



**HAL**  
open science

# Effet Josephson pour l'étude des supraconducteurs à haute température critique

Nicolas Bergeal

► **To cite this version:**

Nicolas Bergeal. Effet Josephson pour l'étude des supraconducteurs à haute température critique. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005. Français. NNT: . tel-00012161

**HAL Id: tel-00012161**

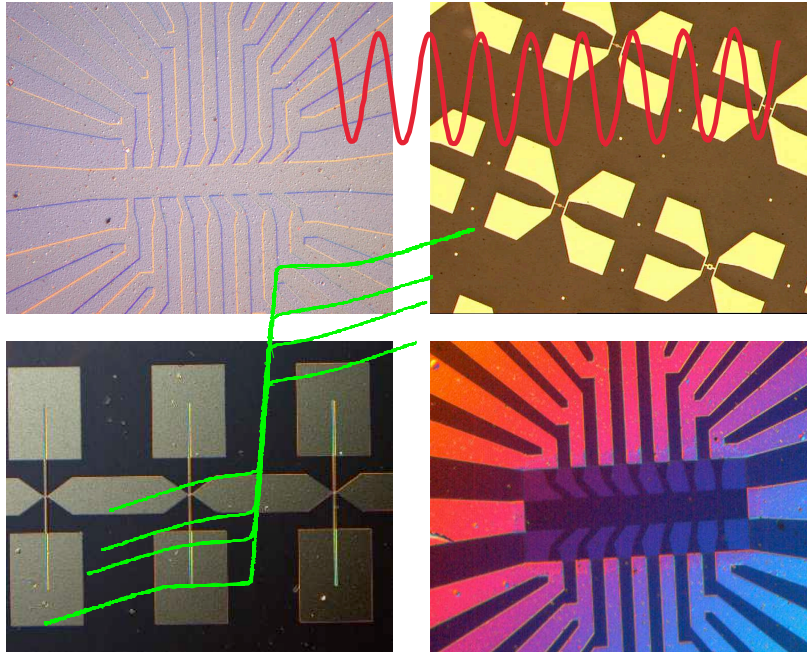
**<https://theses.hal.science/tel-00012161>**

Submitted on 19 Apr 2006

**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.

# EFFET JOSEPHSON POUR L'ÉTUDE DES SUPRACONDUCTEURS À HAUTE TEMPÉRATURE CRITIQUE



*Nicolas BERGEAL*

**THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité : Physique des solides

présentée par

**Nicolas BERGEAL**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

**Effet Josephson pour l'étude des  
supraconducteurs à haute température  
critique**

Soutenue le 14 Décembre 2005 devant le jury composé de :

|                           |                    |
|---------------------------|--------------------|
| Mr. Philippe BOURGES      |                    |
| Mr. Guy DEUTSCHER         | Rapporteur         |
| Mr. Marco GRILLI          | Rapporteur         |
| Mr. Jérôme LESUEUR        | Directeur de thèse |
| Mr. William SACKS         | Président          |
| Mr. Jean-Claude VILLEGIER |                    |

Cette thèse a été effectuée entre septembre 2002 et novembre 2005 au sein du Laboratoire de Physique Quantique de l'École Supérieure de Physique et Chimie Industrielles de Paris, Unité Propre de Recherche A0005 du CNRS. Je souhaite donc remercier tout d'abord les directeurs successifs de l'UPR A. C. Boccara et D. Fournier ainsi que le directeur du LPQ Jérôme Lesueur de m'avoir accueilli dans leurs laboratoires durant cette période.

Je remercie sincèrement Marco Grilli et Guy Deutscher d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse, ainsi que les autres membres du jury, William Sacks, Philippe Bourges et Jean-Claude Villégier pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

J'ai eu beaucoup de plaisir à travailler au laboratoire pendant ces trois années. Je voudrais remercier les différentes personnes, chercheurs, enseignants, étudiants, personnels, que j'ai pu côtoyer et qui ont contribué à cette ambiance agréable.

Je remercie particulièrement les personnes qui ont participé au travail présenté dans cette thèse. Jean-Pierre Contour et son équipe ont fabriqué toutes les couches minces sans lesquelles ce travail n'aurait pas été possible. En particulier, sans leur expertise nous n'aurions probablement pas pu réaliser des structures aussi complexes que les jonctions tricouches. Je remercie également Giancarlo Faini de m'avoir initié aux techniques de microfabrication et d'avoir activement participé à la fabrication des jonctions Josephson. J'espère que cette collaboration pourra se prolonger encore longtemps. Merci également à Brigitte Leridon pour ses réflexions éclairées concernant les fluctuations de paires (qu'elles soient gaussiennes ou non).

Je suis extrêmement reconnaissant à Odile Kaïtasov d'avoir réalisé les nombreuses irradiations ioniques sur IRMA. Je remercie également l'équipe bolomètres du CNSM Orsay, en particulier Louis Dumoulin et Claire Kikuchi pour nous avoir accueillis temporairement dans leur salle de manips.

La Fondation Langlois a manifesté un intérêt pour mon travail et lui a apporté son soutien. Qu'elle trouve ici l'expression de toute ma gratitude.

Nos parcours se sont croisés, ils ont influencé mon travail : Brian Andersen, Hervé Aubin, Kamran Behnia, Dominique Bonin, Nicole Bontemps, Sergio Caprara, Guy Deutscher, Yannick Dewilde, Jean-Baptiste d'Espinose, Xavier Grison, Marco Grilli, Takis Kontos, Mathieu Le Tacon, Ricardo Lobo, Daniel Marchand, Philippe Monod, Alexandre Pourret, Alain Saccuto, Hocine Sfihi, Arlette Trokiner...

Un grand merci à Marco Aprili pour m'avoir initié à la physique expérimentale et pour les nombreuses discussions, parfois acharnées, que nous avons pu avoir au cours de ces trois années.

Je suis infiniment reconnaissant à Jérôme Lesueur d'avoir accepté de diriger cette thèse et de m'avoir accordé toute sa confiance. Travailler avec lui fut un très grand plaisir, ses conseils et réflexions constituent un héritage précieux pour les années à venir.

Merci à mes parents pour leur soutien sans faille tout au long de ces nombreuses années d'études.

