir des lois en T^n ou en lnT de la chaleur spécifique, de la résistivité et de la susceptibilité statique. Différentes lois sont prévues selon les valeurs de d et de z ($z = 2$, 3 et 4 pour des fluctuations antiferromagnétiques, ferromagnétiques "propres" et ferromagnétiques "sales", respectivement). Cependant, dans beaucoup d'exemples de systèmes pour lesquels un comportement non-liquide de Fermi est mis en évidence expérimentalement, les lois correspondantes sont différentes de celles prédites dans ce modèle et il est difficile de conclure quant à sa pertinence [Stewart 01]. Notons que dans ces théories sur les transitions de phase quantiques, seules les fluctuations de spin correspondant à l'instabilité sont considérées. Dans les systèmes à fermions lourds, les spectres des excitations sont composés d'un terme local fortement amorti (de type Kondo) auquel s'ajoutent des corrélations dues aux interactions RKKY. Les fluctuations de spin au vecteur d'onde critique ont finalement un poids assez faible par rapport à l'ensemble des fluctuations de basse énergie du

système et il est possible que, parce qu'elles ne prennent pas en compte les fluctuations locales de type Kondo, les théories sur les transitions de phase quantiques ne soient pas adaptées aux systèmes à fermions lourds. On discutera de ce point dans la deuxième Partie de ce manuscrit, en s'appuyant sur des résultats obtenus par diffusion inélastique des neutrons sur $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$.

Dans la Section suivante, nous considérons le comportement en lois d'échelles de E/T^β prévu par un tel modèle pour les propriétés dynamiques du système au voisinage de la transition de phase quantique.

1.3.2.1 Lois d'échelles en E/T^β

Les lois d'échelles "de taille finie" sont présentées d'abord dans le cas d'un système dont la taille est finie dans une direction x de l'espace géométrique. Nous présentons ensuite comment une loi d'échelle "de taille finie" en E/T peut être obtenue dans le cas d'un système quantique devenant classique lorsque la température s'élève. Finalement, nous considérons les lois prévues dans le cadre des théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant.

Sur la Figure 1.10 a), on représente par un cercle un échantillon 2D, dont la taille est grande selon la direction y et est égale à L selon x, ξ correspondant à la longueur de corrélation du système. Lorsque $L \gg \xi$, les propriétés physiques varient comme une fonction $F(x/\xi)$ et les corrélations ont une dimension $d = 2$. Par contre, lorsque $L \ll \xi$ c'est alors la longueur finie L qui caractérise les propriétés physiques du système selon x : ces dernières varient comme une fonction $F(x/L)$ et elles correspondent à une dimension $d = 1$. On parle de loi d'échelle de "taille finie" (de l'anglais "finite size scaling", cf. [Plischke 94]) lorsqu'on considère le "cross-over" correspondant à la diminution progressive de la taille L du système selon une direction, ce qui correspond à une réduction de la dimensionnalité du système.

Dans le cas d'un système quantique, on peut décrire ses fluctuations avec une dimension effective $d^* = d + z$. La dimension supplémentaire z est reliée à une direction it correspondant à un temps imaginaire. Le pendant de la longueur de corrélation ξ des fluctuations dans la dimension d est le temps de relaxation τ dans la dimension z, la "taille finie" étant alors fixée par $1/T$ [Sondhi 97]. Lorsque la température augmente, $1/T$ diminue et à l'instar de l'image de la Figure 1.10 a), on obtient sur la Figure 1.10 b) un passage progressif d'un régime quantique de dimension $d^* = d + z$ à un régime classique de dimension d. Le régime quantique obtenu pour $1/T \gg \tau$, correspond aux températures $T \ll \Gamma(T = 0)/k_B$, où $\Gamma(T = 0) = 1/\tau$ est le taux de relaxation du système aux basses températures. Les propriétés physiques varient alors comme une fonction $F(t/\tau) = f(E/\Gamma(T = 0))$. Le second régime $1/T \ll \tau$ correspond quant à lui aux températures $T \gg \Gamma(T = 0)/k_B$, où $\Gamma(T)/k_B = T$ et où les propriétés physiques liées aux fluctuations varient selon une loi d'échelle en $F(t/(1/T)) = f(E/T)$. Sur la Figure 1.10 c), on montre l'évolution du taux de relaxation $\Gamma(T)$ des fluctuations critiques attendues pour un système au voisinage d'une transition de phase quantique, dans la phase paramagnétique $\delta > \delta_c$.

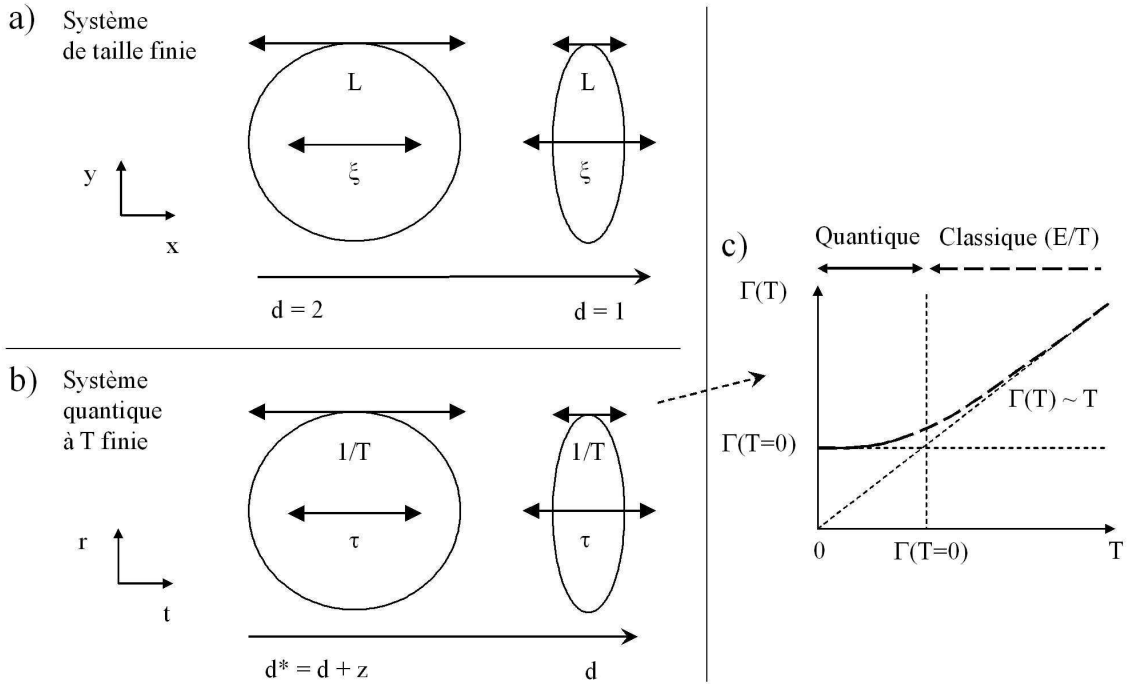

FIG. 1.10 – *Lois d'échelle de "taille finie" a) dans un système de taille finie dans la direction x de l'espace géométrique, b) dans un système quantique à température finie. Variations du taux de relaxation des fluctuations critiques c) d'un système proche de son instabilité magnétique, d) en son instabilité magnétique. Ces Figures sont décrites en détail dans le texte.*

Une valeur finie $\Gamma(T) = \Gamma(T = 0)$ est prévue aux basses températures $T < \Gamma(T = 0)/k_B$, ce qui correspond au régime quantique liquide de Fermi. Aux températures $T > \Gamma(T = 0)/k_B$, le régime classique est attendu où $\Gamma(T) \sim T$.

Dans les théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant, la transition est du second ordre et on s'attend à ce que les fluctuations divergent à l'instabilité magnétique δ_c pour $T \to 0$. Cela signifie que $\Gamma(T = 0) \to 0$ et que le régime classique gouverné par T doit être suivi jusqu'à $T \to 0$. De plus, il est prévu qu'une loi d'échelle en E/T^β, avec $\beta = (d + z - 2)/z$, caractérise les fluctuations critiques (pour un système où $d + z \geq 4$) [Hertz 76, Millis 93, Continentino 01], au lieu de la loi en E/T obtenue dans l'image simple précédente. Dans la deuxième Partie de ce manuscrit, nous considérerons très précisément la variation du taux de relaxation des fluctuations antiferromagnétiques du système à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, lorsqu'il est en son instabilité magnétique et lorsqu'il est dans un état paramagnétique proche de l'instabilité. Nous discuterons des résultats alors obtenus et les comparerons aux prévisions des modèles sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant.

1.3.3 Autres scenarii

Afin d'expliquer les comportements non liquide de Fermi obtenus aux instabilités magnétiques de systèmes à fermions lourds, un scénario de fluctuations de spin critiques d'origine locale a été proposé par Si et al. [Si 01, Coleman 02]. Ce travail a été motivé par l'obtention par Schröder et al. d'une loi d'échelle de la susceptibilité dynamique en $T^{\alpha}\chi''(E,T) = g(E/T)$, avec l'exposant anormal $\alpha = 0.75$, dans le système $CeCu_{6-x}Au_x$ en sa concentration critique $x_c = 0.1$ [Schröder 00]. Une même forme de loi d'échelle ayant été obtenue en tout vecteur $\mathbf{k}$ du réseau réciproque et jusqu'aux plus faibles températures accessibles, il a été déduit que les fluctuations de spin qui gouvernent la transition sont de nature locale[3]. Dans le scenario de Si et al., l'instabilité magnétique est gouvernée par la divergence des fluctuations locales, ce qui se traduit par l'annulation de la température E^*_{loc} caractéristique des fluctuations locales et de la phase liquide de Fermi. Ainsi, la transition de phase quantique est caractérisée par le passage d'une phase paramagnétique où le magnétisme est itinérant à une phase ordonnée où le magnétisme est localisé. Le scenario de Si s'oppose donc aux modèles où le système est itinérant de part et d'autre de la transition [Millis 93, Moriya 95]. Dans ces modèles, ce sont les fluctuations corrélées spatialement qui divergent à la transition : la température E^*_{loc} est non-nulle à la transition et correspond alors à la température de Kondo du système. On compare sur la Figure 1.11 les diagrammes de phase obtenus pour les deux types de transition, l'axe des abscisses correspondant à un paramètre ajustable δ. Dans cette Figure, la température T_N caractérisant l'ordre magnétique s'annule en $\delta = \delta_c$ alors que E^*_{loc} s'annule en $\delta = \delta_{loc}$. Dans un scenario où les fluctuations critiques sont corrélées, les fluctuations locales ne sont pas critiques et on a $\delta_{loc} > \delta_c$. Dans le scenario où les fluctuations critiques sont locales, on a $\delta_{loc} = \delta_c$ et la transition de phase a lieu lorsque E^*_{loc} s'annule, c'est à dire lorsque les fluctuations locales divergent. Ainsi, il est attendu que le comportement non-liquide de Fermi soit uniquement dû à la divergence des fluctuations de spin locales.

Un autre scénario local est envisageable pour expliquer la transition de phase quantique qui caractérise un système à fermions lourds. Lorsqu'un paramètre ajustable δ est modifié, cela revient à changer l'hybridation V entre électrons localisés et électrons de conduction, ce qui résulte en une modification des températures caractéristiques T_K et T_{RKKY} du système. On a vu dans la Section 1.2.1 que le régime Kondo d'un système à fermions lourds correspond à des valeurs faibles de l'hybridation V, alors que pour des valeurs élevées de V le système peut être dans un régime de valence intermédiaire. Il est ainsi possible que dans certains cas la transition de phase quantique soit gouvernée par une transition entre un régime Kondo de valence entière, caractérisé par une faible température de Kondo, et un régime de valence intermédiaire caractérisé par une grande température de Kondo [Flouquet 04]. La transition serait alors induite par un changement de la valence du système, c'est à dire par un changement

3. Notons qu'il ne faut pas confondre magnétisme localisé et magnétisme local : le magnétisme localisé provient d'électrons localisés dans l'espace réel (cf. Section 1.1.1) alors que le magnétisme local est un magnétisme non-corrélé spatialement, c'est à dire indépendant du vecteur d'onde $\mathbf{k}$.

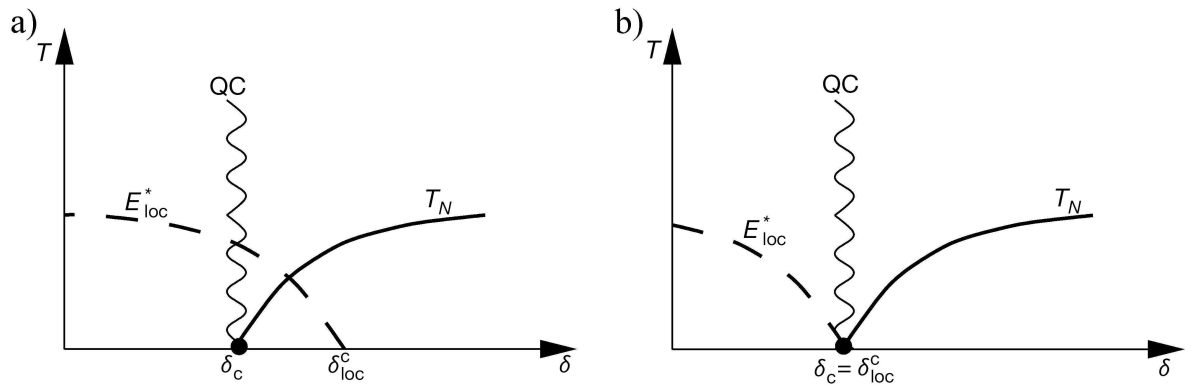

FIG. 1.11 – *Comparaison des diagrammes de phase correspondant a) à une transition gouvernée par des fluctuations de spin corrélées, et b) à une transition gouvernée par des fluctuations locales [Si 01]. δ est un paramètre ajustable, T_N est la température de l'ordre magnétique et E^*_{loc} est la température caractéristique des fluctuations locales.*

de la localisation des électrons f auquel peut être associé un changement de la surface de Fermi.

Chapitre 2

Diffusion magnétique des neutrons

Dans ce Chapitre, nous présentons d'abord les propriétés générales de la diffusion des neutrons sur un système magnétique. Nous abordons ensuite l'aspect expérimental en considérant les spectromètres à neutrons utilisés dans cette thèse. Finalement, on présente les différentes composantes des spectres obtenus aux neutrons pour des systèmes à fermions lourds.

2.1 Généralités [Marshall 71, Squires 78]

2.1.1 Présentation

La diffusion des neutrons permet de sonder les propriétés structurales et magnétiques de la matière, qu'elles soient statiques ou dynamiques. En effet, un neutron interagit d'une part avec les noyaux atomiques mais aussi avec les moments magnétiques, du fait de son spin 1/2. La longueur d'onde des neutrons produits dans un réacteur (ou dans un source à spallation) est de l'ordre de 1-10 Å, ce qui fait que leur diffusion permet d'étudier les propriétés des matériaux à l'échelle atomique. Parce qu'ils ont des énergies de l'ordre de 1-100 meV, les neutrons sont de plus parfaitement adaptés à l'étude des excitations de la matière condensée. Un dernier atout provient du fait que le neutron est électriquement neutre. Il ne subit donc pas d'interaction coulombienne et il a une grande longueur de pénétration dans la matière : contrairement à d'autres techniques, la diffusion des neutrons permet ainsi de sonder les propriétés volumiques de la matière, et ce de manière microscopique.

Lors de son interaction avec la matière, un neutron passe d'un état initial de vecteur d'onde $\mathbf{k}_i$ et d'énergie $E_i = \hbar^2 k_i^2/2m$ à un état final de vecteur d'onde $\mathbf{k}_f$ et d'énergie $E_f = \hbar^2 k_f^2/2m$, m étant la masse du neutron. Il cède au système un transfert de moment $\mathbf{Q}$ et un transfert d'énergie E donnés par :

$$\begin{aligned} \mathbf{Q} &= \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f \\ \text{et} \quad E &= E_i - E_f. \end{aligned} \tag{2.1}$$

Si $\hat{V}$ est l'interaction entre les neutrons et la matière, la section efficace différentielle de diffusion des neutrons est donnée par la règle d'or de Fermi et vaut :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i}\left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \sum_{\lambda_i\lambda_f} p_{\lambda_i} |\langle \mathbf{k}_f\lambda_f|\hat{V}|\mathbf{k}_i\lambda_i\rangle|^2 \delta(E + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}), \tag{2.2}$$

où Ω est l'angle solide de diffusion, λ_i et λ_f les états initiaux et finaux du système étudié et où p_{λ_i} est la probabilité du système d'être dans l'état λ_i.

On présente dans les Sections suivantes les deux types d'interactions entre les neutrons et la matière : la première est l'interaction nucléaire entre les neutrons et les noyaux et la seconde est l'interaction dipolaire entre les moments magnétiques des neutrons et de la matière.

2.1.2 Diffusion nucléaire des neutrons

Lorsque la diffusion des neutrons est nucléaire, on doit considérer le potentiel d'interaction :

$$\hat{V} = \frac{2\pi\hbar^2}{m}\sum_j b_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R_j}), \tag{2.3}$$

où $\mathbf{r}$ est la position du neutron, $\mathbf{R}_j$ la position et b_j et la longueur de diffusion d'un atome j, et la section efficace de diffusion nucléaire des neutrons (2.2) s'écrit alors sous la forme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i}\sum_{\lambda_i\lambda_f} p_{\lambda_i} |\langle\lambda_f| \sum_j b_j e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R_j}} |\lambda_i\rangle|^2 \delta(E + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}). \tag{2.4}$$

Des pics de Bragg nucléaires (de transfert d'énergie $E = 0$) sont obtenus aux vecteurs $\boldsymbol{\tau}$ caractéristiques de la structure cristalline du système, et des pics inélastiques (de transfert d'énergie $E \neq 0$) sont obtenus aux énergies $E(\mathbf{Q})$ caractéristiques des propriétés dynamiques nucléaires, comme par exemple les phonons d'un solide.

2.1.3 Diffusion magnétique des neutrons

Dans le cas de la diffusion magnétique des neutrons sur un moment $\mathbf{M}$, le potentiel d'interaction vaut :

$$\hat{V} = -\boldsymbol{\mu}_n.\mathbf{H}, \tag{2.5}$$

où $\boldsymbol{\mu}_n$ est le moment porté par le neutron et où $\mathbf{H}$ est le champ magnétique créé par le moment $\mathbf{M}$. A partir du potentiel d'interaction magnétique dipolaire (2.5), la règle d'or de Fermi (2.2) peut être réécrite sous la forme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = (\gamma r_0)^2 \frac{k_f}{k_i}\left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \sum_{{}_i\lambda_i\ {}_f\lambda_f} p\ {}_i p_{\lambda_i} |\langle\boldsymbol{\sigma}_f\lambda_f|\boldsymbol{\sigma}_i.\mathbf{M}_\perp|\boldsymbol{\sigma}_i\lambda_i\rangle|^2 \delta(E + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}), \tag{2.6}$$

où $\boldsymbol{\sigma}_i$ et $\boldsymbol{\sigma}_f$ sont les états de spin initial et final du neutron et où $\mathbf{M}_\perp$ est la composante de $\mathbf{M}$ perpendiculaire au transfert de moment $\mathbf{Q}$. γ est le rapport gyromagnétique et $r_0 = e^2/m_e c^2$ est le rayon "classique" de l'électron, e et m_e étant la charge et la masse d'un électron et c étant la vitesse de la lumière. On peut réécrire (2.6) sous la forme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \left(\frac{\gamma r_0}{2\mu_B}\right)^2 \frac{k_f}{k_i} N f^2(\mathbf{Q}) e^{-2W(\mathbf{Q})} \sum_{\alpha\beta} \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{Q_\alpha Q_\beta}{Q^2}\right) S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E), \tag{2.7}$$

où N est le nombre d'ions portant un moment magnétique, $f(\mathbf{Q})$ le facteur de forme magnétique et où $W(\mathbf{Q})$ le facteur de Debye-Waller. α et β correspondent à x, y ou z, et $S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$ est la fonction de diffusion définie par :

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) = \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{ij} \int_{-\infty}^{\infty} \langle \mathbf{M}_{\alpha i}(0) \mathbf{M}_{\beta j}(t) e^{-i\mathbf{Q}(\mathbf{R}_i(0)-\mathbf{R}_j(t))} \rangle e^{-iEt/\bar{h}} dt, \tag{2.8}$$

où $\mathbf{R}_i(t)$ est la position du moment d'indice i au temps t et où $\langle\ \rangle$ est une moyenne sur les valeurs de λ_i.

Lorsqu'un système est ordonné magnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}$, un pic de Bragg magnétique élastique ($E = 0$) est obtenu pour les transferts de moment $\mathbf{Q} = \boldsymbol{\tau} \pm \mathbf{k}$, où $\boldsymbol{\tau}$ correspond à un pic de Bragg nucléaire. De même, des excitations magnétiques corrélées avec un vecteur d'onde $\mathbf{k}$ seront mesurées en un transfert de moment $\mathbf{Q} = \boldsymbol{\tau} \pm \mathbf{k}$. D'après le théorème de fluctuation-dissipation on peut réécrire (2.8) sous la forme :

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) = \frac{1}{\pi} \frac{1}{1 - e^{-E/k_B T}} \chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E), \tag{2.9}$$

où $\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$ est la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$. On note $\chi'_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$ la partie réelle de la susceptibilité dynamique $\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$, de telle manière que :

$$\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) = \chi'_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) + i\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E). \tag{2.10}$$

On rappelle que la susceptibilité dynamique $\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$ est définie par :

$$\mathbf{M}_\alpha(\mathbf{Q},E) = \sum_\beta \chi_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) \mathbf{H}_\beta(\mathbf{Q},E), \tag{2.11}$$

où $\mathbf{M}(\mathbf{Q},E)$ est l'aimantation induite par un champ $\mathbf{H}(\mathbf{Q},E)$. Notons que la relation de Kramers-Krönig :

$$\chi'_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E_0)}{E_0 - E} dE_0 \tag{2.12}$$

permet d'obtenir la partie réelle de la susceptibilité dynamique à partir de sa partie imaginaire. Sachant que la susceptibilité dc est une mesure statique correspondant à un transfert de moment

$\mathbf{Q} = 0$ et qu'elle correspond à une mesure faite selon la direction du champ appliqué, on peut donc la relier aux mesures de diffusion des neutrons par la relation :

$$\chi_{bulk,\alpha} = \chi'_{\alpha\alpha}(\mathbf{Q} = 0,E = 0) = \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''_{\alpha\alpha}(\mathbf{Q} = 0,E_0)}{E_0} dE_0 \tag{2.13}$$

On retiendra que la diffusion inélastique des neutrons donne accès à la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$, et que les transferts de moments $\mathbf{Q}$ et les transferts d'énergie E accessibles par cette technique sont parfaitement adaptés à l'étude des propriétés microscopiques de la matière condensée.

2.2 Instruments de diffusion inélastique des neutrons

Les expériences de diffusion neutronique rapportées dans ce manuscrit ont été faites dans trois instituts différents : les réacteurs de l'Institut Laue-Langevin (ILL) à Grenoble et du laboratoire Léon Brillouin (LLB) à Saclay, et la source à spallation ISIS à Didcot (au Royaume-Uni). Elles ont été faites en utilisant les spectromètres trois axes IN12 et IN22 de l'ILL, 4F1 et 4F2 du LLB, ainsi que les spectromètres à temps de vol à géométrie directe IN6 de l'ILL et MARI d'ISIS, et le spectromètre à temps de vol à géométrie indirecte IRIS d'ISIS. Ces deux types d'instruments sont les moyens traditionnels d'étudier les excitations magnétiques d'un système par diffusion inélastique des neutrons. Un spectromètre à temps de vol permet d'obtenir rapidement une carte des excitations dans l'espace $(\mathbf{Q},E)$ et est en général utilisé de manière préliminaire. Un spectromètre trois axes permet quant à lui de mesurer les excitations point par point dans l'espace $(\mathbf{Q},E)$, ce qui fait que ce type d'instrument est plutôt utilisé pour faire une étude plus précise des excitations. Nous présentons ici quelques caractéristiques de ces spectromètres.

2.2.1 Les spectromètres trois axes

La plupart des expériences de cette thèse ont été faites sur des spectromètres trois-axes, dont le schéma de principe est montré sur la Figure 2.1 a). Ces spectromètres tirent leur nom des trois axes (verticaux) suivants : l'axe du monochromateur (m), l'axe de l'échantillon (e) et l'axe de l'analyseur (a). A chacun de ces axes sont associés deux degrés de liberté : le premier correspond à la rotation ω_j de l'élément j ($= m$, e ou a) sur lui-même, et le second correspond à l'angle de diffusion $2\theta_j$ sur l'élément j. Ces instruments permettent l'étude des excitations point par point dans l'espace $(\mathbf{Q},E)$, $\mathbf{Q}$ étant dans le plan horizontal. A partir d'un faisceau polychromatique de neutrons provenant du réacteur, on sélectionne les neutrons d'énergie incidente E_i à l'aide du monochromateur. Les neutrons diffusent ensuite sur l'échantillon et ceux d'énergie finale E_f sont sélectionnés sur l'analyseur puis comptés sur le détecteur. Dans la Figure 2.1 b), on illustre la loi de conservation des moments de la Formule (2.1) pour un spectromètre trois axes dont la

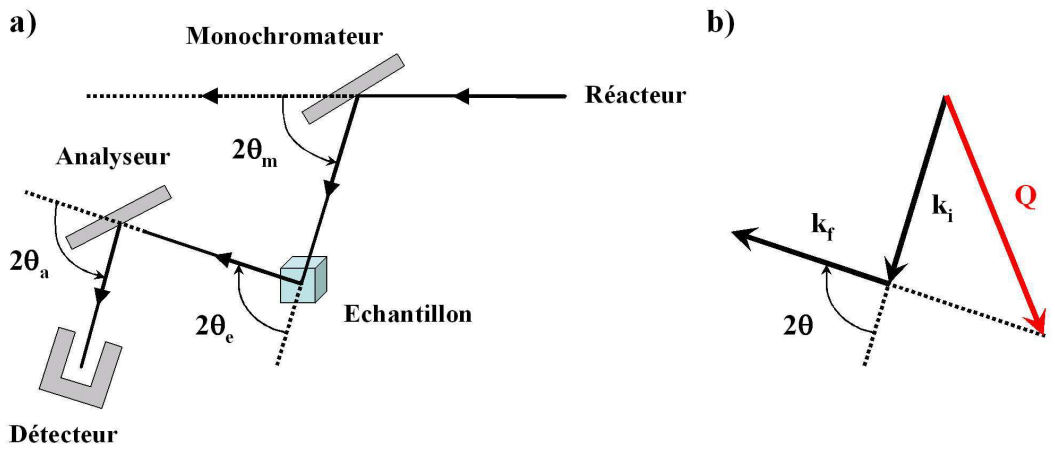

FIG. 2.1 – *a) Schéma représentant les éléments principaux d'un spectromètre trois-axes. b) Illustration de la loi de conservation des moments exprimée en (2.1) et (2.14).*

configuration est celle de la Figure 2.1 a). Si on note $2\theta = 2\theta_e$ l'angle de diffusion du neutron sur l'échantillon (défini entre le vecteur d'onde incident $\mathbf{k}_i$ et le vecteur d'onde final $\mathbf{k}_f$) alors on peut réécrire (2.1) sous la forme :

$$\frac{\hbar^2 Q^2}{2m} = E_i + E_f - 2\sqrt{E_i E_f} cos(2\theta). \tag{2.14}$$

A un couple ($\mathbf{Q}$,E) correspond donc l'angle 2θ obtenu en utilisant (2.14). Finalement, l'angle ω_e permet d'ajuster la direction de $\mathbf{Q}$ sur une direction particulière du cristal. Notons que les expériences sur spectromètre trois axes sont généralement faites à énergie finale E_f fixée, donc à k_f fixé. Cela permet de s'affranchir du facteur en k_f/k_i de la section efficace de diffusion (2.7), l'intensité de diffusion étant par ailleurs normalisée par un moniteur dont l'efficacité est proportionnelle à $1/k_i$[1].

2.2.2 Les spectromètres à temps de vol

Sachant que la vitesse $\mathbf{v}$ d'un neutron est proportionnelle à son vecteur d'onde $\mathbf{k}$, on peut déduire son énergie $E = \hbar k^2/2m$ du temps qu'il met pour parcourir une distance connue. C'est le principe de fonctionnement d'un spectromètre à temps de vol, où les neutrons sont envoyés sur l'échantillon par impulsions afin de pouvoir déterminer leur temps de vol. Cette technique couplée à l'utilisation d'une banque de détecteurs présente l'avantage de pouvoir obtenir en une seule mesure des spectres correspondant à une grande partie de l'espace réciproque. On peut donc avoir assez rapidement un aperçu global du spectre des excitations d'un système, ce qui n'est pas possible sur un spectromètre trois-axes. Comme le faisceau est pulsé, des temps

1. Du fait de la réflection des neutrons sur l'analyseur, il y a en fait un facteur supplémentaire en $k_f^3 cotan\theta_a$, qui est constant pour E_f fixée.

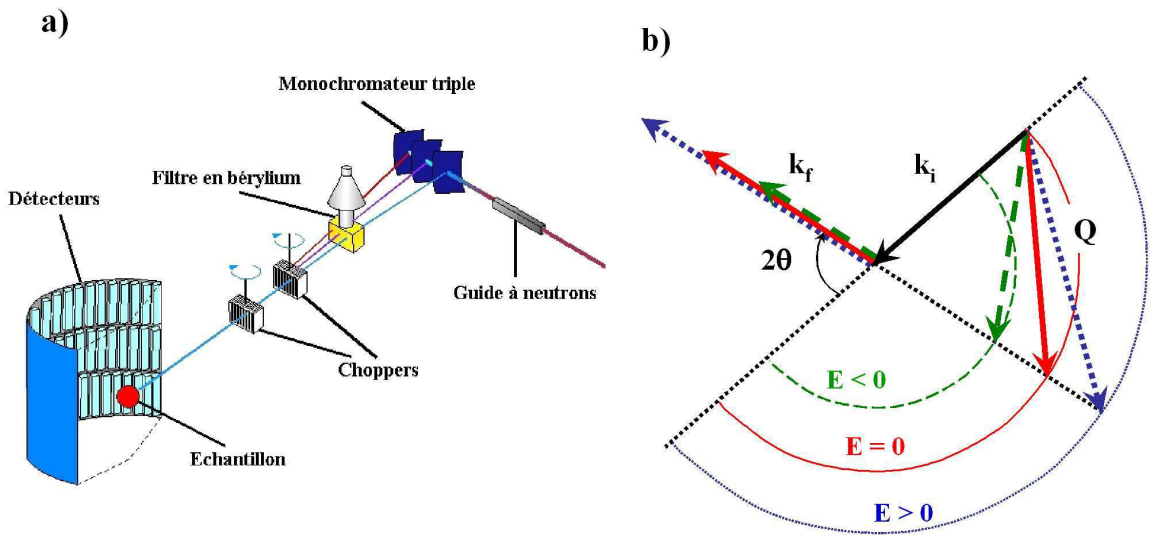

FIG. 2.2 – *a) Schéma du spectromètre à temps de vol IN6 de l'ILL. b) Illustration de la loi de conservation des moments exprimée en (2.14) pour une mesure faite sur spectromètre à temps de vol à géométrie directe. Les cercles sont des lignes de transfert d'énergie constant.*

de comptage assez longs (de l'ordre de plusieurs heures à une journée, selon les conditions de l'expérience) sont cependant nécessaires pour chaque mesure. Le désavantage principal de la spectrométrie à temps de vol est de ne pas pouvoir obtenir de spectre en un vecteur **Q** constant à partir des données d'une même mesure, ce qui limite la pertinence des mesures obtenues lorsque les spectres sont anisotropes. Pour cette raison, l'utilisation d'un spectromètre à temps de vol est en général consacrée à l'étude de composés polycristallins. En ce qui concerne l'étude de composés monocristallins, elle est cependant facilitée par le développement de programmes de visualisation de données tels que Mslice et Tobyplot par M. Coldea et T. Perring, à ISIS (Didcot, Royaume-Uni). Dans ce dernier cas, il est en général nécessaire de compléter l'étude sur temps de vol par une étude sur trois-axes, où on peut extraire les spectres point par point dans l'espace (**Q**,E). Nous présentons ici les caractéristiques des deux types de spectromètres à temps de vol : les spectromètres à géométrie directe et de ceux à géométrie indirecte.

Les spectromètres à temps de vol à géométrie directe sont des spectromètres où on envoie des impulsions de neutrons d'énergie initiale fixée à E_i . L'énergie finale est variable et est déterminée à partir du temps de vol du neutron entre l'échantillon et le détecteur. On montre sur la Figure 2.2 a) le schéma de principe d'un tel spectromètre, en l'occurrence IN6 de l'ILL. Un monochromateur sélectionne les neutrons d'énergie incidente E_i qui sont ensuite pulsés par des choppers. Les neutrons diffusent sur l'échantillon et sont collectés et par une banque de détecteurs placés à une distance de l'ordre de 2.5 m de l'échantillon. Il y a trois rangées de détecteurs, l'une dans le plan horizontal, les deux autres légèrement au dessus et en dessous de la première. Pour faciliter cette présentation des spectromètres, nous ne considérons que les

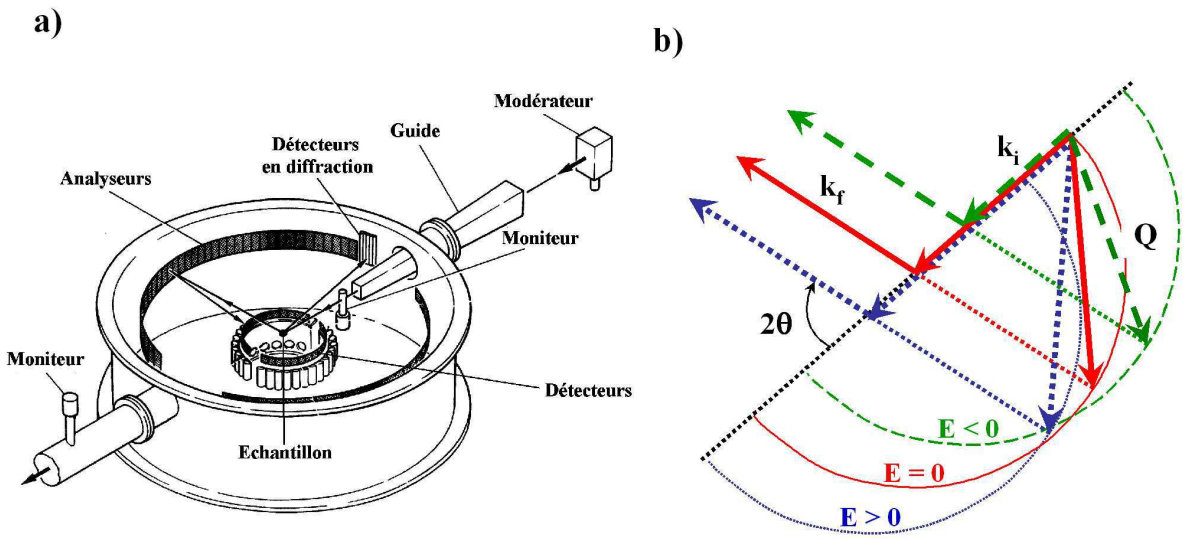

FIG. 2.3 – *a) Schéma du spectromètre à temps de vol IRIS d'ISIS. b) Illustration de la loi de conservation des moments exprimée en (2.14) pour une mesure faite sur spectromètre à temps de vol à géométrie indirecte. Les cercles sont des lignes de transfert d'énergie constant.*

détecteurs du plan horizontal. A partir des équations (2.1) de conservation des moments et des énergies, on obtient :

$$(Q_x - k_i)^2 + Q_y^2 = k_f^2, \tag{2.15}$$

où Q_x et Q_y sont les composantes de $\mathbf{Q}$ respectivement parallèle et perpendiculaire à $\mathbf{k}_i$ dans le plan horizontal. Dans l'espace réciproque, les lignes de transfert d'énergie constant sont donc des cercles centrés en ($Q_x = k_i$, $Q_y = 0$) et de rayon égal à k_f. La Figure 2.2 b) montre les cercles obtenus pour des transferts d'énergies $E < 0$, $E = 0$ et $E > 0$ dans le cas d'un spectromètre à géométrie directe : k_i est alors fixé et les différents cercles de rayons k_f sont concentriques. Chaque détecteur correspond à un angle de diffusion 2θ et mesure donc un spectre pour lequel $\mathbf{Q}$ varie en même temps que E.

On montre sur la Figure 2.3 a) le schéma du spectromètre à temps de vol à géométrie inversée IRIS, de la source à spallation ISIS. Ce spectromètre présente l'avantage d'avoir une très bonne résolution en énergie, cette dernière pouvant aller jusqu'à 15 μeV. Un tel instrument fonctionne en fixant l'énergie finale E_f des neutrons, l'énergie initiale E_i étant déterminée par le temps de vol que mettent les neutrons pour atteindre l'échantillon. A partir du faisceau pulsé provenant de la source à spallation, un faisceau blanc de basses énergies est obtenu à l'aide d'un modérateur et est guidé sur l'échantillon. Après leur diffusion sur l'échantillon, les neutrons d'énergie finale E_f sont sélectionnés en rétrodiffusion par une banque d'analyseurs placés dans le plan autour de l'échantillon, puis ils sont comptés dans une banque de détecteurs placés au voisinage de l'échantillon. La très bonne résolution en énergie d'IRIS provient de l'analyse des

neutrons avec un angle $2\theta_a$ de l'ordre de 170 °. Pour une mesure faite sur un spectromètre à géométrie inversée, les points de l'espace réciproque correspondant à des transferts d'énergie E constant sont des cercles ayant la même équation (2.15) que dans le cas d'une géométrie directe. On montre sur la Figure 2.3 b) les cercles de correspondant à $E < 0$, $E = 0$ et $E > 0$, dans le cas d'une géométrie indirecte. Leur rayon est alors indépendant de E car l'énergie finale E_f des neutrons est fixée. Par contre, ils ne sont plus concentriques, comme c'était le cas pour une géométrie directe. En effet, la position ($Q_x = k_i$, $Q_y = 0$) de leurs centres dépend de E, l'énergie initiale E_i et donc le moment initial k_i étant variables. Là encore, on voit à travers un exemple que pour un angle de diffusion 2θ donné, c'est à dire en un même détecteur, les transferts d'énergie mesurés varient fortement avec le transfert de moment $\mathbf{Q}$.

2.3 Caractéristiques de la diffusion des neutrons sur les composés à fermions lourds

La section efficace de diffusion des neutrons est proportionnelle au facteur de forme magnétique $f(\mathbf{Q})$ au carré, qui est la transformée de Fourier de la densité d'aimantation (cf. Formule (2.7)). Lorsqu'on considère un système électronique très délocalisé, $f(\mathbf{Q})$ peut être considéré comme nul pour tout $\mathbf{Q} \neq 0$, et il n'est pas possible de faire de mesure du spectre des excitations par diffusion inélastique des neutrons. Un système à fermions lourds est constitué d'électrons de type f portés par les atomes de terres rares et d'électrons de conduction délocalisés sur tout le réseau. A cause de leur facteur de forme, il n'est pas possible d'étudier les propriétés magnétiques des électrons de conduction par diffusion inélastique des neutrons. Seules les propriétés magnétiques relatives aux électrons portés sur les orbitales f sont alors accessibles. On montre dans cette Section en quoi les spectres des excitations d'un système d'électrons f soumis à l'effet Kondo sont modifiés par rapport aux spectres d'un système parfaitement localisé.

Sur les Figures 2.4 a) et b), on présente de manière schématique l'allure des spectres obtenus par diffusion inélastique des neutrons respectivement sur un système parfaitement localisé et sur un système à fermions lourds. Dans ces graphes, on suppose que les échelles d'énergie sont dans l'ordre $T_K < \Delta_{CF} < \Delta_{SO}$, où T_K est la température de Kondo associée au niveau fondamental, Δ_{CF} l'énergie caractéristique du champ cristallin et où Δ_{SO} est l'énergie caractéristique du couplage spin-orbite. Une faible intensité de diffusion est obtenue aux transferts d'énergie E négatifs si $\mid E \mid > T$, du fait de la condition de balance détaillée :

$$S(-E,T) = exp(-E/k_B T)S(E,T). \tag{2.16}$$

Nous considérons ici le cas où les corrélations spatiales et l'anisotropie sont négligées et où la fonction de diffusion $S(E,T)$ correspond à :

$$S(E,T) = S(\mathbf{Q},E,T) = \sum_{\alpha\beta} \left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{Q_\alpha Q_\beta}{Q^2} \right) S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E,T), \tag{2.17}$$

où $S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q},E)$ est définie par l'équation (2.8). Finalement, on peut réécrire $S(E,T)$ sous la forme :

$$S(E,T) = \sum_{nm} \frac{exp(-E_n/k_BT)}{Z} \, |\langle n|M_\perp|m\rangle|^2 \, \delta(E_n - E_m - E), \tag{2.18}$$

où n et m correspondent aux niveaux électroniques d'énergie E_n et E_m, et où Z est la fonction de partition.

Dans un cas parfaitement localisé (Figure 2.4 a)), les excitations de champ cristallin et de couplage spin-orbite sont très bien définies, ce quelle que soit la température. Le pic central correspond à la somme du pic élastique incohérent nucléaire et du pic associé aux fluctuations magnétiques entre les niveaux du fondamental. La largeur de ces pics provient alors de la seule résolution expérimentale. A l'inverse, on montre sur la Figure 2.4 b) que dans un système à fermions lourds, le spectre obtenu aux neutrons est composé d'excitations de champ cristallin et de couplage spin-orbite fortement élargies. Un signal amorti et de largeur égale à la température de Kondo est par ailleurs obtenu aux basses énergies, ce dernier correspondant aux

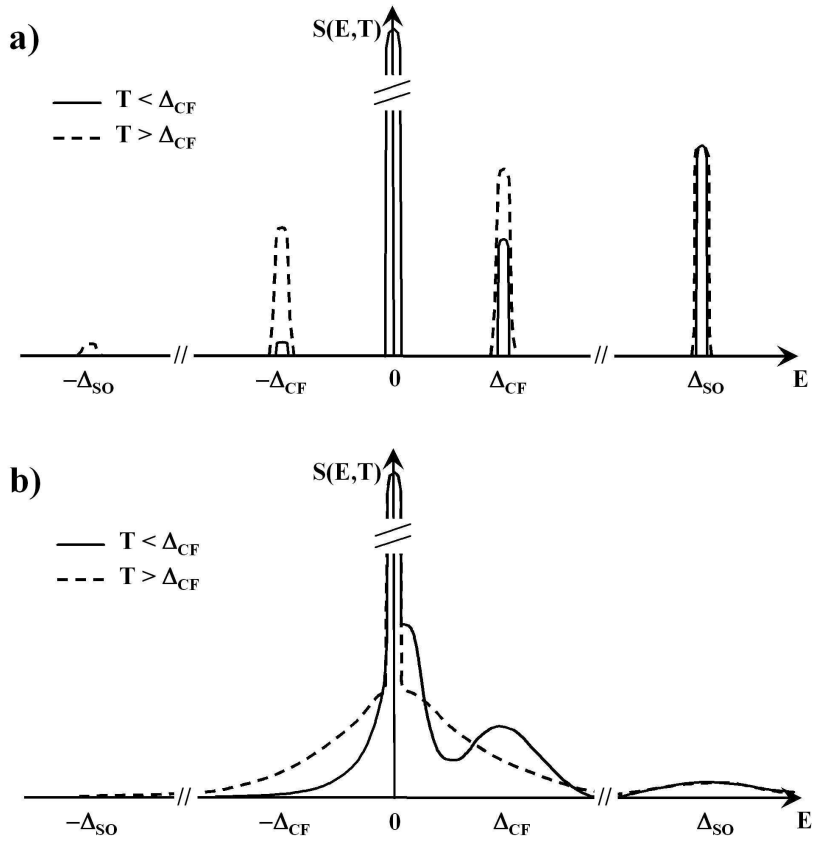

FIG. 2.4 – *Représentation schématique des spectres obtenus par diffusion inélastique des neutrons a) sur un système localisé et b) sur un système à fermions lourds.*

fluctuations de spin du niveau fondamental. On verra dans les deuxième et troisième Parties de ce manuscrit que ces fluctuations de basse énergie peuvent dépendre du transfert de moment $\mathbf{Q}$. Lorsque la température augmente, les excitations d'énergie Δ_i sont de moins en moins bien définies et elles ne sont plus discernables pour $T \gtrapprox \Delta_i$. Dans un composé à fermions lourds, le système des électrons f est donc d'une part suffisamment localisé pour que les niveaux de champ cristallin et de couplage spin-orbite puissent être définis dans le spectre des excitations. D'autre part, son caractère délocalisé se manifeste par un élargissement des niveaux qui est tel qu'aux hautes températures les excitations de champ cristallin et de couplage spin-orbite ne sont plus discernables par diffusion inélastique des neutrons.