Merci à Sophie qui partage ma vie.





# Introduction

Après la découverte de Bednorz et Müller en 1986, les recherches sur les supraconducteurs à haute température critique ont connu un développement considérable nourri par des perspectives d'applications multiples (stockage de l'énergie, champ magnétique intense, électronique ultra rapide...). La compréhension des mécanismes à l'origine de ce phénomène représente sans doute l'un des plus grands défis de la physique de la matière condensée. Cependant, en dépit de certains succès, concernant notamment la symétrie du paramètre d'ordre, la physique de ces composés demeure encore largement incomprise. Le diagramme de phase des supraconducteurs à haute température critique révèle une grande richesse de comportements en fonction de la température et du niveau de dopage. En particulier, les propriétés de l'état normal sont encore plus surprenantes que celles de l'état supraconducteur et ne correspondent pas à la description standard du liquide de Fermi, pierre angulaire de la théorie BCS des supraconducteurs conventionnels.

Le travail effectué pendant cette thèse consiste en une étude expérimentale du supraconducteur à haute température critique  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  par effet Josephson. Ce composé est supposé être un exemple représentatif de la famille des cuprates dopés en trous dont la présentation fera l'objet du premier chapitre. Depuis leur découverte, de nombreuses techniques expérimentales ont été utilisées pour mesurer les propriétés de transport, thermodynamiques et spectrales des supraconducteurs à haute température critique (RMN, photoémission, effet tunnel, chaleur spécifique, optique, résistivité, diffusion des neutrons...). Alors que la plupart d'entre elles font partie des outils standards utilisés pour l'étude des propriétés électroniques de la matière, l'effet Josephson est quant à lui spécifique aux supraconducteurs. Il sera décrit dans le chapitre 2. Il s'agit d'une sonde particulièrement intéressante qui met directement en jeu la fonction d'onde du condensat et permet ainsi d'obtenir des renseignements précieux. Elle n'en demeure pas moins délicate à mettre en oeuvre car elle nécessite la réalisation de jonctions (hétérostructures), ce qui s'avère particulièrement difficile dans le cas des cuprates.

Les expériences réalisées au cours de cette étude s'orientent autour de deux technologies de jonctions différentes qui ont été mises au point pendant cette thèse. Elles proposent une alternative aux méthodes de fabrication existantes et apportent un développement technologique nouveau. Dans le chapitre 3 nous proposerons une technique de fabrication de jonctions Josephson par irradiation ionique qui présente un double intérêt. D'un point de vue fondamental nous montrerons qu'il s'agit d'un système original pour l'étude de l'effet de proximité dans les structures à base de supraconducteurs à haute température critique. Du point de vue des applications, ces jonctions offrent une nouvelle technologie efficace pour les dispositifs à base de jonctions Josephson pouvant fonctionner à la température de l'azote liquide. Nous présenterons notamment les premiers résultats obtenus sur des SQUIDS fabriqués par cette technique.

Dans la suite de cette thèse, de nature plus fondamentale, nous aborderons l'un des points essentiels de la physique des cuprates. Dans le régime sous-dopé, il a été constaté qu'un pseudogap s'ouvre dans la densité d'états de quasiparticules à une température très supérieure à la température critique. Il s'agit de l'une des manifestations les plus surprenantes de la nature non conventionnelle de la supraconductivité des cuprates. L'origine de ce phénomène est aujourd'hui fortement débattue mais de nombreux physiciens pensent que le pseudogap pourrait détenir la

clé de la supraconductivité à haute température critique. Il a été suggéré qu'il pourrait s'agir de la signature de paires fluctuantes se formant à haute température et condensant dans l'état supraconducteur à la température critique. De part sa capacité à sonder les paires de Cooper, l'effet Josephson se révèle être extrêmement utile pour tester cette hypothèse. Le chapitre 4 sera consacré à la description théorique des fluctuations dans l'état normal d'un supraconducteur ainsi qu'à la présentation d'une expérience utilisant l'effet Josephson pour mesurer le spectre de ces fluctuations. Pour réaliser une telle expérience, nous avons développé une nouvelle technique qui permet de fabriquer des jonctions formées de plusieurs couches empilées incluant un supraconducteur sous-dopé présentant un pseudogap. Dans le chapitre 5 nous décrirons la mise en oeuvre de cette expérience et nous présenterons les résultats obtenus.

# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction</b>   | <b>i</b>  |
| <b>1 Les cuprates</b>   | <b>1</b>  |
| 1.1 La structure cristallographique des supraconducteurs à haute température critique | 1         |
| 1.2 Les différentes phases des cuprates . . . . .                                     | 2         |
| 1.2.1 La phase antiferromagnétique . . . . .  | 4         |
| 1.2.2 La phase supraconductrice . . . . .   | 5         |
| 1.2.3 Les phases « normales » . . . . .   | 9         |
| 1.2.3.1 La région sur-dopée . . . . .   | 9         |
| 1.2.3.2 La région optimalement dopée . . . . .  | 10        |
| 1.2.3.3 La région sous-dopée . . . . .  | 12        |
| 1.3 Le pseudogap . . . . .  | 12        |
| 1.3.1 Résonance Magnétique Nucléaire . . . . .  | 12        |
| 1.3.1.1 Knight shift . . . . .  | 12        |
| 1.3.1.2 Temps de relaxation spin-réseau . . . . .                                     | 14        |
| 1.3.1.3 Gap de spin . . . . .   | 14        |
| 1.3.2 Spectroscopie tunnel . . . . .  | 15        |
| 1.3.3 Photoémission résolue en angle . . . . .  | 16        |
| 1.3.3.1 Pseudogap en $(\pi,0)$ . . . . .  | 18        |
| 1.3.3.2 Anisotropie du Pseudogap . . . . .  | 19        |
| 1.3.4 Chaleur spécifique . . . . .  | 20        |
| 1.3.5 Conductivité optique . . . . .  | 21        |
| 1.3.5.1 Taux de diffusion . . . . .   | 21        |
| 1.3.5.2 Conductivité c-axis . . . . .   | 22        |
| 1.3.6 Résistivité dc . . . . .  | 22        |
| 1.3.7 Les différents scenarii du pseudogap . . . . .                                  | 23        |
| 1.3.7.1 Stripes . . . . .   | 24        |
| 1.3.7.2 Fluctuations antiferromagnétiques . . . . .                                   | 26        |
| 1.3.7.3 Séparation spin-charge . . . . .  | 27        |
| 1.3.7.4 Point critique quantique . . . . .  | 29        |
| 1.3.7.5 Les paires préformées . . . . .   | 30        |
| <b>2 Spectroscopie tunnel et effet Josephson</b>                                      | <b>31</b> |
| 2.1 Effet tunnel à un électron . . . . .  | 31        |
| 2.1.1 Courant tunnel . . . . .  | 32        |
| 2.1.2 Jonction métal normal-isolant-métal normal . . . . .                            | 32        |
| 2.1.3 Jonction métal normal-isolant-supraconducteur . . . . .                         | 33        |
| 2.1.4 Jonction supraconducteur-isolant-supraconducteur . . . . .                      | 35        |
| 2.2 Effet Josephson . . . . .   | 36        |
| 2.2.1 Equations Josephson . . . . .   | 36        |
| 2.2.2 Effet Josephson alternatif . . . . .  | 39        |
| 2.2.3 Effet d'un champ magnétique . . . . .   | 39        |