Les propriétés dynamiques d'un système localisé et d'un système à fermions lourds sont donc très différentes à toute température. Par contre, il est remarquable que pour $T > T_K$, les propriétés statiques d'un système à fermions lourds ne peuvent pas être différenciées de celles d'un système parfaitement localisé. En effet, la susceptibilité statique d'un système à fermions lourds suit les lois de Van Vleck prévues pour des niveaux localisés de champ cristallin et de couplage spin-orbite [van Vleck 32]. Rappelons finalement que la susceptibilité statique et la susceptibilité dynamique sont liées par la relation de Kramers-Krönig (2.12), la susceptibilité dynamique étant liée à la section efficace de diffusion des neutrons par (2.7) et (2.9).

Deuxième partie

Etude par diffusion inélastique des neutrons de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Chapitre 3

Présentation du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Dans ce chapitre, on présente les propriétés électroniques du système à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$. Le composé pur $CeRu_2Si_2$ est évoqué dans un premier temps, les effets du dopage, de la pression et du champ magnétique dans un second temps. On insistera sur le caractère itinérant de ce réseau Kondo où de fortes corrélations conduisent à des instabilités magnétiques.

3.1 Le composé à fermions lourds $CeRu_2Si_2$

3.1.1 Propriétés générales

$CeRu_2Si_2$ cristallise dans une structure tétragonale de type $ThCr_2Si_2$, à laquelle correspond le groupe d'espace $I4/mmm$. Les paramètres de maille du réseau valent $a = b = 4.196$ Å et $c = 9.797$ Å à température ambiante. Les électrons $4f$ portés par les sites de cérium sont dans un état de couplage spin-orbite $J = 5/2$ de dégénérescence totale $N = 6$. Besnus et al. ont mesuré la chaleur spécifique de $CeRu_2Si_2$ et ont obtenu la contribution magnétique $C_m(T)$ tracée sur la Figure 3.1 [Besnus 85]. Pour $T < 3$ K, $C_m(T)$ est linéaire avec la température, la valeur élevée du coefficient de Sommerfeld $\gamma = C_m(T)/T \simeq 350$ mJ.mol.$^{-1}$K^{-2} traduisant le caractère "fermion lourd" du composé [Besnus 85, Steglich 85, Thompson 85, Fisher 91]. L'analyse de Besnus et al. indique que l'état fondamental du système est un doublet. En effet, l'entropie magnétique $S(T)$ obtenue après intégration de $C_m(T)/T$ augmente avec T en s'approchant lentement de la valeur $R\ln 2$ pour $T < 20$ K (cf. Insert de la Figure 3.1). Ce doublet fondamental provient de la levée de la dégénérescence du sextuplet $J = 5/2$ par le Hamiltonien de champ cristallin :

$$H_{CF} = B_2^0 O_2^0 + B_4^0 O_4^0 + B_4^4 O_4^4, \tag{3.1}$$

dont les états propres sont les trois doublets :

$$\begin{aligned} |\Gamma_{7\pm}^1\rangle = &\ a|\pm 5/2\rangle - b|\mp 3/2\rangle, \\ |\Gamma_{7\pm}^2\rangle = &\ b|\pm 5/2\rangle + a|\mp 3/2\rangle, \end{aligned}$$

$$\text{et} \quad |\Gamma_{6\pm}\rangle = \ |\pm 1/2\rangle, \ \text{avec} \ \ a^2 + b^2 = 1. \tag{3.2}$$

Aux basses températures, Besnus et al. ajustent la chaleur spécifique par une contribution Kondo, ce qui donne la température de Kondo $T_K \simeq 24$ K caractérisant les fluctuations de spin du doublet fondamental [Besnus 85]. A $T = 84$ K, la chaleur spécifique présente une anomalie Schottky de champ cristallin dont l'analyse conduit aux énergies des niveaux excités de champ cristallin $\Delta_1 \simeq 220$ K et $\Delta_2 \simeq 1000$ K. La courbe en trait plein de la Figure 3.1 a été obtenue lors de l'ajustement fait par Besnus et al. : l'accord médiocre entre cette courbe et les données expérimentales montre les limites de ce traitement. L'analyse de la chaleur spécifique aboutit cependant à des énergies en bon accord avec celles déduites d'autres types de mesures. En effet, le pouvoir thermoélectrique de $CeRu_2Si_2$ présente deux pics à 25 et 220 K, ce qui correspond très exactement aux valeurs de T_K et de Δ_1 obtenues d'après la chaleur spécifique [Amato 89]. Lacerda et al. ont par ailleurs déduit de mesures de dilatation thermique des valeurs similaires de $T_K \simeq 19$ K et de $\Delta_1 \simeq 288$K [Lacerda 89].

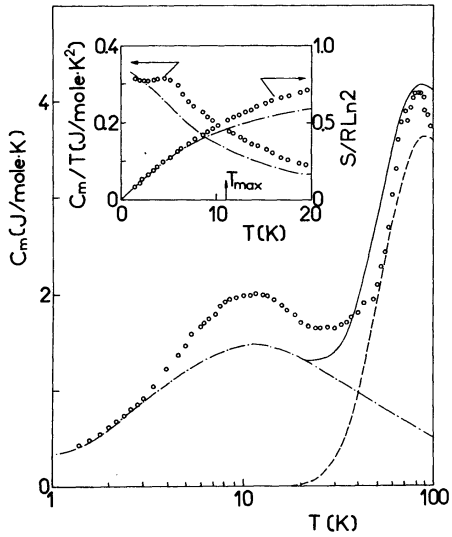

FIG. 3.1 – *Variations avec la température T de la contribution magnétique de la chaleur spécifique $C_m(T)$ de $CeRu_2Si_2$. La ligne en tirets, la ligne en points et tirets et la ligne continue correspondent respectivement à l'anomalie Schottky, à la contribution Kondo et à la somme des deux contributions précédentes. En insert sont tracées les variations avec T de $C_m(T)/T$ et de l'entropie magnétique $S(T)$ [Besnus 85].*

Une analyse de la susceptibilité de $CeRu_2Si_2$ peut en principe permettre de déterminer avec précision les expressions du niveau fondamental $|0\rangle$ et des premier et second niveaux excités $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Sur la Figure 3.2 a) sont tracées les variations avec la température T des susceptibilités parallèle à l'axe c $\chi_{//}(T)$ et perpendiculaire à l'axe c $\chi_{\perp}(T)$ mesurées par Haen et al. [Haen 87]. Les variations avec T des inverses de ces susceptibilités sont tracées sur la Figure 3.2 b) Une forte anisotropie caractérise le système, le rapport des susceptibilités valant $\chi_{//}(T)/\chi_{\perp}(T) \simeq 15$

vers $T = 10$ K. D'après les courbes de susceptibilité de $CeRu_2Si_2$, les niveaux de champ cristallin sont dans l'ordre décroissant des énergies [Lehmann 87, Fischer 87] :

$$\begin{aligned} |2\rangle &= |\Gamma_{6\pm}\rangle \text{ ou } |\Gamma^2_{7\pm}\rangle, \text{ avec } \Delta_2 \simeq 1000 \text{ K} \\ |1\rangle &= |\Gamma^2_{7\pm}\rangle \text{ ou } |\Gamma_{6\pm}\rangle, \text{ avec } \Delta_1 \simeq 220 \text{ K} \\ \text{et } |0\rangle &= |\Gamma^1_{7\pm}\rangle, \\ \text{avec } a &\simeq 0.96. \end{aligned} \tag{3.3}$$

L'état fondamental déduit de la susceptibilité statique a par ailleurs été confirmé dans une étude du facteur de forme magnétique par diffraction des neutrons, où un état $|\pm 5/2\rangle$ quasi-pur a été obtenu, avec $a \simeq 0.99$ [Boucherle 01]. Le système est donc dans un état fondamental quasi-Ising et les fluctuations magnétiques de basses énergies sont principalement longitudinales aux basses températures (ce qui se traduit par $\chi_{//}(T) \gg \chi_{\perp}(T)$).

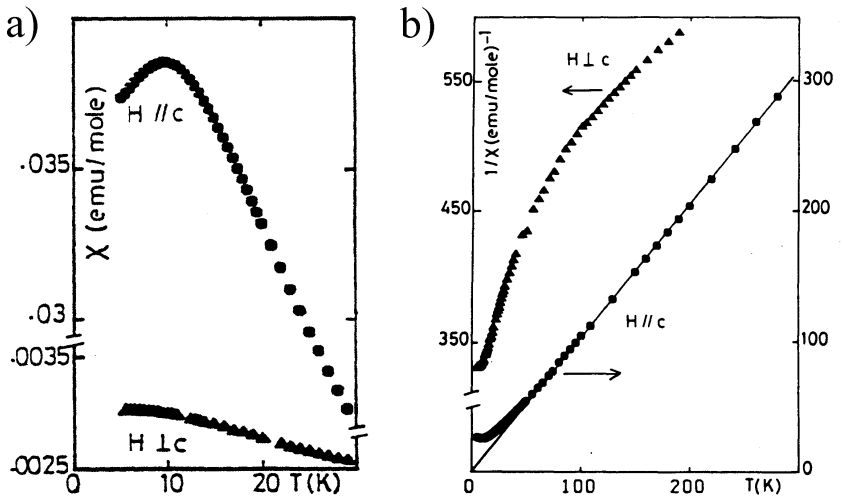

FIG. 3.2 – *Variations avec la température T a) de la susceptibilité $\chi_{//}(T)$ mesurée selon l'axe c et de la susceptibilité $\chi_{\perp}(T)$ mesurée selon un axe perpendiculaire à c et b) des inverses des susceptibilités $\chi_{//}(T)$ et $\chi_{\perp}(T)$ [Haen 87].*

Finalement, les mesures effectuées sur $CeRu_2Si_2$ n'ont montré aucun signe de mise en ordre magnétique, à l'exception d'une étude aux muons qui a permis d'observer qu'un très petit moment statique d'environ 10^{-3} μ_B s'ordonne pour $T < 2$ K [Amato 94], sa nature et son origine n'étant pas comprises. En dépit de l'observation de ce très faible moment ordonné, on considérera par la suite que $CeRu_2Si_2$ est dans un état fondamental paramagnétique.

3.1.2 Les fluctuations de spin vues par diffusion des neutrons

L'étude par diffusion inélastique des neutrons de $CeRu_2Si_2$ a montré que son spectre d'excitations est constitué aux basses énergies de signaux fortement amortis, c'est à dire fortement élargis en énergie [Jacoud 91, Rossat 88, Regnault 88, Kadowaki 04]. Ces excitations correspondent aux fluctuations de spin associées au doublet fondamental $|0\rangle$ et sont présentes en tout vecteur $\mathbf{Q}$ du réseau réciproque. Le caractère "réseau Kondo" de $CeRu_2Si_2$ se manifeste par de fortes corrélations à courte portée qui font que les fluctuations de spin dépendent de $\mathbf{Q}$. Le signal magnétique est ainsi piqué aux vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1 = (0.31,0,0)$, $\mathbf{k}_2 = (0.31,0.31,0)$, $\mathbf{k}_3 = (0,0,0.35)$, $\mathbf{k}_4 = (0,0,1)$ et $\mathbf{k}_5 = (0.5,0,0.5)$ [Jacoud 91, Sato 99, Kadowaki 04]. La Figure 3.3 montre la dépendance en $\mathbf{k}$ des excitations de $CeRu_2Si_2$ obtenues par diffusion inélastique des neutrons, pour un transfert d'énergie $E = 1$ meV et à une température $T = 1.5$ K [Kadowaki 04] : le signal est fortement piqué aux vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ et $\mathbf{k}_3$ où les intensités sont semblables et est légèrement moins piqué en $\mathbf{k}_4$ et $\mathbf{k}_5$(points Z et N sur la carte).

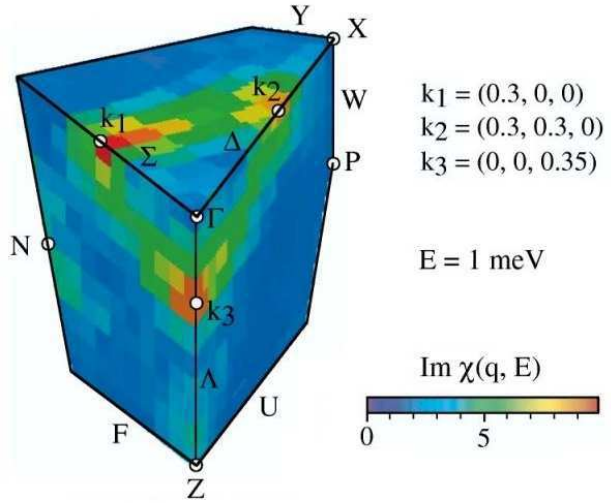

FIG. 3.3 – *Carte des excitations de $CeRu_2Si_2$ mesurée par Kadowaki et al. par diffusion des neutrons, pour un transfert d'énergie $E = 1$ meV et à une température $T = 1.5$ K [Kadowaki 04].*

Lors de sa thèse, Jacoud a étudié les fluctuations de spin de $CeRu_2Si_2$ en $\mathbf{Q}_{ss} = (0.7,0.7,1)$ et en $\mathbf{Q}_2 = \boldsymbol{\tau} - \mathbf{k}_2 = (0.7,0.7,0)$, où $\boldsymbol{\tau} = (1,1,0)$ est un vecteur du réseau réciproque [Jacoud 91, Rossat 88, Regnault 88]. $\mathbf{Q}_{ss}$ correspond à des fluctuations non corrélées spatialement tandis que $\mathbf{Q}_2$ correspond aux fluctuations corrélées spatialement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_2$. Ces mesures ont été effectuées pour des températures $1.5 < T < 90$ K, les spectres obtenus à $T = 7$ K étant tracés sur la Figure 3.4. Afin de les analyser, deux contributions ont été utilisées : la première, indépendante de $\mathbf{Q}$, correspond aux fluctuations à un site ("single site" en anglais) alors que la seconde dépend fortement de $\mathbf{Q}$ et est associée aux fluctuations inter-sites. Dans

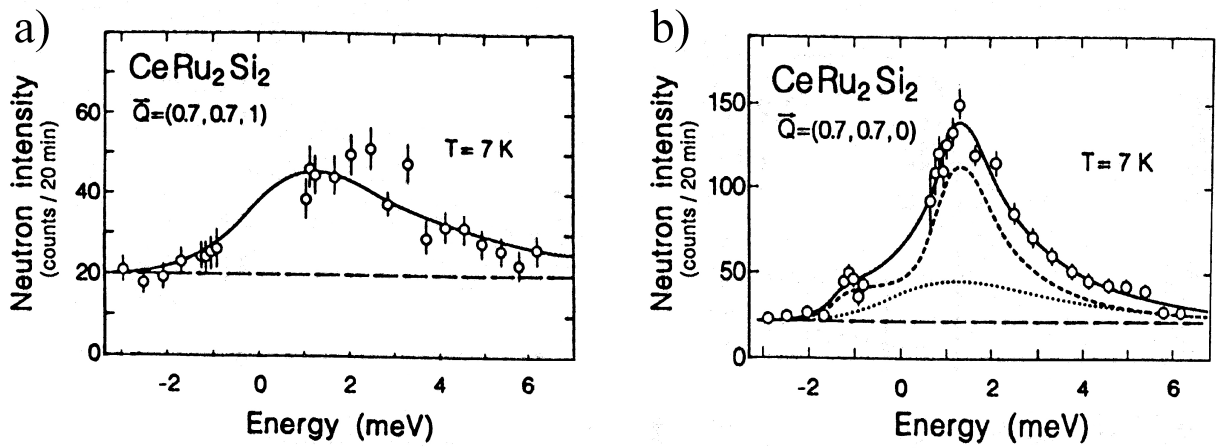

FIG. 3.4 – *Spectres des excitations magnétiques obtenus par Jacoud à $T = 7$ K aux vecteurs a) $\mathbf{Q}_{ss}$ et b) $\mathbf{Q}_2$ [Jacoud 91]. Les lignes continues correspondent aux ajustements des données expérimentales a) par une seule contribution pour le signal à un site et b) par deux contributions (contribution à un site en pointillés et contribution inter-sites en tirets) pour le signal corrélé.*

cette analyse, la contribution à un site est mesurée en $\mathbf{Q}_{ss}$ alors que le signal en $\mathbf{Q}_2$ est la somme de la contribution à un site et de la contribution inter-sites. Sachant que l'intensité de diffusion des neutrons est proportionnelle à la fonction de diffusion $S(\mathbf{Q},E,T)$ et que, d'après le théorème de fluctuation-dissipation :

$$S(\mathbf{Q},E,T) \;=\; \frac{1}{\pi}\frac{1}{1-e^{-E/k_BT}}\chi''(\mathbf{Q},E,T), \tag{3.4}$$

la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ est déduite de l'intensité mesurée lors d'une expérience de diffusion des neutrons. Jacoud a analysé ses données en utilisant une fonction Lorentzienne quasiélastique de largeur $\Gamma_{ss}(T)$ pour la contribution à un site $\chi''_{ss}(E,T) = \chi''(\mathbf{Q}_{ss},E,T)$, et une fonction Lorentzienne inélastique de position ω_0 et de largeur $\Gamma_{is}(T)$ pour analyser la contribution inter-sites $\chi''_{is}(E,T) = \chi''(\mathbf{Q}_2,E,T) - \chi''(\mathbf{Q}_{ss},E,T)$. La Figure 3.5 montre les variations avec la température T des taux de relaxation $\Gamma_{ss}(T)$ et $\Gamma_{is}(T)$ obtenus lors de cette analyse. On voit sur ce graphe qu'aux basses températures, le taux de relaxation du signal inter-sites $\Gamma_{is}(T)/k_B$ sature à environ 9 K et devient dépendant de la température T lorsque $T > 9$ K. De même, le taux de relaxation du signal à un site $\Gamma_{ss}(T)/k_B$ sature à environ 23 K et devient dépendant de T lorsque $T > 23$ K. Les fluctuations à un site correspondent aux fluctuations de type Kondo, et on peut donc considérer que la température de Kondo T_K est égale à $\Gamma_{ss}(T=0)/k_B$. La valeur ainsi déduite de $T_K = 23$ K est cohérente avec les estimations faites à partir d'autres mesures (cf. Section 3.1.1). Les corrélations disparaissent pour $T > 40$ K, lorsque le signal mesuré en $\mathbf{Q}_2$ devient égal à celui mesuré en $\mathbf{Q}_{ss}$. L'inélasticité ω_0 du signal inter-sites est de l'ordre de 1 meV et ne dépend pas de la température. Cependant, différentes valeurs de ω_0 sont obtenues pour des longueurs d'onde des neutrons incidents diffé-

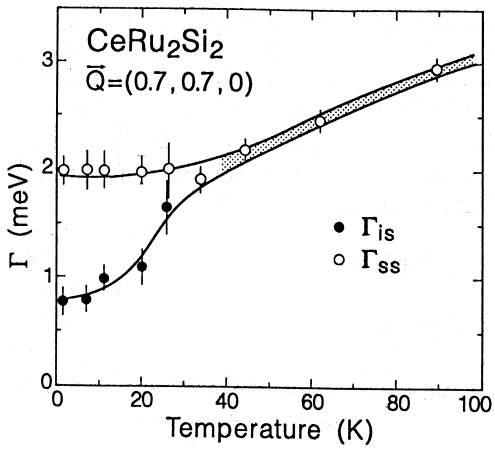

FIG. 3.5 – *Variations avec la température T des taux de relaxation du signal à un site $\Gamma_{ss}(T)$ et du signal inter-sites $\Gamma_{is}(T)$ obtenus par Jacoud [Jacoud 91].*

rentes. Il est donc probable que ce traitement ne permette pas d'estimer correctement ω_0 et on considérera cette inélasticité avec précaution.

Notons finalement qu'Adroya et al. ont pu mesurer l'excitation de champ cristallin $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ par diffusion inélastique des neutrons sur une poudre de $CeRu_2Si_2$ en utilisant un spectromètre à temps de vol [Adroja 04]. Cette excitation qui est montrée sur la Figure 3.6 est caractérisée par une énergie $\Delta_1 \simeq 30$ meV et par une demi-largeur à mi-hauteur $\Gamma_1 \simeq 15$ meV. La valeur $\Delta_1/k_B \simeq 350$ K est cohérente avec les estimations faites dans la Section 3.1.1. D'une manière générale, la mesure d'un monocristal sur un spectromètre trois axes est moins sensible aux

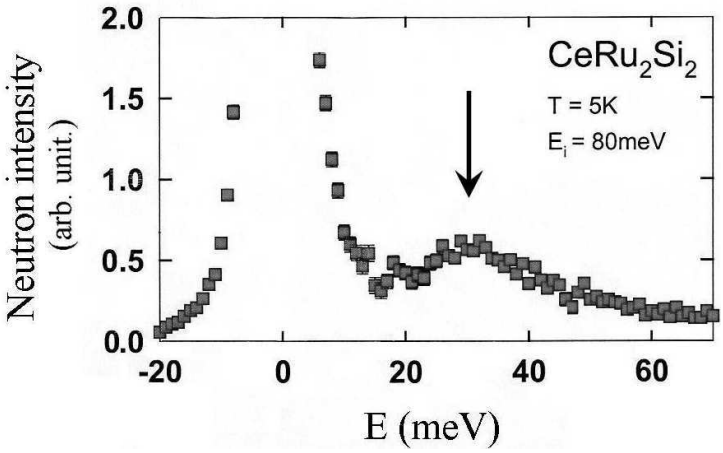

FIG. 3.6 – *Excitation de champ cristallin observée par Adroya et al. par diffusion inélastique des neutrons sur $CeRu_2Si_2$ [Adroja 04].*

excitations de champ cristallin que la mesure d'une poudre d'un même composé en utilisant un spectromètre à temps de vol. Ainsi, différentes tentatives de mettre en évidence l'excitation de champ cristallin à partir d'un monocristal de $CeRu_2Si_2$ étudié sur un spectromètre trois-axes ont été infructueuses.

3.2 Effets du dopage, de la pression et du champ magnétique sur $CeRu_2Si_2$

Dans cette Section, nous présentons les effets du dopage, de la pression et du champ magnétique sur le composé $CeRu_2Si_2$. Différents types d'ordres magnétiques peuvent être induits et sont pour la plupart liés aux corrélations présentes dans le composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$. Trois types de régime sont aussi obtenus : i) un régime à fermions lourds (paramagnétique ou antiferromagnétique) où le système peut être considéré comme un réseau Kondo, étant caractérisé par des fluctuations de spin corrélées spatialement, ii) un régime localisé où l'intensité des fluctuations de spin chute fortement aux très basses températures, et iii) un régime à valence intermédiaire où une très forte délocalisation électronique fait que les fluctuations de spin ne sont plus corrélées.

3.2.1 Effets du dopage et de la pression

Dans un premier temps, nous présentons d'une manière assez détaillée le système d'alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, qu'il soit à pression ambiante et sous pression. Dans un second temps, on considère plus rapidement les effets d'autres types de substitution sur le composé $CeRu_2Si_2$, en l'occurrence les alliages $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$, $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$, et $Ce_{1-x}Y_xRu_2Si_2$.

3.2.1.1 Les alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Partant du composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$, la substitution du cérium par du lanthane se manifeste par une diminution de la force de l'hybridation et par une augmentation des corrélations magnétiques. Ce type de substitution conduit au développement d'un ordre magnétique avec le vecteur d'onde incommensurable $\mathbf{k}_1$ pour des concentrations $x > x_c$, où $x_c = 7.5$ % [Quezel 88]. La structure de type $ThCr_2Si_2$ du système n'est pas modifiée et les paramètres de maille varient linéairement avec la concentration x de lanthane : les paramètres de maille augmentent avec un taux d'environ 5.10^{-4} Å par % de lanthane lorsque x augmente [Raymond 01]. Des mesures des susceptibilités parallèles à l'axe c $\chi_{//}(T)$ et perpendiculaires à l'axe c $\chi_{\perp}(T)$ ont été faites par Haen et al. pour différentes concentrations x [Haen 92]. Elles montrent que pour des températures supérieures à 50 K, $\chi_{//}(T)$ et $\chi_{\perp}(T)$ ne dépendent quasiment pas de x, donc que le schéma de champ cristallin ne varie pas avec x. Aux basses températures, les susceptibilités ont un comportement variant avec x : elles sont alors sensibles à l'état d'hybridation caractérisé par la température de Kondo T_K et à l'ordre magnétique caractérisé par la

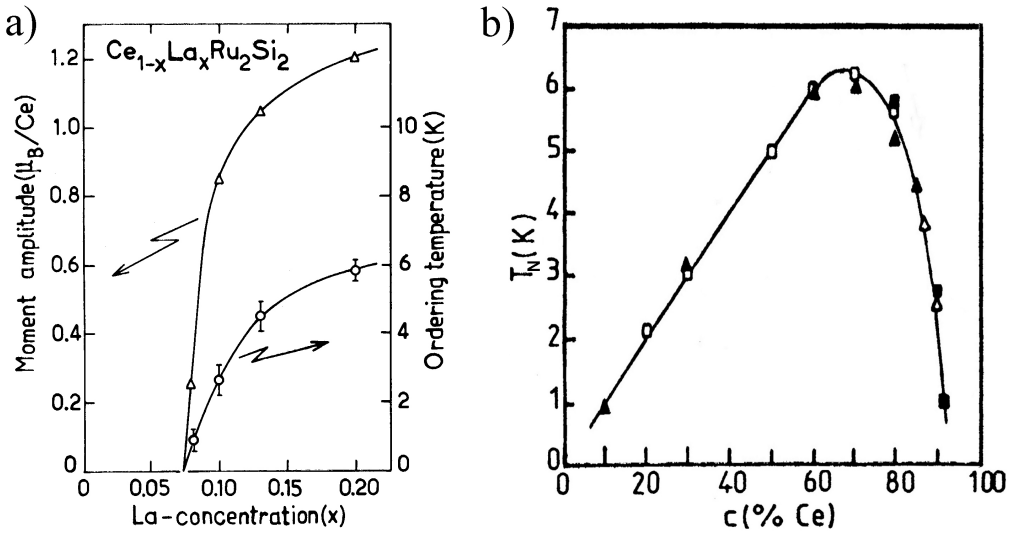

FIG. 3.7 – *Variations a) avec la concentration x de lanthane de la température de Néel T_N et du moment de la phase ordonnée pour $x < 0.2$ [Quezel 88] b) avec la concentration $c = 1 - x$ de cérium de la température de Néel T_N pour $0 < x < 1$ [Haen 88].*

température de Néel T_N.

Les variations du moment de la phase ordonnée et de la température de Néel T_N sont tracées en fonction de la concentration x de lanthane sur la Figure 3.7 a). Dans la phase ordonnée, le moment et la température de Néel T_N augmentent respectivement jusqu'à des valeurs de 1.2 μ_B et de 6 K vers $x = 20$ %. Pour des concentrations x supérieures à 30 %, la Figure 3.7 b) montre que T_N diminue linéairement avec x pour s'annuler vers $x = 1$ [Haen 88]. Notons qu'un ordre magnétique à courte portée se développe dans le composé de concentration x_c pour des températures $T < 2$ K avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$, le moment correspondant étant de 0.02 μ_B [Raymond 97]. On rappelle aussi qu'un ordre magnétique avec un moment de 0.001 μ_B a été rapporté aux muons pour le composé de concentration $x = 0$ [Amato 94]. Pour les composés de concentrations $x = 13$ % et $x = 20$ %, une seconde transition de phase est rapportée à l'intérieur de la phase antiferromagnétique, aux températures $T_L = 0.3$ K et $T_L = 2$ K respectivement [Regnault 90a, Raymond 02]. On lie ces transitions à la présence d'une composante statique ordonnée avec un vecteur d'onde $3\mathbf{k}_1$, le système ayant toujours un moment ordonné avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$. Besnus et al. ont déduit la variation avec x de la température de Kondo T_K à partir des courbes de chaleur spécifique des composés correspondants [Besnus 87]. Ils trouvent ainsi que T_K diminue fortement avec x, variant entre $T_K = 25$ K pour $x = 0$ et $T_K \to 1$ K pour $x \to 1$. Le fait que l'ordre magnétique ait un vecteur d'onde incommensurable, des températures de Néel ainsi que des moments ordonnés assez faibles suggère que le système est itinérant, du moins pour les faibles valeurs de x.

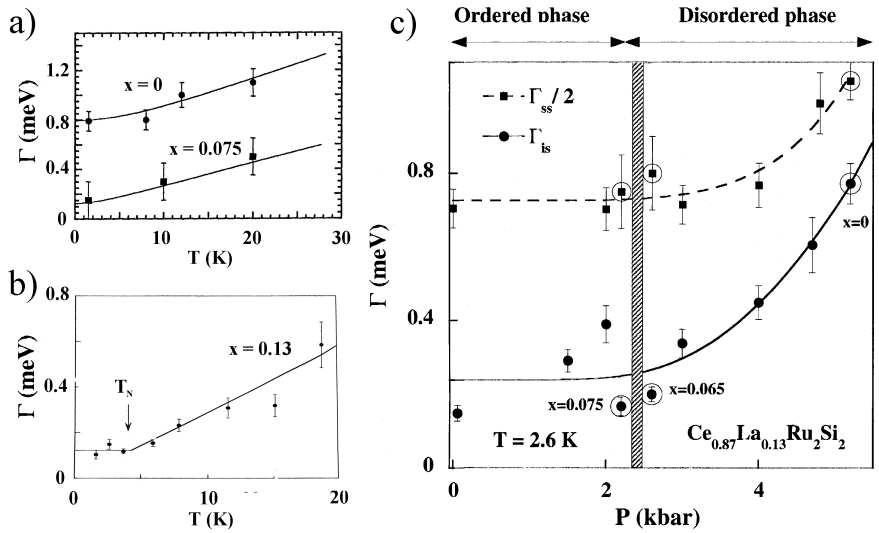

FIG. 3.8 – *Variations avec la température T des taux de relaxation inter-sites $\Gamma_{is}(T)$ pour les concentrations a) $x = 0$ et $x = x_c$ [Kambe 96], b) $x = 13$ % [Raymond 01]. c) Variations des taux de relaxation à un site $\Gamma_{ss}(T)$ et inter-sites $\Gamma_{is}(T)$ en fonction de x à pression ambiante et en fonction de la pression pour $x = 13$ % [Raymond 02].*

L'étude par diffusion inélastique des neutrons du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ au voisinage de sa concentration critique x_c montre que les spectres des excitations magnétiques sont du même type, bien qu'ils aient des énergies et températures caractéristiques différentes lorsque x varie. Raymond et al. ont mesuré les spectres des excitations du composé de concentration critique $x_c = 7.5$ % et du composé ordonné de concentration $x = 13$ % [Raymond 97, Raymond 01, Raymond 02]. L'analyse de ces spectres a été faite d'une manière similaire à celle utilisée par Jacoud, en considérant que le signal magnétique résulte de la somme d'une contribution à un site indépendante du vecteur d'onde $\mathbf{Q}$ et d'une contribution inter-sites piquée en $\mathbf{Q}$ (cf. Section 3.1.2). Les variations avec la température T des taux de relaxation inter-sites $\Gamma_{is}(T)$ déduits de cette analyse sont tracées sur les Figures 3.8 a) et b), pour les concentrations $x = 0$, $x = x_c$ et $x = 13$ %. Pour ces trois concentrations, les courbes semblent indiquer qu'aux basses températures $\Gamma_{is}(T)$ sature à une valeur $\Gamma_{is}(0)$ finie et que pour $T > \Gamma_{is}(0)$, $\Gamma_{is}(T)$ augmente fortement avec T. Une comportement similaire est obtenu pour le taux de relaxation à un site $\Gamma_{ss}(T)$, avec des valeurs $\Gamma_{ss}(0) > \Gamma_{is}(0)$. Les variations avec x des énergies caractéristiques $\Gamma_{is}(0)$ des fluctuations inter-sites et $\Gamma_{ss}(0)$ des fluctuations à un site sont tracées sur la Figure 3.8 c). Sur ce graphe sont aussi tracées les valeurs de $\Gamma_{is}(0)$ et $\Gamma_{ss}(0)$ obtenues pour le composé de concentration $x = 13$ % sous pression. L'effet de la pression revenant à augmenter l'hybridation entre les électrons $4f$ et les électrons de conduction du système, on fait l'approximation que le dopage x de lanthane est équivalent à une pression négative. L'équivalence -1 kbar $\leftrightarrow$ 2.4 % de lanthane est utilisée dans la Figure 3.8 c) pour comparer sur une même échelle les résultats obtenus par substitution et sous pression. On obtient que $\Gamma_{is}(0)$ et $\Gamma_{ss}(0)$ diminuent fortement

lorsque x augmente et s'approche de la concentration critique x_c, pour ensuite saturer dans la gamme de concentrations $x_c < x < 13$ % de la phase ordonnée. De part et d'autre de x_c le système est donc caractérisé par des fluctuations de spin locales traduisant un effet Kondo à un site et par des corrélations antiferromagnétiques de type RKKY : on peut donc le décrire comme un réseau Kondo, du moins pour les valeurs de x inférieures à 13 %. L'analyse des mesures de diffusion inélastique des neutrons, mais aussi des mesures de chaleur spécifique de ces composés, a aussi été faite dans le cadre de la théorie de Moriya [Moriya 95, Raymond 97, Kambe 96, Kadowaki 04]. La bonne description du système par cette théorie confirme que l'instabilité magnétique obtenue en x_c est gouvernée par du magnétisme itinérant.

3.2.1.2 Autres types de dopage

Partant du système itinérant et non ordonné $CeRu_2Si_2$, pour lequel un comportement à fermions lourds résulte de l'interaction Kondo entre les électrons f et les électrons de conduction du système, on peut utiliser plusieurs types de dopage pour faire varier progressivement les propriétés électroniques et ainsi modifier les propriétés magnétiques du système. On peut de la sorte soit localiser les électrons f et favoriser l'établissement d'un ordre magnétique, soit délocaliser les électrons f jusqu'à atteindre un état de valence intermédiaire. Les diagrammes de phases obtenus pour d'autres types de dopages que celui par le lanthane de $CeRu_2Si_2$ sont résumés sur la Figure 3.9.

De même que les alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ permettent d'atteindre une instabilité magnétique, les alliages $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ et $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$ sont caractérisés par des mises en ordre magnétique dues à une localisation des électrons de plus en plus forte avec x [Haen 02,

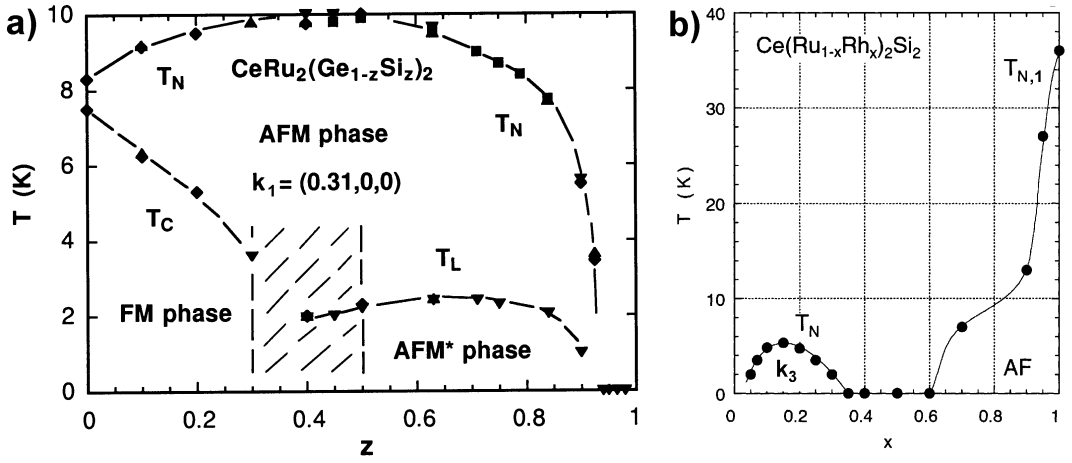

FIG. 3.9 – *Diagramme de phase des alliages a) $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$, avec $z = 1 - x$ [Haen 02] et b) $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$ [Watanabe 03]. Les différents régimes de ces diagrammes sont détaillés dans le texte.*

Watanabe 03]. Les corrélations augmentent avec x et mènent à un ordre antiferromagnétique sous T_N avec le vecteur d'onde incommensurable $\mathbf{k}_1$ pour les alliages $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ et avec le vecteur d'onde incommensurable $\mathbf{k}_3$ pour les alliages $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$. Une seconde transition de phase a lieu dans la phase ordonnée de $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ pour $x < 0.6$, où le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ de l'ordre magnétique n'est pas modifié. Rappelons que dans le composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$ les corrélations sont piquées en $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_3$ et indiquent déjà la proximité des instabilités magnétiques correspondant à ces vecteurs. Sachant aussi que les ordres magnétiques obtenus en ces vecteurs d'onde incommensurables sont caractérisés par des températures de Néel faibles (inférieures à 10 K) et par des moments ordonnés faibles [Rainford 92, Lloret 87], les instabilités magnétiques correspondantes sont donc typiques d'une transition de phase quantique gouvernée par du magnétisme itinérant. Lorsque x s'approche de 1, des phases ordonnées magnétiquement se développent avec les vecteurs d'onde commensurables antiferromagnétiques (1/2,1/2,0) sous $T_{N,1}$ et (1/2,1/2,1/2) sous $T_{N,2}$ pour $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$ [Grier 84] et avec le vecteur d'onde commensurable ferromagnétique (0,0,0) sous T_c pour $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ [Raymond 99]. De fortes fluctuations de spin ont été observées par diffusion inélastique des neutrons sur ces composés au dessus de $T_{N,1}$ (ou de T_c) et il a aussi été rapporté que l'intensité de ces fluctuations chute dramatiquement sous $T_{N,2}$ (ou T_c) [Severing 89, Raymond 04]. Cela indique que lorsqu'ils sont dans leur phase d'ordre magnétique commensurable ces systèmes peuvent être considérés comme localisés (cf. Section 1.1.2 et [Moriya 85]).

Contrairement aux cas précédents où le dopage revenait à localiser le système électronique, la substitution du cérium par de l'yttrium transforme $CeRu_2Si_2$ en un système de plus en plus itinérant. Ainsi, les alliages $Ce_{1-x}Y_xRu_2Si_2$ sont caractérisés par une hybridation entre électrons f et électrons de conduction qui augmente fortement avec x, la température de Kondo T_K grandissant jusqu'à atteindre une valeur de l'ordre de 200 K en $x = 1$ [Besnus 87]. Pour x proche de 1, les niveaux de champ cristallin sont gommés par les fluctuations de spin et la valence du système devient intermédiaire, le nombre n_f d'électrons portés par site de cérium étant alors nettement plus petit que 1 (cf. Section 1.2.1).

3.2.2 Effets du champ magnétique

Lorsqu'un champ magnétique $\mathbf{H}$ est appliqué parallèlement à l'axe c du composé $CeRu_2Si_2$, on peut induire une transition métamagnétique dans le système [Fisher 91, Raymond 98, Haen 87, Flouquet 95, Flouquet 02, Rossat 88]. En effet, les corrélations antiferromagnétiques diminuent progressivement lorsque $\mathbf{H}$ augmente, jusqu'à s'annuler au champ métamagnétique $\mathbf{H}_m = 7.8$ T. Au voisinage de $\mathbf{H}_m$, la disparition des corrélations antiferromagnétiques s'accompagne du développement de corrélations ferromagnétiques, ce qui se traduit par des fluctuations de spin piquées au vecteur d'onde $\mathbf{k} = 0$ [Sato 01, Flouquet 04]. Pour des champs supérieurs à $\mathbf{H}_m$, le système se polarise ferromagnétiquement. Des mesures d'effet de Haas-van Alphen indiquent qu'à des champs $\mathbf{H} > \mathbf{H}_m$, la surface de Fermi de $CeRu_2Si_2$ est très différente de celle mesurée à champ nul, lorsque le système est itinérant, et qu'elle est alors semblable à celle du composé

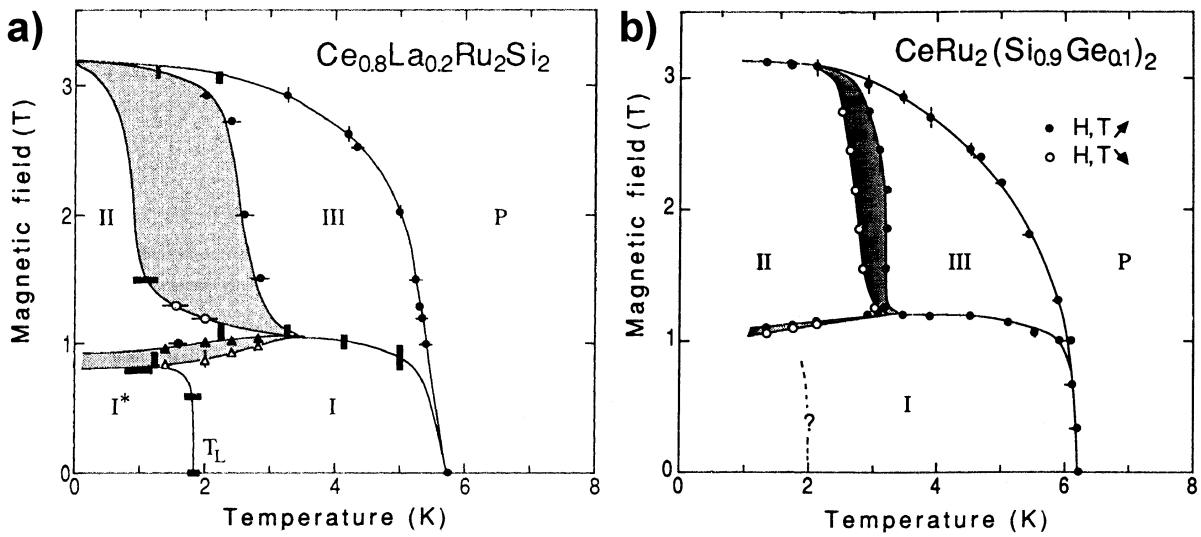

FIG. 3.10 – *Diagrammes de phases obtenus en appliquant un champ magnétique selon l'axe c sur les alliages a) $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ et b) $CeRu_2(Si_{0.9}Ge_{0.1})_2$ [Mignot 91]. Dans les deux cas, la phase I correspond à un ordre magnétique avec le vecteur $\mathbf{k}_1$, la phase II à la coexistence entre des moments ordonnés avec les vecteurs $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_2$, et la phase III à la coexistence entre des moments ordonnés avec les vecteurs $\mathbf{k}'_1 = (0.31,\pm\delta,0)$ et $\mathbf{k}'_2 = (1/3,1/3,0)$. P correspond à l'état paramagnétique du système et les zones grisées aux passages entre deux phases caractérisés par des phénomènes d'Hysteresis.*

$LaRu_2Si_2$ [Takashita 96]. Ces résultats ont été interprétés comme un signe de la localisation des électrons f pour des champs $\mathbf{H} > \mathbf{H}_m$ [1]. Cependant, cette image simple ne correspond peut-être pas à la réalité car une large portion de la surface de Fermi n'a pas été détectée lors de ces mesures.

A partir des alliages $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ et $CeRu_2(Si_{0.9}Ge_{0.1})_2$, qui sont tous deux ordonnés magnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$, l'application d'un champ magnétique conduit à deux diagrammes de phases ($\mathbf{H}$,T) très similaires montrés sur la Figure 3.10 [Mignot 91]. Dans les deux cas, un champ critique $\mathbf{H}_c \simeq 3$ T rend le système paramagnétique pour T faible, $\mathbf{H}_c$ diminuant avec T pour s'annuler à T_N. Les corrélations disparaissent à un champ métamagnétique $\mathbf{H}_m \simeq 3$ T variant peu avec T lorsque $T < T_N$. Ces diagrammes sont caractérisés par des phases magnétiques au sein desquelles coexistent un ordre magnétique avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ et un ordre magnétique avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_2$, ces deux vecteurs étant aussi ceux des corrélations présentes dans le composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$. Certaines phases sont aussi obtenues avec

1. Lorsque le système est localisé, l'effet Kondo est très faible et on peut considérer que les électrons f ne s'hybrident presque plus avec les électrons de conduction. Ainsi, la surface de Fermi du système $CeRu_2Si_2$ lorsqu'il est fortement localisé est très proche de celle de $LaRu_2Si_2$, où il n'y a pas d'électrons f et où la surface de Fermi est celle des seuls électrons de conduction du système.

des vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_2$ légèrement modifiés. Ces phases antiferromagnétiques sont caractéristiques d'un magnétisme itinérant, ayant de faibles moments et températures d'ordre ainsi que des corrélations avec des vecteurs d'onde incommensurables.

3.3 Résumé et motivations

A partir du composé à fermions lourds $CeRu_2Si_2$, on peut donc faire varier continûment les propriétés du système grâce au dopage, au champ magnétique et à la pression. Selon la manière dont on procède, on peut soit augmenter les corrélations et atteindre une instabilité magnétique à laquelle le système s'ordonne magnétiquement, soit diminuer les corrélations et rendre les électrons de plus en plus délocalisés. Les vecteurs d'ondes incommensurables $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ et $\mathbf{k}_3$ caractérisent les corrélations des fluctuations de spin du système, qu'il soit paramagnétique (par exemple $CeRu_2Si_2$) ou ordonné magnétiquement (par exemple $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$). Lorsque les corrélations se développent, des phases ordonnées sont obtenues avec les vecteurs d'ondes $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ et $\mathbf{k}_3$. L'incommensurabilité de ces vecteurs d'onde est probablement due à un effet de "nesting" de la surface de Fermi, ce qui indique que les instabilités magnétiques correspondantes sont vraisemblablement associées à un système électronique itinérant. Lorsque la localisation des électrons est de plus en plus forte, un ordre magnétique commensurable peut aussi apparaître et remplacer l'ordre magnétique incommensurable, ce qui s'accompagne d'une chute aux basses températures des fluctuations de spin. A l'opposé, le système peut aussi devenir de plus en plus itinérant et avoir des corrélations magnétiques de plus en plus faibles, ce qui aboutit à un état de valence intermédiaire.

Dans les Chapitres suivants, nous présentons une étude des alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ faite par diffusion inélastique des neutrons. De part et d'autre de la transition de phase quantique qui a lieu en $x_c = 7.5$ %, les fluctuations de spin sont celles d'un système électronique itinérant fortement renormalisé et soumis à d'importantes corrélations, du moins pour $x < 13$ %. Ce système peut être considéré comme un système modèle pour l'étude du rôle que jouent les fluctuations de spin à l'approche de l'instabilité magnétique d'un réseau Kondo. Le travail présenté ici est fait dans l'optique de dresser un bilan sur les fluctuations de spin dans le régime à fermions lourds du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ et d'étudier comment elles évoluent à l'approche de l'instabilité magnétique. Pour cela, on considère les variations de leurs spectres en énergie avec la concentration x, la température T et le vecteur d'onde $\mathbf{q}$. Des lois d'échelles de la susceptibilité dynamique sont mises en évidence et une comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats des théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant est faite. Dans les Chapitres 4 et 5 on présente les études des fluctuations de spin des composés de concentrations respectives x_c et $x = 0$ alors que dans le Chapitre 6 on fait le point sur les fluctuations de spin du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ au voisinage de son instabilité magnétique.

Chapitre 4

Etude de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ en sa concentration critique $\mathbf{x_c = 7.5}$ %

Nous présentons ici une étude du composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, ce dernier correspondant à une instabilité où un ordre antiferromagnétique s'établit avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$. La première Section consiste en une étude des fluctuations de spin aux basses énergies $0.1 < E < 1.2$ meV et aux très basses températures $T = 0.1$ et 2 K par diffusion inélastique des neutrons sur le spectromètre à temps de vol IRIS. La deuxième Section est consacrée à un travail fait en utilisant les spectromètres trois axes IN12 et IN22, pour laquelle les fluctuations de spin sont étudiées dans des gammes importantes de températures $0.04 < T < 295$ K et d'énergies $0.4 < E < 9.5$ meV[1]. Les résultats de ces expériences sont discutés dans la dernière Section de ce Chapitre.

4.1 Etude des fluctuations de spin aux basses énergies et températures

4.1.1 Conditions expérimentales

L'étude présentée ici a été faite par diffusion inélastique des neutrons sur le spectromètre à temps de vol à géométrie inversée IRIS de la source à spallation ISIS (Didcot, Angleterre). Le monocristal de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, d'environ 250 mm^3, a été synthétisé par méthode Czochralski par P. Lejay au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures (CRTBT), du Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) de Grenoble [Lejay 93]. L'expérience a été faite avec des neutrons d'énergie finale $E_f = 1.84$ meV, l'analyseur étant un graphite

1. L'apport du présent travail par rapport aux précédentes études du même composé (cf. Section 3.2.1.1) provient du fait que les mesures présentées ici ont été faites pour des gammes de températures $0.04 < T < 300$ K et de transferts d'énergie $0.1 < E < 9.5$ meV bien plus larges qu'auparavant et qu'elles ont aussi bénéficié d'une bien meilleure statistique de comptage.

pyrolytique (0,0,2). A cette configuration correspond une résolution de 18 μeV (largeur totale à mi-hauteur du pic incohérent). Cependant, l'étude des excitations magnétiques est restreinte à des transferts d'énergie $E > 0.1$ meV du fait de la "queue" du signal élastique. Un cryostat à dilution a été utilisé et les mesures ont été faites aux températures $T = 0.1$ et 2 K. Les mesures ont été faites dans le plan (0,0,1) pour trois orientations a), b) et c) où l'angle entre la direction (1,1,0) du cristal et le faisceau des neutrons incidents vaut respectivement $\psi_a = 114.98°$, $\psi_b = 70.5°$, et $\psi_c = 75.74°$.

4.1.2 Résultats

La Figure 4.1 montre les cartes d'intensités des spectres d'excitations obtenus lors des mesures faites dans les configurations a) et b) à la température $T = 0.1$ K. Chaque point de cette carte correspond à un transfert de moment $\mathbf{Q} = (h,k,0)$ associé à un transfert d'énergie E. Les lignes d'énergie constante sont des trajectoires circulaires dans l'espace réciproque (cf. Section 2.2.2) et le transfert d'énergie $E = 0$ correspond aux cercles rouges (c'est le pic incohérent élastique). Les orientations a), b) et c) du cristal ont été choisies de telle manière que la ligne $E = 0$ croise un transfert de moment $\mathbf{Q} = \boldsymbol{\tau} + \mathbf{k}_j$, où $\boldsymbol{\tau} = (h,k,0)$ est la position d'un pic de Bragg nucléaire et où $\mathbf{k}_j$ est un vecteur d'onde caractéristique des corrélations du système. Ainsi $\mathbf{k}_j$ correspond au vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ pour les configurations b) et c) et au vecteur d'onde $\mathbf{k}_2$ pour la configuration a). Un pic de Bragg magnétique de vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ est observé à

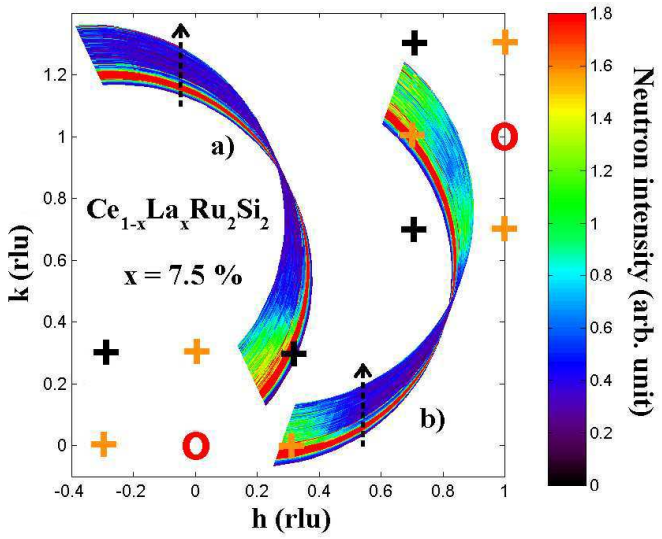

FIG. 4.1 – *Cartographie des excitations mesurées à $T = 0.1$ K pour les configurations a) et b). Les ronds rouges représentent les positions (h,k,l) des pics de Bragg nucléaires et les croix oranges et noires représentent respectivement les positions des satellites correspondant aux vecteurs d'ondes magnétiques $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_2$. Les flèches en tirets noirs indiquent la direction des énergies croissantes -0.2 < E < 1.2 meV, la bande rouge correspondant à l'énergie $E = 0$.*

$T = 0.1$ K alors qu'à $T = 2$ K ce pic est absent. Les mesures effectuées ici avec une très bonne résolution instrumentale confirment l'apparition pour $T < 2$ K d'un ordre magnétique statique, comme déjà observé par Raymond et al. dans une précédente étude [Raymond 97]. Lors de cette étude faite sur un spectromètre trois axes, une moins bonne résolution d'environ 150 μeV était alors utilisée. Sur la carte 4.1, on voit nettement que les fluctuations de spin sont piquées au voisinage des transferts de moments correspondant aux vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_2$. De plus, le signal est indépendant du vecteur d'onde $\mathbf{k}$ si $\mathbf{k}$ est suffisamment distant de $\mathbf{k}_1$ et de $\mathbf{k}_2$ (mais aussi de $\mathbf{k}_3$ qui ne figure pas sur cette carte), ce qui correspond donc à une importante part de l'espace réciproque.

Pour la configuration c), on procède à l'intégration du signal sur les faibles angles de diffusion $20 < 2\theta < 30°$ auxquels correspondent des transferts de moment $\mathbf{Q}$ proches de $\mathbf{Q}_1 = (0.31,0,0)$. Le spectre obtenu est caractéristique des fluctuations de spin corrélées antiferromagnétiquement et correspond aux vecteurs d'onde $\mathbf{k} \simeq \mathbf{k}_1$. Pour des angles $50 < 2\theta < 80°$, le signal ne dépend pas de $\mathbf{Q}$ et n'est donc pas corrélé magnétiquement. Une intégration sur ces grands angles fournit un signal beaucoup plus faible que celui obtenu aux faibles angles, comme on peut le voir sur la Figure 4.2 où sont tracés les deux signaux obtenus à $T = 0.1$ K. Les points expérimentaux ont été ajustés par la somme d'une contribution élastique et d'une contribution inélastique, le pic à 0.25 meV étant un signal parasite inclus dans le bruit de fond. La courbe résultant de cet ajustement est tracée sur la Figure 4.2. La contribution élastique provient du

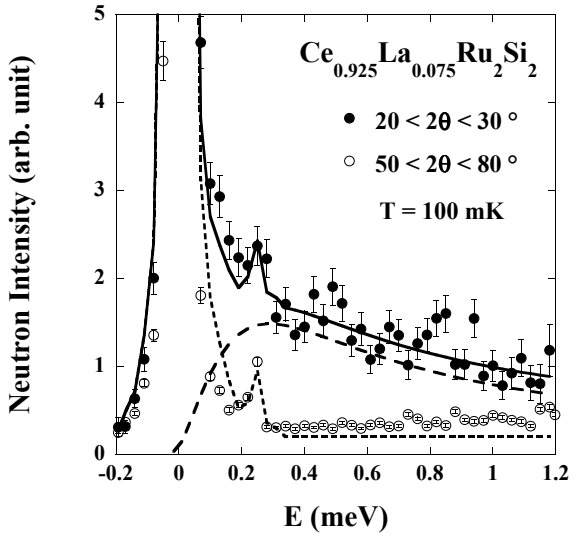

FIG. 4.2 – *Spectres obtenus après intégration sur les angles de diffusion $20 < 2\theta < 30°$ du signal mesuré dans la configuration c) à $T = 0.1$ K (cercles pleins) et $50 < 2\theta < 80°$ (cercles vides). Les lignes en tirets longs et en tirets courts correspondent respectivement aux contributions quasiélastique et élastique obtenues lors de l'ajustement du spectre obtenu aux petits angles. La ligne continue correspond à la somme de ces deux contributions.*

signal incohérent et du pic de Bragg magnétique qui se développe sous 2 K; elle a été ajustée par une fonction Gaussienne de 18 μeV de largeur totale à mi-hauteur, ce qui correspond à la résolution expérimentale. La contribution quasiélastique provient des excitations de basse énergie et son intensité de diffusion des neutrons est proportionnelle à la fonction de diffusion $S(\mathbf{Q},E,T)$. On relie $S(\mathbf{Q},E,T)$ à la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique du système $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ en utilisant le théorème de fluctuation-dissipation :

$$S(\mathbf{Q},E,T) = \frac{1}{\pi}\frac{1}{1-e^{-E/k_BT}}\chi''(\mathbf{Q},E,T). \tag{4.1}$$

Les excitations de basses énergies obtenues après intégration et correspondant à des transferts de moment $\mathbf{Q}$ proches de $\mathbf{Q}_1$ sont ajustées par une contribution Lorentzienne quasiélastique :

$$\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) = \chi'(\mathbf{Q}_1,T)\frac{E/\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)}{1+(E/\Gamma(\mathbf{Q}_1,T))^2}. \tag{4.2}$$

On discutera de l'utilisation d'une seule contribution Lorentzienne pour ajuster le signal dans la Section 4.2. On obtient ainsi que $\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ est indépendant de la température T pour $T \leq 2$ K, ce qui implique une même valeur du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T) = 0.29 \pm 0.2$ meV et une même valeur de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ aux deux températures $T = 0.1$ and 2 K. La saturation de ces deux paramètres aux basses températures sera discutée avec plus de détails dans le Chapitre 6.

4.2 Etude de la variation avec la température des fluctuations de spin

4.2.1 Conditions expérimentales

Les expériences de diffusion inélastique des neutrons présentées ici ont été faites sur les spectromètres trois axes à neutrons froids IN12 et à neutrons thermiques IN22 de l'ILL (lignes CRG du CEA), à Grenoble. Le monocristal de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ étudié ici est le même que celui utilisé dans l'expérience décrite dans la Section 4.1. Les énergies finales des neutrons ont été fixées à 4.65 meV sur IN12 et à 14.7 meV sur IN22, des résolutions d'environ 0.17 meV sur IN12 et 1 meV sur IN22 (largeurs totales à mi hauteur du signal incohérent élastique) étant ainsi obtenues. Lors de ces expériences, la diffusion des neutrons a été faite dans le plan (0,0,1). Un filtre en béryllium et un filtre en graphite pyrolytique ont été respectivement utilisés sur IN12 et IN22 afin d'éliminer les contaminations en ordres supérieurs. Dans les deux cas, le monochromateur focalisant verticalement et l'analyseur focalisant horizontalement étaient en graphite pyrolytique. Des collimations 60'-ouvert-ouvert et ouvert-ouvert-ouvert ont été utilisées sur IN12 et IN22, respectivement. Les expériences sur IN12 ont été effectuées en utilisant un cryostat "Orange" (^{4}He pompé) permettant de travailler entre 1.5 et 300 K et un cryostat à dilution permettant de travailler entre 40 mK et 1.6 K. Les mesures sur IN22 ont été

faites en utilisant un cryostat "Orange". Les points mesurés sur IN12 et IN22 correspondent respectivement à des temps de comptage de l'ordre de 15 et de 5 minutes. Pour chaque jeu de données, des corrections d'efficacité du moniteur et de décalage du zéro en énergie ont été faites. Un bruit de fond constant déduit des mesures faites aux basses températures à des grands transferts d'énergie négative a aussi été soustrait. Pour les températures $2.5 < T < 295$ K, les points de hautes énergies mesurés sur IN22 ont été combinés avec les points de basses énergies mesurés sur IN12 en utilisant un facteur de normalisation approprié. Ce facteur de normalisation a été choisi de telle manière que les données mesurées dans la gamme d'énergies $1.9 < E < 2.5$ meV communes aux deux jeux de données se superposent de manière optimale.

4.2.2 Résultats

4.2.2.1 Analyse des spectres

Les données présentées ici consistent en des spectres obtenus par diffusion inélastique des neutrons pour deux transferts de moment : le transfert de moment antiferromagnétique $\mathbf{Q}_1 = (0.69\ 1\ 0) = \boldsymbol{\tau}$ - $\mathbf{k}_1$, où $\boldsymbol{\tau} = (1\ 1\ 0)$ est un pic de Bragg nucléaire et $\mathbf{k}_1$ est un vecteur d'onde caractéristique des corrélations antiferromagnétiques du système, et le transfert de moment $\mathbf{Q}_0 = (0.44\ 1\ 0)$ où le signal peut être considéré comme non-corrélé magnétiquement. Dans la Figure 4.3, les spectres des excitations obtenus à ces deux vecteurs sont tracés pour les températures

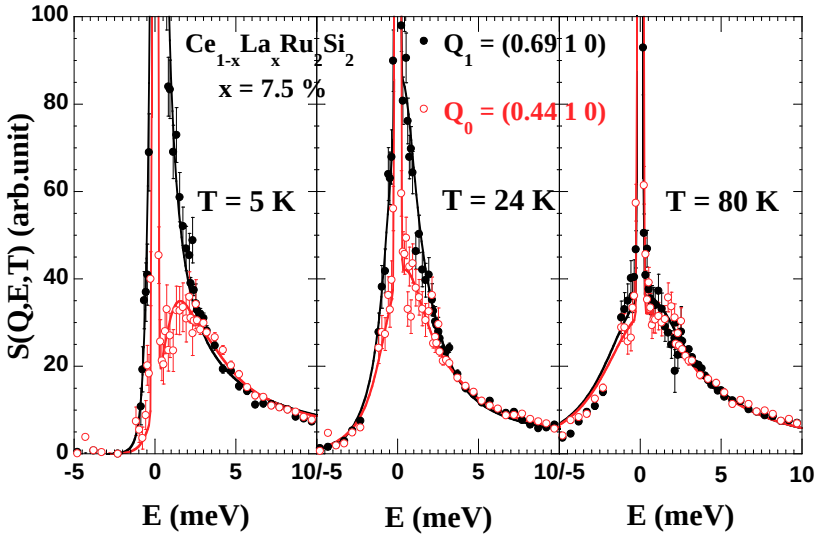

FIG. 4.3 – *Spectres obtenus pour les températures $T = 5$, 24 et 80 K aux transferts de moments $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$. Un bruit de fond constant déduit du signal mesuré aux basses températures pour des grands transferts d'énergie négatifs a été soustrait de ces spectres. La diffusion à $E = 0$ correspond au signal incohérent élastique. Les lignes résultent de l'ajustement des données expérimentales.*

$T = 5$, 24 et 80 K; l'allure de chacun de ces spectres est caractéristique d'un processus de relaxation. A $T = 5$ K, les fluctuations sont très piquées aux vecteurs d'onde antiferromagnétiques et l'intensité mesurée en $\mathbf{Q}_1$ est beaucoup plus grande que celle mesurée au vecteur non corrélé $\mathbf{Q}_0$. Quand la température augmente la différence entre les deux signaux s'atténue jusqu'à ce qu'au dessus de la température de corrélation $T_{corr} \simeq 80$ K ils soient quasiment identiques : le système n'est alors plus corrélé magnétiquement. On note aussi que quelle que soit la température les corrélations magnétiques ne concernent que les basses énergies du système, les deux signaux étant identiques pour des énergies $E > 4$ meV.

Pour les deux vecteurs $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$, on déduit des mesures de diffusion des neutrons la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ en utilisant (4.1). Les données obtenues en chaque $\mathbf{Q}$ sont ensuite ajustées par une fonction Lorentzienne quasiélastique :

$$\chi''(\mathbf{Q},E,T) \quad = \quad \frac{A(\mathbf{Q},T)}{\Gamma(\mathbf{Q},T)} \frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1+(E/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2}, \tag{4.3}$$

ce qui correspond à l'approximation la plus simple qui puisse être faite pour traiter les fluctuations de spin[2]. En effet, la susceptibilité dynamique $\chi(\mathbf{Q},E,T)$ correspondante est la transformée de Fourier d'une décroissance exponentielle avec un taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ et on peut écrire :

$$\chi(\mathbf{Q},E,T) = \chi'(\mathbf{Q},E,T) + i\chi''(\mathbf{Q},E,T) = \frac{A(\mathbf{Q},T)}{\Gamma(\mathbf{Q},\mathbf{T}) - iE}. \tag{4.4}$$

On obtient la susceptibilité statique en utilisant la relation de Kramers-Kronig :

$$\chi'(\mathbf{Q},T) = \chi'(\mathbf{Q},E=0,T) = \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\mathbf{Q},E,T)}{E} dE = \frac{A(\mathbf{Q},T)}{\Gamma(\mathbf{Q},T)}. \tag{4.5}$$

Dans la Section 3.1.1, on a vu que dans le composé $CeRu_2Si_2$ l'excitation de champ cristallin Δ_1 avait été estimée entre 220 et 350 K selon les mesures, c'est à dire entre 20 et 30 meV, et qu'elle était très élargie par les fluctuations Kondo. Comme les mesures de susceptibilité dc indiquent que le schéma de champ cristallin ne change pas avec x dans les alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ [Haen 92], on peut considérer que le spectre des excitations du composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ est constitué d'une excitation de champ cristallin très élargie et centrée à environ 20/30 meV. Il est donc raisonnable de considérer que les excitations de champ cristallin dominent les fluctuations de basses énergies pour $E > 10$ meV. A la place de (4.5), on utilise donc une relation

2. L'analyse des données consiste dorénavant en une description des excitations mesurées en un vecteur d'onde donné à l'aide d'une seule contribution. Elle est donc légèrement différente de celle faite dans les travaux précédents où le signal était ajusté par deux contributions : une contribution à un site indépendante du transfert de moment $\mathbf{Q}$ et une contribution inter-sites piquée aux vecteurs d'onde des fluctuations antiferromagnétiques (cf. Sections 3.1.2 et 3.2.1.1). Notons aussi que dans les deux traitements, le signal mesuré en $\mathbf{Q}_0$ est ajusté par une seule contribution à laquelle correspond l'indice "ss" dans l'ancienne analyse et l'indice "0" dans la nouvelle.

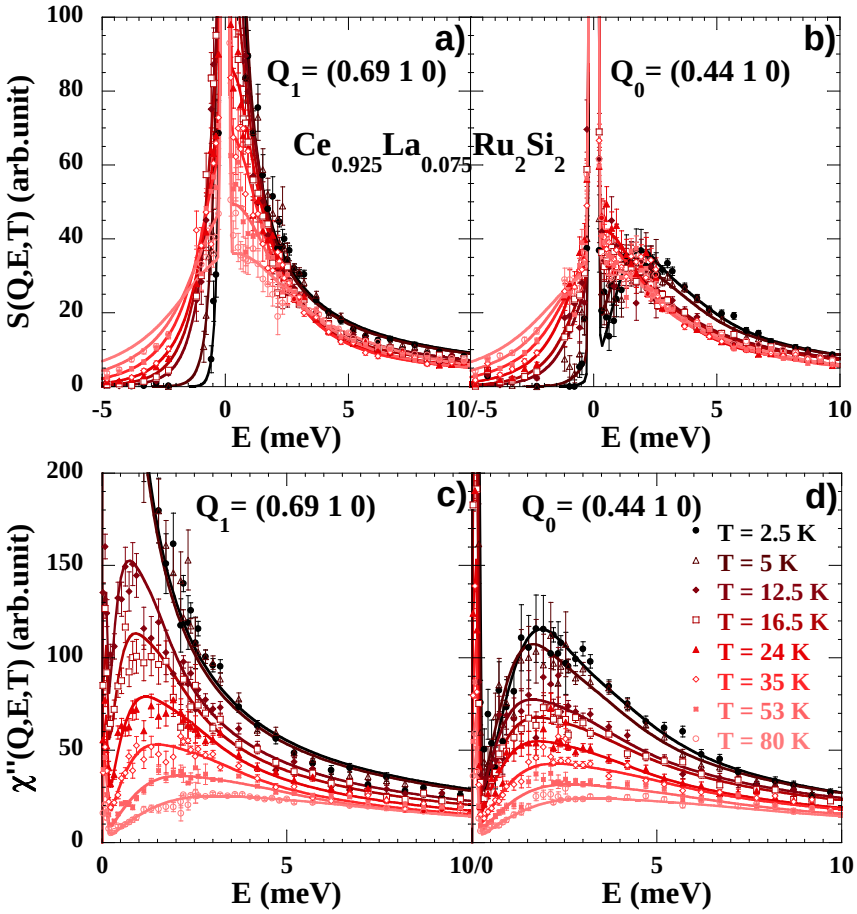

FIG. 4.4 – *Fonction de diffusion $S(\mathbf{Q},E,T)$ a) en $\mathbf{Q}_1$ b) en $\mathbf{Q}_0$ et partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ c) en $\mathbf{Q}_1$ d) en $\mathbf{Q}_0$ pour $2.5 < T < 80$ K. Les lignes correspondent aux ajustements des données expérimentales.*

de Kramers-Kronig où une énergie de coupure de 10 meV est introduite pour estimer la susceptibilité statique correspondant aux seules fluctuations de spin de basses énergies :

$$\chi'(\mathbf{Q},T) \quad = \quad \frac{2}{\pi}\int_0^{10} \frac{\chi''(\mathbf{Q},E,T)}{E} dE. \tag{4.6}$$

$S(\mathbf{Q},E,T)$ et ses ajustements faits en utilisant (4.3) sont tracés pour les deux transferts de moments $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$ et pour les températures $2.5 < T < 80$ K sur les Figures 4.4 a) et b). Les spectres $S(\mathbf{Q}_1,E,T)$ correspondent aux fluctuations de spin corrélées antiferromagnétiquement : la Figure 4.4 a) indique que leur intensité diminue assez nettement lorsque T augmente. Pour les fluctuations de spin non corrélées magnétiquement, on voit sur la Figure 4.4 b) que pour $E > 0$ et $T \geq 12.5$ K l'intensité $S(\mathbf{Q}_0,E,T)$ est indépendante de la température. Par contre, les points d'énergie négative dépendent fortement de la température, du fait de la condition de

balance détaillée $S(\mathbf{Q}, -E,T) = exp(-E/k_BT)S(\mathbf{Q},E,T)$. Un tel comportement a en fait déjà été rapporté pour les composés polycristallins UCu_4Pd and $CeRh_{0.8}Pd_2Sb$, où on trouve aussi que l'intensité de diffusion des neutrons est indépendante de la température pour des transferts d'énergie positive [Aronson 95, Park 02a]. Pour les deux vecteurs $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$, on obtient une forte dépendance avec la température T de la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$, comme on peut le voir sur les Figures 4.4 c) et d). Contrairement à $S(\mathbf{Q},E,T)$, $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ a une intensité qui pour les deux vecteurs mesurés décroît et est fortement élargie lorsque la température T augmente. Finalement, pour chaque vecteur $\mathbf{Q}$ et chaque température T, on obtient le taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ en ajustant le spectre par (4.3) et la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q},T)$ est déduite de (4.6).

Bien que la contribution Lorentzienne quasiélastique (4.3) permette d'ajuster avec précision les spectres obtenus en $\mathbf{Q}_1$ et ceux obtenus aux températures $T \geq 12.5$ K en $\mathbf{Q}_0$, les spectres obtenus en $\mathbf{Q}_0$ aux températures $T = 2.5$ et 5 K sont mieux ajustés par une contribution Lorentzienne inélastique. En effet, on voit sur la Figure 4.4 b) que les spectres correspondant à ces deux températures ont un poids plus important aux hautes énergies que ceux obtenus pour $T \geq 12.5$ K. Leur analyse en utilisant la contribution Lorentzienne inélastique :

$$\chi''(\mathbf{Q},E,T) = \frac{A(\mathbf{Q},T)}{2\Gamma(\mathbf{Q},T)}\left(\frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1+((E-E_i(\mathbf{Q},T))/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2} + \frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1+((E+E_i(\mathbf{Q},T))/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2}\right) \quad (4.7)$$

conduit à des inélasticités $E_i(\mathbf{Q}_0,T) = 1.1 \pm 0.1$ meV à $T = 2.5$ K et $E_i(\mathbf{Q}_0,T) = 0.8 \pm 0.1$ meV à $T = 5$ K (cf. Figure 4.5). Cependant, les données obtenues aux neutrons ne sont pas suffisantes

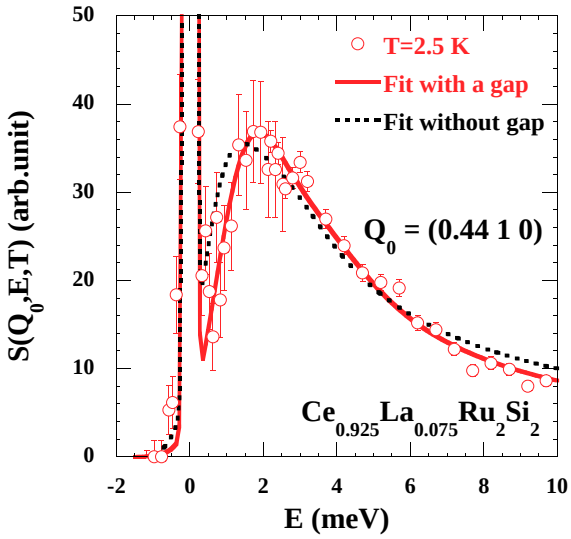

FIG. 4.5 – *Spectre $S(\mathbf{Q},E,T)$ obtenu en $\mathbf{Q}_0$ à la température $T = 2.5$ K. La ligne continue et la ligne en tirets résultent respectivement de l'ajustement des points expérimentaux par la fonction inélastique (4.7) et par la fonction quasiélastique (4.3).*

pour conclure quant à l'inélasticité $E_i(\mathbf{Q}_0,T)$ de la raie observée, l'ajustement des spectres en utilisant (4.7) conduisant à des valeurs de $E_i(\mathbf{Q}_0,T)$ deux fois inférieures à la largeur $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ de la raie.

Dans les deux Sections suivantes, on analyse séparément les dépendances en température des spectres obtenus au vecteur $\mathbf{Q}_1$ et de ceux obtenus au vecteur $\mathbf{Q}_0$. On s'intéressera particulièrement aux variations avec T des taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ et des susceptibilités statiques $\chi'(\mathbf{Q},T)$ obtenus en ces deux vecteurs.

4.2.2.2 Fluctuations de spin corrélées antiferromagnétiquement

Dans cette Section, l'analyse des fluctuations corrélées antiferromagnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ (et mesurées au transfert de moment $\mathbf{Q}_1$) n'est faite que lorsque le système est corrélé magnétiquement, c'est à dire sous la température de corrélation $T_{corr} \simeq 80$ K. Les variations avec la température T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ sont tracées sur la Figure 4.6. On distingue clairement deux régimes : un régime de basses températures où $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ sont quasi-indépendants de T et un régime de hautes températures où $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ dépendent fortement de T.

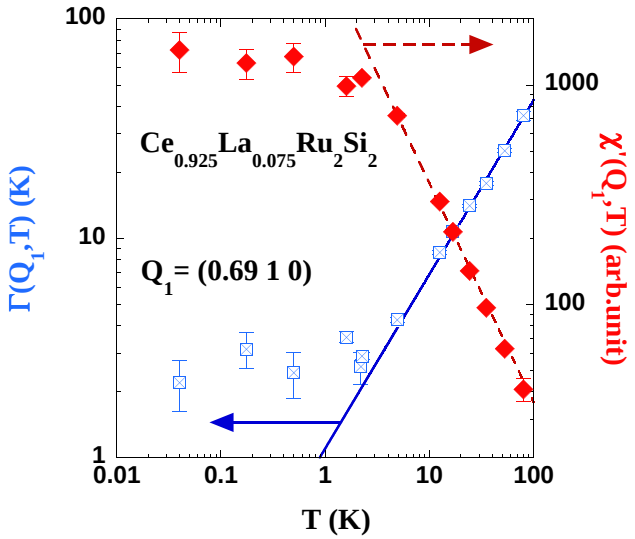

FIG. 4.6 – *Variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$. La ligne continue et la ligne en tirets correspondent respectivement aux ajustements hautes-températures de $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$.*

En dessous d'une température $T_1 = 2.5$ K, $\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ ne dépend pas de T. Le taux de relaxation vaut alors $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T) \simeq k_B T_1$ et on est dans le régime pour lequel $\tau < \tau_T$, où

$\tau = 1/\Gamma(\mathbf{Q}_1,T = 0) = 1/(k_B T_1)$ est le temps de relaxation des fluctuations antiferromagnétiques de basse température et $\tau_T = 1/(k_B T)$. Ce régime correspond donc au régime quantique tel qu'il est défini dans l'image simple sur les lois d'échelle introduite dans la Section 1.3.2.1. Notons que la saturation des fluctuations de spin mesurées ici en utilisant les spectromètres trois axes IN12 et IN22 est confirmée par l'expérience décrite dans la Section 4.1, où de plus basses énergies ont été atteintes grâce à l'utilisation du spectromètre à temps de vol à géométrie inversée IRIS.

Aux hautes températures $T_1 < T < T_{corr}$, les fluctuations de spin antiferromagnétiques sont contrôlées par la température et on peut extraire des lois de puissance en température de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$:

$$\chi'(\mathbf{Q}_1,T) = \quad C_1/T^{\alpha_1} \quad \text{et} \quad \Gamma(\mathbf{Q}_1,T) = a_1 T^{\beta_1} \tag{4.8}$$

avec

$$\begin{aligned} \alpha_1 = &\quad 1 \pm 0.05, & C_1 &= 3550 \pm 100 \text{ arb. unit,} \\ \beta_1 = &\quad 0.8 \pm 0.05, \quad \text{et} & a_1 &= 1.1 \pm 0.05 \text{ SI unit.} \end{aligned}$$

Pour être plus précis, la température caractéristique T_1 a été définie à l'intersection des deux régimes asymptotiques obtenus aux basses et aux hautes températures, la même température $T_1 = 2.5 \pm 0.5$ K étant déduite des variations en température $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et de $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$. Sachant

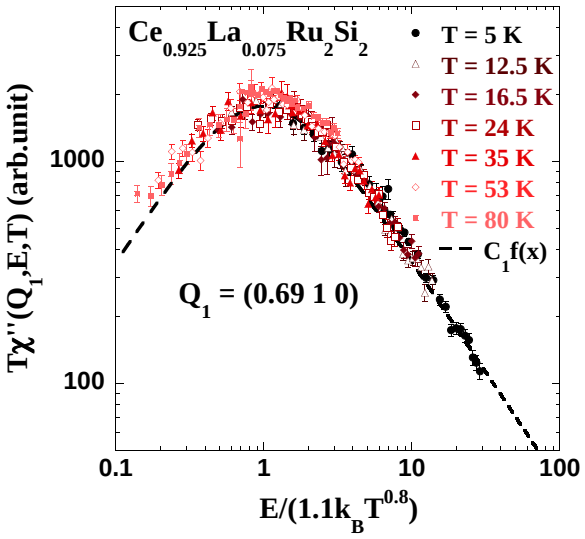

FIG. 4.7 – *Comportement en loi d'échelle des fluctuations de spin antiferromagnétiques obtenues en* $\mathbf{Q}_1$ *pour* $5 \leq T < 80$ *K. La susceptibilité dynamique suit la loi d'échelle* $T\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) = C_1 f[E/(1.1T^{0.8})]$, *où* $f(x) = x/(1+x^2)$.

que $\chi'(\mathbf{Q}_1,T) \simeq A(\mathbf{Q}_1,T)/\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$, le régime hautes-températures $T_1 < T < T_{corr}$ suit donc la loi d'échelle :

$$T\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) = C_1 f\left(\frac{E}{a_1 T^{0.8}}\right), \tag{4.9}$$

où $f(x) = x/(1+x^2)$ avec $x = E/(a_1 T^{0.8})$. Sur la Figure 4.7, on montre que les points expérimentaux obtenus pour le transfert de moment $\mathbf{Q}_1$ aux températures $T_1 < T < T_{corr}$ s'ajustent sur une même et unique courbe $C_1 f(x)$ quand on trace $T\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ en fonction de $E/(1.1T^{0.8})$. Dans le Chapitre 6, nous reviendrons sur la forme apparemment anormale de la loi d'échelle qui est obtenue ici pour les fluctuations de spin antiferromagnétiques.

4.2.2.3 Fluctuations de spin non corrélées

Les variations en température du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ des fluctuations de spin non-corrélées sont tracées sur la Figure 4.8. Comme pour les fluctuations antiferromagnétiques, on peut définir une température caractéristique $T_0 = 18 \pm 1$ K à l'intersection des régimes asymptotiques de basses et de hautes températures. En effet, pour $T < T_0$ $\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T)$ ne dépend pas de T et on a alors $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T) \simeq k_B T_0$, comme attendu dans une image simple de loi d'échelle (cf. Section 1.3.2.1). Pour $T > T_0$, $\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T)$ dépend fortement de la température et on peut extraire des lois de puissance de T. Les ajustements faits pour $T \geq 80$ K sur $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ et pour $T \geq 20$ K sur $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ donnent :

$$\chi'(\mathbf{Q}_0,T) = C_0/T^{\alpha_0} \quad \text{et} \quad \Gamma(\mathbf{Q}_0,T) = a_0 T^{\beta_0} \tag{4.10}$$

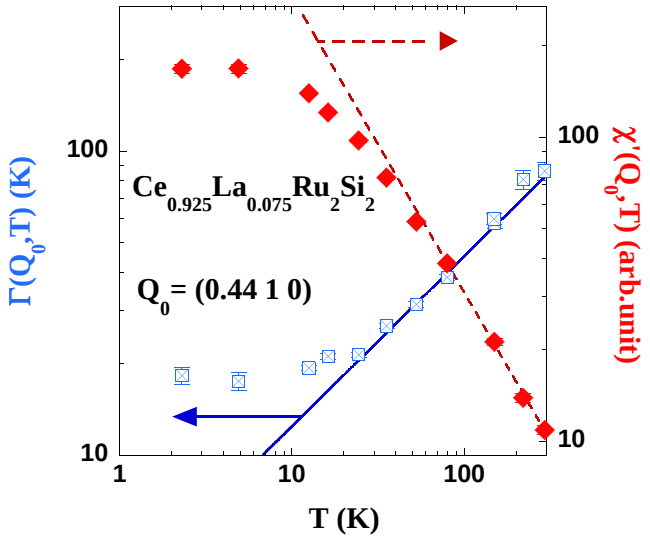

FIG. 4.8 – *Variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$. La ligne continue et la ligne en tirets correspondent respectivement aux ajustements hautes-températures de $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$.*

avec

$$\begin{aligned} \alpha_0 = &\ 1 \pm 0.1, & C_0 &= 2740 \pm 200 \text{ arb. unit,} \\ \beta_0 = &\ 0.6 \pm 0.2, \quad \text{et} & a_0 &= 3.1 \pm 0.5 \text{ SI unit.} \end{aligned}$$

Cependant, des échelles d'énergie plus grandes et de plus petites intensités de diffusion font que l'étude des fluctuations non corrélées magnétiquement est plus difficile que celle des fluctuations antiferromagnétiques. En effet, le régime quantique des fluctuations non corrélées diffère de celui des fluctuations antiferromagnétiques de par son énergie caractéristique k_BT_0 qui est 7 plus plus grande que k_BT_1. Le régime dépendant de T des fluctuations non corrélées doit être analysé à des températures suffisamment grandes par rapport à T_0. A ces températures, les fluctuations de spin du doublet fondamental s'entremêlent aux excitations du champ cristallin et il est difficile de les étudier avec précision. Cela affecte la détermination des exposants α_0 et β_0 et résulte en des incertitudes plus grandes que pour les exposants des fluctuations antiferromagnétiques. L'incertitude concernant α_0 est cependant minimisée grâce à l'introduction d'une énergie de coupure dans la Formule (4.6). Cette procédure se justifie a posteriori par la loi de Curie ainsi obtenue pour les hautes températures de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$, ce qui est en très bon accord avec la susceptibilité macroscopique (cf. Section 4.3). Contrairement aux fluctuations antiferromagnétiques, la susceptibilité $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ estimée à partir de (4.6) est différente de $A(\mathbf{Q}_0,T)/\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$. Ainsi, les données expérimentales brutes ne peuvent pas être utilisées pour tracer un graphique similaire à celui de la Figure 4.7. Cependant, l'analyse de chacun des spectres obtenus au vecteur $\mathbf{Q}_0$ mène aux lois de puissance (4.10) et implique le comportement selon la loi d'échelle $T\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T) = C_0 f[E/(a_0T^{\beta_0})]$ de la susceptibilité dynamique correspondant aux fluctuations de spin non corrélées magnétiquement.

4.3 Comparaison avec la susceptibilité macroscopique

La susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$ a été mesurée selon l'axe c d'un monocristal d'environ 3 mm^3 de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ par P. Haen, F. Lapierre et S. Yates (CRTBT, CNRS Grenoble)[3]. La susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$ est comparée sur la Figure 4.9 aux susceptibilités microscopiques $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ déduites des mesures de diffusion des neutrons. Pour $T > 150$ K, $\chi_{bulk}(T)$ suit une loi de Curie-Weiss avec une température de Curie $\theta \simeq 20$ K, i.e. $\chi_{bulk}(T) = C/(T-\theta)$. Pour $T > 100$ K, $\chi'(\mathbf{Q},T)$ est indépendante de $\mathbf{Q}$ et suit aussi une loi de Curie; la détermination d'une température de Curie est alors impossible du fait des incertitudes sur $\chi'(\mathbf{Q},T)$. D'après le schéma de champ cristallin de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ (cf. Sections 3.1.1 et 3.2.1.1), on peut négliger les contributions de type Van Vleck dans la susceptibilité $\chi_{bulk}(T)$ mesurée selon l'axe c [van Vleck 32]. Comme les excitations de champ cristallin ne sont pas prises en compte dans les susceptibilités $\chi'(\mathbf{Q},T)$ déduites des neutrons en utilisant (4.6),

3. Ces mesures de susceptibilité ont été faites par P. Haen et F. Lapierre aux températures $5 < T < 300$ K en utilisant un magnétomètre dc commercial (SQUID) au CEA Grenoble, et par S. Yates aux températures $0.25 < T < 5$ K en utilisant un magnétomètre dc (SQUID) fonctionnant dans un cryostat à dilution, au CRTBT.

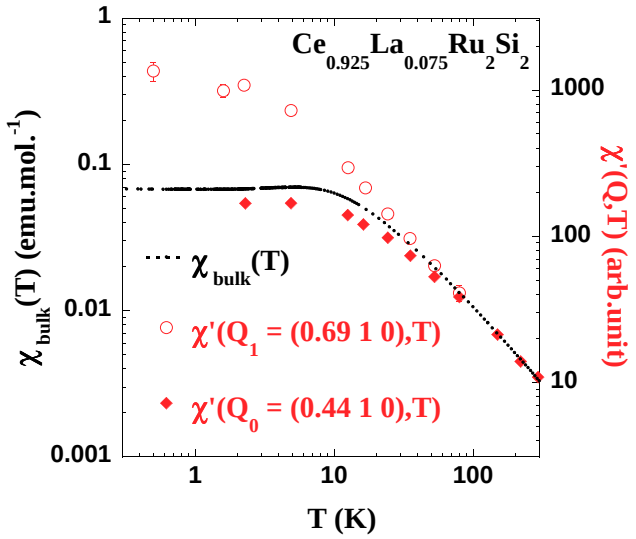

FIG. 4.9 – *Variations avec T des susceptibilités microscopiques $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ et de la susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$.*

à la fois $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et $\chi_{bulk}(T)$ correspondent donc aux seules fluctuations des spins du doublet fondamental. La susceptibilité dc étant une mesure correspondant à un vecteur d'onde $\mathbf{Q} = 0$, on a donc $\chi_{bulk}(T) = \chi'(\mathbf{Q} = 0,T)$ où $\chi'(\mathbf{Q},T)$ est obtenue en utilisant (4.6). Pour $T > T_{corr}$, il n'y a plus de corrélations magnétiques et $\chi'(\mathbf{Q},T)$ est indépendante de $\mathbf{Q}$. On peut donc ajuster $\chi'(\mathbf{Q},T)$ à $\chi_{bulk}(T)$ aux hautes températures, comme c'est fait sur la Figure 4.9.

On obtient que $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et $\chi_{bulk}(T)$ s'ajustent bien aux hautes températures et que $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ et $\chi_{bulk}(T)$ sont semblables aux basses températures, où on a la hiérarchie des susceptibilités $\chi'(\mathbf{Q}_0,0)$,$\chi_{bulk}(0) \ll \chi'(\mathbf{Q}_1,0)$. D'une part, la grande valeur de $\chi'(\mathbf{Q}_1,0)$ provient des fortes corrélations qui se développent avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$. D'autre part, $\chi_{bulk}(0)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,0)$ sont relativement proches, ce qui indique qu'en $\mathbf{Q}_0$ et $\mathbf{Q} = 0$ les corrélations sont nulles, ou très faibles. Dans la Figure 4.9, on voit que $\chi_{bulk}(0)$ est légèrement supérieure à $\chi'(\mathbf{Q}_0,0)$: i) soit cette hiérarchie est artificielle et provient uniquement du traitement des données fait ici (il n'y aurait alors aucune corrélation ni en $\mathbf{Q}_0$ ni en $\mathbf{Q} = 0$), ii) soit cette hiérarchie est due à la présence de légères corrélations ferromagnétiques, ce qui se traduit par des fluctuations légèrement plus importantes au vecteur d'onde $\mathbf{Q} = 0$. Ces corrélations ferromagnétiques traduiraient alors la proximité de la transition métamagnétique du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, où de fortes fluctuations ferromagnétiques se développent au champ métamagnétique H_m [Fisher 91, Raymond 98, Haen 87, Flouquet 95, Flouquet 02].