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 2.2.3.1  | Electrodynamique des jonctions Josephson . . . . .  | 39        |
| 2.2.3.2  | Cas des jonctions étroites . . . . .  | 42        |
| 2.2.3.3  | Cas des jonctions larges . . . . .  | 45        |
| 2.2.4    | Le modèle RCSJ . . . . .  | 46        |
| 2.2.4.1  | Jonction sur-amortie ( $\beta_J \ll 1$ ) . . . . .  | 47        |
| 2.2.4.2  | Jonction sous-amortie ( $\beta_J < 1$ ) . . . . .   | 48        |
| 2.2.5    | Effet des micro-ondes . . . . .   | 49        |
| 2.2.5.1  | Modèle de la source de tension . . . . .  | 50        |
| 2.2.5.2  | Modèle de la source de courant . . . . .  | 51        |
| 2.3      | Jonctions supraconducteur-normal-supraconducteur . . . . .                                    | 52        |
| 2.3.1    | Réflexions d'Andreev . . . . .  | 52        |
| 2.3.2    | Théorie de l'effet de proximité dans les systèmes diffusifs . . . . .                         | 53        |
| 2.3.2.1  | Approximation de diffusion . . . . .  | 56        |
| 2.3.2.2  | Dépendance spatiale du paramètre d'ordre dans le métal normal . . . . .                       | 56        |
| 2.3.2.3  | Jonctions Josephson SNS . . . . .   | 58        |
| 2.3.3    | Approche quasiclassique de l'effet de proximité . . . . .                                     | 59        |
| 2.3.3.1  | Equations d'Eilenberger . . . . .   | 60        |
| 2.3.3.2  | Equations d'Usadel . . . . .  | 60        |
| 2.4      | Jonctions Josephson à base de supraconducteurs à haute température critique . . . . .         | 62        |
| <b>3</b> | <b>Etude de nano-jonctions fabriquées par irradiation ionique</b> . . . . .                   | <b>65</b> |
| 3.1      | Effet de l'irradiation ionique sur les oxydes supraconducteurs . . . . .                      | 65        |
| 3.2      | Conditions d'irradiation . . . . .  | 68        |
| 3.3      | Définition de motifs par irradiation ionique . . . . .  | 69        |
| 3.4      | Fabrication des nano-jonctions Josephson . . . . .  | 70        |
| 3.4.1    | Fabrication . . . . .   | 70        |
| 3.4.2    | Distributions de défauts et de températures critiques dans les jonctions . . . . .            | 76        |
| 3.5      | Dispositifs de mesure . . . . .   | 77        |
| 3.5.1    | Cryostats . . . . .   | 77        |
| 3.5.2    | Mesures de caractéristiques courant-tension . . . . .   | 77        |
| 3.5.3    | Mesures de caractéristiques conductance-tension . . . . .                                     | 77        |
| 3.6      | Caractérisation des jonctions . . . . .   | 80        |
| 3.6.1    | Mesures $R(T)$ . . . . .  | 80        |
| 3.6.2    | Mesures $I(V)$ et $I_c(T)$ . . . . .  | 82        |
| 3.6.3    | Mesure du courant critique Josephson en fonction d'un champ magnétique . . . . .              | 85        |
| 3.6.4    | Intérêt technologique des jonctions par irradiation . . . . .                                 | 86        |
| 3.7      | Fabrication de SQUIDS DC par irradiation ionique . . . . .                                    | 88        |
| 3.7.1    | Structure des échantillons . . . . .  | 88        |
| 3.7.2    | Caractérisation des SQUIDS . . . . .  | 90        |
| 3.7.2.1  | Mesures $R(T)$ et $I(V)$ . . . . .  | 90        |
| 3.7.2.2  | Modulations SQUID . . . . .   | 90        |
| 3.7.2.3  | Conclusion sur les SQUIDS . . . . .   | 95        |
| 3.8      | Etude de l'effet de proximité dans les jonctions fabriquées par irradiation ionique . . . . . | 96        |
| 3.8.1    | Importance de l'effet de proximité dans les jonctions . . . . .                               | 96        |
| 3.8.2    | Orientation des jonctions dans le plan $(a, b)$ . . . . .                                     | 97        |
| 3.8.3    | Interprétation . . . . .  | 99        |
| 3.8.4    | Approche quasiclassique des équations d'Usadel . . . . .                                      | 103       |
| 3.8.5    | Perspectives sur les jonctions par irradiation . . . . .                                      | 106       |