Comme pour $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$, on peut définir pour $\chi_{bulk}(T)$ une température caractéristique $T^* = 16 \pm 1$ K à l'intersection entre les régimes asymptotiques de basses et hautes températures. A partir de la Figure 4.9, on peut aussi exprimer $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ en unités

CGS, ce qui donne finalement :

$$\begin{aligned} T_1.\chi'(\mathbf{Q}_1,0) &= 1.1 \pm 0.1 \ \ \text{K.emu.mol}^{-1}, \\ T_0.\chi'(\mathbf{Q}_0,0) &= 1.0 \pm 0.1 \ \ \text{K.emu.mol}^{-1}, \\ et \ \ T^*.\chi_{bulk}(0) &= 1.1 \pm 0.1 \ \ \text{K.emu.mol}^{-1}. \end{aligned}$$

En notant $T_{\mathbf{Q}}$ la température caractéristique des fluctuations de spin au vecteur $\mathbf{Q}$, nous avons donc $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},0)$ indépendant de $\mathbf{Q}$, aux barres d'erreur près. Comme $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0) \simeq k_B T_1$ et $\Gamma(\mathbf{Q}_0,0) \simeq k_B T_0$, on assume ici que $\Gamma(\mathbf{Q} = 0,0) \simeq k_B T^*$. Les saturations de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ aux basses températures sont donc telles que :

$$\chi'(\mathbf{Q},0) = \frac{C}{T_{\mathbf{Q}}} \qquad \text{et} \qquad \Gamma(\mathbf{Q},0) \simeq k_B\, T_{\mathbf{Q}}. \tag{4.11}$$

On a donc $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ indépendant de $\mathbf{Q}$ et de T aux basses températures, comme c'est attendu pour un liquide de Fermi gouverné par la proximité d'une instabilité antiferromagnétique [Kuramoto 87, Kuramoto 89, Moriya 95]. On voit sur la Figure 4.10 que cette image de liquide de Fermi est brisée lorsque pour $T \gtrsim 10$ K, $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ chute avec T, du fait des comportements différents de $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ et de $1/\chi'(\mathbf{Q},T)$.

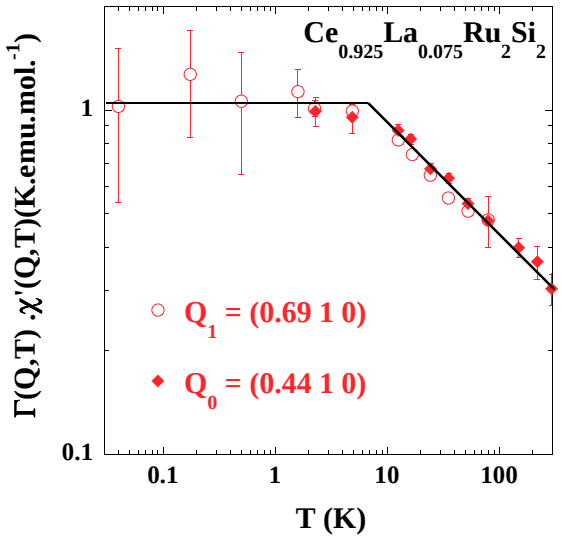

FIG. 4.10 – *Variations avec T de la quantité $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ obtenue aux vecteurs $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$. Les lignes sont des guides pour les yeux.*

Chapitre 5

Etude du composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$

Dans le Chapitre précédent, nous avons fait une étude très précise de la dépendance en température des fluctuations de spin du composé de concentration critique $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. Afin d'exploiter au mieux ces mesures, il est nécessaire de pouvoir les comparer aux mesures d'un composé légèrement distant de la concentration critique, les mesures des deux composés devant être faites dans des conditions expérimentales équivalentes. Pour cela nous présentons ici de nouvelles mesures des fluctuations de spin du composé paramagnétique $CeRu_2Si_2$ [1]. L'analyse est faite de manière identique à celle faite pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, des spectres d'excitations très similaires étant obtenus pour les deux composés. On montre ici que $CeRu_2Si_2$ se distingue de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ par des énergies caractéristiques plus grandes et par une inélasticité apparemment plus accentuée des fluctuations aux basses températures.

5.1 Conditions expérimentales

Les expériences de diffusion inélastique des neutrons décrites dans ce Chapitre ont été effectuées sur les spectromètres trois axes 4F1 et 4F2 (qu'on notera 4F par la suite) du LLB au CEA Saclay, et IN22 de l'ILL à Grenoble (lignes CRG du CEA). Un monocristal de $CeRu_2Si_2$ d'environ 300 mm^3 a été utilisé ici. Sa croissance a été faite par P. Lejay au CRTBT (CNRS Grenoble) en utilisant une méthode de tirage Czochralski [Lejay 93]. Lors de ces expériences, le plan de diffusion des neutrons était (0,0,1). Des neutrons d'énergies finales de 5 et 14.7 meV ont été respectivement utilisés sur 4F et IN22, résultant en des résolutions d'environ 0.3 meV sur 4F et 1 meV sur IN22 (largeurs totales à mi hauteur du signal incohérent élastique). Un filtre en béryllium sur 4F et un filtre en graphite pyrolytique sur IN22 ont été utilisés

1. Comme dans le Chapitre 4, les résultats présentés ici ont été obtenus pour des gammes de températures $0.18 < T < 300$ K et de transferts d'énergie $0.4 < E < 9.5$ meV bien plus larges que lors des expériences faites par le passé sur $CeRu_2Si_2$ (cf. Section 3.1.2), et en bénéficiant d'une statistique de comptage améliorée.

pour supprimer les contaminations en ondes d'ordres supérieurs. Sur ces trois instruments, le monochromateur focalisant verticalement et l'analyseur focalisant horizontalement sont en graphite pyrolytique. Les expériences sur 4F ont été effectuées en utilisant un cryostat "Orange" (^{4}He pompé) permettant de travailler entre 1.5 et 300 K et un cryostat à dilution permettant de travailler entre 180 mK et 1 K. Les mesures sur IN22 ont été faites en utilisant un cryostat "Orange". Les points mesurés sur 4F et IN22 correspondent respectivement à des temps de comptage de l'ordre de 15 et de 5 minutes. Pour $1.5 < T < 295$ K, on a procédé comme dans le Chapitre 4 pour combiner les points provenant de 4F et ceux provenant d'IN22 : les deux types de données ont été regroupées en appliquant un facteur d'échelle choisi pour un ajustement optimal dans leur gamme commune $2 < E < 6$ meV. Comme dans le Chapitre précédent, les données ont aussi été préalablement corrigées par rapport à l'efficacité du moniteur, le zéro en énergie et le bruit de fond.

5.2 Etude de la variation avec la température des fluctuations de spin

5.2.1 Analyse des spectres

Nous présentons ici les spectres des excitations magnétiques de $CeRu_2Si_2$ obtenus par diffusion inélastique des neutrons aux transferts de moments $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$, ces vecteurs étant ceux où les spectres de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ ont été mesurés (cf. Chapitre 4). Alors que $\mathbf{Q}_1$ correspond aux fluctuations de spin corrélées magnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{Q}_0$ est supposé correspondre à des fluctuations de spin non-corrélées magnétiquement. On verra cependant que contrairement à $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, des corrélations subsistent dans $CeRu_2Si_2$ en $\mathbf{Q}_0$ (cf. Sections 6.1.2 et 5.3). Sur la Figure 5.1 sont montrés les spectres obtenus à $T = 5$, 22 et 80 K pour ces deux vecteurs : leurs allures et comportements en température sont très similaires à ceux des spectres de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ (cf. Figure 4.3). A $T = 5$ K, les fluctuations de spin sont très fortement corrélées, le signal en $\mathbf{Q}_1$ étant nettement plus grand que celui obtenu en $\mathbf{Q}_0$. En comparant les graphes des Figures 5.1 et 4.3, on voit que ces corrélations sont moins fortes dans $CeRu_2Si_2$ que dans $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. Les corrélations diminuent lorsque T augmente, comme on le voit à $T = 22$ K, et à $T = 80$ K les deux signaux obtenus en $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$ sont quasiment égaux : il n'y a alors presque plus de corrélations dans le système. Comme dans $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, on peut définir une température $T_{corr} \approx 100$ K en dessous de laquelle le composé $CeRu_2Si_2$ est corrélé magnétiquement. Notons que cette valeur de T_{corr} est nettement plus grande que celle d'environ 40 K rapportée par Jacoud et al [Jacoud 91, Rossat 88, Regnault 88]. Finalement, pour $CeRu_2Si_2$ comme pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ les fluctuations magnétiques ne sont pas corrélées lorsque $E > 4$ meV.

L'utilisation du théorème de fluctuation-dissipation permet de déduire la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ des spectres $S(\mathbf{Q},E,T)$ (cf. Formule (4.1)). Pour

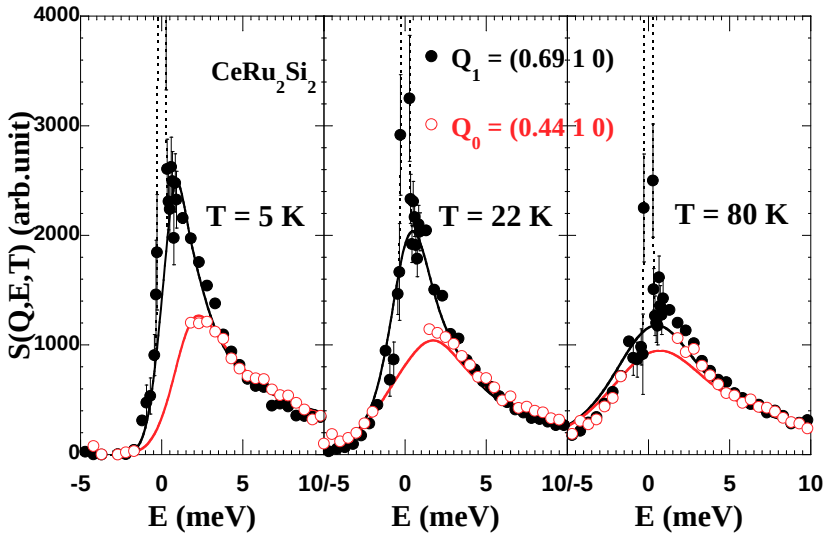

FIG. 5.1 – *Spectres obtenus pour les températures $T = 5$, 22 et 80 K aux transferts de moments $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$. Un bruit de fond constant déduit du signal mesuré aux basses températures pour des grands transferts d'énergie négatifs a été soustrait de ces spectres. La diffusion à $E = 0$ correspond au signal incohérent élastique. Les lignes continues résultent de l'ajustement des données expérimentales par la fonction (5.1), celles en pointillés correspondant à la contribution élastique incohérente au vecteur $\mathbf{Q}_1$.*

ajuster les spectres expérimentaux, on utilise la forme Lorentzienne inélastique suivante :

$$\chi''(\mathbf{Q},E,T) = \frac{A(\mathbf{Q},T)}{2\Gamma(\mathbf{Q},T)} \left(\frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1 + ((E - E_i(\mathbf{Q},T))/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2} + \frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1 + ((E + E_i(\mathbf{Q},T))/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2} \right). \tag{5.1}$$

Contrairement au composé de concentration x_c où une inélasticité de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ est uniquement obtenue pour le vecteur $\mathbf{Q}_0$ à $T = 2.5$ et 5 K (cf. Section 4.2.2.1), les courbes mesurées pour le composé $CeRu_2Si_2$ présentent une inélasticité pour le transfert de moment $\mathbf{Q}_1$ aux températures $T \lesssim 22$ K, et pour le transfert de moment $\mathbf{Q}_0$ aux températures $T \lesssim 34$ K[2]. Sur la Figure 5.2, on voit par exemple qu'un meilleur ajustement des points mesurés en $\mathbf{Q}_0$ à $T = 11$ K est obtenu lorsqu'on utilise une contribution Lorentzienne inélastique (avec $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 1.2$ meV, cf. ci-après), plutôt qu'une contribution Lorentzienne quasiélastique. Il est cependant difficile d'extraire précisément $E_i(\mathbf{Q},T)$ lorsqu'on ajuste les spectres par la fonction (5.1). En effet, on obtient des valeurs de $E_i(\mathbf{Q},T)$ faibles par rapport au taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$, ce qui augmente considérablement la barre d'erreur sur $E_i(\mathbf{Q},T)$. Pour les spectres

2. Dans les travaux précédents où deux contributions étaient utilisées pour ajuster les données, Jacoud et al. avaient obtenu une inélasticité pour le seul signal inter-sites, le signal non corrélé étant alors quasiélastique (cf. Section 3.1.2).

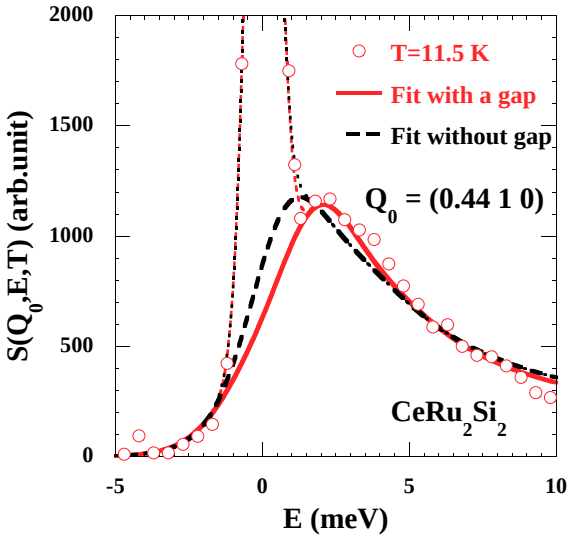

FIG. 5.2 – *Spectre $S(\mathbf{Q},E,T)$ obtenu en $\mathbf{Q}_0$ à la température $T = 11.5$ K. La ligne continue et la ligne en tirets résultent respectivement de l'ajustement des points expérimentaux par la fonction inélastique (4.7) et par la fonction quasiélastique (4.3). Les lignes en pointillés correspondent à la somme du signal incohérent élastique et du signal quasi ou inélastique.*

obtenus en $\mathbf{Q}_1$ à $T < 22$ K on préfère fixer la valeur de l'inélasticité à $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 0.5$ meV, cette dernière étant une moyenne des valeurs obtenues pour chacun des spectres. Pour $T = 22$ K, l'inélasticité est moindre et vaut $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 0.3 \pm 0.1$ meV. Lorsque $T > 22$ K, le signal s'ajuste mieux par une fonction quasiélastique où on a alors $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 0$ dans la Formule (5.1). Pour les mêmes raisons, le traitement des spectres obtenus en $\mathbf{Q}_0$ à $T < 33$ K est fait en fixant la valeur de l'inélasticité à $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 1.2$ meV. Le spectre obtenu à $T = 33$ K a quant à lui une inélasticité égale à $E_i(\mathbf{Q}_1,T) = 1 \pm 0.2$ meV et le signal est quasiélastique pour $T > 33$ K. L'inélasticité obtenue ici est cependant à considérer avec précaution. En effet, dans l'étude faite par Jacoud et al., il semblait alors que l'inélasticité était un artefact de mesure dépendant principalement du spectromètre utilisé. Par contre le taux de relaxation semblait plus robuste et ne pas dépendre des conditions expérimentales.

Pour des températures $1.5 < T < 80$ K, la Figure 5.3 montre les spectres $S(\mathbf{Q},E,T)$ et les susceptibilités dynamiques $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ correspondantes obtenus en $\mathbf{Q}_1$ et en $\mathbf{Q}_0$, ainsi que les ajustements faits en utilisant (5.1). Ces courbes ont une variation avec E, T et $\mathbf{Q}$ qui est très similaire à celle des courbes obtenues dans des conditions équivalentes pour le composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ dans le Chapitre 4 (cf. Figure 4.4). On se reportera d'ailleurs à la Section 4.2.2.1 pour la description qualitative de ces courbes que nous ne répéterons pas ici. Notons que dans les Figures 5.3 a) et b), les pics centraux correspondent au pic élastique incohérent et que les différentes largeurs de ces pics sont uniquement dus à des résolutions expérimentales différentes.

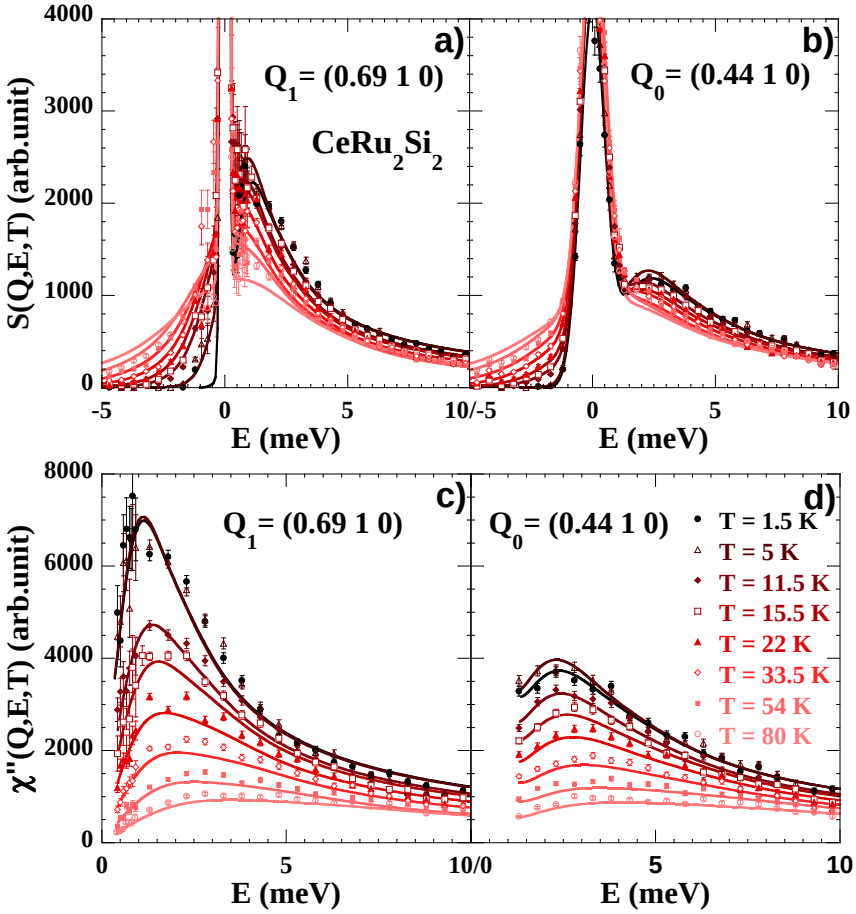

FIG. 5.3 – *Fonction de diffusion $S(\mathbf{Q},E,T)$ a) en $\mathbf{Q}_1$ b) en $\mathbf{Q}_0$ et partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ c) en $\mathbf{Q}_1$ d) en $\mathbf{Q}_0$ pour $1.5 < T < 80$ K. Les lignes correspondent aux ajustements des données expérimentales.*

Afin de s'affranchir des excitations de champ cristallin et de ne considérer que les fluctuations de spin de basses énergies, on procède de la même manière que dans la Section 4.2.2.1. On estime ainsi la susceptibilité statique en utilisant la relation de Kramers-Kronig avec une énergie de coupure de 10 meV :

$$\chi'(\mathbf{Q},T) \quad = \quad \frac{2}{\pi}\int_0^{10} \frac{\chi''(\mathbf{Q},E,T)}{E} dE. \tag{5.2}$$

Dans la Section suivante on discute de la même manière que dans les Sections 4.2.2.2 et 4.2.2.3 des variations avec T des fluctuations de spin en $\mathbf{Q}_1$ et en $\mathbf{Q}_0$.

5.2.2 Effets de la température

Les spectres obtenus au transfert de moment $\mathbf{Q}_1$ sont analysés ici pour $T < T_{corr}$, le spectre obtenu à 110 K étant inclus dans ce traitement. Les variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ déduits du traitement fait dans la Section 5.2.1 sont tracés sur la Figure 5.4. Comme pour le composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ (cf. Chapitre 4), nous pouvons définir la température caractéristique $T_1 = 9 \pm 1$ K des fluctuations antiferromagnétiques du composé $CeRu_2Si_2$. T_1 est définie à la limite entre deux régimes asymptotiques de basses et hautes températures. Pour $T < T_1$, $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ ne dépendent pas de T et on a alors le régime quantique du système pour lequel $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T) \simeq k_B T_1$. Pour $T > T_1$, $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ sont gouvernés par la température et on peut extraire les lois de puissance en température :

$$\chi'(\mathbf{Q}_1,T) = \quad C_1/T^{\alpha_1} \quad \text{et} \quad \Gamma(\mathbf{Q}_1,T) = a_1 T^{\beta_1} \tag{5.3}$$

avec

$$\begin{aligned} \alpha_1 = \quad & 1 \pm 0.1, & C_1 \quad &= 1.1\ 10^5 \pm 2\ 10^3 \ \text{ arb. unit,} \\ \beta_1 = \quad & 0.7 \pm 0.2, \quad \text{et} & a_1 \quad &= 2.1 \pm 0.5 \ \text{ SI unit.} \end{aligned}$$

Sur la Figure 5.5 sont tracées les variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ obtenus pour $CeRu_2Si_2$ au vecteur $\mathbf{Q}_0$. On obtient une température caractéristique $T_0 = 22 \pm 2$ K à la limite des deux régimes : le premier pour $T < T_0$ où

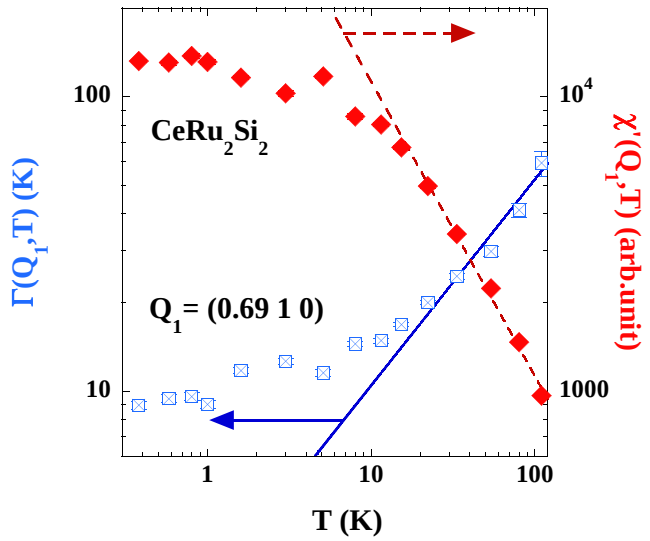

FIG. 5.4 – *Variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$. La ligne continue et la ligne en tirets correspondent respectivement aux ajustements hautes-températures de $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et de $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$.*

la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T)$ est indépendante de T et le second pour $T > T_0$ où $\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T)$ dépend fortement de T. Dans le régime hautes températures on ajuste le taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ par les lois de puissance :

$$\chi'(\mathbf{Q}_0,T) = \quad C_0/T^{\alpha_0} \quad \text{et} \quad \Gamma(\mathbf{Q}_0,T) = a_0 T^{\beta_0} \tag{5.4}$$

avec

$$\begin{aligned} \alpha_0 = \quad & 1 \pm 0.1, & C_0 \quad &= 1\ 10^5 \pm 1\ 10^3 \ \text{ arb. unit,} \\ \beta_0 = \quad & 0.6 \pm 0.2, \quad \text{et} & a_0 \quad &= 3.8 \pm 0.5 \ \text{ SI unit.} \end{aligned}$$

Dans $CeRu_2Si_2$, la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ est assez élargie dès les basses températures pour les deux vecteurs $\mathbf{Q}_1$ et en $\mathbf{Q}_0$. En conséquence, la susceptibilité $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ estimée à partir de (5.2) est différente de $A(\mathbf{Q}_0,T)/\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ et on ne peut pas mettre en évidence graphiquement le comportement en loi d'échelle qu'on déduirait des lois de puissances , ce qui avait été fait pour les fluctuations antiferromagnétiques de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ (cf. Sections 4.2.2.2 et 4.2.2.3).

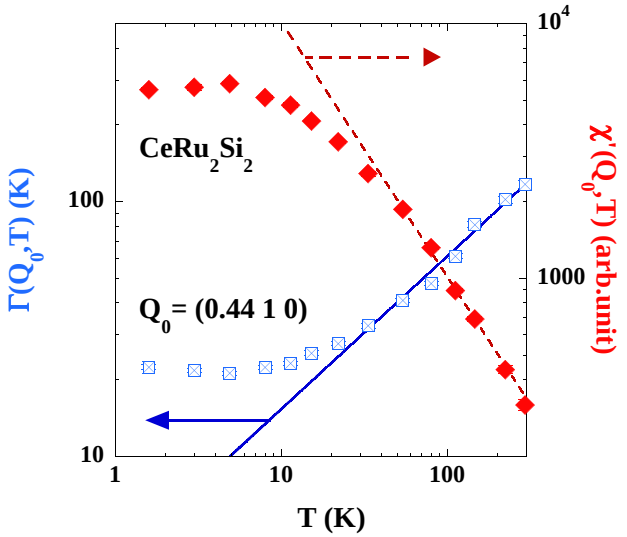

FIG. 5.5 – *Variations avec T du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$. La ligne continue et la ligne en tirets correspondent respectivement aux ajustements hautes-températures de $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T)$ et de $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$.*

5.3 Comparaison avec la susceptibilité macroscopique

La susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$ a été mesurée aux températures $5 < T < 300$ K selon l'axe c de $CeRu_2Si_2$ par P. Haen et F. Lapierre (CRTBT, CNRS Grenoble), en utilisant

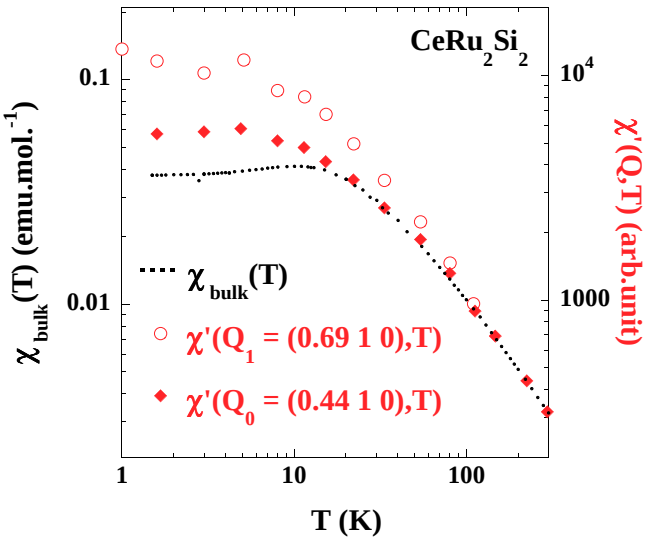

FIG. 5.6 – *Variations avec la température des susceptibilités microscopiques* $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ *et* $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ *et de la susceptibilité macroscopique* $\chi_{bulk}(T)$.

un magnétomètre dc commercial (SQUID) au CEA Grenoble. Sur la Figure 5.6 on compare la susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$ aux susceptibilités microscopiques $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ déduites des mesures de diffusion des neutrons. Pour $T > 150$ K, $\chi_{bulk}(T)$ suit une loi de Curie-Weiss avec une température de Curie $\theta \simeq 20$ K (telle que $\chi_{bulk}(T) = C/(T-\theta)$). Pour $T > 100$ K, $\chi'(\mathbf{Q},T)$ suit elle aussi une loi de Curie, la détermination d'une température de Curie n'étant pas possible du fait des incertitudes sur $\chi'(\mathbf{Q},T)$. La susceptibilité microscopique $\chi_{bulk}(T)$ est égale à la susceptibilité microscopique $\chi'(\mathbf{Q}=0,T)$, où $\chi'(\mathbf{Q},T)$ est obtenue en utilisant (5.2). Comme pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ (cf. Section 4.3), on ajuste ainsi les susceptibilités $\chi_{bulk}(T)$, $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ aux hautes températures, lorsqu'il n'y a plus de corrélations.

Aux basses températures, les susceptibilités suivent la hiérarchie $\chi_{bulk}(0) < \chi'(\mathbf{Q}_0,0) < \chi'(\mathbf{Q}_1,0)$. La susceptibilité $\chi'(\mathbf{Q}_1,0)$ a une valeur élevée due aux fortes corrélations en $\mathbf{Q}_1$. Le fait que la susceptibilité $\chi'(\mathbf{Q}_0,0)$ soit plus grande que $\chi_{bulk}(0)$ indique que des corrélations sont probablement présentes en $\mathbf{Q}_0$. Ces corrélations résulteraient de la proximité des vecteurs $\mathbf{Q}_1 = (0.69,1,0)$ et $\mathbf{Q}_4 = (0,1,0)$ où des corrélations sont piquées respectivement aux vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_4$ (cf. Section 3.1.2 et Références [Regnault 88, Rossat 88, Jacoud 91, Sato 99, Kadowaki 04]). En effet, dans $CeRu_2Si_2$ les longueurs de corrélation sont plus faibles que dans $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, ce qui fait que les signaux corrélés magnétiquement sont plus élargis en $\mathbf{Q}$ et qu'en $\mathbf{Q}_0$ on mesure un signal corrélé. Il est donc nécessaire de compléter nos mesures de diffusion inélastique des neutrons sur $CeRu_2Si_2$ en un vecteur où il n'y aurait plus de corrélation magnétique. Une telle mesure se justifie par la nécessité d'obtenir la susceptibilité dynamique correspondant aux fluctuations locales (dans une image de type champ moyen) et de caractériser précisément la dépendance avec T de ces fluctuations caractéristiques de l'effet Kondo.

A l'intersection des deux régimes de basses et hautes températures de $\chi_{bulk}(T)$, on définit la température caractéristique $T^* = 28 \pm 2$ K. On peut normaliser les susceptibilités microscopiques $\chi'(\mathbf{Q}_1,T)$ et $\chi'(\mathbf{Q}_0,T)$ en les égalant à la susceptibilité macroscopique $\chi_{bulk}(T)$ aux hautes températures , comme c'est fait sur la Figure 5.6 et ainsi les exprimer en unités CGS. On obtient alors :

$$\begin{aligned} T_1.\chi'(\mathbf{Q}_1,0) &= 1.3 \pm 0.1 \ \text{ K.emu.mol}^{-1}, \\ T_0.\chi'(\mathbf{Q}_0,0) &= 1.3 \pm 0.1 \ \text{ K.emu.mol}^{-1}, \\ et \quad T^*.\chi_{bulk}(0) &= 1.1 \pm 0.1 \ \text{ K.emu.mol}^{-1}. \end{aligned}$$

Comme pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, si on note $T_{\mathbf{Q}}$ la température caractéristique des fluctuations de spin de $CeRu_2Si_2$ au vecteur $\mathbf{Q}$, on obtient donc $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},0)$ indépendant de $\mathbf{Q}$. De même on peut aussi considérer que comme $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0) \simeq k_B T_1$ et $\Gamma(\mathbf{Q}_0,0) \simeq k_B T_0$, les fluctuations mesurées en $\mathbf{Q} = 0$ doivent être telles que $\Gamma(\mathbf{Q} = 0,0) \simeq k_B T^*$. Ainsi, la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et le taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ aux basses températures peuvent s'écrire :

$$\chi'(\mathbf{Q},0) = \frac{C}{T_{\mathbf{Q}}} \qquad \text{et} \qquad \Gamma(\mathbf{Q},0) \simeq k_B\, T_{\mathbf{Q}}. \tag{5.5}$$

Là encore, on a $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ indépendant de $\mathbf{Q}$ et de T aux basses températures, cette image de liquide de Fermi [Kuramoto 87, Kuramoto 89, Moriya 95] n'étant plus valable lorsque pour $T \gtrsim 10$ K, $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ décroît avec T, comme on peut le voir sur la Figure 5.7.

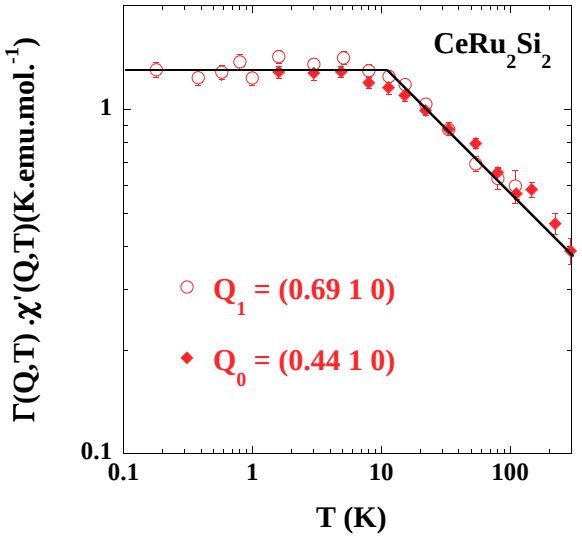

FIG. 5.7 – *Variations avec T de la quantité $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ obtenue aux vecteurs $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$. Les lignes sont des guides pour les yeux.*

Chapitre 6

Bilan des études sur les fluctuations de spin dans le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Dans ce Chapitre nous faisons dans un premier temps une synthèse des résultats obtenus dans les Chapitres 4 et 5 sur les fluctuations de spin des composés $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ et $CeRu_2Si_2$. Dans un second temps, nous dressons un bilan sur les variations des fluctuations de spin dans le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ lorsque x varie entre 0 et 20 %, c'est à dire de part et d'autre de l'instabilité magnétique. Au regard des propriétés de ce réseau Kondo, on discutera de la pertinence des théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant.

6.1 Comparaison des fluctuations de spin de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ en x_c et $x = 0$

6.1.1 Synthèse des résultats obtenus

Le système à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ est caractérisé par des spectres d'excitations très similaires en sa concentration critique x_c et en la concentration $x = 0$ de la phase paramagnétique. Un signal très amorti est présent en tout vecteur $\mathbf{Q}$ du réseau réciproque et des corrélations se développent pour $T < T_{corr} \simeq 100$ K : le signal correspondant aux fluctuations de basses énergies est alors piqué aux différents vecteurs caractéristiques de ces corrélations, en particulier autour du vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ qui est mesuré par diffusion des neutrons au transfert de moment $\mathbf{Q}_1 = (0.69,1,0)$. Pour chacun des deux composés on peut définir en chaque vecteur $\mathbf{Q}$ une énergie caractéristique $T_{\mathbf{Q}}$ séparant un régime quantique basse température d'un régime "classique" (ou thermique) haute température.

Pour $T < T_{\mathbf{Q}}$, on est dans le régime quantique pour lequel la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ est indépendante de la température. La susceptibilité statique

	$Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$			$CeRu_2Si_2$		
	$\mathbf{Q}_1$	$\mathbf{Q}_0$	$\mathbf{Q}=0$ *	$\mathbf{Q}_1$	$\mathbf{Q}_0$	$\mathbf{Q}=0$ *
$T_{\mathbf{Q}}$	2.5 ± 0.5 K	18 ± 1 K	16 ± 1 K	9 ± 1 K	22 ± 2 K	28 ± 2 K
$\alpha_{\mathbf{Q}}$	1 ± 0.05	1 ± 0.1	1	1 ± 0.1	1 ± 0.1	1
$\beta_{\mathbf{Q}}$	0.8 ± 0.05	0.6 ± 0.2	-	0.7 ± 0.2	0.6 ± 0.2	-

* : d'après $\chi_{bulk}(T)$

Table 6.1: Températures caractéristiques $T_{\mathbf{Q}}$ et exposants $\alpha_{\mathbf{Q}}$ et $\beta_{\mathbf{Q}}$ des lois de puissance de T de $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et de $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ (6.2) caractérisant les fluctuations de spin des composés $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ et $CeRu_2Si_2$ aux vecteurs $\mathbf{Q}_1$, $\mathbf{Q}_0$ et $\mathbf{Q}=0$.

$\chi'(\mathbf{Q},T)$ et le taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ sont alors indépendants de la température et vérifient :

$$\chi'(\mathbf{Q},0) = \frac{C}{T_{\mathbf{Q}}} \qquad \text{et} \qquad \Gamma(\mathbf{Q},0) \simeq k_B T_{\mathbf{Q}}. \tag{6.1}$$

(6.1) implique que $\Gamma(\mathbf{Q},T).\chi'(\mathbf{Q},T)$ est constant aux basses températures, ce qui est en accord avec l'image d'un liquide de Fermi gouverné par la proximité d'une instabilité antiferromagnétique [Kuramoto 87, Kuramoto 89, Moriya 95].

Pour $T > T_{\mathbf{Q}}$, la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ dépend alors de la température et on obtient les comportements de $\chi'(\mathbf{Q},T)$ et de $\Gamma(\mathbf{Q},T)$ en lois de puissance de T :

$$\chi'(\mathbf{Q},T) = \frac{C}{T^{\alpha_{\mathbf{Q}}}} \quad \text{et} \quad \Gamma(\mathbf{Q},T) \sim T^{\beta_{\mathbf{Q}}}. \tag{6.2}$$

Les valeurs de $T_{\mathbf{Q}}$, $\alpha_{\mathbf{Q}}$ et $\beta_{\mathbf{Q}}$ obtenues pour les composés $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ et $CeRu_2Si_2$ aux vecteurs $\mathbf{Q}_1 = (0.69,1,0)$, $\mathbf{Q}_0 = (0.44,1,0)$ et $\mathbf{Q} = 0$ sont résumées dans la Table 6.1. Dans un même composé, les températures caractéristiques $T_{\mathbf{Q}}$ sont plus faibles pour les vecteurs $\mathbf{Q}$ caractérisant les corrélations. Pour un vecteur $\mathbf{Q}$ fixé, ces températures caractéristiques diminuent par ailleurs avec les concentrations x croissantes. En effet, d'une part la température de Kondo T_K qui caractérise les fluctuations non corrélées et d'autre part la température T_1 qui caractérise les fluctuations antiferromagnétiques diminuent toutes deux avec x à l'approche de l'instabilité magnétique. Pour chacun des régimes hautes températures $T > T_{\mathbf{Q}}$, des lois de Curie de la susceptibilité statique sont vérifiées ($\alpha_{\mathbf{Q}} = 1$) alors que pour le taux de relaxation, des exposants $\beta_{\mathbf{Q}} < 1$ sont obtenus. $\beta_{\mathbf{Q}}$ est légèrement plus grand lorsque les fluctuations sont corrélées magnétiquement, bien que cette augmentation soit du même ordre de grandeur que les barres d'erreur [1].

1. Contrairement aux fluctuations de vecteur $\mathbf{Q}_1$ dans le composé de concentration x_c où un signal fin et intense permet d'obtenir précisément β_1, les trois autres cas étudiés ici sont caractérisés par des signaux plus élargis et moins intenses, ce qui conduit à une plus grande incertitude sur $\beta_{\mathbf{Q}}$.

Sur la Figure 6.1 sont tracées les variations de $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},T)$ et de $\Gamma(\mathbf{Q},T)/T_{\mathbf{Q}}$ en fonction de $T/T_{\mathbf{Q}}$. La Figure 6.1 a) indique que la susceptibilité statique $\chi'(\mathbf{Q},T)$ se renormalise avec $T_{\mathbf{Q}}$ de telle manière qu'une loi unique :

$$T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},T) = F\left(\frac{T}{T_{\mathbf{Q}}}\right) \tag{6.3}$$

est obtenue aux trois vecteurs $\mathbf{Q}_1$, $\mathbf{Q}_0$ et $\mathbf{Q} = 0$ et pour les deux concentrations x_c et $x = 0$ étudiées ici. En effet, pour $T/T_{\mathbf{Q}} < 1$ on obtient $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},T) \simeq 1$ K.emu.mol^{-1} alors que pour $T/T_{\mathbf{Q}} > 1$ la loi de Curie $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},T) = C/(T/T_{\mathbf{Q}})$ est vérifiée. Sur la Figure 6.1 b), on voit qu'il est plus difficile de conclure quant au taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q},T)$, du fait de l'incertitude sur les valeurs déduites des ajustements des spectres expérimentaux (cf. Sections 4.2.2.1 et 5.2.1). Alors qu'on a $\Gamma(\mathbf{Q},T)/T_{\mathbf{Q}} \simeq 1$ aux basses températures, des comportements légèrement différents de $\Gamma(\mathbf{Q},T)/T_{\mathbf{Q}}$ aux hautes températures sont obtenus selon le vecteur $\mathbf{Q}$ et la concentration x du composé. Ces différences sont dues aux valeurs de $\beta_{\mathbf{Q}}$ légèrement plus importantes trouvées pour les signaux corrélés.

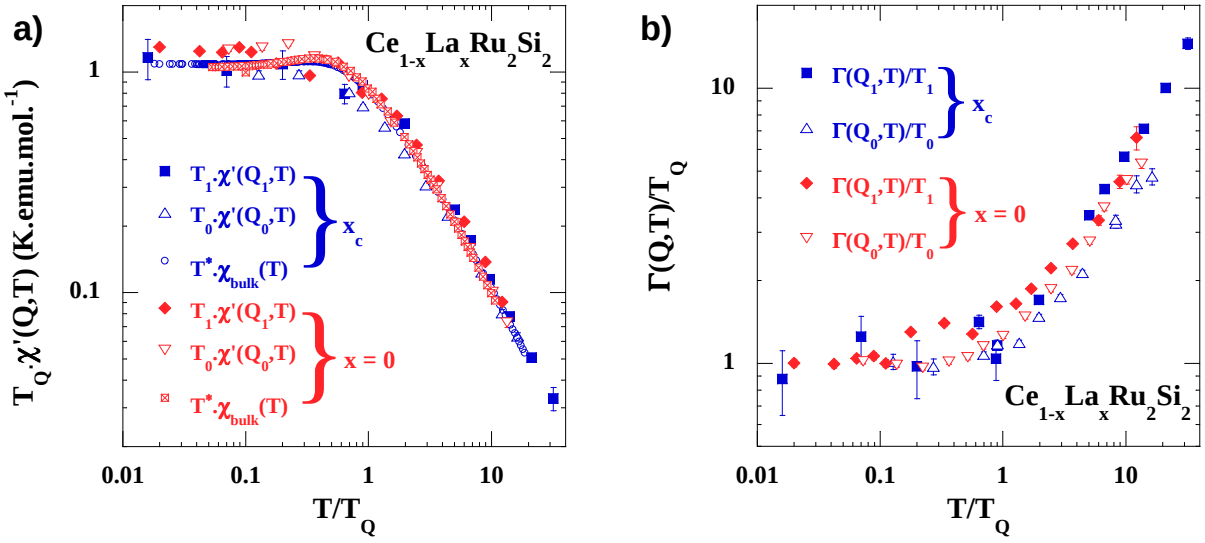

FIG. 6.1 – *Variations a) de $T_{\mathbf{Q}}.\chi'(\mathbf{Q},T)$ et b) de $\Gamma(\mathbf{Q},T)/T_{\mathbf{Q}}$ en fonction de $T/T_{\mathbf{Q}}$, pour les composés $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ et $CeRu_2Si_2$ aux vecteurs $\mathbf{Q}_1$, $\mathbf{Q}_0$ et $\mathbf{Q} = 0$ ($\chi'(\mathbf{Q} = 0,T) = \chi_{bult}(T)$).*

Les lois de puissance (6.2) du régime hautes températures impliquent un comportement en loi d'échelle de la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ du type :

$$T\chi''(\mathbf{Q},E,T) = C.f\left(\frac{E}{a_{\mathbf{Q}}T^{\beta_{\mathbf{Q}}}}\right). \tag{6.4}$$

Cependant, on ne peut mettre graphiquement en évidence une telle loi d'échelle que pour les fluctuations au vecteur $\mathbf{Q}_1$ du composé de concentration x_c, ce cas étant le seul pour lequel le signal est suffisamment fin pour que $\chi'(\mathbf{Q},T) \simeq A(\mathbf{Q},T)/\Gamma(\mathbf{Q},T)$ (cf. Sections 4.2.2 et 5.2.2).

6.1.2 Discussion

6.1.2.1 Limites des théories sur le magnétisme itinérant

Contrairement à l'image simple de la Section 1.3.2.1 et à différents travaux rapportés dans la littérature où des lois d'échelles en ω/T sont obtenues (cf. Références [Schröder 00, Aronson 95, Park 02a, Park 02b, So 03, Montfrooij 03, Stewart 02, Bao 03]), nous trouvons ici que la susceptibilité dynamique de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ se comporte en loi d'échelle de $\omega/T^{\beta_{\mathbf{Q}}}$, avec $\beta_{\mathbf{Q}} < 1$. Cette loi dépend de $\mathbf{Q}$ et est obtenue pour des températures supérieures à la température caractéristique $T_{\mathbf{Q}}$. On a vu précédemment que la transition de phase quantique qui a lieu à la concentration x_c du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ doit être décrite dans un modèle de magnétisme itinérant (cf. Sections 3.2.1.1, 6.1.1 et Références [Kambe 96, Raymond 97, Raymond 01, Raymond 02, Hertz 76, Millis 93, Moriya 95, Lavagna 00]). Cependant, les résultats obtenus ne rentrent pas complètement dans le cadre des théories actuellement disponibles. Ils diffèrent des prévisions théoriques en deux points : i) les fluctuations de spin du composé de concentration critique x_c saturent lorsque $T \to 0$ et ii) la loi d'échelle obtenue pour les fluctuations antiferromagnétiques de vecteur $\mathbf{Q}_1$ est caractérisée par $\beta_1 < 1$.