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| <b>4</b> | <b>Fluctuations dans les supraconducteurs</b>   | <b>107</b> |
| 4.1      | Théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau . . . . .   | 107        |
| 4.1.1    | Energie libre de Ginzburg-Landau . . . . .  | 107        |
| 4.1.2    | Equations différentielles de Ginzburg-Landau . . . . .  | 108        |
| 4.1.2.1  | Longueur de cohérence . . . . .   | 109        |
| 4.1.2.2  | Longueur de pénétration . . . . .   | 110        |
| 4.1.2.3  | Quantification du flux . . . . .  | 110        |
| 4.1.3    | Supraconducteurs de types 1 et 2 . . . . .  | 111        |
| 4.1.3.1  | Type 1 ( $\xi > \sqrt{2}\lambda$ ) . . . . .  | 111        |
| 4.1.3.2  | Type 2 ( $\xi < \sqrt{2}\lambda$ ) . . . . .  | 111        |
| 4.2      | Fluctuations dans les supraconducteurs . . . . .  | 112        |
| 4.2.1    | Supraconductivité au-dessus de $T_c$ dans un système de dimension nulle . . . . .                   | 112        |
| 4.2.2    | Variations spatiales du paramètre d'ordre au-dessus de $T_c$ . . . . .                              | 113        |
| 4.2.3    | Temps de vie des fluctuations . . . . .   | 114        |
| 4.2.4    | Effet des fluctuations sur la conductivité au-dessus de $T_c$ . . . . .                             | 115        |
| 4.3      | Mesure du spectre des fluctuations d'un supraconducteur conventionnel . . . . .                     | 116        |
| 4.3.1    | Susceptibilité de paires d'un supraconducteur . . . . .   | 116        |
| 4.3.2    | Excès de courant dû aux fluctuations . . . . .  | 117        |
| 4.3.3    | Mesure de $I_{ex}$ dans des jonctions à bases de supraconducteurs conventionnels . . . . .          | 121        |
| 4.3.4    | Effet du bruit thermique . . . . .  | 121        |
| <b>5</b> | <b>Test des fluctuations de paires dans le pseudogap</b>  | <b>125</b> |
| 5.1      | Jonctions Josephson pour l'étude du pseudogap : l'expérience de Janko . . . . .                     | 125        |
| 5.1.1    | Description de l'expérience et prédiction théorique . . . . .                                       | 125        |
| 5.1.2    | Commentaires . . . . .  | 127        |
| 5.2      | Test des fluctuations de paires dans le pseudogap . . . . .   | 128        |
| 5.2.1    | Géométrie de la jonction et choix des matériaux . . . . .   | 128        |
| 5.2.2    | Barrière de $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$ . . . . .   | 129        |
| 5.2.2.1  | Transport de quasiparticules . . . . .  | 129        |
| 5.2.2.2  | Effet Josephson . . . . .   | 130        |
| 5.2.2.3  | Réflexion d'Andreev . . . . .   | 130        |
| 5.2.3    | Fabrication des jonctions . . . . .   | 131        |
| 5.3      | Résultats . . . . .   | 140        |
| 5.3.1    | Mesures $R(T)$ . . . . .  | 140        |
| 5.3.2    | Effet Josephson . . . . .   | 141        |
| 5.3.2.1  | Caractéristiques $I(V)$ . . . . .   | 141        |
| 5.3.2.2  | Effet des micro-ondes . . . . .   | 141        |
| 5.3.2.3  | Effet d'un champ magnétique parallèle à la jonction . . . . .                                       | 143        |
| 5.3.3    | Transport de quasiparticules à travers la barrière de $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$ . . . . .         | 146        |
| 5.3.3.1  | Transport de quasiparticules à $T_c^{SD} < T \approx T_c^{OD}$ . . . . .                            | 146        |
| 5.3.3.2  | Transport de quasiparticules à $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ . . . . .                                  | 147        |
| 5.3.3.3  | Interprétation . . . . .  | 148        |
| 5.3.4    | Test des fluctuations de paires dans le régime de pseudogap ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ ) . . . . . | 151        |
| 5.3.4.1  | Excès de conductance . . . . .  | 151        |
| 5.3.4.2  | Effet des micro-ondes et du champ magnétique . . . . .  | 155        |
| 5.3.5    | Conclusion . . . . .  | 156        |
|          | <b>Conclusion</b>   | <b>i</b>   |
|          | <b>A Fonctionnement d'un SQUID dc</b>   | <b>1</b>   |
|          | <b>B Inductance d'un SQUID</b>  | <b>5</b>   |



# Chapitre 1

## Les cuprates

Après la découverte de la supraconductivité du mercure[81] par Kammerlingh Onnes en 1911, les recherches se sont intensifiées et de nombreux métaux et alliages se sont révélés supraconducteurs. Parallèlement, les succès obtenus par la théorie phénoménologique de Ginsburg-Landau et la théorie microscopique Bardeen-Cooper-Schrieffer[14] ont permis d'obtenir une description précise et complète du phénomène. Cependant, les températures de transition des différents composés demeuraient très basses (inférieures à 23 K - $Nb_3Ge$ -) ce qui limitait leur intérêt et les perspectives de développement de la supraconductivité. Alors que l'engouement suscité par le domaine s'éteignait, un nouveau pas fut franchi en 1986, lorsque Bednorz et Müller découvrirent un composé, le  $La_{2-x}Ba_xCuO_4$ , ayant une  $T_c$  de 34 K[18], supérieure à la limite estimée par la théorie BCS. Une nouvelle famille apparaissait, celle des oxydes supraconducteurs à haute température critique.

La recherche de composés ayant une température de transition élevée a permis de découvrir de nouveaux oxydes supraconducteurs parmi lesquels les composés à l'yttrium ( $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ), au bismuth ( $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4+\delta}$ )<sup>1</sup>, au thallium ( $Tl_mBa_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+m+2+\delta}$ ) ou encore la famille des composés au mercure ( $HgBa_2Ca_nCu_{n+1}O_{2n+4}$ ) dont le composé  $HgBa_2Ca_2Cu_3O_{8+\delta}$  présente aujourd'hui la  $T_c$  la plus élevée 134 K. Les propriétés de ces matériaux sont très différentes de celles des métaux et alliages supraconducteurs connus jusque là. Depuis 1986, de nombreuses expériences ont été réalisées sur ces composés et plusieurs théories ont été proposées pour essayer de décrire ce nouveau type de supraconductivité. Cependant, malgré les efforts déployés et en dépit de certaines avancées, la physique des oxydes supraconducteurs demeure encore aujourd'hui largement incomprise.