6.1.2.1.1 Saturation des fluctuations de spin

Le premier désaccord vient de la saturation de la susceptibilité $\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ du composé de concentration critique x_c sous la température finie $T_1 \simeq 2.5$ K : on n'obtient pas la divergence de la susceptibilité dynamique attendue théoriquement en x_c. Dans les théories sur le magnétisme itinérant, la transition de phase quantique est du second ordre et est induite par une instabilité de la surface de Fermi [Hertz 76, Millis 93, Moriya 95, Lavagna 00]. Ces théories semblent appropriées au cas du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ où les fluctuations de spin de vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ (observées en $\mathbf{Q}_1$) ont une intensité qui croît lorsque x augmente et s'approche de x_c, jusqu'à ce qu'elles conduisent à l'ordre magnétique avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ pour $x > x_c$. On peut donc considérer que ces fluctuations antiferromagnétiques gouvernent l'instabilité magnétique du système et qu'elles sont les fluctuations critiques de la transition de phase quantique. Cependant, on a ici une saturation sous T_1 des fluctuations mesurées en $\mathbf{Q}_1$, alors que dans les théories sur les transitions de phase quantiques du second ordre les fluctuations critiques doivent diverger à la transition. L'origine de la température de coupure T_1 n'est actuellement pas comprise, bien qu'il est possible qu'elle soit liée à l'apparition d'un petit moment magnétique ordonné avec le vecteur $\mathbf{k}_1$ sous $T_m = 2$ K $\simeq T_1$ (cf. Section 4.1 et Référence [Raymond 97]). Parce que les fluctuations de spin saturent à la transition, il est aussi possible que la transition de phase quantique qui a lieu en x_c soit du premier ordre et non pas du second ordre. Dans la

Section 6.2 nous considérerons des mesures (anciennes et nouvelles) faites sur $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ lorsque x varie entre 0 et 20 %. Une discussion sera alors faite à propos de la saturation des fluctuations magnétiques qui est rapportée non seulement à la concentration critique x_c mais aussi dans la phase antiferromagnétique lorsque x reste proche de x_c.

6.1.2.1.2 Exposants des lois d'échelles

Le second point de divergence entre nos résultats et les prévisions théoriques concerne les lois d'échelles obtenues au vecteur $\mathbf{Q}_1$. Les théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant prévoient qu'à l'instabilité magnétique les fluctuations critiques suivent une loi d'échelle en ω/T^β avec $\beta = (d + z - 2)/z$, où z est l'exposant critique dynamique et d la dimension des fluctuations [Hertz 76, Millis 93, Moriya 95]. Un exposant $\beta_1 = 3/2$ est prévu pour la loi d'échelle des fluctuations antiferromagnétiques du composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, pour lequel $z = 2$ et $d = 3$ sont dus respectivement à la nature antiferromagnétique et au caractère 3D des fluctuations. Cette valeur de l'exposant $\beta_1 = 3/2$ contraste fortement avec la valeur $\beta_1 = 0.8$ obtenue expérimentalement. Pour expliquer cette déviation, quelques rappels sur les théories sur le magnétisme itinérant doivent être faits. Ensuite on expliquera en quoi l'étude du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ faite ici ne rentre pas dans le cadre de leurs prévisions.

Dans les théories sur le magnétisme itinérant, les fluctuations de spin sont décrites dans une image de champ moyen, la susceptibilité dynamique généralisée $\chi(\mathbf{Q},E,T)$ étant construite à partir de la susceptibilité locale $\chi_0(E,T)$ selon :

$$1/\chi(\mathbf{Q},E,T) = 1/\chi_0(E,T) - J(\mathbf{Q},T), \tag{6.5}$$

où $J(\mathbf{Q},T)$ est l'interaction d'échange. Dans une telle image, la susceptibilité locale $\chi_0(E,T)$ se déduit de la susceptibilité généralisée $\chi(\mathbf{Q},E,T)$ par :

$$1/\chi_0(E,T) = \langle 1/\chi(\mathbf{Q},E,T)\rangle_{\mathbf{Q}}, \tag{6.6}$$

où $\langle\ \rangle_{\mathbf{Q}}$ est une moyenne faite sur tout l'espace réciproque. Dans le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, la proportion de signaux corrélés est relativement faible et correspond à environ 10 % du volume de la zone de Brillouin[2]. On peut donc faire l'approximation que la susceptibilité mesurée loin des signaux corrélés magnétiquement est égale à $\chi_0(E,T)$. On a vu dans la Section 4.3 que dans $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ les fluctuations de spin mesurées en $\mathbf{Q}_0$ ne sont pas corrélées et on peut faire l'approximation que $\chi_0(E,T)$ est égale à $\chi(\mathbf{Q}_0,E,T)$. Rappelons que cette approximation n'est pas valable pour le composé $CeRu_2Si_2$ où des corrélations subsistent en $\mathbf{Q}_0$ (cf.

2. On obtient une proportion de signaux corrélés égale à $p \simeq \kappa^3.n \simeq 10$ %, sachant que les longueurs de corrélation sont de l'ordre de $\kappa = 0.2$ r.l.u. (reciprocal lattice unit = unité de réseau réciproque) et qu'on dénombre une quinzaine de vecteurs d'onde $\mathbf{k}_i$ où les corrélations sont piquées (4 vecteurs équivalents à $\mathbf{k}_1$, 4 à $\mathbf{k}_2$, 2 à $\mathbf{k}_3$, ainsi que les vecteurs $\mathbf{k}_4$, $\mathbf{k}_5$ et leurs équivalents où les corrélations sont moins intenses, ce qui mène à $n \approx 15$ (cf. Sections 3.1.2 et 4.1)).

Section 5.3). Aux basses températures, la susceptibilité locale $\chi_0(E,T)$ est commandée par l'effet Kondo et pour $T \to 0$ le taux de relaxation des fluctuations locales sature en une valeur égale à la température de Kondo. On obtient ainsi la température de Kondo $T_K = T_0 \simeq 18$ K de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, ce qui est en très bon accord avec les estimations déduites de mesures thermodynamiques et de mesures de pouvoir thermoélectrique [Lehmann 87, Amato 89]. Dans les théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant, la surface de Fermi doit être complètement formée et la susceptibilité locale ne varie presque pas avec la température [Hertz 76, Millis 93, Moriya 95]. Pour un système à fermions lourds ces théories ne sont donc valables qu'en dessous de la température de Kondo, lorsque la renormalisation par effet Kondo de la surface de Fermi est bien effective. Dans $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, la loi d'échelle obtenue en $\mathbf{Q}_1$ correspond à une gamme de températures allant au delà de la température de Kondo, où la susceptibilité locale varie fortement avec la température. Les lois d'échelles obtenues ici ne rentrent donc pas dans le cadre des théories disponibles sur les transitions de phase quantiques et il n'est pas étonnant que l'exposant $\beta_1 < 1$ ne soit pas prédit par ces théories. Comme les fluctuations antiferromagnétiques saturent sous $T_1 \simeq 3$ K, la recherche d'une loi d'échelle avec l'exposant $\beta = 3/2$ attendu théoriquement doit donc être faite dans la gamme $T_1 < T < T_0$, ce qui à cause des valeurs proches de T_1 and T_0 est très difficile à mettre en œuvre expérimentalement.

Puisque la susceptibilité généralisée $\chi(\mathbf{Q},E,T)$ est construite à partir de la susceptibilité locale $\chi_0(E,T)$, ces deux quantités ne sont pas indépendantes et une théorie incluant les variations avec T de $\chi_0(E,T)$ est nécessaire pour analyser la dépendance en température de $\chi(\mathbf{Q},E,T)$. Dans cette optique, la description de la susceptibilité locale dans un modèle à une impureté Kondo pourrait être un bon point de départ [Bickers 85, Kuroda 92, Hewson 93, Lopes 83, Loidl 88]. En effet, dans un tel modèle la susceptibilité est uniquement locale et il n'y a pas de corrélations magnétiques. Pour $T < T_K$ la susceptibilité statique $\chi_K(T)$ et le taux de relaxation $\Gamma_K(T)$ correspondant aux fluctuations locales de l'impureté magnétique valent :

$$\chi_K(T) \sim \frac{1}{T_K} \qquad \text{et} \qquad \Gamma_K(T) \simeq k_B T_K, \tag{6.7}$$

alors que pour $T > T_K$ on a :

$$\chi_K(T) \sim \frac{1}{T + T_K} \quad \text{et} \quad \Gamma_K(T) \sim T^{1/2}. \tag{6.8}$$

La susceptibilité locale ainsi déduite d'un modèle à une impureté Kondo a effectivement un comportement très similaire à celui de la susceptibilité correspondant aux fluctuations de spin non-corrélées magnétiquement, telles qu'on les mesure en $\mathbf{Q}_0$ dans $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. Alors qu'il semble possible de bien prendre en compte la variation avec T des fluctuations locales, il n'existe pas encore de modèle sachant considérer le développement des corrélations magnétiques aux basses températures en même temps que la surface de Fermi se forme. La mise au point d'une telle théorie, où une description correcte de la variation avec T des fluctuations de spin

dans un réseau Kondo serait faite, est aujourd'hui nécessaire pour une meilleure compréhension de la physique des transitions de phase quantiques de systèmes à fermions lourds.

6.1.2.2 Comparaison avec d'autres composés

Dans l'étude présentée ici, nous avons déterminé la dépendance en énergie et en température des fluctuations de spin aux concentrations x_c et $x = 0$ du système à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$. L'utilisation de monocristaux sur spectromètres trois axes nous a permis de caractériser les fluctuations de spin en deux transferts de moment $\mathbf{Q}$ et d'obtenir un comportement en loi d'échelle en chacun de ces vecteurs. Dans les deux Sections suivantes, nous présentons les travaux d'autres groupes ayant abouti à l'obtention de lois d'échelle de la susceptibilité dynamique et les comparons au travail fait ici.

6.1.2.2.1 Comparaison avec $CeCu_{6-x}Au_x$

Schröder et al. ont établi un comportement en loi d'échelle de la susceptibilité dynamique du système à fermions lourds $CeCu_{6-x}Au_x$ en sa concentration critique $x_c = 0.1$ [Schröder 98, Schröder 00]. Pour cela, ils ont bénéficié d'un échantillon monocristallin qu'ils ont étudié en utilisant des spectromètres trois-axes et à temps de vol. Lors d'un premier travail fait sur spectromètre trois axes, ils ont établi une loi d'échelle de la forme $T^{0.75}\chi''(E,T) = g(E/T)$ en un vecteur $\mathbf{Q}$ antiferromagnétique [Schröder 98]. L'extension de cette loi à d'autres points du réseau réciproque a été faite en utilisant un spectromètre à temps de vol [Schröder 00], technique qui limite cependant l'information à propos de la dépendance en $\mathbf{Q}$. Néanmoins, cette même forme de loi d'échelle a été obtenue pour la susceptibilité dynamique en tout vecteur $\mathbf{Q}$ du réseau réciproque. Cette loi est de plus suivie jusqu'aux plus basses températures accessibles de 70 mK, ce qui indique une divergence des fluctuations de spin en x_c pour $T \to 0$ en accord avec les attentes théoriques, et donc en opposition avec les résultats rapportés ici pour le composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. Les systèmes $CeCu_{6-x}Au_x$ et $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ ont en fait des spectres d'excitations très similaires et il est surprenant que les conclusions des deux analyses soient aussi différentes. En effet, les deux systèmes sont caractérisés par un spectre d'excitations très amorties aux basses énergies et en tout vecteur $\mathbf{Q}$ de l'espace réciproque. Alors que dans $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ des corrélations assez fortes font que le signal est très piqué à certains vecteurs d'onde, les corrélations sont moins fortes dans le système $CeCu_{6-x}Au_x$, où le signal corrélé est plus large en $\mathbf{Q}$ et moins intense [Stockert 98]. Dans la Table 6.2 sont reportées les principales quantités physiques qui caractérisent les systèmes à fermions lourds $CeCu_6$ et $CeRu_2Si_2$ aux basses températures. Tous deux sont dans un état fondamental paramagnétique et sont dans un régime liquide de Fermi aux très basses températures. Ce régime est caractérisé par un coefficient de Sommerfeld γ de la chaleur spécifique qui est constant et fortement renormalisé pour $T < T^*_\gamma$ [Kambe 96] et par une résistivité qui se comporte comme $\rho(0) + AT^2$ pour $T < T^*_\rho$ [Kambe 96, Amato 85]. T_1, T_0 et T_{corr} sont les températures caractéristiques déduites par diffusion inélastique des neutrons (cf. Sections 4.2.2 et 5.2.2 et Références [Regnault 90a, Rossat 88]).

	$CeCu_6$	$CeRu_2Si_2$
γ [1]	1.5 $JK^{-2}mol^{-1}$	360 $mJK^{-2}mol^{-1}$
T_γ^* [1]	0.2 K	3 K
T_ρ^* [2]	0.1 K	0.3 K
T_0	5 K	22 K
T_1	2 K	8 K
T_{corr}	4 K	100 K
P_c [3]	-4 kbar	-3 kbar

[1] $C(T)/T = \gamma$ pour $T < T_\gamma^*$
[2] $\rho(T) = \rho(0) + AT^2$ pour $T < T_\rho^*$
[3] Pressions équivalentes correspondant aux transitions de phase quantiques de $CeCu_{6-x}Au_x$ et de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Table 6.2: Comparaison des quantités physiques caractéristiques de $CeCu_6$ et de $CeRu_2Si_2$ [Kambe 96, Amato 85, Regnault 90a, Rossat 88, Wilhelm 01, Raymond 01, Raymond 02]

Comme on le voit dans la Table 6.2, les températures caractéristiques de $CeCu_6$ sont de l'ordre de 5 à 10 fois plus faibles que les températures correspondantes de $CeRu_2Si_2$. De plus, les composés des concentrations critiques des systèmes $CeCu_{6-x}Au_x$ et $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ sont respectivement séparés des composés parents $CeCu_6$ et $CeRu_2Si_2$ par des pressions équivalentes de -4 kbar et -3 kbar [Wilhelm 01, Raymond 01, Raymond 02]. Parce que ces pressions sont similaires, nous pensons que les températures caractéristiques de $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ sont elles aussi probablement de l'ordre de 5 à 10 fois plus faibles que celles de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. De même qu'une température de coupure $T_1 \simeq 3$ K caractérise les fluctuations antiferromagnétiques de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, il est donc vraisemblable qu'une température de coupure de l'ordre de 0.3-0.6 K caractérise les fluctuations antiferromagnétiques de $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$. De plus faibles énergies et températures caractéristiques font donc que le régime quantique des fluctuations antiferromagnétiques, s'il existe dans $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ comme c'est le cas pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, est beaucoup plus difficile à mettre en évidence expérimentalement. Pour cette raison il est possible qu'une saturation des fluctuations de spin de $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ aux très basses énergies et aux très basses températures puisse ne pas avoir été observée par diffusion inélastique des neutrons et que ce système ait en fait un comportement assez proche de celui de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. Dans l'Annexe A, on montre par ailleurs que, même si elle semble vérifiée jusqu'aux plus basses températures, l'obtention graphique d'une loi d'échelle en E/T n'est pas suffisante pour prouver qu'il y a divergence de la susceptibilité pour $T \to 0$.

6.1.2.2.2 Bilan sur les différentes lois d'échelles obtenues aux neutrons

Plusieurs autres travaux ont abouti récemment en l'obtention de lois d'échelles de la sus-

Composé	α	β	T_{min}	Cristal/Instrument [a]
$CeCu_{5.9}Au_{0.1}$	0.8	1	0	M/3A et V
UCu_4Pd	0.33	1	0	P/V
$CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb$	0.77	1	0	P/V
$CeNi_{0.935}Cu_{0.065}Sn$	0.39	1	0	P/V
$Ce_{0.7}Th_{0.3}RhSb$	0.33	1	0	P/V
$Ce(Ru_{0.24}Fe_{0.76})_2Ge_2$ [b]	0.51	1	0	P/V
β-Mn	0.2-0.5 [c]	1	0	P/V
$La_2Cu_{0.94}Li_{.06}O_4$	1	1	50 K	M/3A
$CeRu_2Si_2$:				
- $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_1$	1	0.7	9 K	M/3A
- $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_0$	1	0.6	22 K	
$Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$:				
- $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_1$	1	0.8	2.5 K	M/3A
- $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_0$	1	0.6	18 K	

[a] M = monocristal, P = polycristal, 3A = spectromètre trois axes et V = spectromètre à temps de vol.
[b] Pour le composé $Ce(Ru_{0.24}Fe_{0.76})_2Ge_2$, une loi d'échelle de la forme $(T+\theta_{\mathbf{Q}})^{\alpha}\chi''(E,T) = g(E/T^{\beta})$ plutôt que (6.9) a été obtenue, $\theta_{\mathbf{Q}}$ s'annulant au vecteur d'instabilité.
[c] Ces deux lois sont respectivement obtenues pour les énergies incidentes des neutrons $E_i = 3.12$ et 115 meV.

Table 6.3: Paramètres des lois d'échelles $T^{\alpha}\chi''(E,T) = g(E/T^{\beta})$ obtenues pour divers systèmes en leur instabilité magnétique ou en son voisinage [Schröder 00, Aronson 95, Park 02a, Park 02b, So 03, Montfrooij 03, Stewart 02, Bao 03].

ceptibilité dynamique du type :

$$T^{\alpha}\chi''(E,T) = g\left(\frac{E}{T^{\beta}}\right). \tag{6.9}$$

Ces résultats concernent principalement des composés à fermions lourds en leur point critique quantique [Schröder 00, Park 02a, Park 02b, So 03, Montfrooij 03] et d'autres composés proches d'une instabilité magnétique [Aronson 95, Stewart 02, Bao 03]. Les caractéristiques principales des diverses lois d'échelles de la susceptibilité dynamique rapportées dans la littérature et dans ce manuscrit sont rapportées dans la Table 6.3.

Contrairement à l'étude présentée ici où des exposants $\alpha_{\mathbf{Q}} = 1$ et $\beta_{\mathbf{Q}} < 1$ correspondant à des lois d'échelles dépendant de $\mathbf{Q}$ ont été obtenus, des exposants $\alpha \leq 1$ et $\beta = 1$ ont été déduits dans tous les autres travaux, une même loi d'échelle valable en tout $\mathbf{Q}$ étant parfois obtenue [Schröder 00, Aronson 95, Montfrooij 03]. Dans les expériences faites sur les systèmes UCu_4Pd, $CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb$, $CeNi_{0.935}Cu_{0.065}Sn$, $Ce_{0.7}Th_{0.3}RhSb$, $Ce(Ru_{0.24}Fe_{0.76})_2Ge_2$ et β-Mn, des échantillons polycristallins ont été étudiés sur des spectromètres à temps de vol

[Aronson 95, Park 02a, Park 02b, So 03, Montfrooij 03, Stewart 02]. Bien que de telles mesures permettent de caractériser correctement la contribution locale de la susceptibilité dynamique, elles sont fortement limitées en ce qui concerne l'étude précise de la dépendance en $\mathbf{Q}$ des fluctuations de spin et leurs conclusions à ce propos doivent être considérées avec précaution. A l'instar du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ étudié ici, seuls les composés $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$ et $La_2Cu_{0.94}Li_{.06}O_4$ ont été étudiés sous forme d'échantillons monocristallins et à l'aide de spectromètres trois axes.

Notre travail est le premier où il est clairement mis en évidence que les fluctuations de spin ne divergent pas à l'instabilité magnétique du système. Nos conclusions contrastent donc avec celles des travaux faits sur les systèmes $CeCu_{5.9}Au_{0.1}$, UCu_4Pd, $CeRh_{0.8}Pd_{0.2}Sb$, $CeNi_{0.935}Cu_{0.065}Sn$, $Ce_{0.7}Th_{0.3}RhSb$, $Ce(Ru_{0.24}Fe_{0.76})_2Ge_2$ et β-Mn, où l'obtention d'une loi d'échelle vérifiée jusqu'aux plus basses températures est alors synonyme de divergence des fluctuations de spin [Schröder 00, Aronson 95, Park 02a, Park 02b, So 03, Montfrooij 03, Stewart 02]. Dans l'Annexe A, nous montrons comment certains tracés de la susceptibilité peuvent créer l'illusion de lois d'échelles de la forme (6.9) lorsqu'aux basses températures la susceptibilité est indépendante de T. On considérera par conséquent les résultats précédents avec précaution, lorsque la divergence des fluctuations pour $T \to 0$ est déduite sans vérification préalable des variations avec T de la susceptibilité dynamique et des paramètres qui la caractérisent. On peut aussi noter que les lois d'échelles précédentes ont pour la plupart été obtenues avec des méthodes différentes d'analyse des données, de telle sorte que les lois déduites dépendent probablement plus de l'analyse choisie que de la physique intrinsèque au système.

Alors qu'ils contrastent fortement avec les autres travaux faits sur des systèmes en leur instabilité magnétique, nos résultats sont assez similaires de ceux obtenus par Bao et al. dans le composé paramagnétique $La_2Cu_{0.94}Li_{.06}O_4$ [Bao 03]. Dans ce travail, les fluctuations antiferromagnétiques d'un monocristal de $La_2Cu_{0.94}Li_{.06}O_4$ ont été étudiées par diffusion inélastique des neutrons sur un spectromètre trois axes. Contrairement aux systèmes présentés précédemment, ce système n'est pas à fermions lourds et il est situé dans une région liquide de Fermi au voisinage d'une transition de phase quantique. Il diffère des systèmes à fermions lourds du fait que seules des fluctuations corrélées magnétiquement sont observées, les fluctuations locales étant trop faibles pour être perceptibles. Comme dans notre étude, Bao et al. ont considéré dans un premier temps la variation avec T du taux de relaxation et de la susceptibilité statique pour en déduire dans un second temps un comportement en loi d'échelle de la susceptibilité dynamique. Ils aboutissent ainsi à un comportement semblable à celui rapporté pour $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$: la susceptibilité dynamique ne dépend pas de T dans un régime quantique de basse température et devient contrôlée par T dans un régime de haute température. Dans ce second régime, un comportement en loi d'échelle provient de la variation linéaire avec T du taux de relaxation et de la variation en loi de Curie de la susceptibilité statique. Notons finalement que cette loi d'échelle en E/T est accord avec les prédictions des théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant : $La_2Cu_{0.94}Li_{.06}O_4$ a en effet des fluctuations 2D antiferromagnétiques, ce qui implique que $z = 2$ et $d = 2$ et donc que $\beta = 1$ [Hertz 76, Millis 93, Moriya 95].

6.2 Variation avec x des excitations de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

Dans cette Section, on évoque en premier lieu les fluctuations de spin des composés ordonnés magnétiquement et de concentrations $x = 13$ et 20 %. Dans un second lieu, on considère les variations des fluctuations de spin de part et d'autre de la transition de phase quantique qui a lieu en $x_c = 7.5$ %. La question de la criticalité des fluctuations antiferromagnétiques sera adressée.

6.2.1 Fluctuations de spin dans la phase antiferromagnétique : étude des composés de concentrations $x = 13$ et 20 %

6.2.1.1 Conditions expérimentales

Les données présentées ici résultent d'expériences faites récemment sur $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ mais aussi d'expériences faites avant le début de cette thèse sur $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$. Les monocristaux utilisés sont d'environ 300 mm^3 et ont été synthétisés par méthode Czochralski au CRTBT (CNRS Grenoble). Une expérience de diffusion inélastique des neutrons sur $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ a été effectuée sur le spectromètre trois axes IN14 de l'ILL, à Grenoble, et a permis d'obtenir des spectres d'excitations à des températures $1.6 < T < 18$ K pour des transferts d'énergie accessibles $0.4 < E < 6$ meV. Plus de détails quant à cette expérience sont donnés dans la référence [Raymond 01]. Les autres expériences ont été effectuées sur le spectromètre trois axes IN12 de l'ILL (ligne CRG du Cea), à Grenoble. L'énergie finale des neutrons a été fixée à 4.65 meV, résultant en une résolution d'environ 0.18 meV (largeur totale à mi hauteur du signal incohérent élastique). Un filtre en béryllium a été utilisé afin d'éliminer les contaminations d'ordres supérieurs. Le monochromateur focalisant verticalement et l'analyseur focalisant horizontalement étaient en graphite pyrolytique. Les expériences sur IN12 ont été faites avec des collimations 60'-ouvert-ouvert. Les spectres d'excitations de $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ et de $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ ont été obtenus en utilisant un cryostat à dilution permettant de travailler entre 40 mK et 1.5 K, un environnement cryostat "Orange" (^{4}He pompé) ayant aussi été utilisé pour étudier $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ entre 1.6 et 7 K. Lors des expériences faites sur IN14 et IN12, les mesures ont été faites dans le plan (0,0,1).

6.2.1.2 Résultats

On rappelle que le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ s'ordonne antiferromagnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1 = (0.31,0,0)$ pour des concentrations x supérieures à la concentration critique $x_c = 7.5$ %. Comme pour les composés de concentrations x_c et $x = 0$ étudiés dans les Chapitres 4 et 5, les fluctuations de spin des composés de la phase ordonnée sont caractérisées par un signal fortement corrélé avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$. Un signal non corrélé magnétiquement est aussi obtenu pour des vecteurs suffisamment éloignés des vecteurs d'onde antiferromagnétiques. Dans cette Section, on considère les fluctuations de spin des composés de concentrations $x = 13$ et $x = 20$ %, dont les températures de Néel respectives sont $T_N \simeq 4.4$ K et $T_N \simeq 6$ K. On

s'intéresse à la variation en température de leurs spectres de part et d'autre de la transition de phase qui a lieu à T_N.

Les spectres ont été mesurés aux transferts de moments $\mathbf{Q} = (0.72,1,0)$ et $\mathbf{Q}_0 = (0.44,1,0)$. Le premier vecteur correspond à des fluctuations de spin corrélées antiferromagnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ (il a été choisi légèrement distant de $\mathbf{Q}_1$ car un pic de Bragg magnétique intense contamine le signal quasiélastique en $\mathbf{Q}_1$) alors que $\mathbf{Q}_0$ correspond à des fluctuations de spin non corrélées magnétiquement. Dans un travail précédent, les spectres obtenus pour le composé de concentration $x = 13$ % aux températures $T > 1.5$ K ont été analysés en utilisant deux contributions, une contribution inter-sites et une contribution à un site (cf. Sections 3.1.2 et 3.2.1.1 et Références [Raymond 01, Raymond 02]). Dans le travail fait ici, les données sont analysées en utilisant une seule contribution, la procédure d'analyse étant la même que celle utilisée dans les Chapitres 4 et 5 : la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q},E,T)$ est déduite de l'intensité de diffusion des neutrons en utilisant le théorème de fluctuation-dissipation (4.1) et la contribution quasiélastique Lorentzienne suivante est utilisée pour ajuster les données en chaque vecteur $\mathbf{Q}$:

$$\chi''(\mathbf{Q},E,T) \quad = \quad \frac{A(\mathbf{Q},T)}{\Gamma(\mathbf{Q},T)} \frac{E/\Gamma(\mathbf{Q},T)}{1+(E/\Gamma(\mathbf{Q},T))^2}. \tag{6.10}$$

On obtient ainsi que la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q}_0,E,T)$ des fluctuations non corrélées magnétiquement ne varie presque pas avec T dans les gammes de températures considérées : i)

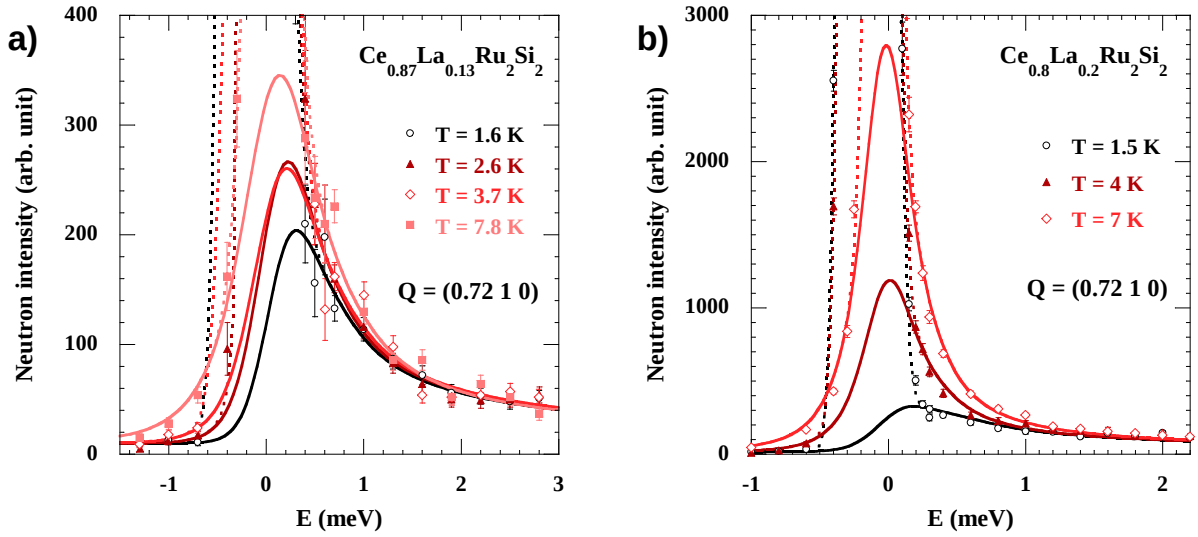

FIG. 6.2 – *Spectres mesurés à $1.5 < T < 7$ K en un vecteur $\mathbf{Q} = (0.72,1,0)$ proche de $\mathbf{Q}_1$ dans les composés a) $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ et b) $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$.*

pour le composé de concentration $x = 13$ %, les signaux mesurés à des températures $T < 20$ K sont ajustés par la fonction (6.10) avec un taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T) \simeq 17$ K et ii) pour le composé de concentration $x = 20$ %, on trouve alors un taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,T) \simeq 10$ K aux températures $T < 7$ K (les ajustements faits pour les spectres non corrélés de ce composé sont cependant de qualité assez médiocre).

Les spectres obtenus en $\mathbf{Q}_1$ à des températures $1.5 < T < 7$ K pour $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ et $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ sont tracés respectivement sur les Figures 6.2 a) et b). Alors que les spectres de $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ ont une intensité qui varie peu avec T, on voit que pour $T < T_N$ l'intensité des spectres de $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ diminue nettement lorsque la température est abaissée. La variation en température des taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ déduits des ajustements des données par la fonction (6.10) est montrée sur la Figure 6.3. Pour $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$, le taux de relaxation des fluctuations antiferromagnétiques sature dans la phase ordonnée à une valeur $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0) \simeq 4$ K et augmente avec la température pour $T > T_N$. Pour $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$, lorsque T augmente et $T < T_N$, la susceptibilité dynamique de basse énergie augmente et $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ diminue. D'après les mesures de Jacoud et al., les corrélations diminuent fortement lorsque T augmente et $T > T_N$, le signal devenant non corrélé pour des températures $T > T_{corr}$, où $T_{corr} \simeq 80$ K [Jacoud 91, Jacoud 92]. La susceptibilité dynamique antiferromagnétique est donc maximale à $T_N \simeq 6$ K et le taux de relaxation y est minimal. Comme les fluctuations antiferromagnétiques de $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ diminuent fortement sous T_N, on peut considérer que la

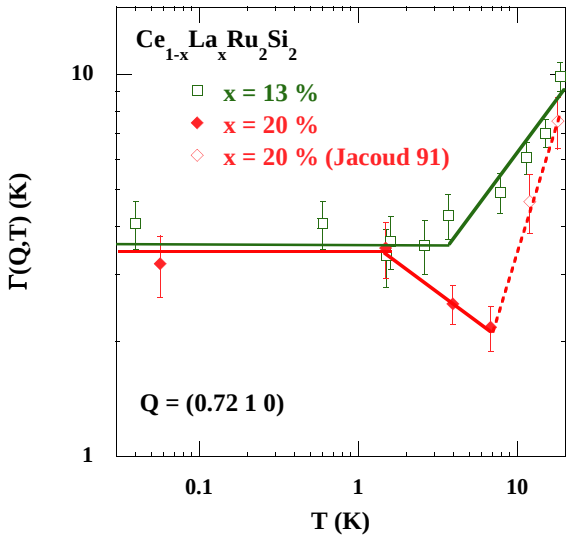

FIG. 6.3 – *Variations avec T des taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ des fluctuations antiferromagnétiques des composés $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ et $Ce_{0.8}La_{0.2}Ru_2Si_2$ (Notons que les taux de relaxation obtenus par Jacoud pour le composé de concentration $x = 20$ % (Losanges rouges non remplis) sont tracés à titre indicatif, provenant d'une analyse des données différente de celle faite ici; cf. Section 3.1.2 et Références [Jacoud 91, Jacoud 92]). Les lignes sont des guides pour les yeux.*

transition à T_N est classique, étant alors gouvernée par la température.

6.2.2 Fluctuations de spin de part et d'autre de l'instabilité magnétique

Les fluctuations de spin du système à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ ont été étudiées par diffusion inélastique des neutrons sur différents composés de concentrations $x \leq 20$ %. Une étude systématique des spectres d'excitations a été faite aux deux transferts de moments i) $\mathbf{Q}_0$ où le signal est non corrélé magnétiquement et peut être considéré comme représentatif des fluctuations locales et ii) $\mathbf{Q}_1$ où le signal est corrélé antiferromagnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$. Sachant que le système s'ordonne magnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ pour $x > x_c$, nous dressons ici un bilan sur les fluctuations de spin de part et d'autre de x_c et nous considérons quelles peuvent être les manifestations de la criticalité dans ce système.

Les mesures faites au vecteur $\mathbf{Q}_0$ permettent d'obtenir un signal non corrélé qu'on peut considérer comme représentatif des fluctuations locales (sauf pour $CeRu_2Si_2$ où subsistent de faibles corrélations en $\mathbf{Q}_0$; cf. Section 5.3). Pour $T < T_K$, où T_K est la température de Kondo, ce signal est gouverné par l'effet Kondo et la susceptibilité dynamique correspondante ne dépend pas de T. Aux basses températures, le taux de relaxation des fluctuations locales sature à la valeur $\Gamma(\mathbf{Q}_0,0) \simeq k_B T_K$. La variation avec x du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_0,0)$ est montrée sur la Figure 6.4[3]. On voit sur ce graphe que l'énergie caractéristique des fluctuations locales diminue continûment lorsque x augmente, ce qui traduit une localisation de plus en plus importante des électrons f du système. Sur la Figure 6.4 est aussi montrée la variation avec x du taux de relaxation $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)$ des fluctuations corrélées antiferromagnétiquement pour $T \to 0$. $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)$ diminue lorsque x augmente dans la phase paramagnétique de concentrations $x < x_c$, et il sature lorsque le système s'ordonne pour les concentrations $x > x_c$. Cette saturation des fluctuations antiferromagnétiques avait déjà été reportée lors de l'étude sous pression du composé $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$, où on considérait alors les fluctuations inter-sites déduites d'une analyse avec deux contributions (cf. Sections 3.1.2 et 3.2.1.1 et Références [Raymond 01, Raymond 02]).

Dans les théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant, la transition de phase est du second ordre et les fluctuations qui la gouvernent doivent diverger à la transition [Hertz 76, Millis 93, Moriya 95]. A ces fluctuations critiques doit donc correspondre un taux de relaxation qui s'annule à la transition et dont la valeur croit lorsque le système s'éloigne de la transition. On a vu cependant que ce n'est pas le cas du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ lorsqu'il est au voisinage de sa concentration critique : de même qu'aux basses températures le taux de

3. Les valeurs tracées sur ce graphe ont été obtenues dans les Sections précédentes, hormis celles correspondant à $Ce_{0.935}La_{0.065}Ru_2Si_2$ dont il n'a pas été question auparavant. Les spectres des excitations de basses énergies de $Ce_{0.935}La_{0.065}Ru_2Si_2$ ont été mesurés sur IN12 dans des conditions équivalentes à celles détaillées dans les Sections 4.2.1 et 6.2.1.1. Ces spectres ont été ajustés en utilisant la contribution quasiélastique Lorentzienne (6.10).

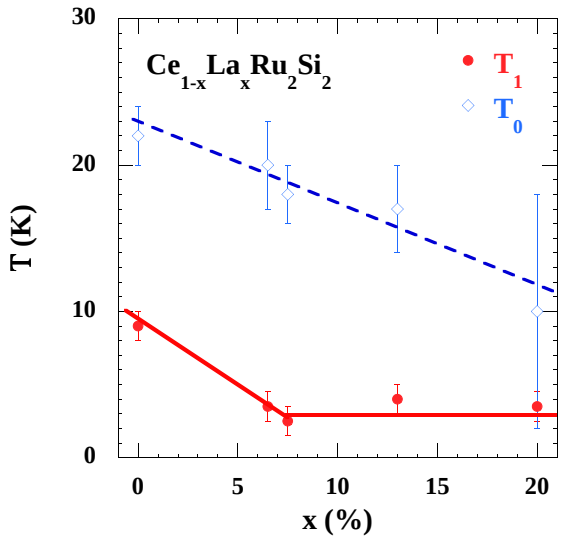

FIG. 6.4 – *Variations avec x des taux de relaxation de basse température $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)$ et $\Gamma(\mathbf{Q}_0,0)$. La température de Kondo T_K du composé de concentration $x = 0$ est aussi indiquée. La ligne en tirets et la ligne continue sont des guides pour les yeux des évolutions des énergies caractéristiques des fluctuations locales et des fluctuations antiferromagnétiques, respectivement.*

relaxation des fluctuations antiferromagnétiques prend une valeur finie et indépendante de x pour les composés de concentration $x > x_c$, il sature en une valeur finie et indépendante de T pour $T < T_N$ en $x = 13$ % $> x_c$. $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ a un spectre d'excitations qui, de par sa dépendance en $\mathbf{Q}$ et en T, est très similaire des spectres des composés paramagnétiques de concentrations $x = 0$ et x_c. On en déduit qu'à l'instar de ces deux composés, $Ce_{0.87}La_{0.13}Ru_2Si_2$ est dans un régime quantique lorsqu'aux basses températures les fluctuations de spin saturent. Alors que dans une transition de phase du second ordre les fluctuations critiques doivent diverger, la saturation des fluctuations de spin antiferromagnétiques de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ pourrait être due au fait que la transition de phase quantique de ce système est du premier ordre. Dans ce cas, la transition serait caractérisée par la coexistence d'une phase ordonnée et d'une phase désordonnée, ce qui semble être le cas de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$. En effet, un petit moment de 0.02 μ_B s'ordonne dans ce composé avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ pour $T < T_m = 2$ K. Dans un tel scénario, la saturation des fluctuations de spin sous $T_1 \simeq T_m$ serait alors liée à l'apparition de l'ordre magnétique dans le système. Une inhomogénéité du cristal peut aussi être à l'origine de la saturation des fluctuations de spin aux basses températures. Du fait du désordre cristallin, il se peut que les longueurs de corrélation ne puissent être supérieures à une valeur de coupure ξ_{max}. Dans ce cas, il y aurait donc un temps de relaxation maximal $\xi_{\tau,max} = \xi^z_{max}$ auquel correspondrait un taux de relaxation minimal $\Gamma_{min} = 1/\xi_{\tau,max}$.

Concernant le composé de concentration $x = 20$ %, l'intensité des fluctuations antiferromagnétiques est maximale à T_N et un minimum de $\Gamma(\mathbf{Q}_1,T)$ y est obtenu. Cela confirme que

ce sont bien les fluctuations de spin corrélées antiferromagnétiquement avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ qui gouvernent la transition de phase du système en $x = 20$ %, et par extrapolation dans l'ensemble du diagramme de phase obtenu pour $x \leq 20$ %. Contrairement à la transition de phase qui caractérise le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ pour $x \leq 13$ %, la transition en $x = 20$ % est donc apparemment en accord avec l'image d'une transition de phase du second ordre où les fluctuations critiques ont une intensité maximale. Etant activée thermiquement, cette transition peut aussi être considérée comme classique, en opposition à la transition de phase qui a lieu pour $x \leq 13$ % où les effets de la température sur les fluctuations de spin sont moindres.

Troisième partie

Etude par diffusion inélastique des neutrons de $CeIn_{3-x}Sn_x$

Chapitre 7

Présentation du système $CeIn_{3-x}Sn_x$

Dans ce Chapitre, le composé à fermions lourds $CeIn_3$ est présenté dans un premier temps. Dans un second temps les effets de la pression et du dopage en étain sur les sites d'indium sont évoqués. Ces deux techniques permettent d'atteindre l'instabilité magnétique du système, une phase supraconductrice non-conventionnelle étant par ailleurs obtenue en appliquant une pression.

7.1 $CeIn_3$, un composé à fermions lourds ordonné magnétiquement

$CeIn_3$ est un composé cristallisant dans une structure cubique de type $AuCu_3$ qui correspond au groupe d'espace $Pm\overline{3}m$, le paramètre de maille valant 4.689 Å à température ambiante. Les atomes de cérium ont la valence 3+ et portent un électron $4f$ dont l'état fondamental est un niveau de couplage spin-orbite $J = 5/2$ de dégénérescence $N = 6$. En effet, la susceptibilité de $CeIn_3$ s'ajuste pour des températures supérieures à 100 K par une loi de Curie-Weiss $\chi(T) = C/(T - \theta)$, avec $\theta = -50$ K et pour laquelle un moment effectif de 2.6 μ_B est obtenu, ce qui correspond bien au moment $g_J[J(J+1)]^{1/2} = 2.54 \quad \mu_B$ attendu pour un niveau $J = 5/2$ [Buschow 69, Lawrence 79]. Pour des températures inférieures, un champ cristallin cubique lève partiellement la dégénérescence du sextuplet $J = 5/2$. Le Hamiltonien correspondant peut s'exprimer par :

$$H_{CF} = B_4(O_4^0 + 5O_4^4), \tag{7.1}$$

où les opérateurs O_n^m sont les opérateurs de Stevens [Lea 62]. Van Diepen et al. ont montré, via une analyse de l'anomalie Schottky de la chaleur spécifique de $CeIn_3$, que l'état fondamental est le doublet Γ_7 et que le premier état excité correspond au quadruplet Γ_8, leurs fonctions d'onde étant :

$$\begin{aligned} |\Gamma_{7\pm}\rangle = &\quad a|\pm 5/2\rangle - b|\mp 3/2\rangle, \\ |\Gamma_{8\pm}^{(1)}\rangle = &\quad b|\pm 5/2\rangle + a|\mp 3/2\rangle, \end{aligned}$$

$$\text{et} \quad |\Gamma_{8\pm}^{(2)}\rangle = \quad |\pm 1/2\rangle, \tag{7.2}$$

avec $a = 1/\sqrt{6}$ et $b = \sqrt{5/6}$ [van Diepen 71]. Ce schéma de champ cristallin avait en fait déjà été envisagé par Buschow et al. lors de leur analyse de la susceptibilité de $CeIn_3$ aux basses températures [Buschow 69]; il correspond à un paramètre $B_4 > 0$ dans le Hamiltonien de la Formule 7.1. L'écart entre ces deux niveaux de champ cristallin a été estimé à $\Delta_{CF} = 130$ K par diffusion inélastique des neutrons [Lawrence 82, Murani 93]. A très basses températures, $CeIn_3$ s'ordonne antiferromagnétiquement avec le vecteur de propagation $\mathbf{k} = (1/2,1/2,1/2)$, pour des températures inférieures à la température de Néel $T_N = 10.1$ K [Benoit 80]. Cette mise en ordre se manifeste par l'augmentation montrée sur la Figure 7.1 de l'intensité de diffraction des neutrons sous T_N au transfert de moment $\mathbf{Q} = (1/2,1/2,1/2)$. Dans une image à deux sous-réseaux, l'ordre magnétique qui s'établit sous T_N peut être vu comme une alternance de plans ferromagnétiques (1,1,1) au sein desquels les spins sont soit "up" soit "down", les moments étant portés sur les sites de cérium.