Dans ce chapitre, nous allons décrire succinctement les propriétés principales des cuprates avant de nous intéresser plus particulièrement au phénomène du pseudogap qui fait l'objet d'une partie du travail expérimental réalisé pendant cette thèse.

### 1.1 La structure cristallographique des supraconducteurs à haute température critique

Les supraconducteurs à haute température critique ont un caractère bidimensionnel très marqué. Ils ont tous en commun une structure cristallographique contenant des plans carrés cuivre oxygène  $CuO_2$  qui sont à l'origine de la forte anisotropie entre le plan ( $a, b$ ) et l'axe  $c$ , et auxquels ils doivent leur nom de cuprates. Ces plans sont le siège de la supraconductivité et déterminent l'essentiel des propriétés physiques de ces composés. Ils sont séparés par des plans dits "réservoirs" contenant

---

<sup>1</sup>Dans la suite de ce chapitre, nous ferons souvent référence au composé  $n=0$  et  $n=1$  sous l'appellation Bi2201 et Bi2212.



des cations dont la nature varie d'un cuprate à l'autre ( $Y^{3+}, Ba^{2+}, Sr^{2+}, Ca^{2+} \dots$ ) et qui jouent également un rôle important dans la supraconductivité, en permettant de faire varier le nombre de porteurs de charges dans les plans  $CuO_2$  par un mécanisme de transfert.

La maille élémentaire des cuprates est constituée d'un empilement de blocs pérovskites dans lesquels les plans  $CuO_2$  et les oxygènes apicaux de part et d'autre forment des octaèdres  $CuO_6$  ou des pyramides  $CuO_5$  (fig 1.1). Les octaèdres forment en général un réseau carré partageant leur sommet qui donne lieu à une symétrie tétragonale bien que certains cuprates possèdent une légère distorsion orthorhombique.

Dans ce travail, nous nous sommes essentiellement intéressés au composé  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  qui présente la particularité d'avoir, en plus des plans  $CuO_2$ , un plan constitué de chaînes unidimensionnelles  $CuO$ . Il est formé d'une triple maille pérovskite déficitaire en oxygène et peut être synthétisé avec des stœchiométries en oxygène comprises entre 6 et 7. Sa structure est décrite sur la figure 1.1, elle consiste en l'empilement des plans suivants :

- ▶ Les plans  $CuO_2$  dans lesquels s'établit la supraconductivité.
- ▶ les plans Yttrium ne contenant pas d'oxygène.
- ▶ Les chaînes  $CuO$  dans la direction  $b$ , situées entre deux plans  $BaO$ , qui constituent les réservoirs de charges.

Le groupe d'espace de  $YBa_2Cu_3O_6$  est  $P4/mmm$  avec les paramètres de maille  $a = b = 3,86\text{Å}$  et  $c = 11,82\text{Å}$ . Le dopage en oxygène consiste à introduire des oxygènes supplémentaires pour former des chaînes  $CuO$  selon l'axe  $b$ , ce qui se traduit par une transition structurale quadratique-orthorhombique. Le groupe d'espace de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  est  $Pmmm$  avec les paramètres  $a = 3,83\text{Å}$ ,  $b = 3,88\text{Å}$ ,  $c = 11,68\text{Å}$  pour  $\delta = 0[21]$ .

Dans  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , l'Yttrium (Y) peut, en règle générale, être remplacé en toutes proportions par des terres rares, exceptés le Cérium (Ce) et le Terbium (Tb). A l'exception du praséodyme (Pr) qui rend le composé isolant, ces substitutions ne modifient que très peu les propriétés supraconductrices. En raison de leurs paramètres de maille très proches, il est possible de réaliser des structures épitaxiées formées d'empilements de couches d' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  et de  $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $a = 3,90\text{Å}$ ,  $b = 3,91\text{Å}$ ). Il s'agit donc de candidats naturels pour fabriquer des jonctions Josephson supraconducteur-isolant-supraconducteur.

## 1.2 Les différentes phases des cuprates

La composition chimique des oxydes supraconducteurs joue un rôle déterminant sur leurs propriétés physiques. Elle peut être modifiée en faisant varier la teneur en oxygène ou en réalisant des substitutions cationiques. Les changements dans les plans réservoirs affectent les plans  $CuO_2$  par un mécanisme de transfert de charges qui a pour effet de diminuer ou d'augmenter le nombre de porteurs dans ces plans. Tous les cuprates étudiés jusqu'à maintenant montrent des changements caractéristiques de leurs propriétés thermodynamiques et de leurs propriétés de transport, lorsque la température ou le nombre de porteurs de charge dans les plans conducteurs  $CuO_2$  varie. Cette grande variété de comportements peut être rassemblée dans un diagramme de phase en fonction de la température  $T$  et du nombre  $x$  de porteurs de charge, par maille élémentaire, dans les plans  $CuO_2$ .

Il existe quelques oxydes supraconducteurs dopés en électrons (par exemple  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ ) mais la plupart sont dopés en trous ; c'est notamment le cas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  qui nous intéresse dans cette étude. Le dopage se fait en substituant des cations de charge  $2^+$  par des cations de