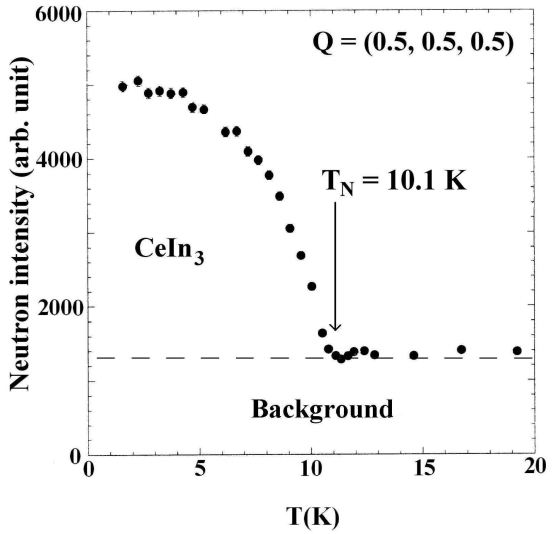

FIG. 7.1 – *Variation avec la température T de l'intensité de diffraction des neutrons sur $CeIn_3$ en $\mathbf{Q} = (0.5,0.5,0.5)$ (expérience faite sur le spectromètre trois axes IN22 de l'ILL, dans les conditions décrites dans la Section 8.1)*

Dans le composé $CeIn_3$, les électrons f portés sur les sites de cérium ont un caractère itinérant provenant de leur interaction par effet Kondo avec les électrons de conduction du système. Aux basses températures, la chaleur spécifique est alors celle d'un liquide de Fermi fortement renormalisé : elle est caractérisée par un coefficient linéaire de Sommerfeld $\gamma \approx 130$ mJ.K^{-2}mol.$^{-1}$ pour $T < 1$ K [Peyrard 80]. En assumant qu'il y a en moyenne un électron de conduction par site de cérium, Knebel et al. déduisent de cette valeur de γ la masse effective $m^* \simeq 60m_e$, où m_e est la masse d'un électron libre [Knebel 01]. La phase antiferromagnétique

est caractérisée par un moment à saturation dont les estimations, qui varient entre 0.5 et 0.65 μ_B [Benoit 80, Lawrence 80], sont inférieures à la valeur de 0.71 μ_B attendue pour le niveau Γ_7 des électrons f. Dans une image de magnétisme itinérant, cette réduction du moment est due à la subsistance des fluctuations de spin de basses énergies dans la phase ordonnée (cf. Section 1.1.2 et [Moriya 85]). Le caractère délocalisé des électrons f se manifeste aussi par l'élargissement de chacun de leurs niveaux de champ cristallin, et donc par l'élargissement de l'excitation de champ cristallin $\Gamma_7 \rightarrow \Gamma_8$. Cette excitation a été observée par diffusion inélastique des neutrons en $\Delta_{CF} = 130$ K, la largeur à mi hauteur étant estimée à environ 50-100 K [Lawrence 82, Murani 93]. Une étude du facteur de forme magnétique de $CeIn_3$ a par ailleurs été menée par Boucherle et al. et a permis de conclure que le niveau fondamental de ce système, au lieu de correspondre exactement à l'état Γ_7 pur, est en fait défini par la fonction d'onde $|\phi\rangle = 0.782|\pm 5/2\rangle - 0.436|\mp 3/2\rangle - 0.445|\pm 1/2\rangle$ [Boucherle 83]. Cet état, qui consiste en un état Γ_7 "légèrement contaminé" par Γ_8, peut s'interpréter comme étant dû à l'élargissement par effet Kondo des niveaux de champ cristallin, le niveau excité Γ_8 ayant ainsi un faible poids aux basses énergies et donc dans l'état fondamental.

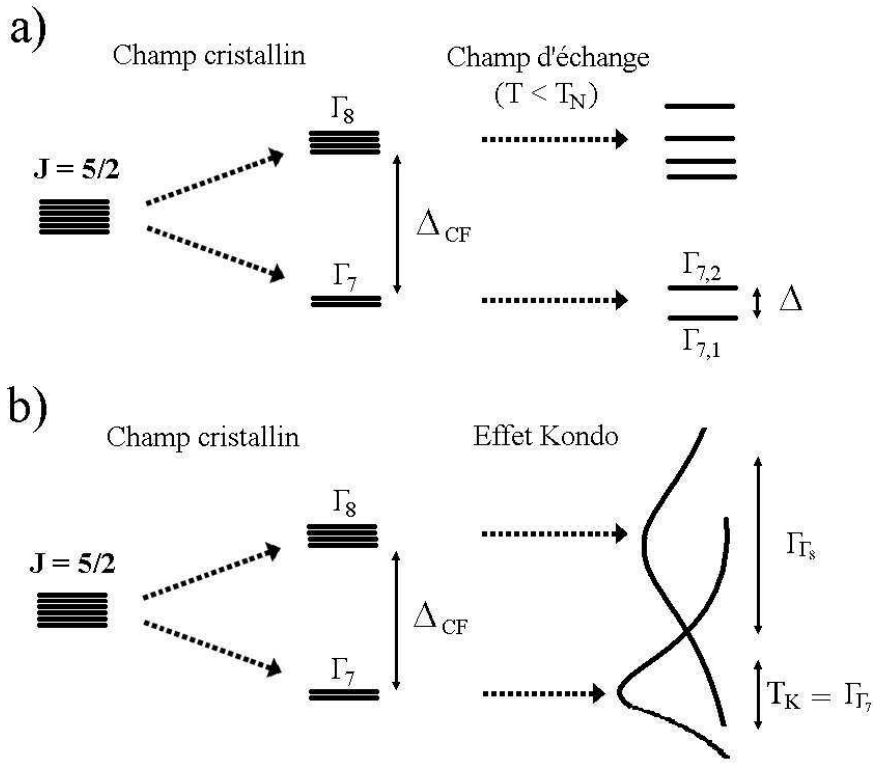

FIG. 7.2 – *Schémas électroniques de $CeIn_3$ où les niveaux de champ cristallin sont modifiés : a) par le champ d'échange sous T_N dans une image correspondant à une limite très localisée, b) par l'effet Kondo dans une image correspondant à une limite itinérante.*

D'une part, le système des électrons f de $CeIn_3$ a donc un caractère localisé suffisamment fort pour qu'on puisse définir avec précision ses niveaux de champ cristallin et pour qu'un ordre magnétique commensurable puisse apparaître aux basses températures. D'autre part, dans $CeIn_3$ on ne peut pas négliger le caractère itinérant d'un système électronique au sein duquel électrons f et électrons de conduction interagissent fortement, et pour lequel le magnétisme des niveaux f est un magnétisme de bande. Alors que le caractère localisé de $CeIn_3$ se manifeste par un ordre magnétique dont une bonne énergie caractéristique est la température de Néel $T_N = 10.1$ K, son caractère itinérant se caractérise par la température de Kondo T_K relative au doublet fondamental Γ_7, qu'on estime à environ 10 K (cf. Section 8.3.1). La similarité de ces deux énergies caractéristiques traduit la forte dualité localisé-itinérant du système et est caractéristique de la proximité d'une instabilité magnétique, qui sépare en l'occurrence un état fondamental ordonné magnétiquement d'un état fondamental paramagnétique itinérant. Dans la Figure 7.2, les niveaux électroniques de $CeIn_3$ sont représentés de manière schématique : a) montre l'effet de l'ordre magnétique sur les niveaux de champ cristallin (limite d'un magnétisme très localisé) alors que b) montre l'effet de l'hybridation Kondo sur ces niveaux (limite d'un magnétisme itinérant). $CeIn_3$ étant un système électronique à la fois localisé et itinérant, ses niveaux $4f$ sont modifiés d'une manière intermédiaire aux images a) et b) : bien que fortement élargis par l'effet Kondo, les niveaux électroniques sont aussi suffisamment bien définis pour qu'un ordre magnétique puisse apparaître. Dans le paragraphe suivant, on présente deux moyens de faire varier les énergies caractéristiques de ce système et d'atteindre l'instabilité magnétique : l'utilisation de la pression et de la substitution chimique.

7.2 $CeIn_3$ sous pression et $CeIn_{3-x}Sn_x$: deux routes vers l'instabilité magnétique du système

7.2.1 Effets de la pression sur $CeIn_3$

Le système $CeIn_3$, bien qu'étudié depuis plus de trente ans, a bénéficié d'un regain d'intérêt lorsqu'en 1997 a été découvert qu'une phase supraconductrice peut être induite par une pression de l'ordre de 25 kbar, pour des températures inférieures à 200 mK [Walker 97, Mathur 98]. L'application de la pression sur $CeIn_3$ favorise la délocalisation des électrons f et, en même temps que l'effet Kondo s'apprécie, les corrélations antiferromagnétiques s'atténuent. Ainsi, pour une pression $p_c = 25$ kbar, on obtient l'instabilité magnétique du système au-delà de laquelle l'état fondamental n'est plus ordonné magnétiquement. Sur la Figure 7.3 est reporté le diagramme de phases obtenus par Knebel et al. à partir de mesures de résistivité [Knebel 01]. L'état fondamental est ordonné antiferromagnétiquement pour $p < p_c$ et est liquide de Fermi paramagnétique pour $p > p_c$. La résistivité a un comportement non liquide de Fermi à p_c, sa variation en température suivant une loi $\rho = \rho_0 + AT^n$ où $n = 1.5$ pour $T > T_c$ [Knebel 01, Mathur 98]. Une poche de supraconductivité est obtenue pour des températures inférieures à 200 mK et des pressions comprises entre 22 et 27 kbar, donc au voisinage du point critique quantique défini

à p_c et $T = 0$ [Mathur 98, Knebel 01, Kawasaki 04]. Le fait que la phase supraconductrice s'ancre sur le point critique quantique du système indique que son mécanisme microscopique est probablement d'origine magnétique. Les mesures de résonance magnétique quadrupolaire semblent effectivement indiquer que la supraconductivité de $CeIn_3$ est non-conventionnelle, en opposition à une supraconductivité conventionnelle de type BCS qui serait gouvernée par un mécanisme d'appariement des électrons d'origine phononique [Kawasaki 04]. Ces mesures indiquent aussi que supraconductivité et antiferromagnétisme coexistent pour $T < T_c$ et $p < p_c$.

De par sa structure cubique, $CeIn_3$ est un système modèle pour l'étude de la supraconductivité non-conventionnelle lorsque les fluctuations magnétiques sont 3D. Depuis peu a été découverte une famille de systèmes tétragonaux dérivés du système cubique $CeIn_3$, les $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$, où un caractère 2D plus ou moins marqué est conféré au système par l'alternance de n couches de $CeIn_3$ et de m couches de MIn_2, M étant un métal de transition (Rh, Ir ou Co) [Thompson 01]. Ces composés se sont révélés être d'une très grande diversité : alors que $CeRhIn_5$ est antiferromagnétique sous $T_N = 3.8$ K et devient supraconducteur vers $p_c \simeq 20$ kbar, $CeIrIn_5$ et $CeCoIn_5$ sont paramagnétiques et supraconducteurs à pression ambiante. Les températures critiques $T_c \simeq 2.3$ K à $p = 0$ et $T_c \simeq 2.5$ K vers $p = 20$ kbar obtenues pour $CeCoIn_5$ sont à ce jour les plus hautes températures de transition supraconductrices observées dans un composé à fermions lourds (à base de terre rare). Lorsque l'appariement des électrons responsables de la supraconductivité est d'origine magnétique, il est prévu que la supraconductivité soit favorisée pour des fluctuations magnétiques de plus faible dimensionnalité, donc que la température critique T_c doit être plus grande pour des fluctuations magnétiques quasi-2D que pour des fluctuations

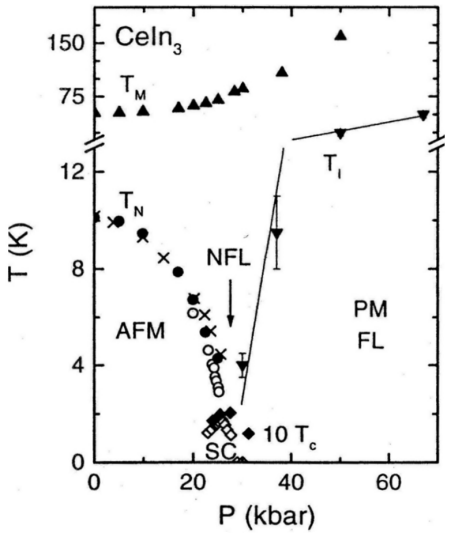

FIG. 7.3 – *Diagramme de phase de $CeIn_3$ obtenu par Knebel et al. [Knebel 01]. T_N est la température de Néel, T_c la température de l'ordre supraconducteur, T_M correspond au maximum de résistivité, et T_I est la température en dessous de laquelle la résistivité est quadratique.*

magnétiques 3D [Monthoux 01, Moriya 00]. Il est aussi prévu que, lorsque les fluctuations sont 3D, la supraconductivité du système est d'autant plus favorisée que l'anisotropie cristalline est grande. Que les fluctuations magnétiques soient quasi-2D ou 3D, on s'attend donc à avoir des conditions plus favorables à l'émergence de supraconductivité dans les composés tétragonaux $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$ que dans le composé cubique $CeIn_3$. Les températures de transition T_c d'environ 2 K obtenues dans les $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$ vont dans ce sens, étant d'un ordre de grandeur supérieures aux températures de transition de 200 mK obtenues pour le composé 3D $CeIn_3$. Une caractérisation précise des propriétés magnétiques de $CeIn_3$, à pression ambiante ou sous pression, est donc nécessaire quant à une bonne compréhension des systèmes $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$, et d'une manière plus générale des rôles que jouent l'anisotropie et la dimensionnalité dans l'apparition de la supraconductivité non-conventionnelle.

7.2.2 Les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$

Tout comme l'application d'une pression, la substitution d'atomes d'indium par des atomes d'étain permet d'atteindre l'instabilité magnétique du système. En effet, alors que $CeIn_3$ est un composé à fermions lourds ordonné antiferromagnétiquement à basses températures, $CeSn_3$ est un composé à valence intermédiaire d'état fondamental liquide de Fermi non magnétique. Du fait de la parfaite miscibilité de ces deux composés, il est possible de faire varier leurs proportions relatives au sein de l'alliage $CeIn_{3-x}Sn_x$. La Figure 7.4 représente la variation du paramètre de maille a en fonction de la concentration x d'étain, les points correspondant aux alliages synthétisés lors des études de Lawrence et al., Maury et al., Sakurai et al. et Pedrazzini et al. [Lawrence 79, Maury 82, Sakurai 84, Pedrazzini 04]. La loi de Vegard $a \propto x$ est vérifiée

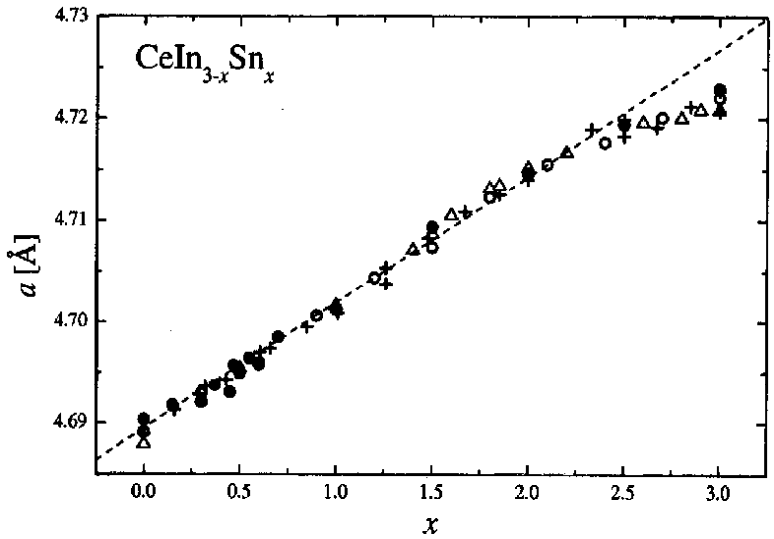

FIG. 7.4 – *Variation en fonction de x du paramètre de maille a de $CeIn_{3-x}Sn_x$ [Pedrazzini 04].*

pour $x < 2$, indiquant une valence constante dans cette gamme de concentrations. La valence est alors entière et a la valeur 3+ de $CeIn_3$. Pour $x > 2$, $a(x)$ s'écarte de la loi de Vegard : la valence n'est plus entière et varie avec x. Lawrence et al. ont estimé cette valence à 3.1 pour $x = 3$, ce qui correspond à 0.9 électron par site de cérium [Lawrence 78]. On peut donc définir une concentration caractéristique du changement de valence $x_v \simeq 2$ du système $CeIn_{3-x}Sn_x$, à la limite entre le régime à valence entière pour $x < x_v$ et le régime à valence intermédiaire pour $x > x_v$. Rappelons que le régime à valence entière correspond à la limite Kondo d'un traitement de type Anderson, et donc au régime à fermions lourds (cf. Section 1.2.1). Alors que le composé à fermions lourds $CeIn_3$ a des niveaux de champ cristallin relativement bien définis, il n'est pas possible de les distinguer pour le composé à valence intermédiaire $CeSn_3$. En effet, l'hybridation est alors beaucoup plus importante, ce qui se caractérise par une plus grande température caractéristique T_K des fluctuations de spin. L'élargissement des niveaux f, de l'ordre de T_K aux basses températures, est dans ce composé supérieur à l'écart Δ_{CF} entre les états de champ cristallin. Ainsi, $CeSn_3$ se comporte comme un système où l'état fondamental est un niveau $J = 5/2$ fortement élargi par hybridation, ce dernier ayant "gommé" les effets du champ cristallin.

Le dopage en étain a pour effet d'augmenter le couplage entre les électrons f et les électrons de conduction, ce qui s'accompagne d'une diminution des corrélations inter-sites et donc de la température d'ordre T_N, comme c'était le cas lorsqu'une pression était appliquée. Pedrazzini et al. ont récemment étudié les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$ par résistivité, susceptibilité et chaleur spécifique [Pedrazzini 04]. Le diagramme de phase déduit de cette étude correspond à la Figure 7.5. Une phase ordonnée antiferromagnétiquement est obtenue pour des concentrations x inférieures à la concentration critique $x_c = 0.6$. Au delà de x_c, l'état fondamental est paramagnétique. A la

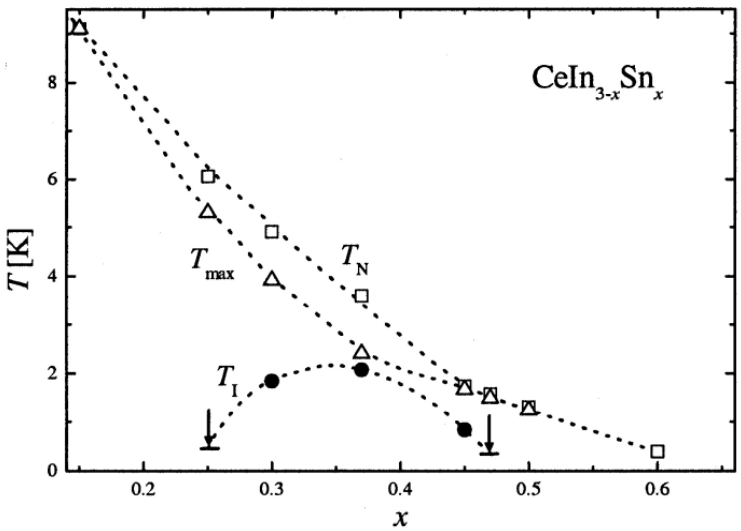

FIG. 7.5 – *Diagramme de phase de $CeIn_{3-x}Sn_x$ [Pedrazzini 04].*

concentration x_c, un comportement non-liquide de Fermi de la chaleur spécifique $C \propto Tlog(T)$ est obtenu pour des températures allant jusqu'à 6 K. Pedrazzini et al. ont aussi observé que, pour des concentrations $0.25 < x < 0.45$ une transition de phase du premier ordre a lieu à une température caractéristique $T_1 < T_N$, la nature de cette phase étant inconnue. Notons aussi que contrairement à $CeIn_3$ sous pression, aucune phase supraconductrice n'est obtenue à l'instabilité magnétique des alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$. Il est très probable que le désordre cristallin introduit par dilution chimique rende impossible l'apparition de supraconductivité non conventionnelle.

7.3 Motivations de l'étude de $CeIn_{3-x}Sn_x$ par diffusion des neutrons

Afin de comprendre les propriétés magnétiques de $CeIn_3$ sous pression et de $CeIn_{3-x}Sn_x$, un point sur le composé $CeIn_3$ à pression ambiante mérite en premier lieu d'être fait. Dans le Chapitre 8, l'étude de $CeIn_3$ par diffusion inélastique des neutrons à pression ambiante est présentée pour T de part et d'autre de la température de Néel T_N. Parce que l'indium absorbe fortement les neutrons et parce qu'un environnement sous pression s'accompagne d'un bruit de fond élevé, l'étude du spectre des excitations de $CeIn_3$ sous pression ne peut être faite par diffusion inélastique des neutrons. Les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$ ont donc été choisis pour atteindre et étudier l'instabilité magnétique du système. Dans le Chapitre 9, l'étude par diffusion inélastique des neutrons des excitations magnétiques du composé à la concentration critique $x_c = 0.6$ est présentée.

Chapitre 8

Etude du composé ordonné $CeIn_3$

Ce Chapitre consiste principalement en l'étude par diffusion inélastique des neutrons du composé à fermions lourds $CeIn_3$. Ce travail a bénéficié de l'utilisation complémentaire des deux techniques de spectrométrie à temps de vol et de spectrométrie trois axes. Pour la première fois, des mesures de diffusion inélastique des neutrons ont été effectuées sur des monocristaux de $CeIn_3$. Nous avons d'une part étudié l'excitation de champ cristallin déjà rapportée dans la littérature pour des échantillons polycristallins et, grâce à l'utilisation de monocristaux, nous avons d'autre part pu mettre en évidence le spectre des ondes de spin caractéristiques de la phase ordonnée, dont nous avons ensuite étudié la dispersion.

8.1 Conditions expérimentales

Les monocristaux de $CeIn_3$ utilisés lors de cette étude ont été synthétisés dans le flux d'indium par G. Lapertot et K. Mony au CEA Grenoble [Canfield 92], leur caractérisation ayant ensuite été faite aux rayons X et au microscope électronique à balayage.

Une première expérience de diffusion des neutrons a été effectuée sur le spectromètre à temps de vol MARI de la source à spallation ISIS, à Didcot en Angleterre. Des énergies incidentes de 22 et 60.3 meV ont été utilisées, correspondant à des résolutions d'environ 1 et 2.5 meV (largeur à mi hauteur du pic incohérent). Du fait de la forte absorption des neutrons par l'indium, les monocristaux ont été coupés en lames d'une épaisseur d'environ 2 mm, les mesures étant faites en transmission. Cette valeur correspond à l'épaisseur optimale de transmission calculée pour une énergie incidente $E_i = 30$ meV et un transfert d'énergie $E = 10$ meV, ce cas étant intermédiaire aux deux types de mesures effectuées pour $E_i = 22$ et 60.3 meV (le détail de ce calcul est donné dans l'annexe B.1). 30 monocristaux d'une masse totale d'environ 12 g ont été alignés et collés sur une plaque d'aluminium de 45*45 mm^2 (cf. Figure 8.1), qui a ensuite été installée dans un réfrigérateur à cycle fermé (hélium 4). La mozaïcité totale de cet ensemble a été estimée à environ 6 ° lors de cette expérience. Les mesures de diffusion ont été faites dans le plan (hhl), la direction [001] étant normale à la plaque. Deux orientations ont

été testées pour lesquelles l'angle φ entre le faisceau incident et la direction [001] vaut 2.5 et 30 °.

Une seconde expérience de diffusion des neutrons a été faite sur le spectromètre trois axes IN22 de l'ILL (ligne CRG du CEA), à Grenoble. Cet instrument est constitué d'un monochromateur focalisant verticalement et d'un analyseur focalisant horizontalement et verticalement, tous deux étant en graphite pyrolytique. Pour supprimer les contaminations en longueurs d'onde d'ordre supérieur, un filtre en graphite pyrolytique a été placé derrière l'échantillon. Des énergies finales de 8.05 et 14.7 meV ont été utilisées, donnant des résolutions d'environ 0.5 et 1.0 meV (largeur à mi hauteur du pic incohérent). Lors de cette expérience, deux plaquettes du montage précédent ont été alignées sur un support d'aluminium, la masse totale étant alors d'environ 1 g pour une mozaïcité d'environ 1 °. Un cryostat Orange (hélium 4 pompé) a été utilisé dans cette expérience pour laquelle le plan (hhl) a été étudié.

FIG. 8.1 – *Montage expérimental de 30 monocristaux de $CeIn_3$ alignés et collés sur une plaquette d'aluminium de 45*45 mm^2, utilisé lors de l'expérience de diffusion des neutrons sur MARI.*

8.2 Résultats expérimentaux

8.2.1 Excitations de champ cristallin

Lors de l'expérience faite sur MARI, des cartes $(\mathbf{Q},E)$ des excitations du composé $CeIn_3$ ont été obtenues pour une énergie incidente des neutrons de 60.3 meV, aux températures $T = 5$, 15 et 150 K et pour les deux orientations $\varphi = 2.5$ et 30 ° du faisceau incident par rapport à la direction [001]. Malgré une forte contamination phononique provenant à la fois de l'échantillon

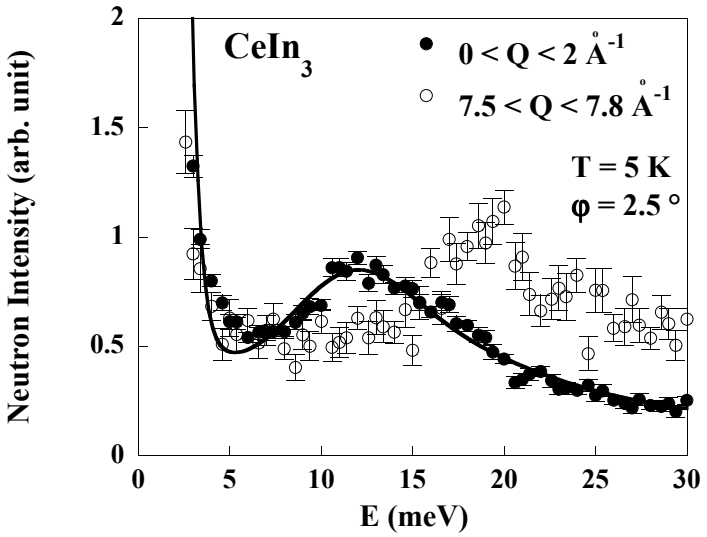

FIG. 8.2 – *Spectres obtenus pour des intégrations de Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$ et entre 7.5 et 7.8 $Å^{-1}$, pour l'orientation $\varphi = 2.5$ ° et à $T = 5$ K, l'énergie incidente des neutrons valant $E_i = 60.3$ meV. La ligne correspond à l'ajustement fait sur le spectre obtenu pour Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$.*

et du support en aluminium, une excitation très élargie est observée à environ 11 meV aux faibles températures et pour les deux orientations. Cette excitation a une intensité qui diminue lorsque Q augmente, ce qui est montré sur la Figure 8.2 où sont comparés les spectres obtenus pour $\varphi = 2.5$ ° à $T = 5$ K, pour des intégrations de Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$ et entre 7.5 et 7.8 $Å^{-1}$ (les barres d'erreurs sont plus grandes pour Q entre 7.5 et 7.8 $Å^{-1}$ car on intègre alors sur un nombre moins important de détecteurs). La contribution qui apparaît vers 20 meV aux grands Q a une intensité qui augmente avec T et est donc d'origine phononique. Le pic observé à environ 11 meV pour les faibles valeurs de Q disparaît effectivement lorsque Q augmente. Sur la Figure 8.3 sont tracés les spectres obtenus pour Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$, $\varphi = 2.5$ °, aux températures de 5, 15 et 150 K : le pic qui est présent à 11 meV aux basses températures disparaît clairement lorsque T augmente. D'après sa dépendance en Q et en température, l'excitation observée à 11 meV est d'origine magnétique et correspond donc bien à l'excitation de champ cristallin $\Gamma_7 \rightarrow \Gamma_8$ déjà observée sur des poudres [Lawrence 80, Murani 93]. Contrairement aux travaux précédents, nous avons ici utilisé des monocristaux de $CeIn_3$, ce qui nous a permis de considérer la dépendance angulaire des excitations : des spectres identiques ont ainsi été obtenus pour les deux orientations $\varphi = 2.5$ et 30 °, pour Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$ et $T = 5$ K,(cf. Figure 8.4). On note aussi que, pour les valeurs de Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$, alors que le facteur de forme magnétique du cérium ne varie presque pas, aucune dépendance notable du signal en Q n'est observée lorsqu'on intègre sur des intervalles de Q plus petits. Ces mesures semblent donc indiquer que l'excitation de champ cristallin est indépendante de $\mathbf{Q}$.

En plus de l'excitation de champ cristallin, une contribution quasiélastique doit être prise

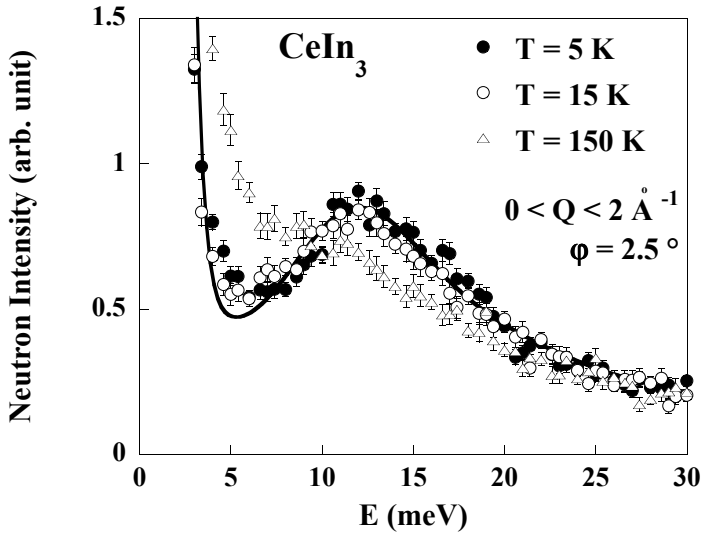

FIG. 8.3 – *Spectres obtenus pour des températures de 5, 15 et 150 K, pour Q entre 0 et 2 $\AA^{-1}$ et l'orientation $\varphi = 2.5$ °, l'énergie incidente des neutrons valant $E_i = 60.3$ meV. La ligne correspond à l'ajustement fait sur le spectre obtenu à 5 K.*

en compte. En effet, l'effet Kondo se manifeste par des fluctuations de spin qui élargissent les niveaux du système (cf. Figure 7.2). Les fluctuations au sein du doublet fondamental Γ_7 ainsi élargi se manifestent aux basses températures par un spectre d'excitations quasiélastiques, dont la largeur correspond à la température de Kondo T_K associée au doublet (lorsque $T < T_K$). Du fait de l'élargissement de chacun des niveaux Γ_7 et Γ_8 de champ cristallin, l'excitation $\Gamma_7 \rightarrow \Gamma_8$ est elle aussi fortement élargie, ce qui est effectivement observé ici. D'après les spectres obtenus à $T = 5$ et 15 K pour Q entre 0 et 2 $\AA^{-1}$, il y a aux basses énergies une intensité beaucoup plus importante que celle attendue pour la seule queue de l'excitation de champ cristallin. Il est donc nécessaire d'introduire un terme de basses énergies pour pouvoir analyser quantitativement la contribution inélastique de champ cristallin. On suppose ici que cette contribution correspond aux fluctuations de spin quasiélastiques attendues au sein du doublet fondamental.

L'analyse de ces courbes a donc été faite en utilisant trois contributions : un pic Gaussien élastique pour le signal incohérent, un pic Lorentzien quasiélastique pour les fluctuations de basses énergie et un pic Lorentzien inélastique pour l'excitation de champ cristallin. Parce que ces trois contributions se chevauchent aux basses energies, il est cependant très difficile d'ajuster les paramètres du pic quasiélastique à partir des données expérimentales. A $T = 5$ K, la largeur Γ_{QE} du quasiélastique est fixée à la valeur $k_B T_K = 0.86$ meV, où $T_K = 10$ K est la température de Kondo associée au doublet Γ_7. Le choix de cette valeur de T_K sera discuté dans la dernière Section de ce Chapitre. L'analyse ainsi faite du spectre conduit finalement à un écartement des niveaux de champ cristallin $\Delta_{CF} = 10.6 \pm 0.2$ meV auquel correspond la demi-largeur à mi hauteur $\Gamma_{CF} = 5.7 \pm 0.2$ meV. Ces différentes contributions ainsi que leur somme sont

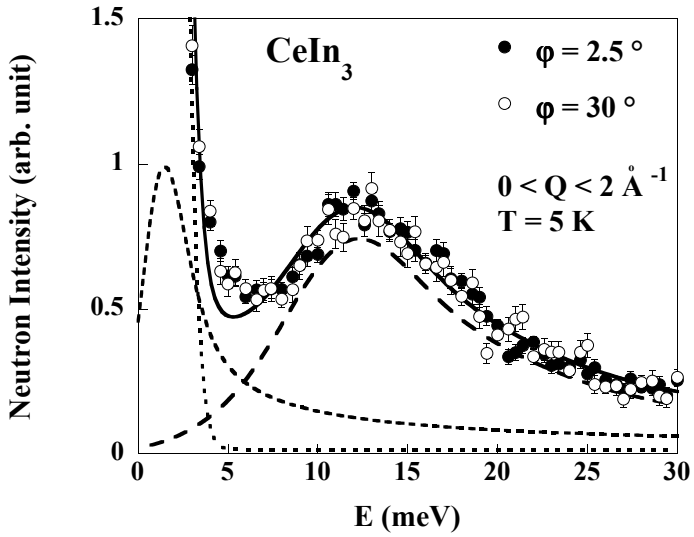

FIG. 8.4 – *Spectres obtenus pour les deux orientations φ = 2.5 et 30 °, pour Q entre 0 et 2 $Å^{-1}$ et à T = 5 K, l'énergie incidente des neutrons valant E_i = 60.3 meV. Les tirets longs, courts et les pointillés correspondent respectivement aux ajustements sur l'excitation de champ cristallin, sur les fluctuations quasi élastiques et sur le signal incohérent, la ligne pleine correspondant à la somme de ces trois termes.*

comparées sur la Figure 8.4 aux points obtenus expérimentalement. A $T = 15$ K, une analyse semblable conduit aux paramètres $\Delta_{CF} = 9.4 \pm 0.2$ meV et $\Gamma_{CF} = 6.0 \pm 0.2$ meV. Notons qu'ici la largeur du quasiélastique a été fixée à $\Gamma_{QE} = k_B T \simeq 1.3$ meV, T étant alors supérieure à T_K. Le fait que Δ_{CF} soit légèrement différent à $T = 5$ K et $T = 15$ K provient probablement de la levée de dégénérescence supplémentaire due à l'ordre magnétique sous $T_N = 10.1$ K (cf. Figure 7.2). Les valeurs qui caractérisent l'excitation de champ cristallin au dessus et en dessous de T_N sont résumées dans la Table 8.1.

T	Δ_{CF}	Γ_{CF}
1.5 K	10.6 ± 0.2 meV	5.7 ± 0.2 meV
15 K	9.4 ± 0.2 meV	6.0 ± 0.2 meV

Table 8.1: Paramètres de l'excitation de champ cristallin de $CeIn_3$

8.2.2 Etude de l'onde de spin

Un mode dispersif a été observé pour la première fois lors de l'expérience sur MARI, une énergie incidente des neutrons $E_i = 22$ meV ayant alors été utilisée. Ce mode n'a été obtenu que pour les faibles valeurs de Q et sous la température de Néel $T_N = 10.1$ K. Une énergie

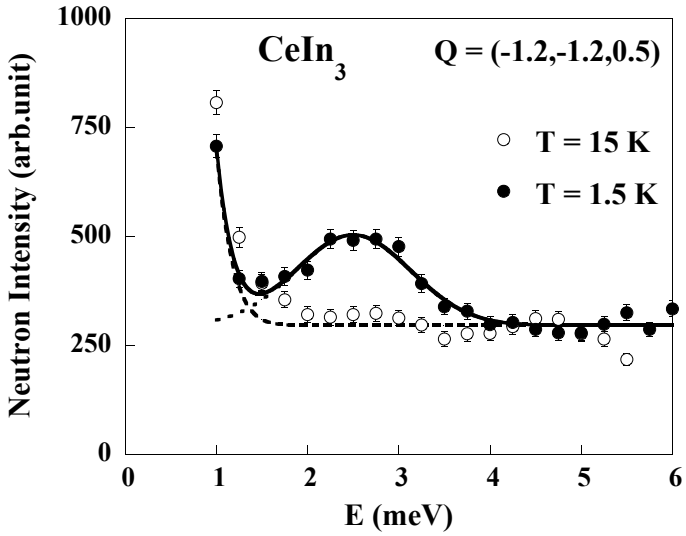

FIG. 8.5 – *Spectres obtenus sur IN22 à T = 1.5 et 15 K pour le transfert de moment* $\mathbf{Q}$ = *(-1.2,-1.2,0.5).*

maximale de l'ordre de 3 meV a été mesurée et l'énergie minimale de cette excitation a été mise en évidence au vecteur d'ordre antiferromagnétique $\mathbf{k} = (1/2,1/2,1/2)$, bien que sa valeur n'ait pu être déterminée à cause du signal incohérent. Il s'agit de l'onde de spin caractérisant la phase ordonnée de $CeIn_3$. Une expérience complémentaire à celle faite sur MARI a ensuite été faite sur le spectromètre trois axes IN22 de l'ILL et a permis d'obtenir précisément la dispersion de l'onde de spin. Lors de cette expérience, des scans en énergie ont été faits pour des transferts d'énergie $E < 6$ meV en différents transferts de moment $\mathbf{Q}$, et aux températures $T = 1.5$ et 15 K situées de part et d'autre de la température de Néel $T_N = 10.1$ K. Sur la Figure 8.5 sont tracés les spectres d'excitations obtenus pour le transfert de moment $\mathbf{Q} = (-1.2,-1.2,0.5)$ à $T = 1.5$ et 15 K. Ce transfert de moment correspond au vecteur d'onde réduit $\mathbf{q} = \mathbf{Q} - \boldsymbol{\tau} - \mathbf{k} = (0.3,0.3,0)$, où $\boldsymbol{\tau} = (-1, -1,1)$ est un vecteur du réseau réciproque et $\mathbf{k} = (-1/2, -1/2, -1/2)$ est un vecteur de propagation magnétique. On voit clairement que l'excitation présente vers 2.5 meV pour $T < T_N$ disparaît pour $T > T_N$. Pour chaque vecteur d'onde $\mathbf{q}$, l'excitation obtenue sous T_N a ensuite été ajustée par une fonction gaussienne. La largeur de l'excitation a une valeur semblable à celle du pic incohérent élastique et semble uniquement due aux effets de résolution. Les excitations d'onde de spin sont donc apparemment bien définies et s'opposent en cela aux excitations de champ cristallin ou aux fluctuations de spin quasiélastiques. La dispersion de l'onde de spin est montrée sur la Figure 8.6 où sont tracées les énergies obtenues pour $\mathbf{q}$ variant selon les trois axes principaux (1,1,1), (1,1,0), et (0,0,1) du cristal.

La dispersion de l'onde de spin a été analysée dans le cadre d'une théorie de champ moyen [Buyers 75, Delacote 81, Effantin 85]. Un tel traitement consiste à d'abord calculer la susceptibilité locale (ou à un site) $\chi_0(\omega)$ pour ensuite obtenir la susceptibilité $\chi(\mathbf{Q},\omega)$ généralisée à

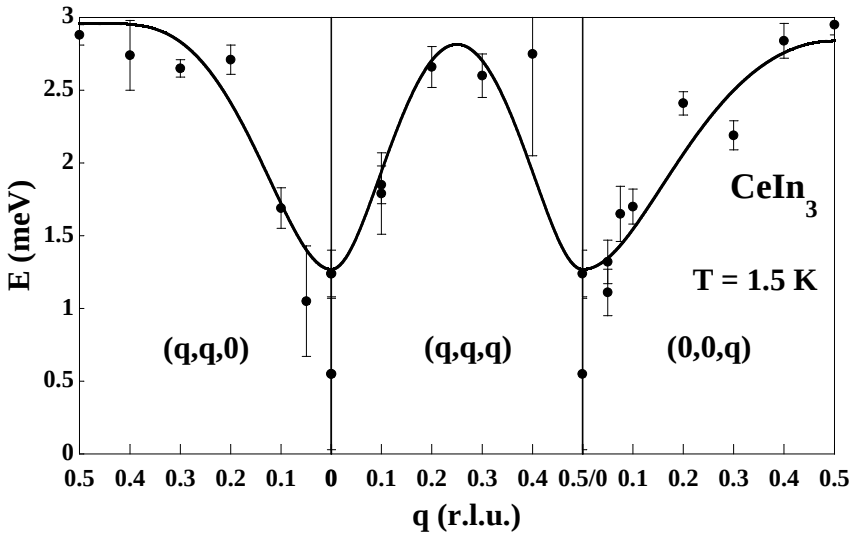

FIG. 8.6 – *Dispersion de l'onde de spin de $CeIn_3$ à $T = 1.5$ K selon les directions principales (1,1,1), (1,1,0) et (0,0,1). La ligne correspond à l'ajustement des points expérimentaux par la formule 8.2.*

tout vecteur $\mathbf{Q}$ en prenant en compte les interactions entre différents sites. Son utilisation est nécessaire parce que l'effet du champ cristallin est ici plus important que celui de l'échange. Ainsi, à partir du Hamiltonien d'échange :

$$H_{ex} = -\sum_{i,j} I_{ij}\mathbf{J}_i\mathbf{J}_j, \tag{8.1}$$

ce traitement permet d'obtenir la relation de dispersion :

$$E(\mathbf{q}) = \{[\Delta - M^2 I(\mathbf{q})][\Delta - M^2 I(\mathbf{q}+\mathbf{k})]\}^{1/2}, \tag{8.2}$$

cette relation étant valable lorsqu'il y a un seul sous-réseau de Bravais. $I(\mathbf{q})$ est ici la transformée de Fourier de l'interaction d'échange I_{ij} entre les moments portés sur les sites i et j. M^2 est l'élément de la matrice de transition entre l'état fondamental $\Gamma_{7,1}$ et le premier état excité $\Gamma_{7,2}$ et vaut $M^2 = |\langle\Gamma_{7,2}|J^\alpha|\Gamma_{7,1}\rangle|^2$ ($\alpha = +$ ou $-$). Δ est l'énergie correspondant à la levée de dégénérescence du doublet Γ_7 en $\Gamma_{7,1}$ et $\Gamma_{7,2}$ du fait du champ moléculaire et de l'anisotropie. En considérant le couplage I_1 entre premiers voisins (selon les axes du type (1,0,0)) et le couplage I_2 entre seconds voisins (selon les axes du type (1,1,0)) (cf. Figure 8.7), on obtient l'interaction d'échange :

$$\begin{aligned} I(\mathbf{q}) &= 2I_1[cos(2\pi q_x) + cos(2\pi q_y) + cos(2\pi q_z)] \\ &+ 2I_2[cos(2\pi(q_x - q_y)) + cos(2\pi(q_y - q_z)) + cos(2\pi(q_z - q_x)) \\ &\quad + cos(2\pi(q_x + q_y)) + cos(2\pi(q_y + q_z)) + cos(2\pi(q_z + q_x))]. \end{aligned} \tag{8.3}$$

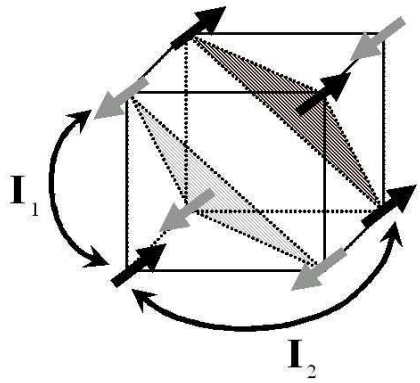

FIG. 8.7 – *Couplages I_1 entre premiers voisins et I_2 entre seconds voisins considérés lors du traitement de l'onde de spin. Une maille élémentaire du réseau cristallin est représentée ici, chaque sommet du cube correspondant à un atome de cérium. Les moments sont ordonnés selon des plans ferromagnétiques de type [1,1,1] et nous supposons dans cette figure qu'ils ont la direction (1,1,1).*

Dans une image à deux sous réseaux constitués de plans ferromagnétiques [1,1,1] où les moments sont de directions opposées, I_1 correspond au couplage antiferromagnétique entre deux moments de deux sous-réseaux différents et I_2 correspond au couplage ferromagnétique entre deux moments appartenant au même sous-réseau. Finalement, en utilisant l'échange donné par la formule 8.3, l'ajustement de la relation de dispersion 8.2 aux points expérimentaux donne :

$$\begin{aligned} M^2 I_1 &= -0.354 \pm 0.040 \ \text{meV}, \\ M^2 I_2 &= 0.028 \pm 0.013 \ \text{meV}, \\ \text{et} \quad \Delta &= 2.812 \pm 0.480 \ \text{meV}. \end{aligned} \tag{8.4}$$

Sur la figure 8.6 est tracée la courbe de dispersion ainsi obtenue. On peut noter que cette courbe est caractérisée par une énergie minimale, ou "gap", qui d'après (8.2) vaut $\delta = E(\mathbf{0}) = 1.3 \pm 0.3$ meV. La valeur du "gap" de l'onde de spin ainsi obtenue sera discutée dans la Section 8.3.2.

8.3 Discussion

8.3.1 Températures de Kondo

Dans la Section 8.2.1, la température de Kondo du système a été fixée à la valeur $T_K \simeq 10$ K. On justifie cette estimation de T_K en s'appuyant sur les résultats d'expériences de résonance quadrupolaire nucléaire et de résistivité. A partir d'expériences de résonance quadrupolaire nucléaire sous pression, Kawasaki et al. définissent une température T^* qu'ils interprètent comme étant égale à la température de Kondo T_K [Kawasaki 01]. Au voisinage de la pression critique du système, T^* augmente fortement avec la pression. Aux basses pressions, ces mesures semblent

indiquer que T^* varie peu, bien que l'anomalie correspondant à T^* soit alors masquée par celle liée à l'établissement de l'ordre antiferromagnétique à T_N. Les mesures de résonance quadrupolaire nucléaire sous pression permettent donc de conclure que la température de Kondo T_K du système est d'environ 10 K à pression nulle. Une autre estimation de T_K peut aussi être faite comme suit. Knebel et al. ont mesuré un maximum de résistivité à la température $T_M \simeq 50$ K [Knebel 01], température qui peut être interprétée comme la température de Kondo "hautes températures" T_K^h du système[1]. On relie T_K^h à la température de Kondo T_K du doublet fondamental de champ cristallin Γ_7 par $T_K^h = \sqrt[3]{T_K(\Delta_{CF}/k_B)^2}$ (cf. Section 1.2.2 et Référence [Hanzawa 85]). Ainsi, sachant que $\Delta_{CF} = 10.6$ meV et que $T_K^h = 50$ K, on estime la température de Kondo à $T_K \simeq 8$ K. Il est donc finalement raisonnable d'approximer la température de Kondo de $CeIn_3$ à pression ambiante par $T_K = 10$ K.