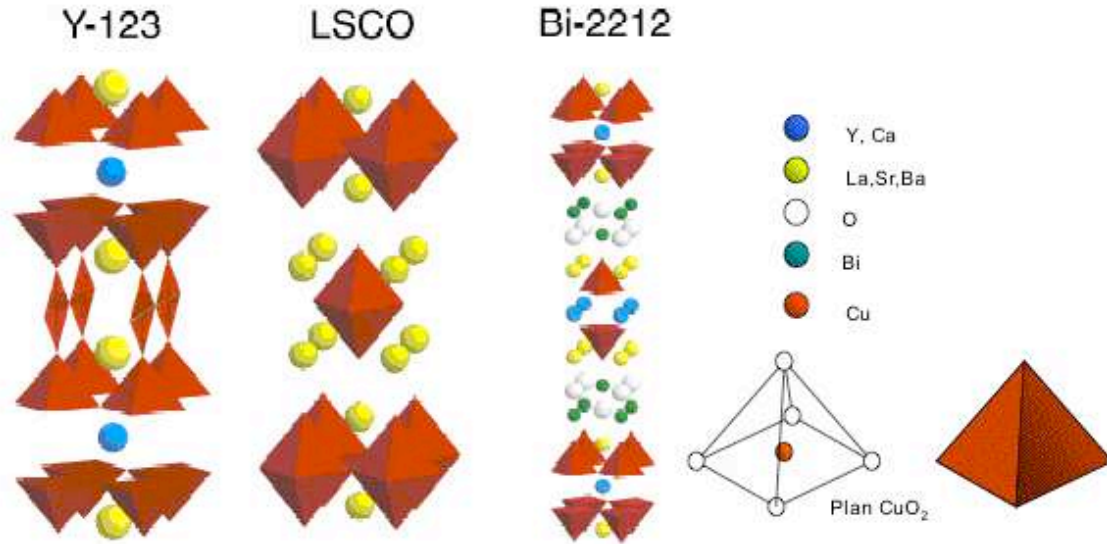


FIG. 1.1 – Structure cristallographique des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{6+\delta}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ . À droite, l'atome de cuivre est montré dans son environnement pyramidal.

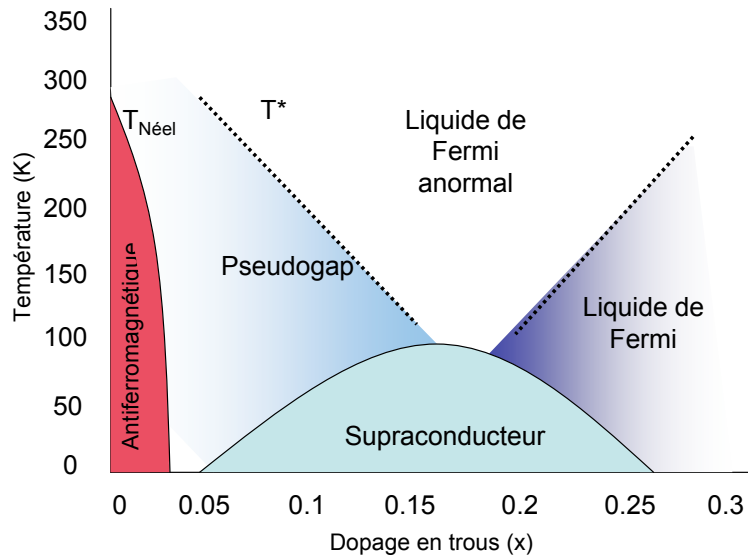


FIG. 1.2 – Diagramme de phase générique des cuprates dopés en trous. La quantité  $x$  représente le nombre de porteurs supplémentaires, par maille élémentaire, dans le plan  $\text{CuO}_2$ .

charges  $3+$  dans les plans réservoirs ou en introduisant des oxygènes supplémentaires dans ces plans. Pour respecter l'électronneutralité, les électrons des plans  $CuO_2$  se déplacent vers ces charges positives en laissant derrière eux des trous. Dans le cas des composés dopés en électrons, les cations de charge  $3+$  sont généralement remplacés par des cations de charge  $4+$ .

La figure 1.2 représente le diagramme de phase générique des cuprates dopés en trous. Il existe en fait plusieurs représentations possibles de ce diagramme de phase qui sont motivées par des approches théoriques différentes. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce point à la fin du chapitre.

Dans la suite de ce travail, nous nous intéresserons exclusivement aux cuprates dopés en trous. Sauf mention spéciale, nous ne précisons donc plus la nature du dopage.

### 1.2.1 La phase antiferromagnétique

En l'absence de dopage, le décompte des valences des différents atomes constituant le composé parent montre que tous les atomes ont leurs couches atomiques remplies à l'exception des ions  $Cu^{2+}$  qui sont dans la configuration  $3d^9$ . Quatre des cinq orbitales  $d$  sont donc remplies totalement et la dernière est occupée par un électron unique. La dégénérescence orbitale d'ordre cinq de la couche  $d$  est levée par le champ cristallin correspondant à une symétrie tétragonale ou orthorhombique. Le dernier électron se retrouve alors sur l'orbitale la plus haute en énergie  $d_{x^2-y^2}$  qui s'hybride avec l'orbitale  $2p_\sigma$  de l'oxygène [107]. Ainsi, en l'absence de dopage, la structure électronique des plans  $CuO_2$  est caractérisée par une bande d'énergie unique demi-remplie (fig 1.3). Les calculs de bandes prévoient donc un comportement de type métallique non magnétique. Cependant, expérimentalement le comportement observé est celui d'un isolant avec un ordre antiferromagnétique sur le réseau des ions cuivre. L'échec de la théorie des bandes s'explique par la forte répulsion Coulombienne qui localise les électrons sur leurs sites atomiques. Cela se traduit par la séparation de la bande  $d_{x^2-y^2}$  en deux bandes de Hubbard dont la plus basse en énergie est occupée par l'électron célibataire et la plus haute est vide.

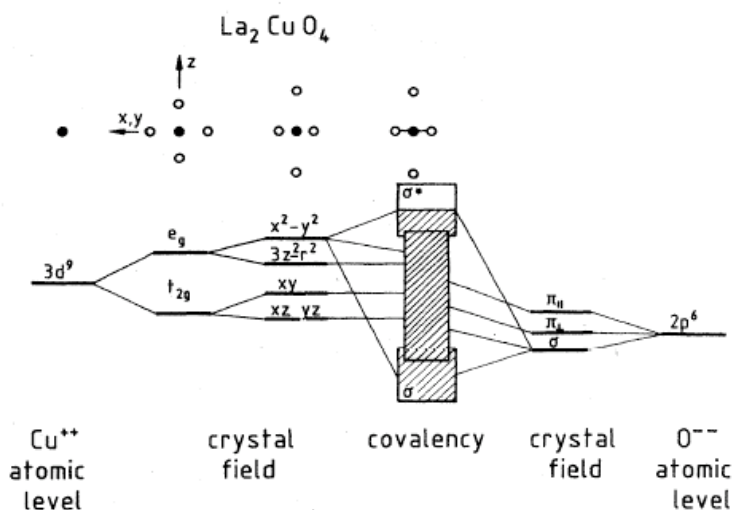


FIG. 1.3 – Représentation schématique de l'hybridation des bandes  $Cu-O$  dans les oxydes de cuivre. Les orbitales  $3d$  du cuivre sont représentées à gauche et les orbitales  $p$  de l'oxygène à droite. La figure illustre la levée de dégénérescence par le champ cristallin des orbitales  $3d$  et  $2p$ . L'orbitale du cuivre la plus haute en énergie  $d_{x^2-y^2}$  s'hybride avec l'orbitale  $2p_\sigma$  de l'oxygène pour former une bande liante remplie et une bande anti-liante à demi-remplie[107].