Dans la Section 8.2.1, nous avons utilisé un terme quasiélastique et un terme inélastique Lorentziens pour analyser les excitations magnétiques indépendantes de $\mathbf{Q}$ mesurées à $T = 5$ et 15 K sur MARI. Ces deux contributions sont fortement élargies et se superposent aux basses énergies avec le pic élastique incohérent. Selon la méthode choisie pour ajuster les données expérimentales, des valeurs assez différentes de Δ_{CF}, Γ_{CF}, et Γ_{QE} peuvent être obtenues, comme le montre la forte dispersion des estimations rapportées dans la littérature [Lawrence 82, Murani 93, Gross 80, Lassailly 85]. Dans le travail présenté ici, parce qu'une même méthode a été employée pour analyser les données à $T = 5$ et 15 K, l'augmentation de la position de l'excitation de champ cristallin Δ_{CF}, même si elle est faible, rapportée sous T_N dans la Section 8.2.1 peut donc être considérée comme robuste. Dans le but d'analyser au mieux cette excitation, nous avons choisi de fixer la largeur de la raie quasiélastique, son intensité étant libre. Pour la mesure faite à $T = 5$ K $< T_K$, l'excitation quasiélastique correspond aux fluctuations de spin du niveau Γ_7. La largeur (demi largeur à mi hauteur) Γ_{QE} correspondante est égale à la température de Kondo T_K associée au doublet fondamental. Lors de l'ajustement du spectre obtenu à 5 K par les trois contributions détaillées précédemment, nous avons par conséquent choisi de fixer la largeur de la raie quasiélastique à $\Gamma_{QE} = k_B T_K = 0.86$ meV. La largeur $\Gamma_{CF} = 5.7$ meV ainsi obtenue de l'excitation de champ cristallin est quant à elle beaucoup plus grande que la largeur $\Gamma_{QE} = 0.86$ meV des fluctuations de basses énergies. Aux basses températures, le signal quasiélastique correspond aux fluctuations de spin au sein du doublet fondamental Γ_7 et on peut écrire $\Gamma_{QE} = \Gamma_{\Gamma_7} (= k_B T_K)$. L'excitation de champ cristallin $\Gamma_7 \rightarrow \Gamma_8$ a alors une largeur Γ_{CF} elle aussi due aux fluctuations de spin et qui correspond à la convolution des largeurs Γ_{Γ_7} et Γ_{Γ_8} des niveaux Γ_7 et Γ_8. De même que $\Gamma_{\Gamma_7} = k_B T_K$ est l'énergie caractéristique des fluctuations de spin au sein du niveau de champ cristallin Γ_7, Γ_{Γ_8} peut être considérée comme l' énergie caractéristique des fluctuations de spin au sein du niveau de champ cristallin Γ_8. On peut donc approximer que $\Gamma_{CF} \simeq \Gamma_{\Gamma_7} + \Gamma_{\Gamma_8}$, ce qui revient à estimer la largeur du quadruplet Γ_8 par $\Gamma_{\Gamma_8} \simeq \Gamma_{CF} - \Gamma_{QE} = 4.84$ meV. Les fluctuations de spin associées au premier niveau

1. T_K^h est la température caractéristique des fluctuations de spin du niveau $J = 5/2$ lorsqu'il est dans sa dégénérescence totale $N = 6$, donc quand le champ cristallin n'a plus d'effet sur les niveaux électroniques, cf. Section 1.2.2.

excité, le quadruplet de champ cristallin Γ_8, ont donc une énergie caractéristique environ 5 fois plus grande que celle correspondant au doublet fondamental Γ_7. En ce qui concerne la mesure faite à $T = 15$ K $> T_K$, les fluctuations de spin sont quant à elles gouvernées par des effets thermiques et on a fait l'hypothèse que $\Gamma_{QE} = k_B T = 1.29$ meV (cf. Partie II de ce manuscrit où les variations en température de raies quasiélastiques sont étudiées avec plus de précision). A $T = 15$ K, on obtient finalement une énergie caractéristique $\Gamma_{\Gamma_8} = 4.7$ meV du quadruplet Γ_8 qui est environ 4 fois plus grande que l'énergie caractéristique $\Gamma_{QE} = 1.29$ meV du doublet fondamental Γ_7. Notons finalement qu'il est possible que, du fait de leurs valeurs assez proches, la largeur du champ cristallin $\Gamma_{CF}/k_B \simeq 70$ K soit liée la température de Kondo "hautes températures" $T_K^h \simeq 50$ K, qui caractérise le système lorsqu'il recouvre la dégénérescence totale $N = 6$ du niveau $J = 5/2$.

8.3.2 Anisotropie et gap de l'onde de spin

D'après des mesures de résonance quadrupolaire nucléaire faites par Kohori et al., les moments magnétiques de $CeIn_3$ sont orientés selon la direction [1,1,1] sous T_N [Kohori 00]. Cette direction correspond à l'axe de facile aimantation imposé par le champ cristallin cubique donné dans la formule 7.1, pour lequel $B_4^0 > 0$ correspond à un doublet fondamental Γ_7. Ces mesures indiquent donc que l'anisotropie de la phase ordonnée magnétiquement est gouvernée par le champ cristallin du système. Afin de valider ou non cette image concernant la direction des moments dans $CeIn_3$, nous avons fait une expérience de diffraction des neutrons sous champ magnétique sur le diffractométre D9 de l'ILL. Un cryo-aimant de 6 T a été utilisé et l'expérience a consisté en la mesure à $T = 3$ K de l'intensité de différentes raies magnétiques, dans un premier temps sous un champ magnétique nul et dans un second temps sous un champ $H = 4.8$ T. Cette expérience a été faite dans le but de modifier les populations des domaines S (chaque domaine S correspond à une direction différente mais équivalente des moments magnétiques) en appliquant un champ magnétique, pour ensuite relier les variations d'intensité des pics de diffraction magnétique à la direction des moments dans la phase ordonnée. Trois configurations ont étés mesurées, pour lesquelles le champ était appliqué selon les directions [1,1,1], [1,1,0] et [1,0,0] du cristal. Cette expérience n'a finalement pas permis de conclure totalement sur la direction des moments. En effet, il est difficile d'estimer précisément tous les effets du champ magnétique, ce dernier faisant probablement tourner les moments au sein des domaines et varier les populations des domaines de manière non-contrôlée. Bien que nous n'avons pas pu estimer tous les paramètres de l'action du champ magnétique, cette expérience a juste permis d'éliminer la possibilité d'avoir les moments selon un axe du type [1,0,0].

Alors que les niveaux de champ cristallin sont fortement élargis par l'effet Kondo, l'onde de spin peut être étudiée en considérant un doublet fondamental qui, sous l'action du champ moléculaire et de l'anisotropie se sépare en deux niveaux $\Gamma_{7,1}$ et $\Gamma_{7,2}$. Un "gap" δ est par ailleurs attendu dans le spectre de l'onde de spin d'un système anisotrope, au contraire du cas isotrope où l'énergie des magnons s'annule aux vecteurs d'ordre magnétique. Dans $CeIn_3$, le gap d'aniso-

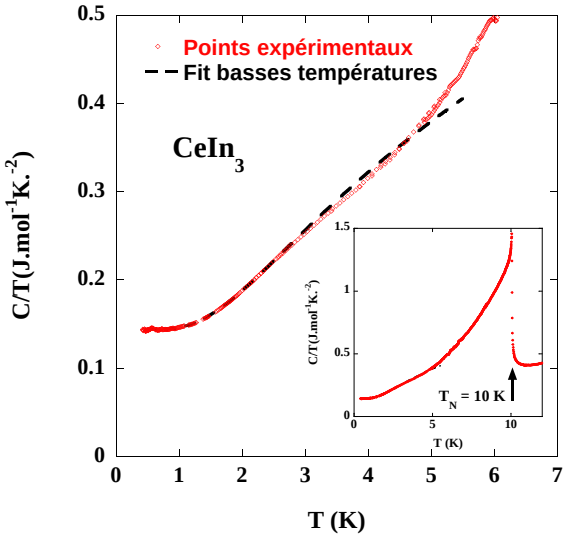

FIG. 8.8 – *Chaleur spécifique de $CeIn_3$. Les tirets correspondent à l'ajustement fait pour $T < 2.5$ K de la contribution de l'onde de spin en utilisant la formule 8.5. L'insert montre le même graphe pour des températures plus grandes : on voit à $T_N \simeq 10$ K l'anomalie correspondant à la la mise en ordre antiferromagnétique.*

tropie provient de l'anisotropie du champ cristallin et correspond à l'énergie minimum de l'onde de spin, cette dernière étant obtenue aux vecteurs d'onde $\mathbf{q} = (0,0,0)$ et $\mathbf{q} = \mathbf{k}$. Cependant, du fait de la présence du pic élastique incohérent et du pic quasiélastique des fluctuations de spin, la détermination de l'énergie caractéristique de l'onde de spin devient très difficile lorsqu'elle s'approche de son minimum. La valeur $\delta = 1.28$ meV du gap qui a été obtenue en ajustant la formule 8.2 à la courbe de dispersion expérimentale doit donc être considérée avec précautions. Une expérience complémentaire a vainement été tentée sur le spectromètre trois axes à neutrons froids IN12 de l'ILL : une plus faible énergie finale des neutrons, fixée à 4.85 meV, a alors été utilisée afin d'avoir une meilleure résolution expérimentale et donc d'accéder à des transferts d'énergies plus faibles. Cependant, à cause de la forte absorption des neutrons par l'indium présent dans $CeIn_3$, aucun signal correspondant à l'onde de spin n'a émergé du bruit de fond.

La chaleur spécifique de $CeIn_3$ a été finalement mesurée afin d'estimer le gap δ de l'onde de spin avec plus de précision. Cette expérience a été faite au Laboratoire de Cryophysique du CEA Grenoble. La mesure de chaleur spécifique a été faite par méthode adiabatique dans un cryostat à ^3He pour des températures entre 400 mK et 5 K. La courbe ainsi obtenue a été complétée aux hautes températures par une mesure complémentaire faite dans un cryostat à ^4He. La courbe C/T en fonction de T est tracée sur la Figure 8.8, l'insert de cette Figure montrant l'anomalie due à la mise en ordre antiferromagnétique du système à $T_N \simeq 10$ K. Pour $T < 1$ K, la chaleur spécifique est linéaire en T et on a un état liquide de Fermi pour lequel $C/T = \gamma \simeq 144$ mJ.mol^{-1}K^{-2}. Cette valeur de γ est par ailleurs légèrement sous-estimée, du

fait de la présence de petites phases d'indium au sein du monocristal de $CeIn_3$ (sa croissance a été faite dans le flux d'indium). La chaleur spécifique a été ajustée pour $T < 2.5$ K en utilisant la formule [Coqblin 77, Bourdarot 94] :

$$\frac{C}{T} = \gamma + \frac{a}{T^{3/2}} e^{-\frac{\delta}{k_B T}} . [\delta^2 + 3\delta(k_B T) + \frac{15}{4}(k_B T)^2], \tag{8.5}$$

obtenue en faisant l'approximation d'une dispersion de l'onde de spin en $E(\mathbf{q}) = \delta + bq^2$, où δ est le "gap" de l'onde de spin et où a et b sont des constantes. Nous obtenons ainsi $\delta = 0.7 \pm 0.1$ meV. Notons que la Formule 8.5 n'est valable que dans la limite $k_B T \ll \delta$: elle a donc été appliquée pour des températures $T < 2.5$ K correspondant à $k_B T < 0.22$ meV, ce qui est effectivement inférieur à $\delta = 0.7 \pm 0.1$ meV. L'analyse de la chaleur spécifique conduit donc à l'estimation du gap de l'onde de spin $\delta = 0.7 \pm 0.1$ meV nettement inférieure à la valeur $\delta = 1.3 \pm 0.3$ meV déduite des expériences de diffusions des neutrons.

8.3.3 Comparaison avec $CePd_2Si_2$

La supraconductivité induite sous pression a été découverte presque simultanément pour les composés à fermions lourds $CeIn_3$ et $CePd_2Si_2$. Dans la Table 8.2 sont récapitulées les caractéristiques principales de ces deux composés, dans le but de les comparer en détail. Tous

	$CeIn_3$	$CePd_2Si_2$
$T_N(K)$	10.1	10
$\mathbf{k}$	(1/2,1/2,1/2)	(1/2,1/2,0)
m_0 (μ_B)	0.50	0.62
Onde de spin (meV)	< 3	< 3
δ (meV)	0.7	0.83
$\theta_P(K)$	-50	-47 *
T_K (K)	10	10 K
$\Delta_{CF}(K)$	123	220 et 280
P_C (kbar)	26.5	28.6
T_C (mK)	200	430
γ ** (mJ.mol^{-1}.K^{-2})	130	250

* : susceptibilité dc mesurée selon l'axe a
**: $\gamma = C/T$ aux basses températures

Table 8.2: Quantités physiques caractéristiques de $CeIn_3$ et $CePd_2Si_2$. Les données sont tirées des références [Mathur 98, Knebel 01, van Dijk 00, Grier 84, Demuer 01, Steeman 90, Grosche 96].

deux sont ordonnés antiferromagnétiquement à pression ambiante et ont un spectre d'excitations semblable : ce dernier est composé du signal quasiélastique des fluctuations de spin de basses énergies, d'un terme inélastique de champ cristallin et de la contribution sous T_N des ondes de spin. Dans les deux cas, les énergies caractéristiques sont très proches et une phase de supraconductivité non-conventionnelle apparaît à une pression similaire. Les différences entre ces deux systèmes peuvent être résumées de la façon suivante. Alors que $CeIn_3$ est cubique, $CePd_2Si_2$ a une structure tétragonale. Du fait de structures cristallines différentes, ces composés ont ainsi des niveaux de champ cristallin différents et différents types d'anisotropie caractérisent leur susceptibilité magnétique. γ est environ deux fois plus grand pour $CePd_2Si_2$ que pour $CeIn_3$, ce qui traduit de plus fortes fluctuations de spin aux basses températures. De plus, T_C est elle aussi deux fois plus grande pour $CePd_2Si_2$ que pour $CeIn_3$. En complément de l'étude du système de structure planaire $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$, une comparaison détaillée des systèmes cubique $CeIn_3$ et tétragonal $CePd_2Si_2$ semble donc être une manière alternative d'étudier le rôle de l'anisotropie lors de l'apparition de supraconductivité non-conventionnelle et, d'une manière plus générale dans les systèmes à électrons fortement corrélés.

Chapitre 9

Etude de $CeIn_{3-x}Sn_x$ en son instabilité magnétique

Ce Chapitre est consacré à l'étude des alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$. La caractérisation aux rayons X, au microscope électronique à balayage et par chaleur spécifique de ces composés sont résumées dans un premier temps. On présente ensuite l'étude par diffusion inélastique des neutrons du composé de concentration critique $x_c = 0.6$.

9.1 Mesures préliminaires

Les alliages $CeIn_{3-x}Sn_x$ ont été synthétisés puis caractérisés au CEA Grenoble par G. Lapertot et K. Mony. Des monocristaux de quelques mm ont été obtenus dans le flux d'indium et d'étain pour différentes concentrations $0 \leq x \leq 3$ [Canfield 92]. Ils ont ensuite été caractérisés par détermination du paramètre de maille a aux rayons X, sur diffractomètre à poudre, et de la concentration x d'étain au microscope électronique à balayage. Les résultats de ce travail sont résumés sur la Figure 9.1, où la variation de a en fonction de x est tracée. Un très bon accord est obtenu entre cette courbe et celle obtenue lors de précédentes études et tracée sur la Figure 7.4. Ainsi, une loi de Vegard où a varie linéairement avec x est obtenue pour $x < 2$, la déviation pour $x > 2$ étant liée à un changement de valence du système. On peut noter que par cette méthode de croissance, un flux de composition initiale $In_{3-x_i}Sn_{x_i}$ conduit à une composition finale $CeIn_{3-x}Sn_x$ du cristal, pour laquelle $x > x_i$ (cf. Insert de la Figure 9.1). Des polycristaux des alliages $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ et $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$ ont aussi été préparés dans un four à induction dans un creuset froid. Leur caractérisation a été faite aux rayons X sur diffractomètre à poudre. Contrairement à la croissance dans le flux, cette méthode permet d'obtenir des alliages dont les proportions atomiques finales correspondent à celles initiales. En contrepartie, elle ne permet pas d'obtenir de monocristaux.

Les chaleurs spécifiques de monocristaux obtenus dans le flux aux concentrations $x = 0$, 0.3, 0.5 et 0.6 ont été mesurées au Laboratoire de Cryophysique du CEA Grenoble. Le dispositif

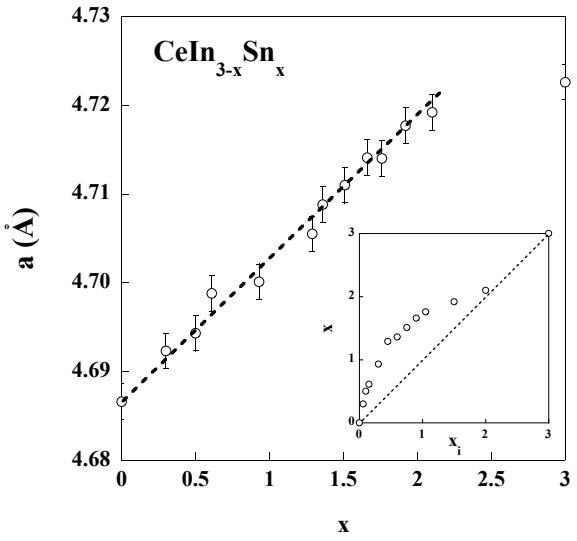

FIG. 9.1 – *Variation du paramètre de maille a du système $CeIn_{3-x}Sn_x$ en fonction de x. La ligne en pointillés correspond au régime linéaire où la loi de Vegard est suivie. En insert est tracée la variation de la composition finale x des alliages en fonction de la composition initiale x_i, pour les cristaux obtenus dans le flux.*

expérimental est le même que celui utilisé pour la mesure présentée dans la Section 8.3.2. Les courbes de C/T en fonction de T, où C est la chaleur spécifique, sont tracées sur la Figure 9.2 et sont en très bon accord avec celles publiées par Pedrazzini et al. [Pedrazzini 04]. En effet, pour le composé de concentration $x = 0.3$, une première et assez large anomalie est obtenue à $T \simeq 4$ K, alors qu'une seconde anomalie, quant à elle beaucoup mieux définie, est obtenue à $T = 2$ K. La première anomalie est associée à la température de Néel $T_N = 4$ K sous laquelle le système s'ordonne magnétiquement. L'origine de la seconde anomalie à $T_1 = 2$ K n'est actuellement pas comprise. Pour la concentration $x = 0.5$, une seule anomalie est obtenue et est associée à la température de Néel $T_N \simeq 1.5$ K. Le composé de concentration $x = 0.6$ n'a pas d'anomalie de chaleur spécifique, un comportement logarithmique de C/T en fonction de T étant obtenu pour $T < 4$ K. Cette divergence logarithmique de la chaleur spécifique, pour laquelle aucune mise en ordre magnétique n'est obtenue (du moins jusqu'à la température minimale accessible de 400 mK) correspond à un comportement non liquide de Fermi et est caractéristique d'un point critique quantique. La deuxième Section de ce Chapitre est consacrée à l'étude par diffusion inélastique des neutrons des fluctuations magnétiques de ce composé. En effet, la dépendance en température des fluctuations magnétiques est probablement à l'origine du comportement non-liquide de Fermi observé en chaleur spécifique.

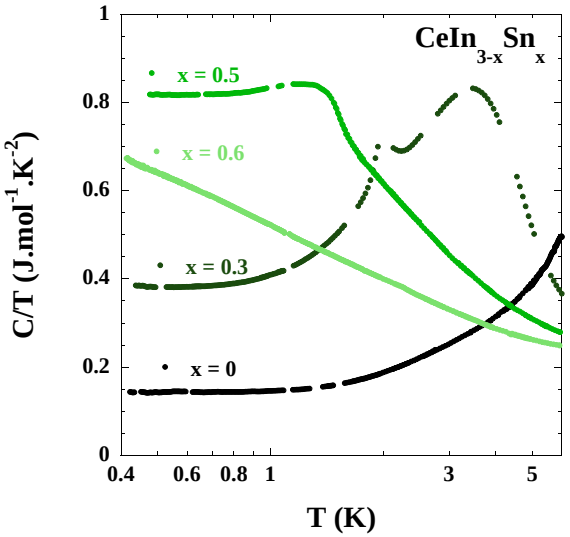

FIG. 9.2 – *Variations avec la température T de C/T, C étant la chaleur spécifique des composés $CeIn_{3-x}Sn_x$ de concentrations x = 0, 0.3, 0.5 et 0.6.*

9.2 Etude de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ par diffusion inélastique des neutrons

Dans cette Section est décrite une étude des excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ par diffusion inélastique des neutrons.

9.2.1 Conditions expérimentales et traitement des données

Cette expérience a été faite sur le spectromètre à temps de vol IN6 de l'ILL. La longueur d'onde des neutrons incidents a été fixée à 5.1 Å, ce qui correspond à une énergie incidente E_i = 3.15 meV. Un cryostat "Orange" (^{4}He pompé) a été utilisé afin de travailler à des températures entre 2 et 300 K. Les polycristaux de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ obtenus dans le four à induction ont été mis en poudre sous atmosphère neutre d'hélium, ces derniers s'oxydant facilement à l'air libre. Une masse m = 4.6 g de poudre a ensuite été placée entre des feuilles d'aluminium. Une épaisseur de poudre d'environ 1 mm a été choisie pour une transmission optimale des neutrons d'énergie incidente E_i = 3 meV et d'énergie finale E_f = 2 meV (cf. Annexe B.1). Le tout a été fixé entre deux cadres d'aluminium puis placé au bout de la canne du cryostat. Des mesures de diffusion inélastique des neutrons ont été faites sur cet ensemble pour 7 températures comprises entre 2.5 et 300 K. Afin de corriger le signal du bruit de fond, un montage à vide constitué uniquement de feuilles d'aluminium a été placé sur le support en aluminium et a été mesuré aux températures T = 2.5, 50 et 150 K. Du fait de la forte absorption des neutrons par l'indium, une plaque de cadmium a elle aussi été placée entre des feuilles d'aluminium et a été mesurée aux températures T = 2.5 et 150 K. En effet, si $t(2\theta,E)$ est la transmission de l'échantillon

pour un angle de diffusion 2θ et un transfert d'énergie E, alors le signal $S(2\theta,E,T)$ corrigé de l'absorption et du bruit de fond vaut :

$$S(2\theta,E,T) = \frac{1}{t(2\theta,E)}[M(2\theta,E,T) - t(2\theta,E,T)V(2\theta,E,T) - \{1 - t(2\theta,E)\}C(2\theta,E,T)], \quad (9.1)$$

où $M(2\theta,E,T)$ est la mesure avec l'échantillon, $V(2\theta,E,T)$ est la mesure à vide et $C(2\theta,E,T)$ est la mesure d'une plaquette de cadmium de même géométrie que l'échantillon. La mesure d'un échantillon de vanadium a aussi été faite pour une température de l'ordre de 100 K afin de corriger l'efficacité des détecteurs. Aux spectres des excitations de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ ainsi corrigés du bruit de fond et de l'absorption, a ensuite été soustraite une partie phononique déduite des spectres des excitations du composé $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$. Pour cela, une masse $m = 4.6$ g de poudre de $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$ a là encore été préparée sous atmosphère neutre d'hélium, puis a été mise entre des feuilles d'aluminium avec une épaisseur d'environ 1 mm. Le tout a été mesuré aux températures $T = 6$, 50 et 150 K, les spectres obtenus étant ensuite corrigés de manière identique à ceux de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$. En supposant que les spectres des phonons sont les mêmes dans les deux composés, on obtient la composante magnétique des excitations de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ à partir de la relation :

$$f_m(2\theta,E)S_m(2\theta,E,T) = S_{CeIn_{2.4}Sn_{0.6}}(2\theta,E,T) - rS_{LaIn_{2.4}Sn_{0.6}}(2\theta,E,T), \quad (9.2)$$

le facteur r correspondant au rapport des facteurs de structure nucléaire des composés $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ et $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$. On fait ici l'approximation que r est constant et vaut $r = 0.7$, cette valeur étant obtenue soit lorsqu'on fait l'approximation des $\mathbf{Q}$ faibles, soit lorsqu'on fait celle des $\mathbf{Q}$ grands. Le signal magnétique $S_m(2\theta,E,T)$ est finalement obtenu après correction du facteur de forme magnétique $f_m(2\theta,E) = f_m(\mathbf{Q})$. En annexes B.2 et C sont donnés plus de détails quant à l'obtention du facteur de transmission $t(2\theta,E)$, du facteur de forme magnétique $f_m(2\theta,E)$ et du ratio r des facteurs de structure nucléaire.

Alors que $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ a été mesuré à 7 températures différentes, les montages à vide, avec cadmium et avec $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$ n'ont été mesurés qu'à deux ou trois températures différentes. Comme à ces trois types de montage ne correspondent que des excitations phononiques, on déduit leurs spectres à une température non mesurée T' de ceux mesurés à une température T en utilisant :

$$X(2\theta,E,T') = X(2\theta,E,T)\frac{1 - exp(-E/k_BT)}{1 - exp(-E/k_BT')}, \quad (9.3)$$

où $X(2\theta,E,T)$ correspond donc au spectre considéré à la température T.

La procédure décrite ci-dessus permet finalement d'obtenir des cartes $S_m(2\theta,E,T)$ des excitations magnétiques aux températures $T = 2.5$, 6, 15, 28, 50, 150 et 300 K. Les transferts d'énergie E mesurés sont compris entre -70 et 2 meV et les angles de diffusion 2θ entre 10 et 115°. Bien que la résolution expérimentale soit d'environ 0.1 meV (largeur à mi hauteur du pic élastique incohérent), la queue du pic élastique limite dans cette étude l'analyse des excitations aux énergies $|E| \geq 1$ meV.

9.2.2 Excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$

Les cartes $S_m(2\theta,E,T)$ des excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ ne montrent pas de signe de dépendance en 2θ, que l'on considère les grands ou les faibles transferts d'énergie mesurés ici, ce qui suggère leur indépendance en **Q**. Les excitations correspondant à de grands transferts d'énergies sont accessibles pour $E < 0$ et, du fait de la condition de balance détaillée $S(2\theta,-E,T) = exp(-E/k_BT)S(2\theta,E,T)$, elles ne peuvent être mesurées que pour k_BT suffisamment grand par rapport à $|E|$. Sur la figure 9.3 sont tracés les spectres obtenus à $T = 150$ K en intégrant le signal sur plusieurs gammes de valeurs de l'angle de diffusion 2θ. On remarque que pour $2\theta < 78°$, le signal est parfaitement isotrope. Par contre, deux anomalies sont présentes entre -15 et -5 meV pour des angles $2\theta > 78°$, ce qui est montré dans l'insert de la figure 9.3. Ces anomalies ne sont pas d'origine magnétique, étant en fait dues à des phonons mal corrigés; elles montrent donc les limites de notre traitement. On ne considérera par la suite que les angles $2\theta < 78°$, pour lesquels les termes phononiques sont correctement corrigés. En ce qui concerne les transferts d'énergie $E > 1$ meV, bien qu'aucune variation de l'intensité $S_m(2\theta,E,T)$ ne soit observée lorsque 2θ varie, de plus grandes barres d'erreurs font qu'il est difficile de conclure quant à une possible dépendance en **Q** du signal, et ce quel que soit la température.

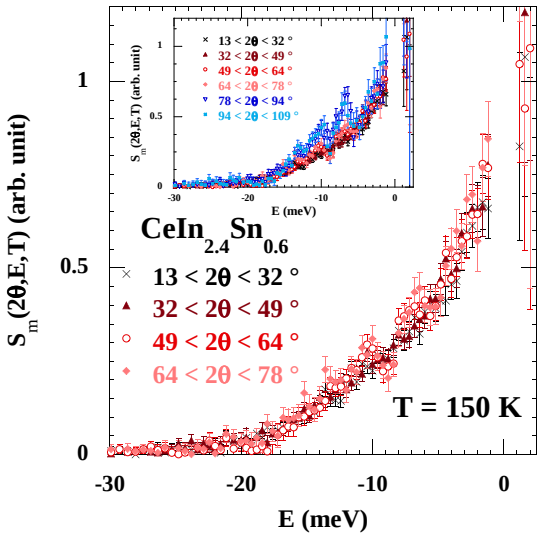

FIG. 9.3 – *Spectres des excitations magnétiques $S_m(2\theta,E,T)$ obtenus à $T = 150$ K par intégration du signal sur plusieurs gammes de valeurs de l'angle de diffusion 2θ, avec $2\,\theta < 78\,°$. En insert est reproduite la même figure où sont ajoutés les spectres obtenus pour $78 < 2\theta < 94\,°$ et $94 < 2\theta < 109\,°$.*

Afin d'étudier les variations en température du spectre des excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$, nous procédons à une intégration de $S_m(2\theta,E,T)$ sur les valeurs $2\theta < 78°$, le signal étant alors indépendant de 2θ. Sur la figure 9.4 sont tracées les courbes $S_m(E,T)$ ainsi obtenues. Les lignes correspondent aux ajustements faits des points expérimentaux. Sachant que $S_m(E,T)$

est lié à la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique $\chi''(E,T)$ par la relation :

$$S_m(E,T) = \frac{1}{\pi}\frac{1}{1-e^{-E/k_BT}}\chi''(E,T), \tag{9.4}$$

ces ajustements sont faits en utilisant une fonction Lorentzienne quasiélastique du type :

$$\chi''(E,T) = \chi'(T)\frac{E/\Gamma(T)}{1+(E/\Gamma(T))^2}. \tag{9.5}$$

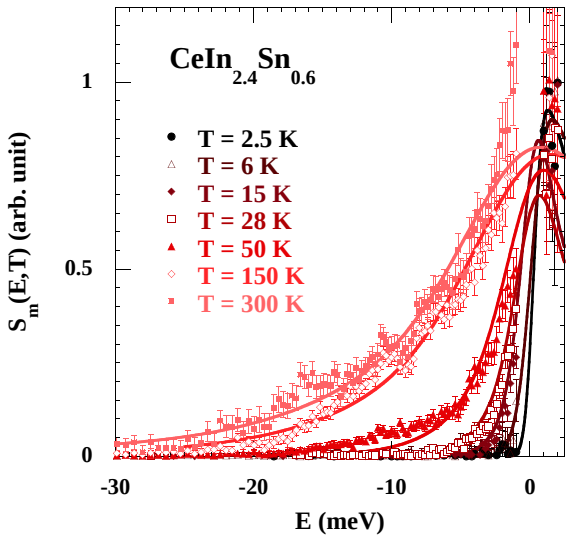

FIG. 9.4 – *Spectres $S_m(E,T)$ des excitations magnétiques de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ obtenus pour des températures $2.5 < T < 300$ K. Les lignes correspondent aux résultats des ajustements des points expérimentaux par la fonction 9.5.*

L'utilisation de l'unique contribution quasiélastique Lorentzienne 9.5 ne permet pas d'ajuster très précisément les données, comme on peut le voir sur la figure 9.4 (dans le paragraphe suivant, l'hypothèse d'une contribution supplémentaire sera discutée). Les variations avec la température du taux de relaxation $\Gamma(T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(T)$ déduits de ces ajustements sont tracées sur la figure 9.5. On note que la forte dispersion de ces paramètres illustre la qualité limitée de l'ajustement des données par la formule 9.5. Bien qu'il y ait de fortes incertitudes sur $\Gamma(T)$ et $\chi'(T)$, il semble que ces deux paramètres saturent pour des températures inférieures à 10 K, ce qui indique que la susceptibilité dynamique $\chi(E,T)$ des fluctuations de spin devient alors indépendante de la température. Il n'est cependant pas possible de conclure définitivement sur ce point, comme cela avait été fait dans la deuxième Partie de ce manuscrit pour le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$, où une meilleure statistique de comptage avait conduit à une plus grande précision sur $\Gamma(T)$ et $\chi'(T)$. Pour la même raison, il est aussi très difficile d'extraire avec précision des lois de puissance de T pour les paramètres $\Gamma(T)$ et

$\chi'(T)$. Malgré tout, la figure 9.5 semble indiquer que $\Gamma(T)$ varie comme $\sqrt{T}$, une augmentation d'une décade étant obtenue pour deux décades en température. Une telle variation de $\Gamma(T)$ a déjà été rapportée pour d'autres systèmes à fermions lourds ou à valence intermédiaire (cf. Partie II de ce manuscrit et Référence [Loidl 88]) et n'est donc pas surprenante pour le composé à fermions lourds $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$. La variation de $\chi'(T)$ est quant à elle en accord avec celle de la courbe de la susceptibilité dc $\chi(T)$ obtenue par Pedrazzini et al. [Pedrazzini 04], comme on peut le voir sur la figure 9.6. En effet, la susceptibilité macroscopique $\chi(T)$ correspond à la susceptibilité microscopique $\chi'(\mathbf{Q},T)$ qui serait obtenue aux neutrons au vecteur d'onde $\mathbf{Q} = 0$. En supposant que les excitations magnétiques sont indépendantes de $\mathbf{Q}$, comme semblent l'indiquer les mesures faites ici, on s'attend donc à avoir une identité entre la susceptibilité statique microscopique $\chi'(T)$ déduite des mesures aux neutrons après une intégration sur 2θ, donc sur $\mathbf{Q}$, et la susceptibilité macroscopique $\chi(T)$, ce qui semble bien être le cas ici.

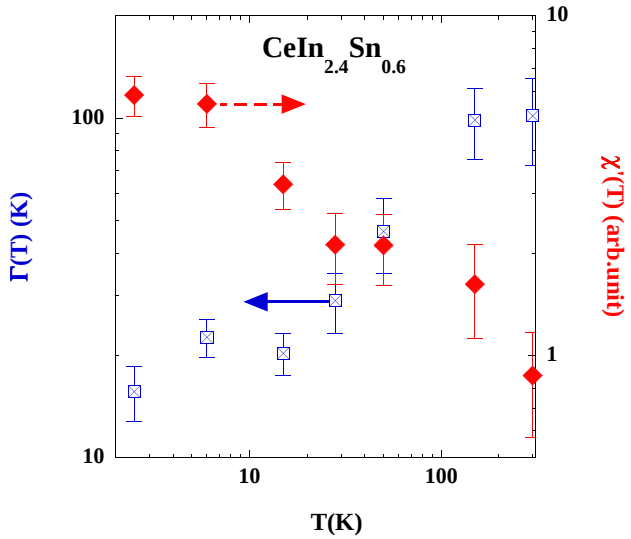

FIG. 9.5 – *Variations avec la température T du taux de relaxation $\Gamma(T)$ et de la susceptibilité statique $\chi'(T)$ déduits des ajustements faits en utilisant la formule 9.5.*

Il est possible qu'un traitement plus juste puisse être fait en utilisant une seconde contribution, en l'occurrence inélastique Lorentzienne, afin de prendre en compte une excitation de champ cristallin. Cela signifierait que les niveaux de champ cristallin sont encore bien définis à la concentration critique x_c du système $CeIn_{3-x}Sn_x$. L'expérience faite ici ne permet pas de conclure quand à la présence ou non d'une excitation de champ cristallin, et donc de la nécessité d'utiliser une seconde contribution inélastique. En effet, cette excitation serait alors similaire à celle étudiée dans le composé $CeIn_3$ (cf. Section 8.2.1), c'est à dire une excitation très élargie aux basses températures et qui ne serait plus définie pour des températures T de l'ordre de Δ_{CF}/k_B, Δ_{CF} étant la position de l'excitation. A cause de la condition de balance détaillée, les mesures obtenues ici pour $-70 < E < 2$ meV ne permettent donc pas d'étudier cette excitation uniquement définie aux basses températures. Seule l'obtention expérimentale de $S_m(E,T)$ pour

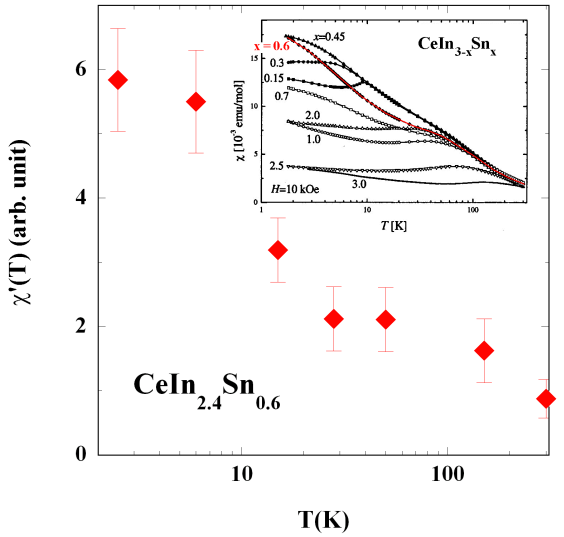

FIG. 9.6 – *Variation avec la température T de la susceptibilité statique $\chi'(T)$ de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ obtenue en utilisant la formule 9.5. En insert sont tracées les susceptibilités dc obtenues par Pedrazzini et al. pour le système $CeIn_{3-x}Sn_x$, la courbe en rouge correspondant à la concentration $x = 0.6$ [Pedrazzini 04].*

des énergies positives allant jusqu'à environ 30 meV peut permettre de conclure si une seconde contribution inélastique est nécessaire pour ajuster les données.

Une expérience antérieure à celle sur IN6 a été faite sur le spectromètre à temps de vol MARI, à ISIS (Didcot, R.U.). Les conditions expérimentales étaient semblables à celles de l'expérience sur le composé $CeIn_3$ (cf. Section 8.1), une centaine de petits monocristaux de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ d'une masse totale d'environ 6 g ayant ici été alignés et collés sur une plaque d'aluminium. Bien que des transferts d'énergie allant jusqu'à 30 meV aient été mesurés, cette expérience n'a pas permis de conclure si une contribution de champ cristallin peut être définie aux basses températures dans $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$. En effet, il n'est pas possible de soustraire de ces mesures les contributions phononiques provenant à la fois de l'échantillon et de l'aluminium environnant. Pour cela, il aurait fallu faire une mesure complémentaire des spectres d'excitation d'un montage équivalent de monocristaux de $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$, ce qui n'a pas été fait. Le seul enseignement de cette expérience est que, s'il y a une excitation de champ cristallin dans $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$, alors elle est moins bien définie, donc plus élargie, que pour $CeIn_3$ où elle était très facilement observée sur MARI (sans avoir besoin de soustraire les contributions phononiques correspondant à une mesure de $LaIn_3$). Cela traduit l'augmentation de l'échelle d'énergie de l'hybridation dans le système $CeIn_{3-x}Sn_x$ lorsque x augmente. Une nouvelle expérience est donc nécessaire, pour laquelle les spectres des excitations magnétiques seraient obtenus de manière similaire à ceux obtenus sur IN6 (mesures de poudres de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ et de $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$, à vide et avec du cadmium) mais pour des transferts d'énergies positifs allant jusqu'à environ 30 meV (spectromètres à

temps de vol thermiques MARI à ISIS ou IN4 à l'ILL). Dans l'hypothèse où les niveaux de champ cristallin seraient encore définis pour le composé $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$, il peut s'avérer être très intéressant de réitérer l'expérience sur spectromètre à temps de vol thermique pour le composé $CeInSn_2$, afin d'étudier si des corrélations existent entre l'apparition de la valence intermédiaire et la disparition du schéma de champ cristallin.

Conclusions

Conclusions

Un des enjeux de l'étude des systèmes à fermions lourds est de comprendre le rôle que jouent les fluctuations magnétiques de basse énergie au voisinage de la transition de phase quantique qui les caractérise. En effet, ces fluctuations sont probablement à l'origine du comportement non-liquide de Fermi qui est rapporté près de l'instabilité magnétique de ces systèmes, mais aussi de la poche de supraconductivité qui s'y développe parfois [Hertz 76, Millis 93, Moriya 00, Monthoux 01]. La thèse présentée ici a été faite dans cette optique et a consisté en l'étude des fluctuations magnétiques des systèmes à fermions lourds $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ et $CeIn_{3-x}Sn_x$ par diffusion inélastique des neutrons.

Une étude très détaillée des fluctuations magnétiques du système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ a été faite pour des concentrations $0 \leqslant x \leqslant 20$ %, des températures $0.04 \leqslant T \leqslant 300$ K et des transferts d'énergie $0.1 \leqslant E \leqslant 9.5$ meV. L'étude s'est concentrée sur la caractérisation des fluctuations magnétiques en deux transferts de moments $\mathbf{Q}_1$ et $\mathbf{Q}_0$ correspondant respectivement à des fluctuations antiferromagnétiques et à des fluctuations non corrélées. Pour le composé de concentration critique $x_c = 7.5$ % et pour le composé paramagnétique de concentration $x = 0$ %, les fluctuations magnétiques sont caractérisées par des comportements très similaires : on peut définir en chaque vecteur $\mathbf{Q}$ et pour chaque concentration x une température caractéristique $T_{\mathbf{Q}}$ séparant deux régimes. Pour $T < T_{\mathbf{Q}}$, on a un régime quantique pour lequel les fluctuations magnétiques de vecteur $\mathbf{Q}$ sont indépendantes de T. Les fluctuations en $\mathbf{Q}_0$ peuvent être considérées comme représentatives de la physique locale du système, leur température caractéristique T_0 correspondant à la température de Kondo T_K du système (sauf pour $x = 0$, cf. Section 5.3). Pour les fluctuations corrélées antiferromagnétiquement, on a alors une température caractéristique T_1 bien plus faible que T_K. La valeur finie de T_1 en $x = x_c$ signifie que les fluctuations magnétiques saturent à la transition de phase quantique, ce qui est en contradiction avec les hypothèses des théories sur les transitions de phases quantique d'un système itinérant [Millis 93, Continentino 01]. Pour $T > T_{\mathbf{Q}}$, les fluctuations magnétiques de vecteur $\mathbf{Q}$ dépendent fortement de T et on est alors dans un régime classique. La susceptibilité dynamique suit alors un comportement en loi d'échelle selon $T\chi''(\mathbf{Q},E,T) = C_{\mathbf{Q}} f[E/(a_{\mathbf{Q}} T^{\beta_{\mathbf{Q}}})]$, avec $\beta_{\mathbf{Q}} < 1$. Les exposants $\beta_1 < 1$ obtenus au vecteur d'onde antiferromagnétique sont différents de la valeur $\beta_1 = 3/2$ prédite dans les théories sur les transitions de phase quantiques d'un système itinérant [Millis 93, Continentino 01]. Cela est probablement dû au fait que ces modèles ne sont valables que pour $T < T_K$, donc qu'ils ne sont pas aptes à décrire les fluctuations

antiferromagnétiques d'un système où les fluctuations locales dépendent de T, comme c'est le cas ici. Alors que la température T_0 qui caractérise les fluctuations locales diminue continûment avec x, la température T_1 qui caractérise les fluctuations antiferromagnétiques sature dans la phase ordonnée $x > x_c = 7.5$ %. De plus, les fluctuations antiferromagnétiques du composé de concentration $x = 20$ % ont une intensité maximale à la température $T_N \simeq 6$ K, ce qui montre que la transition est activée thermiquement et peut être considérée comme classique. Ces résultats indiquent que ce sont bien les fluctuations corrélées antiferromagnétiquement qui gouvernent la transition, bien qu'elles ne divergent pas en x_c lorsque $T \to 0$. Il est désormais nécessaire de poursuivre les mesures entamées sur le composé de concentration $x = 20$ % et de les étendre aux hautes températures, afin de pouvoir les comparer aux mesures des composés de concentrations x_c et $x = 0$. Dans un second temps, l'étude du composé de concentration $x = 30$ % pourrait être faite afin de caractériser les propriétés dynamiques du système lorsque les électrons f sont de plus en plus localisés.

Du fait de la forte absorption des neutrons par l'indium, l'étude par diffusion inélastique des neutrons des excitations magnétiques de $CeIn_{3-x}Sn_x$ est plus difficile à mettre en oeuvre expérimentalement que celle de $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$. L'utilisation d'assemblages de petits monocristaux de $CeIn_3$, dont l'épaisseur a été optimisée, a permis de caractériser l'excitation de champ cristallin : des écartements des niveaux de champ cristallin $\Delta_{CF} = 10.6 \pm 0.2$ meV et $\Delta_{CF} = 9.4 \pm 0.2$ meV ont été obtenus respectivement à $T = 5$ K $< T_N$ et à $T = 15$ K $> T_N$, T_N étant la température de Néel du système. Un élargissement important de ces excitations a été obtenu, correspondant à un amortissement Γ_{CF} de l'ordre de 6 meV. Cette étude a aussi permis de mettre en évidence et de caractériser le spectre des ondes de spin, dont l'énergie maximale est de l'ordre de 3 meV et dont le gap de 0.7 ± 0.1 meV a été estimé d'après une mesure de chaleur spécifique. Le spectre des excitations de $CeIn_3$ illustre la dualité des systèmes à fermions lourds : en effet, le caractère localisé des électrons f se manifeste par des ondes de spin très bien définies alors que leur caractère itinérant se traduit par un fort élargissement de l'excitation du champ cristallin. Une étude d'une poudre du composé $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$, qui correspond à l'instabilité magnétique, a par ailleurs été faite sur le spectromètre à temps de vol IN6. Une première analyse des données en utilisant une seule contribution Lorentzienne quasiélastique a permis de déduire une susceptibilité statique dont l'allure est en bon accord avec la susceptibilité dc mesurée par Pedrazzini et al. [Pedrazzini 04]. On note que les variations du taux de relaxation et de la susceptibilité statique semblent indiquer que les fluctuations saturent pour $T \lesssim 10$ K. Cependant, les spectres obtenus correspondent aux gammes d'énergie $-30 < E < 2$ meV et sont pour l'instant insuffisants à une analyse quantitative des excitations magnétiques. Des mesures à des plus grands transferts d'énergie sont nécessaires afin de pouvoir séparer correctement la contribution de champ cristallin de celle des fluctuations de basse énergie et d'affiner l'analyse ébauchée ici. Il peut ensuite s'avérer intéressant de réitérer de telles mesures pour le composé $CeInSn_2$, où le passage du régime Kondo à un régime de valence intermédiaire devrait s'accompagner de la disparition des excitations de champ cristallin, du fait d'un élargissement important des excitations dû à une forte hybridation.

Annexes

Annexe A

Obtention de lois d'échelles artificielles de la susceptibilité dynamique

Nous avons vu dans la Section 6.1.2.2 que selon la méthode choisie, la recherche d'une loi d'échelle de la forme :

$$T^{\alpha}\chi''(E,T) = g\left(\frac{E}{T^{\beta}}\right) \tag{A.1}$$

peut conduire à des résultats très variables. Dans les Chapitres 4 et 5, une étude précise de la variation avec T des fluctuations de spin dans le système $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ a permis d'établir avec précision la gamme des températures où la loi d'échelle a lieu ainsi que les exposants α et β qui la caractérisent, ces derniers correspondant aux exposants des lois de puissance de T de la susceptibilité statique et du taux de relaxation. Dans la littérature, une telle étude préalable n'a pas toujours été faite et plusieurs lois d'échelles ont été obtenues par la seule méthode suivante : en fixant $\beta = 1$, α est choisi de telle manière que le recouvrement des différents spectres soit maximal lorsqu'on trace $T^{\alpha}\chi''(E,T)$ en fonction de E/T^{β}. Cependant, pour chaque valeur de β il est possible d'obtenir une valeur optimale de l'exposant α pour que les données se regroupent en une unique courbe, la loi ainsi obtenue étant parfois limitée à certaines gammes de températures et d'énergies. On montre ici en quoi une telle méthode peut conduire à des résultats erronés et à des contradictions avec les propriétés du système.

Pour illustrer ce problème, nous utilisons l'exemple du composé $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ pour lequel la caractérisation très précise des fluctuations de spin antiferromagnétiques a été faite dans la Section 4.2.2.2. Un signal intense et piqué aux basses énergies a permis d'obtenir avec une grande précision une loi d'échelle de la forme (A.1) avec les exposants $\alpha = 1$ et $\beta = 0.8$. Cette loi d'échelle n'est valable que pour $T > T_1 \simeq 2.5$ K, la température ne gouvernant pas le système dans le régime quantique $T < T_1$ où les fluctuations saturent. A partir du jeu de données correspondant aux fluctuations antiferromagnétiques de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, nous allons montrer que, à la manière de la loi d'échelle obtenue dans la Section 4.2.2.2 et tracée dans la

Figure 4.7, il est possible d'obtenir un regroupement artificiel des points expérimentaux en une unique courbe lorsque β est fixé de manière arbitraire. Dans ce cas, cette courbe résulte d'une simple construction géométrique et non de la physique intrinsèque au problème.

Sur la Figure A.1 sont montrées les courbes obtenues pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ lorsqu'on trace $T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ en fonction de E/T^{β}, β étant fixé et α étant choisi pour avoir un regroupement optimal des points en une même courbe. On voit que lorsque $\beta = 1$, le meilleur ajustement des points sur une unique courbe est obtenu pour l'exposant $\alpha = 1$, ce comportement étant suivi pour T allant de 80 K jusqu'aux plus faibles températures accessibles (cf. Figure A.1 a)). Pour $\beta = 1.5$, on obtient l'exposant optimal $\alpha = 1.5$ et les points se regroupent sur une même courbe pour T allant de 16 K jusqu'aux plus basses températures, alors qu'ils se dispersent fortement pour $T \geq 25$ K (cf. Figure A.1 b)). Sachant que les fluctuations antiferromagnétiques de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$ saturent pour $T < T_1 \simeq 2.5$ K, il n'est pas possible qu'une loi d'échelle en E/T^{β} caractérise la susceptibilité dynamique d'un tel régime. Les regroupements des points en une unique courbe aux basses températures des Figures A.1 a) et b) sont en fait artificiels. En effet, il a été montré dans la Section 4.2.2.2 que pour $T < T_1$, la susceptibilité dynamique $\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ est indépendante de T et vaut :

$$\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) \quad = \quad \chi'(\mathbf{Q}_1,0)\frac{E/\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)}{1+(E/\Gamma(\mathbf{Q}_1,0))^2}. \tag{A.2}$$

Comme $\Gamma(\mathbf{Q}_1,0) \simeq k_B T_1$ est faible, les points mesurés pour $T < T_1$ sont tels qu'on peut faire

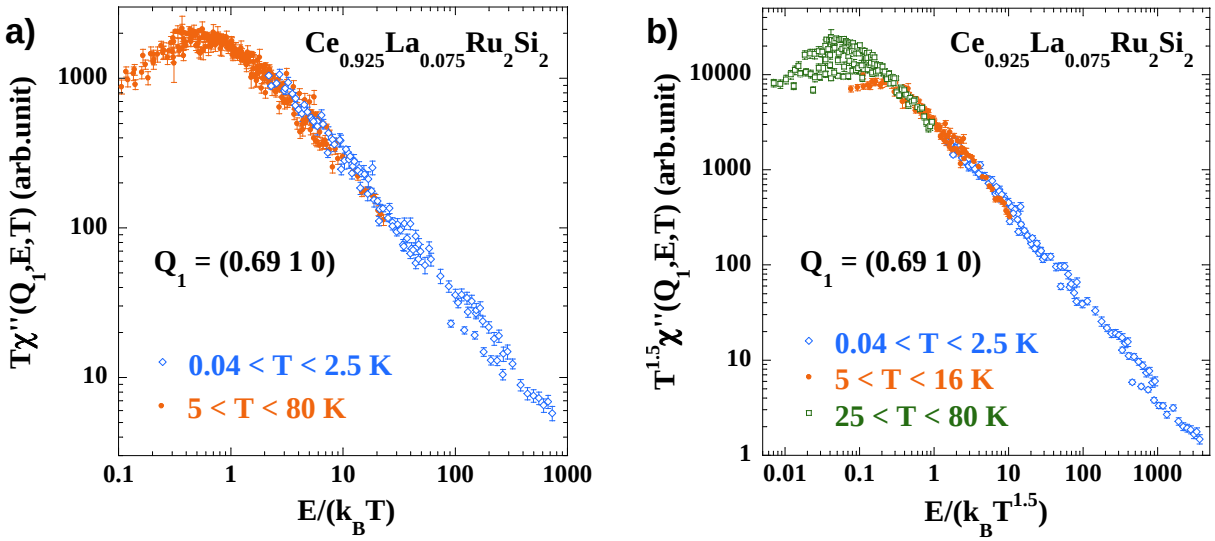

FIG. A.1 – *Variation de $T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1E,T)$ en fonction de E/T^{β} pour $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$: les exposants β ont été fixés a) à 1 et b) à 1.5 et les exposants a) $\alpha = 1$ et b) $\alpha = 1.5$ ont été choisis de manière à ce que les points s'ajustent sur une même courbe de manière optimale.*

l'approximation $E \gg \Gamma(\mathbf{Q}_1,0)$, ce qui donne :

$$\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) \;=\; \chi'(\mathbf{Q}_1,0)\left(\frac{E}{\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)}\right)^{-1}, \tag{A.3}$$

et on peut alors exprimer la susceptibilité $\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ selon :

$$T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) \sim \left(\frac{E}{T^{\alpha}}\right)^{-1}. \tag{A.4}$$

Dans le cas de spectres quasiélastiques Lorentziens, on trouve ainsi que si on trace $T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ en fonction de E/T^{β}, un regroupement optimal des points mesurés pour $T < T_1$ sur une même courbe sera obtenu pour des valeurs de α et de β égales, ce qui est effectivement le cas des deux graphes de la Figure A.1.

Pour des spectres non Lorentziens, on peut obtenir de la même manière des exposants α et β de valeurs différentes pour lesquels les points expérimentaux se regroupent en une unique courbe lors d'un tracé de $T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T)$ en fonction de E/T^{β}. En effet, si les spectres d'excitations sont tels qu'au lieu de (A.3), pour $E \gg \Gamma(\mathbf{Q}_1,0)$ on ait :

$$\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) \;=\; \chi'(\mathbf{Q}_1,0)\left(\frac{E}{\Gamma(\mathbf{Q}_1,0)}\right)^{-\gamma}, \tag{A.5}$$

alors on obtient :

$$T^{\alpha}\chi''(\mathbf{Q}_1,E,T) \sim \left(\frac{E}{T^{\alpha/\gamma}}\right)^{-\gamma}. \tag{A.6}$$

En fixant β, on trouve alors l'exposant $\alpha = \beta.\gamma$ caractérisant un effondrement optimal des points expérimentaux des basses températures en une même courbe.

Concernant les hautes températures, la loi obtenue avec $\alpha = 1$ et $\beta = 1$ est bien suivie sur la Figure A.1 a) car ses exposants sont très proches des exposants réels $\alpha = 1$ et $\beta = 0.8$ déduits de l'analyse de la Section 4.2.2.2. Par contre, lorsque $\alpha = 1.6$ et $\beta = 1.5$, les exposants sont assez différents de ceux de la vraie loi d'échelle et seuls les points des températures $T \leq 16$ K s'ajustent sur une même courbe, comme on peut le voir sur la Figure A.1 b).

Une simple transformation géométrique permet donc de créer l'illusion d'une loi d'échelle en E/T^{β} dans un régime de basses températures où T ne joue aucun rôle, donc où il n'y a aucune loi en E/T^{β}. La mise en évidence d'un comportement en loi d'échelle de la susceptibilité dynamique selon $T^{\alpha}\chi''(E,T) = g[E/(T^{\beta})]$ ne peut rigoureusement être faite qu'en s'appuyant sur une étude précise des variations avec T de la susceptibilité dynamique et des paramètres qui la caractérisent, comme il a été fait dans les Chapitres 4 et 5. Lorsque les exposants caractéristiques α et β d'une telle loi sont déterminés par la seule méthode graphique où on fixe β

et où on cherche une valeur optimale de α, il est possible d'aboutir à des conclusions erronées. Dans le cas de $Ce_{0.925}La_{0.075}Ru_2Si_2$, le graphe de la Figure A.1 a) pourrait ainsi être interprété comme synonyme de fluctuations qui divergent pour $T \rightarrow 0$, ce qui est faux au regard des résultats de la Section 4.2.2.2. Quant au tracé de la Figure A.1 b), il pourrait être abusivement interprété comme une vérification des théories sur les transitions de phase quantique d'un système itinérant [Millis 93, Moriya 95, Continentino 01] : en effet, i) les exposants $\alpha = 3/2$ et $\beta = 3/2$ correspondent exactement aux prévisions théoriques pour des fluctuations 3D antiferromagnétiques, ii) la loi semble suivie jusqu'à $T \rightarrow 0$ et iii) elle n'est plus vérifiée pour des températures supérieures à la température de Kondo. Le fait qu'on sache que dans ce cas de telles conclusions sont fausses illustre parfaitement les dangers d'une seule détermination graphique des lois d'échelles de la susceptibilité dynamique en $T^{\alpha}\chi''(E,T) = g[E/(T^{\beta})]$.

Annexe B

Absorption des neutrons

B.1 Epaisseur optimale de diffusion des neutrons

Considérons un échantillon parallélépipèdique d'épaisseur e selon x et de taille infinie selon y et z. Le facteur de transmission des neutrons de cet échantillon est donné par l'intégrale :

$$t_{i\to f}(e) = \frac{1}{e}\int_0^e \exp\left(-\mu_i \frac{x}{\cos(\varphi_i)} - \mu_f \frac{e-x}{\cos(\varphi_f)}\right) dx, \tag{B.1}$$

où x correspond au chemin parcouru par les neutrons avant de diffuser sur l'échantillon et où φ_i et φ_f sont les angles respectifs entre la normale de l'échantillon et les directions incidente et finale des neutrons (cf. Figure B.1). Les paramètres μ_i et μ_f sont définis par :

$$\mu_i = n\sigma_i \ \text{ et } \ \mu_f = n\sigma_f, \tag{B.2}$$

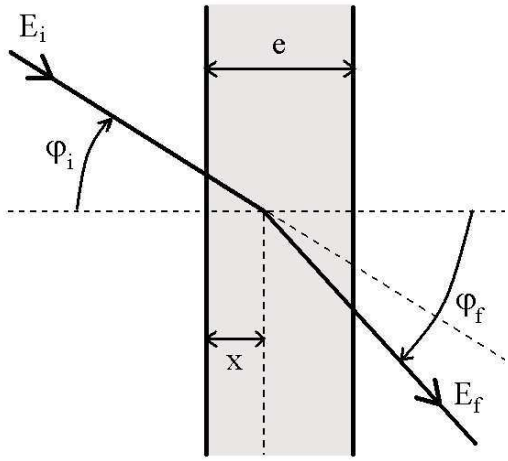

Fig. B.1 – *Diffusion des neutrons en l'abscisse x d'une plaque d'épaisseur e. Les neutrons incidents ont une énergie E_i et un angle φ_i avec la normale de la plaque et les neutrons finaux ont une énergie E_f et un angle φ_f avec la normale de la plaque.*

où n est la densité d'atomes absorbants et σ_i et σ_f sont les sections efficaces d'absorption des neutrons incidents et finaux, respectivement. Avec

$$\mu'_i = \frac{\mu_i}{\cos(\varphi_i)} \text{ et } \mu'_\mathrm{f} = \frac{\mu_\mathrm{f}}{\cos(\varphi_\mathrm{f})}, \tag{B.3}$$

on obtient :

$$t_{i\to f}(e) = \frac{\exp(-\mu'_i e) - \exp(-\mu'_f e)}{\mu'_f e - \mu'_i e}. \tag{B.4}$$

L'épaisseur optimale de diffusion e_{opt} est définie lorsque l'intensité de diffusion $I_{diff} \propto t_{i\to f}(e)V(e)$ est maximale, $V(e)$ étant le volume de l'échantillon. Sachant que $V(e) \propto e$, e_{opt} est donc obtenue lorsque la dérivée de $t_{i\to f}(e)e$ par rapport à e s'annule, soit :

$$\frac{d(t_{i\to f}(e)e)}{de} = 0, \tag{B.5}$$

ce qui conduit à :

$$e_{opt} = \frac{\ln(\mu'_i) - \ln(\mu'_f)}{\mu'_i - \mu'_f}. \tag{B.6}$$

Dans $CeIn_{3-x}Sn_x$, on ne considère que l'indium pour calculer la transmission, du fait de sa forte absorption des neutrons. A partir de la section efficace d'absorption des neutrons d'énergie E, qui peut s'exprimer comme [Hughes 55] :

$$\sigma(E) = 550\sqrt{3/E} \text{ barn}, \tag{B.7}$$

où 1 barn = 10^{-24} cm^2 et où E est en meV, et de la densité d'atomes d'indium $n_{In} = (3-x)/4.7\ 10^{-8} = 0.0291\ 10^{24}$ cm^{-3}, on calcule $\mu(E) = n_{In}\sigma(E)$, ce qui permet ensuite d'obtenir e_{opt} pour différentes valeurs de E_i et E_f. Dans la Table B.1 sont données les valeurs de e_{opt} ainsi obtenues pour les configurations des expériences rapportées dans la troisième Partie de ce manuscrit.

Composé	E_i	E_f	e_{opt}
$CeIn_3$	30 meV	20 meV	2 mm
$CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$	3 meV	2 meV	0.7 mm

Table B.1: Valeurs de e_{opt} calculées pour trois jeux de valeurs de E_i et E_f, pour les concentrations en étain $x = 0$ et $x = 0.6$ de $CeIn_{3-x}Sn_x$. La formule B.6 a été utilisée avec $\varphi_i = \varphi_f = 0$.

B.2 Correction d'absorption

Lors de l'expérience de diffusion inélastique des neutrons faite en utilisant le spectromètre à temps de vol IN6, une épaisseur e d'environ 1 mm de poudre de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ a été placée entre des feuilles d'aluminium (cf. Section 9.2). Cet échantillon parallélépipèdique peut être considéré comme une plaque d'épaisseur e selon x et de taille infinie selon y et z. L'angle entre le faisceau incident et la normale (selon x) à l'échantillon valait alors $\varphi_i = 50°$. Sachant que l'angle diffusion des neutrons est égal à $2\theta = \varphi_f - \varphi_i$ et que l'énergie des neutrons incidents vaut $E_i = 3.15$ meV, on peut donc calculer le facteur de transmission $t(2\theta,E)$ de cette plaque en utilisant les Formules B.2, B.3, B.4 et B.7. Sur la figure B.2 est tracée la carte du facteur de transmission $t(2\theta,E)$ correspondant à l'expérience faite sur IN6. Les corrections d'absorption et de bruit de fond décrites dans la Section 9.2.1 ont été effectués à partir de cette fonction de transmission $t(2\theta,E)$.

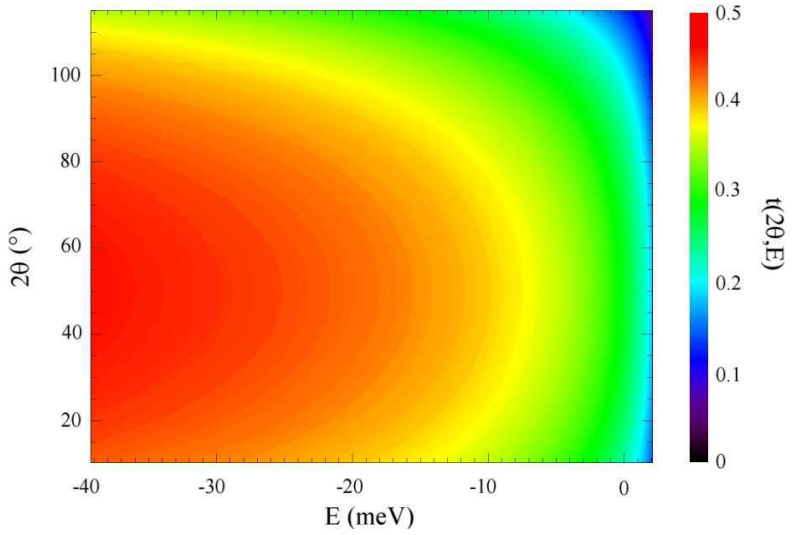

FIG. B.2 – *Facteur de transmission $t(2\theta,E)$ calculé pour une plaque de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$, d'épaisseur $e = 1$ mm et faisant un angle $\varphi_i = 50°$ avec le faisceau des neutrons incidents.*

Annexe C

Facteur de forme magnétique et facteur de structure nucléaire

Dans cette Annexe, on détaille comment sont obtenus les facteurs de forme magnétique et nucléaire utilisés lors de l'analyse des données décrite dans la Section 9.2.1, ces données correspondant à une mesure faite sur $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ en utilisant le spectromètre à temps de vol IN6.

C.1 Facteur de forme magnétique

Le facteur de forme magnétique du système $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ peut être approximé par celui de l'ion Ce^{3+}. Ainsi, on peut l'écrire sous la forme [Lisher 71] :

$$f_m(x) = A\exp(-ax^2) + B\exp(-bx^2) + C, \tag{C.1}$$

$$\text{avec } \; x = Q/4\pi. \tag{C.2}$$

Les coefficients de cette fonction valent $A = 0.2291$, $B = 0.7897$, $C = -0.0191$, $a = 18.18$ et $b = -5.807$. D'après les lois de conservation des moments et de l'énergie :

$$\begin{aligned} \mathbf{Q} &= \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i, \\ E &= E_f - E_i, \end{aligned} \tag{C.3}$$

où $\mathbf{k}_i$ et $\mathbf{k}_f$ sont les moments initiaux et finaux des neutrons, et où E_i et E_f sont les énergies initiales et finales des neutrons. Sachant que :

$$E_i = \frac{(\hbar k_i)^2}{2m_N} \;\text{ et }\; E_f = \frac{(\hbar k_f)^2}{2m_N}, \tag{C.4}$$

où m_N est la masse d'un neutron, et que l'angle de diffusion des neutrons est défini par $2\theta = (\mathbf{k}_f,\mathbf{k}_i)$, on obtient donc :

$$Q = \sqrt{\frac{2m_N}{\hbar^2}\left[2E_i - E - 2\cos(2\theta)\sqrt{E_i(E_i - E)}\,\right]}. \tag{C.5}$$

Les variations du facteur de forme magnétique $f_m(2\theta,E)$ déduites des Formules C.1, C.2 et C.5 ont été calculées et utilisées dans l'analyse des données décrite dans la Section 9.2.1. La Figure C.1 montre les variations de $f_m(2\theta,E)$ calculées pour cette expérience où l'énergie initiale des neutrons vaut $E_i = 3.15$ meV.

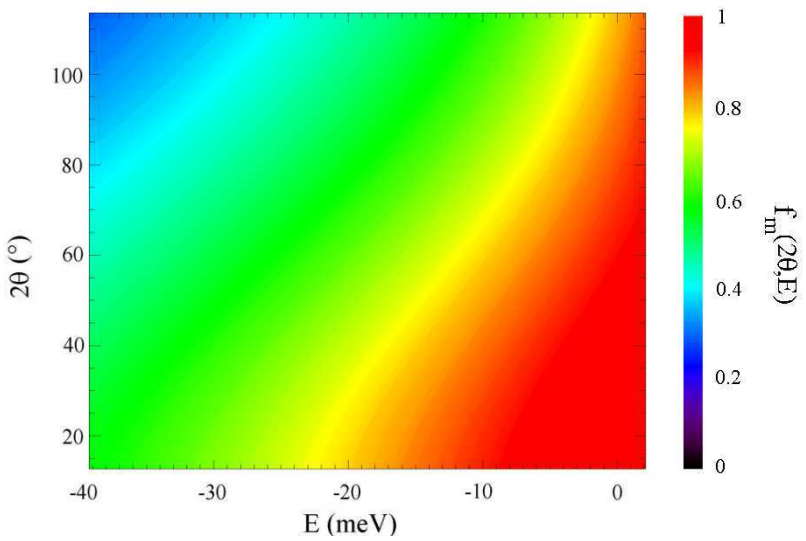

FIG. C.1 – *Facteur de forme magnétique $f_m(2\theta,E)$ calculé pour l'expérience faite sur IN6 sur le composé $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$.*

C.2 Facteur de structure nucléaire

Dans la Section 9.2, le rapport r des facteurs de structure nucléaire des composés $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ et $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$ est utilisé pour soustraire correctement le signal non magnétique des spectres des excitations de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$. Pour le calcul de ce rapport, nous nous inspirons de la méthode utilisée par Lawrence et Shapiro pour traiter les spectres des excitations de $CeIn_3$ [Lawrence 80]. Comme eux, que l'on soit dans la limite des grandes ou des faibles valeurs de Q, nous obtenons une même valeur du rapport r.

En effet, en utilisant les valeurs des longueurs de diffusion b et des masses molaires M des éléments Ce, La, In et Sn donnés dans la Table C.1 dans la limite des Q grands (approximation

Elément	b (10^{-12} cm)	M (g.mol.$^{-1}$)
Ce	0.484	140.115
La	0.824	139.905
In	0.4065	114.82
Sn	0.6225	118.71

Table C.1: Longueurs de diffusion b et masses molaires M des éléments Ce, La, In et Sn.

incohérente), nous obtenons le rapport :

$$r_1 = \frac{\frac{b_{Ce}^2}{M_{Ce}} + 2.4\frac{b_{In}^2}{M_{In}} + 0.6\frac{b_{Sn}^2}{M_{Sn}}}{\frac{b_{La}^2}{M_{La}} + 2.4\frac{b_{In}^2}{M_{In}} + 0.6\frac{b_{Sn}^2}{M_{Sn}}} = 0.69, \tag{C.6}$$

alors que dans celle des **Q** faibles on a :

$$r_2 = \frac{\left(\frac{b_{Ce}}{\sqrt{M_{Ce}}} + 2.4\frac{b_{In}}{\sqrt{M_{In}}} + 0.6\frac{b_{Sn}}{\sqrt{M_{Sn}}}\right)^2}{\left(\frac{b_{La}}{\sqrt{M_{La}}} + 2.4\frac{b_{In}}{\sqrt{M_{In}}} + 0.6\frac{b_{Sn}}{\sqrt{M_{Sn}}}\right)^2} = 0.73. \tag{C.7}$$

La valeur du rapport r des facteurs de forme nucléaires de $CeIn_{2.4}Sn_{0.6}$ et $LaIn_{2.4}Sn_{0.6}$ peut donc raisonnablement être fixée à la valeur $r = 0.7$.

Bibliographie

Bibliographie

[Adroja 04] D.T. Adroja and B.D. Rainford, communication privée.

[Amato 85] A. Amato, D. Jaccard, E. Walker, and J. Flouquet, Solid State Commun. **55**, 1131 (1985).

[Amato 89] A Amato, D. Jaccard, J. Sierro, P. Haen, P. Lejay, and J. Flouquet, J. Low Temp. Phys. **77**, 195 (1989).

[Amato 94] A. Amato, R. Feyerherm, F.N. Gygax, A. Schenck, J. Flouquet, and P. Lejay, Phys. Rev. B **50**, 619 (1994).

[Andrei 83] N. Andrei, K. Furuya, and H. Lowenstein, Rev. Mod. Phys. **55**, 331 (1983).

[Aronson 95] M.C. Aronson, R. Osborn, R.A. Robinson, J.W. Lynn, R. Chau, C.L. Seaman, and M.B. Maple, Phys. Rev. Lett. **75**, 725 (1995).

[Bao 03] W. Bao, Y. Chen, Y. Qiu, and J.L. Sarrao, Phys. Rev. Lett. **91**, 127005 (2003).

[Benoit 80] B. Benoit, J.X. Boucherle, P. Convert, J. Flouquet, J. Palleau and J. Schweizer, Solid State Comm. **34**, 293 (1980).

[Besnus 85] M.J. Besnus, J.P. Kappler, P. Lehmann, and A. Meyer, Solid State Commun. **55**, 779 (1985).

[Besnus 87] M.J. Besnus, P. Lehmann, and A. Meyer, J. Magn. Magn. Mater. **63&64**, 323 (1987).

[Bickers 85] N.E. Bickers, D.L. Cox, and J.W. Wilkins, Phys. Rev. Lett. **54**, 230 (1985).

[Bickers 87a] N.E. Bickers, Rev. Mod. Phys. **59**, 845 (1987).

[Bickers 87b] N.E. Bickers, D.L. Cox, and J.W. Wilkins, Phys. Rev. B **36**, 2036 (1987).

[Boucherle 83] J.X. Boucherle, J. Flouquet, Y. Lassailly, J. Palleau, and J. Schweizer, J. Magn. Magn. Mat. **31-34** 409 (1983).

[Boucherle 01] J.-X. Boucherle, F. Givord, S. Raymond, J. Schweizer, E. Lelièvre-Berna, P. Lejay, and G. Fillion, J. Phys.: Condens. Matter **13**, 10901 (2001).

[Bourdarot 94] F. Bourdarot, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1994.

[Buschow 69] K.H.J. Buschow, H.W. De Wijn and A.M. Van Diepen, J. Chem. Phys. **50**, 137 (1969).

[Buyers 75] W.J.L. Buyers, T.M. Holden, A. and Perreault, Phys. Rev. B **11**, 266 (1975).

[Canfield 92] P.C. Canfield and Z. Fisk, Philos. Mag. B **65**, 1117 (1992).

[Coleman 02] P. Coleman, and C. Pépin, Physica B **312-313**, 383 (2002).

[Continentino 01] M.A. Continentino, *Quantum Scaling in Many Body Systems* (World Scientific, Singapore, 2001).

[Coqblin 77] B. Coqblin, *The Electronic Structure of Rare Earth Metals and Alloys: the Magnetic Heavy Rare Earths* (Academic Press, London, 1977).

[Delacote 81] Delacote, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1981.

[Demuer 01] A. Demuer, D. Jaccard, I. Sheikin, S. Raymond, B. Salce, J. Thomasson, D. Braithwate and J. Flouquet, J. Phys. Condens. Matter **13**, 9335 (2001).

[Doniach 77] S. Doniach, Physica B **91**, 231 (1977).

[Effantin 85] J.M. Effantin, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1985.

[Fischer 87] G. Fischer and A. Herr, Sol. Stat. Sol. (b), **141**, 589 (1987).

[Fisher 91] R.A. Fisher, C. Marcenat, N.E. Philips, P. Haen, F. Lapierre, P. Lejay, J. Flouquet, and J. Voiron, J. Low. Temp. Phys. **84**, 49 (1991).

[Flouquet 95] J. Flouquet, S. Kambe, L.P. Regnault, P. Haen, J.P. Brison, F. Lapierre, and P. Lejay, Physica B **215**, 77 (1995).

[Flouquet 02] J. Flouquet, P. Haen, S. Raymond, D. Aoki, and G. Knebel, Physica B **319**, 251 (2002).

[Flouquet 04] J. Flouquet, Y. Haga, P. Haen, D. Braithwaite, G. Knebel, S. Raymond, and S. Kambe, J. Magn. Magn. Mat. **272-276**, 27 (2004).

[Grier 84] B.H. Grier, L.M. Lawrence, V. Murgai, and R.D. Parks, Phys. Rev. B **29**, 2664 (1984).

[Grosche 96] F.M. Grosche, F.R. Julian, N.D. Mathur, and G.G. Lonzarich, Physica B **223-224**, 50 (1996).

[Gross 80] W. Groß K. Knorr, A.P. Murani, and K.H.J. Buschow, Z. Phys. B **37**, 123 (1980).

[Haen 87] P. Haen, J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay, and G. Remenyi, J. Low. Temp. Phys.**67**, 391 (1987).

[Haen 88] P. Haen, J.P. Kappler, F. Lapierre, P. Lehmann, P. Lejay, J. Voiron, and A. Meyer, J. Phys. (Paris) **49**, C8-757 (1988).

[Haen 92] P. Haen, F. Lapierre, P. Lejay, and J. Voiron, J. Magn. Magn. Mater. **116**, 108 (1992).

[Haen 02] P. Haen and T. Fukuhara, Physica B **312-313**, 437 (2002).

[Hanzawa 85] K. Hanzawa, K.Yamada, and K. Yosida, J. Magn. Magn. Mat. **47-48**, 357 (1985).

[Hertz 76] J.A. Hertz, Phys. Rev. B **14**, 1165 (1976).

[Hewson 93] A.C. Hewson, *The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Cambridge University Press, Cambridge, 1993).

[Hughes 55] D.J. Hughes and J.A. Harvey, *Neutron Cross Sections* (Mc Graw-Hill Book Company, New York, 1955).

[Jacoud 91] J.L. Jacoud, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1991.

[Jacoud 92] J.L. Jacoud, L.P. Regnault, J.M. Mignot, J. Rossat-Mignod, J. Flouquet, and P. Lejay, J. Magn. Magn. Mater. **108**, 131 (1992).

[Kadowaki 04] H. Kadowaki, M. Sato, and S. Kawarazaki, Phys. Rev. Lett. **92**, 097204 (2004).

[Kambe 96] S. Kambe, S. Raymond, L.P. Regnault, J. Flouquet, P. Lejay, and P. Haen, , J. Phys. Soc. Japan **65**, 3294 (1996).

[Kawasaki 01] S. Kawasaki, T. Mito, G.-q. Zheng, C. Thessieu, Y. Kawasaki, K. Ishida, Y. Kitaoka, T. Muramatsu, T.C. Kobayashi, D. Aoki, S. Araki, Y. Haga, R. Settai, and Y. Ōnuki 2001 *Phys. Rev. B* **65**, 020504.

[Kawasaki 04] S. Kawasaki, T. Mito, G.-q. Zheng, C. Thessieu, Y. Kawasaki, K. Ishida, Y. Kitaoka, T. Muramatsu, T.C. Kobayashi, D. Aoki, S. Araki, Y. Haga, R. Settai, and Y. Ōnuki, Phys. Rev. B **65**, 020504 (2001).

[Knebel 01] G. Knebel, D. Braithwaite, P.C. Canfield, G. Lapertot, and J. Flouquet, Phys. Rev. B **65**, 24425 (2001).

[Kohori 00] Y. Kohori, T. Kohara, Y. Yamato, G. Tomka, and P.C. Riedi, Physica B **281-282**, 12 (2000).

[Kuramoto 87] Y. Kuramoto, Solid State Commun. **63**, 467 (1987).

[Kuramoto 89] Y. Kuramoto, Physica B **156-157**, 789, (1989).

[Kuroda 92] Y. Kuroda, Y. Ōno, K. Miura, B. Jin, H. Jichu, D. S. Hirashima, and T. Matsuura, Prog. Theor. Phys. Suppl. **108**, 173 (1992).

[Lacerda 89] A. Lacerda, A. deVisser, P. Haen, P. Lejay, and J. Flouquet, Phys. Rev. B **40**, 8759 (1989).

[Lassailly 85] Y. Lassailly, S.K. Burke, and J. Flouquet *J. Phys. C* **18**, 5737 (1985).

[Lavagna 00] M. Lavagna, and C. Pépin, Phys. Rev. B **62**, 6450 (2000).

[Lawrence 78] J.M. Lawrence and D. Murphy, Phys. Rev. Lett. **40**, 961 (1978).

[Lawrence 79] J.M. Lawrence, Phys. Rev. B **20**, 3770 (1979).

[Lawrence 80] J.M. Lawrence and S.M. Shapiro, Phys. Rev. B **22**, 4379 (1980).

[Lawrence 82] J.M. Lawrence, J. Appl. Phys. **53**, 2117 (1982).

[Lea 62] K.R. Lea, M.J.M. Leask, W.P. Wolf, J. Phys. Chem. Solids **23**, 1381 (1962).

[Lee 86] P.A. Lee, T.M. Rice, J.W. Serene, L.J. Sham, and J.W. Wilkins, Condens. Matter Phys. **12**, 99 (1986).

[Lejay 93] P. Lejay, J. Muller, and R. Argoud, J. Cryst. Growth **130**, 238 (1993).

[Lehmann 87] P. Lehmann, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 1987.

[Lisher 71] E.J. Lisher and J.B. Forsyth, Acta. Cryst. **A 27**, 545 (1971).

[Lloret 87] B. Lloret, B. Chevalier, B. Buffat, J. Etourneau, S. Quezel, A. Lamharrar ,J. Rossat-Mignod, R. Calemczuk, and E. Bonjour, J. Magn. Magn. Mater. **63&64**, 85 (1987).

[Loidl 88] A. Loidl, G. Knopp, H. Spille, F. Steglich, and A.P. Murani, Physica B **76-77**, 376 (1988).

[Lopes 83] L.C. Lopes, Y. Lassailly, R. Julien, and B. Coqblin, J. Magn. Magn. Mater. **31-34**, 251 (1983).

[Marshall 71] W. Marshall and S.W. Lovesey, *Theory of Thermal Neutron Scattering* (Oxford University Press, Oxford, 1971).

[Mathur 98] N.D. Mathur, F.M. Grosche, S.R. Julian, I.R. Walker, D.M. Freye, R.K.W. Haselwimmer and G.G. Lonzarich, Nature **394**, 39 (1998).

[Maury 82] A. Maury, R. Freitag, J.E. Crow, T. Mihalisin, and A.I. Abow-Aly, Phys. Lett. **92A**, 411 (1982).

[Mignot 91] J.M. Mignot, L.P. Regnault, J.L. Jacoud, J. Rossat-Mignod, P. Haen and P. Lejay, Physica B **171**, 357 (1991).

[Millis 93] A.J. Millis, Phys. Rev. B **48**, 7183 (1993).

[Montfrooij 03] W. Montfrooij, M.C. Aronson, B.D. Rainford, J.A. Mydosh, A.P. Murani, P. Haen, and T. Fukuhara, Phys. Rev. Lett. **91**, 087202 (2003)

[Monthoux 01] P. Monthoux and G.G. Lonzarich, Phys. Rev. B **63**, 054529 (2001).

[Moriya 85] T. Moriya, *Spin fluctuations in itinerant electron magnetism* (Springer, Berlin, 1985).

[Moriya 95] T. Moriya, and T. Takimoto, J. Phys. Soc. Japan **64**, 960 (1995).

[Moriya 00] T. Moriya and K. Ueda, Adv. Phys. **49**, 555 (2000).

[Mott 90] N.F. Mott, *Metal-Insulator Transtions, 2nd ed.* (Taylor & Francis Ltd, London, 1990).

[Murani 93] A.P. Murani, A.D. Taylor, R. Osborn, and Z.A. Bowden, Phys. Rev. B **48**, 10606 (1993).

[Ōnuki 87] Y. Ōnuki and T. Komatsubara, J. Magn. Magn. Mater. **63& 64**, 281 (1987).

[Park 02a] J.G. Park, D.T. Adroja, K.A. McEwen, and A.P. Murani, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 3865 (2002).

[Park 02b] J.G. Park, D.T. Adroja, K.A. McEwen, A.P. Murani, J.Y. So, E. Beirne, Y. Echizen, and T. Takabatake, Physica B **312-313**, 475 (2002).

[Pedrazzini 04] P. Pedrazzini, M. Gómez Berisso, N. Caroca-Canales, M. Deppe, C. Geibel, and J.G. Sereni, Eur. Phys. J. B **38**, 445 (2004).

[Peyrard 80] J. Peyrard, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 1980.

[Plischke 94] M. Plischke, and B. Bergersen, *Equilibrum Statistical Physics* (World Scientific, Singapore, 1994).

[Quezel 88] S. Quezel, J. Rossat-Mignod, P. Burlet, J.L. Jacoud, L.P. Regnault, C. Vettier, P. Lejay, and J. Flouquet, J. Magn. Magn. Mater. **76&77**, 403 (1988).

[Rainford 92] B.D. Rainford, S. Dakin, and A. Severing, J. Magn. Magn. Mater. **108**, 119 (1992).

[Raymond 97] S. Raymond, L.P. Regnault, S. Kambe, J.M. Mignot, P. Lejay, and J. Flouquet, J. Low Temp. Phys. **109**, 205 (1997).

[Raymond 98] S. Raymond, L.P. Regnault, S. Kambe, J. Flouquet, and P. Lejay, J. Phys.: Condens. Matter **10**, 2363 (1998).

[Raymond 99] S. Raymond, P. Haen, R. Calemcuk, S. Kambe, B. Fåk, P. Lejay, T. Fukuhara, and J. Flouquet, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 5547 (1999).

[Raymond 01] S. Raymond, L.P. Regnault, J. Flouquet, A. Wildes, and P. Lejay, J. Phys.: Condens. Matter **13**, 8303 (2001).

[Raymond 02] S. Raymond, W. Knafo, L.P. Regnault, J. Flouquet, A. Wildes, and P. Lejay, Physica B **312-313**, 431 (2002).

[Raymond 04] S. Raymond, communication privée.

[Regnault 88] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, P. Lejay, and J. Flouquet, Phys. Rev. B **38**, 4481 (1988).

[Regnault 90a] L.P. Regnault, J.L. Jacoud, J.M. Mignot, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay, and J. Flouquet, J. Magn. Magn. Mater. **90&91**, 398 (1990).

[Regnault 90b] L.P. Regnault, J.L. Jacoud, J.M. Mignot, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay, and J. Flouquet, J. Magn. Magn. Mater. **90&91**, 606 (1990).

[Rossat 88] J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, J.L. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, and A. Amato, J. Magn. Magn. Mater. **76&77**, 376 (1988).

[Sakurai 84] J. Sakurai, T. Hagiwara, T. Murakami, Y. Komura, H. Kadomatsu, M. Kurisu, and H. Fujirawa, Solid. State Commun. **50**, 71 (1984).

[Sato 99] M. Sato, S. Kawarazaki, Y. Miyako, and H. Kadowaki, J. Phys. Chem. Solids **60**, 1203 (1999).

[Sato 01] M. Sato, Y. Koike, S. Katano, N. Metoki, H. Kadowaki, and S. Kawarasaki, J. Phys. Soc. Japan **70** Suppl. A, 118 (2001).

[Schröder 98] A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **80**, 5623 (1998).

[Schröder 00] A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M.A. Adams, O. Stockert, H. v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, Nature **407**, 351 (2000).

[Severing 89] A. Severing, E. Holland-Moritz, and B. Frick, Phys. Rev. B **39**, 4164 (1989).

[Si 01] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, and J.L. Smith, Nature **413**, 804 (2001).

[So 03] J.Y. So, J.G. Park, D.T. Adroja, K.A. McEwen, A.P. Murani, and S.J. Oh, J. Phys.: Condens. Matter **15**, S2153 (2003).

[Sondhi 97] S.L. Sondhi, S.M. Girvin, J.P. Carini, and D. Shahar, Rev. Mod. Phys. **69**, 315 (1997).

[Squires 78] G.L. Squires, *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering* (Cambridge University Press, Cambridge, 1978).

[Steeman 90] R.A. Steeman, T.E. Mason, H. Lin, W.J.L. Buyers, A.A. Menovsky, M.F. Collins, E. Frikkee, G.J. Nieuwenhuys, and J.A. Mydosh, J. Appl. Phys. **67**, 5203 (1990).

[Steglich 85] F. Steglich, U. Rauchschwalbe, U. Gotwick, H.M. Mayer, G. Spain, N. Grewe, U. Poppe, and J.J.M. Franse, J. Appl. Phys. **57** 3054 (1985).

[Stewart 01] G.R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **73**, 797 (2001).

[Stewart 02] J.R. Stewart, B.D. Rainford, R.S. Eccleston, and R. Cywinski, Phys. Rev. Lett. **89**, 186403 (2002)

[Stockert 98] O. Stockert, H. v. Löhneysen, A. Rosch, N. Pyka, and M. Loewenhaupt, Phys. Rev. Lett. **80**, 5627 (1998).

[Takashita 96] M. Takashita, H. Aoki, T. Terashima, S. Uji, K. Maezawa, R. Settai, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Japan **65**, 515 (1996).

[Thompson 85] J.D. Thompson, J.D. Willis, D.E. MacLaughlin, and L.C. Gupta, Solid State Commun. **56**, 169 (1985).

[Thompson 01] J.D. Thompson, R. Movshovich, Z. Fisk, F. Bouquet, N.J. Curro, R.A. Fisher, P.C. Hammel, H. Hegger, M.F. Hundley, M. Jaime, P.G. Pagliuso, C. Petrovic, N.E. Phillips, and J.L. Sarrao, J. Magn. Magn. Mat. **226-230**, 5 (2001).

[Tsujii 03] N. Tsujii, K. Yoshimura, and K. Kosuge, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 1993 (2003).

[Tsunetsugu 97] H. Tsunetsugu, M. Sigrist, and K. Ueda, Rev. Mod. Phys. **69**, 809 (1997).

[Tsvelick 83] A.M. Tsvelick and P.B. Wiegman, Adv. Phys. **32**, 483 (1983).

[van Diepen 71] A.M. van Diepen, R.S. Craig, and W.E. Wallace, J. Phys. Chem. Solids **32**, 1867 (1971).

[van Dijk 00] N.H. van Dijk, B. Fåk, T. Charvolin, P. Lejay, and J.M. Mignot, Phys. Rev. B **61**, 8922 (2000).

[van Vleck 32] J.H. van Vleck, *The Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities* (Oxford University Press, New York, 1932).

[Walker 97] I.R. Walker, F.M. Grosche, D.M. Freye, and G.G. Lonzarich, Physica C **282-287**, 303 (1997).

[Watanabe 03] K. Watanabe, Y. Uwatoko, Y. Tabata, H. Kadowaki, C. Kanadani, T. Taniguchi, and S. Kawarasaki , J. Phys. Soc. Japan **72**, 1751 (2003).

[Wilhelm 01] H. Wilhelm , S. Raymond, D. Jaccard, O. Stockert, H. v. Löhneysen, and A. Rosch, J. Phys.: Condens. Matter **13**, L329 (2001).