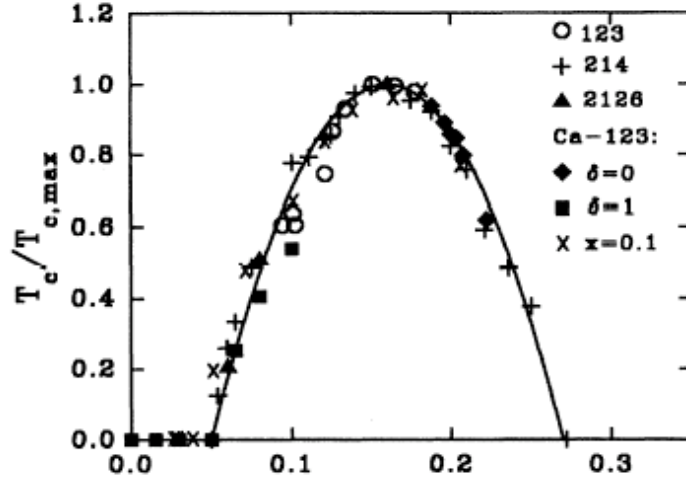


FIG. 1.4 –  $T_c/T_{c,max}$  pour différents dopages du composé  $Y_{1-x}Ba_2Ca_xCu_3O_{7-\delta}$  et du composé  $La_{2-x}Sr_xCaCu_2O_6$ [129]. La substitution de l'Y par le Ca permet d'étendre la gamme de dopage accessible.

Bien que les atomes de cuivre soient porteurs d'un spin électronique, ils interagissent faiblement à cause de la distance qui sépare les sites. En revanche, la disposition des liaisons  $Cu - O - Cu$  est favorable à un couplage de type superéchange entre les moments magnétiques de deux cuivres voisins via les orbitales  $p$  de l'atome d'oxygène intercalé qui donne lieu à un couplage antiparallèle. A dopage nul, les cuprates se comportent donc comme des isolants de Mott antiferromagnétiques en dessous de la température de Néel  $T_N$ . En dopant le composé parent (dopage nul), des trous sont créés dans les plans  $CuO_2$ , ce qui permet aux électrons de passer d'un atome de cuivre à un autre. Le réseau antiferromagnétique est alors détruit peu à peu et la température de Néel décroît en fonction du dopage jusqu'à s'annuler.

### 1.2.2 La phase supraconductrice

A partir d'un niveau de dopage ( $x \approx 5\%$ ), les cuprates présentent une phase supraconductrice en dessous d'une température critique de transition  $T_c$ . Lorsque le dopage en porteurs de charge augmente, la température de transition augmente jusqu'à atteindre un maximum pour un dopage dit optimal ( $x \approx 15\%$ ), puis décroît et s'annule (fig 1.4). Le maximum de  $T_c$  permet de définir deux régions : la région sous-dopée correspondant aux dopages inférieurs au dopage optimal, et la région sur-dopée, correspondant aux dopages supérieurs au dopage optimal. Pour des raisons chimiques, la totalité du diagramme de phase n'est pas toujours accessible pour tous les composés. Dans le cas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , la région sur-dopée est très réduite alors qu'elle est très développée pour les composés au bismuth.

Aux premiers abords, la phase supraconductrice n'est pas très différente de celle des supraconducteurs conventionnels (métaux et alliages). Dans cette phase, les cuprates présentent un état résistif nul et un effet Meissner. La fréquence de l'effet Josephson alternatif est donnée par la relation habituelle  $\frac{2eV}{h}$ [44] et la quantification du flux magnétique met en évidence un quantum de flux égal à  $\frac{h}{2e}$ [62, 84, 53]. Ces expériences montrent que le courant supraconducteur est transporté par des objets de charges  $2e$  et qu'il y a donc formation de paires d'électrons. En outre, la décroissance du Knight Shift mesurée en RMN [127], montre que la susceptibilité devient nulle lorsque la température tend vers zéro, indiquant un appariement des électrons de type singulet. Malgré ces similitudes, la phase supraconductrice des cuprates présente de nombreux comportements inhabituels. La longueur de cohérence est faible ( $\sim 10\text{\AA}$  dans le plan) alors que les supracon-

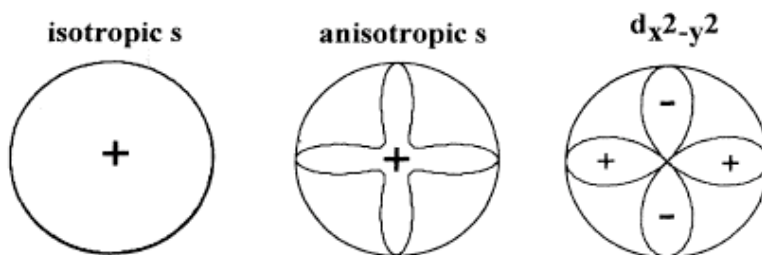


FIG. 1.5 – Les différentes symétries envisagées pour le paramètre d'ordre supraconducteur. Aujourd'hui, un consensus s'est établi autour de la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  [146].

ducteurs conventionnels présentent des longueurs de cohérence de plusieurs centaines d'angströms.

Une autre différence importante concerne la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur. Dans les supraconducteurs conventionnels, l'interaction attractive est due au couplage électron-phonon et le gap qui en résulte est généralement isotrope de symétrie  $s$ <sup>2</sup>. Dans le cas des cuprates, le débat sur la symétrie du paramètre d'ordre a longtemps agité la communauté jusqu'à ce qu'un consensus soit établi autour de la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  (fig 1.5)

$$\Delta_k = \Delta_0(\cos k_x a - \cos k_y a)$$

Historiquement, les mesures de longueurs de pénétration magnétique ont tout d'abord montré qu'il existait des excitations de basse énergie dans l'état supraconducteur, suggérant ainsi la présence de noeuds dans le gap (fig 1.6)[70]. Les mesures de photoémission résolue en angle (ARPES) ont ensuite confirmé la présence de ces noeuds dans les directions orientées à 45° des axes cristallographiques (fig 1.7)[39]. L'une des particularités qui différencie la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  d'une symétrie  $s$  très anisotrope est le saut de phase d'une quantité  $\pi$  d'un lobe à l'autre (fig 1.5). L'ARPES n'étant sensible qu'à l'amplitude du paramètre d'ordre et non à la phase, il a fallu attendre les expériences du tricristal de Tsuei et Kirtley (fig 1.9)[135], et les expériences de SQUID de Wollman et Van Harlingen (fig 1.8)[146] pour trancher définitivement en faveur de la symétrie  $d_{x^2-y^2}$ <sup>3</sup>. Ce résultat suggère que la supraconductivité à haute température critique a très certainement une origine différente de celle de la supraconductivité conventionnelle. Il est en accord avec des modèles théoriques de type Hubbard qui montrent que les interactions électrons-électrons donnent lieu à un appariement de symétrie  $d$ [119, 29]. De même, cette symétrie est prévue par les mécanismes à base de fluctuations antiferromagnétiques[16, 108]. Cependant, aujourd'hui le mécanisme d'appariement demeure encore inconnu et la symétrie  $d$  n'exclut pas que les phonons jouent un rôle dans la supraconductivité des cuprates[45].

Dans la théorie BCS en couplage faible, le rapport entre le gap supraconducteur à température nulle et la température de transition  $\frac{\Delta(0)}{k_B T_c}$  est constant, ce qui est vérifié pour la plupart des métaux supraconducteurs. Il vaut approximativement 1,76 dans le modèle BCS standard et peut prendre des valeurs plus élevées dans certains composés (Pb, Hg...) qui relèvent alors de l'extension « couplage fort » introduite par Eliashberg[131]. En revanche dans le cas des cuprates, les mesures montrent que  $\Delta(0)$  peut prendre des valeurs jusqu'à  $\sim 10$  fois la valeur de  $k_B T_c$  dans le régime très sous-dopé, ce qui suggère à priori, la nécessité d'une théorie de couplage fort. En revanche, dans le régime sur-dopé, la valeur du rapport  $\frac{\Delta(0)}{k_B T_c}$  se rapproche de celle prédite par la théorie BCS en couplage faible. Les mesures de STM (spectroscopie par effet tunnel) et d'ARPES montrent que dans le régime sous-dopé,  $\Delta(0)$  est une fonction continue décroissante du dopage en porteur

<sup>2</sup>Certains supraconducteurs conventionnels peuvent présenter une légère anisotropie du gap dans l'espace des  $k$ .

<sup>3</sup>Le lecteur pourra se reporter à l'article de revue de Tsuei et Kirtley [134].

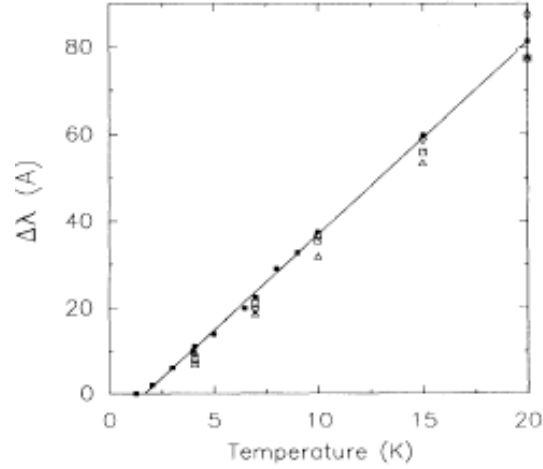


FIG. 1.6 – Mesure de la variation en température de la longueur de pénétration magnétique d'un composé  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . La dépendance linéaire est attendue pour un supraconducteur ayant des noeuds dans le gap[70].

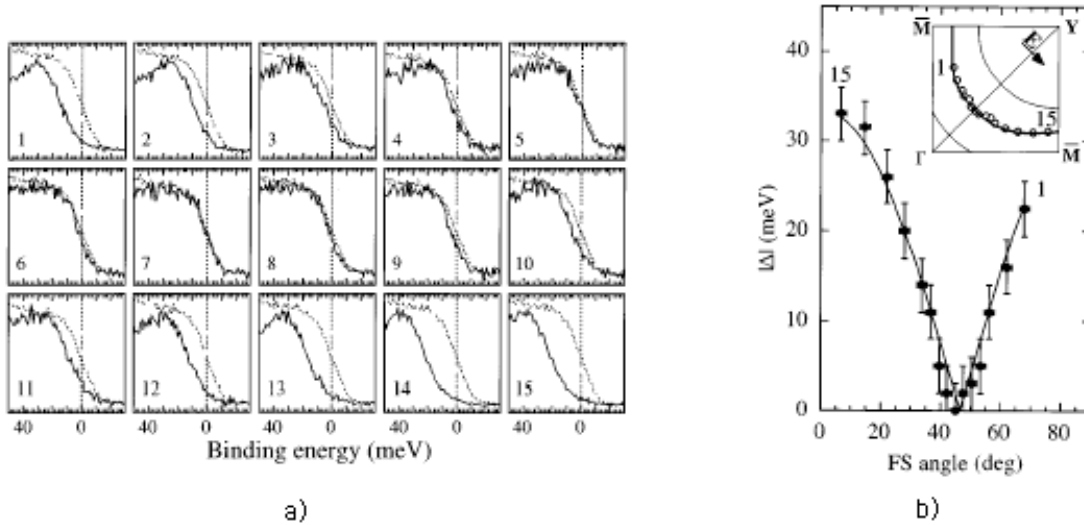


FIG. 1.7 – a) Spectres d'ARPES en fonction de l'énergie, d'un composé Bi2212 optimalement dopé ( $T_c=87K$ ) enregistrés à 13K en différents endroits de la surface de Fermi correspondant aux points 1 → 15 indiqués sur l'insert de la figure b). Les traits pointillés correspondent à la référence de Pt indiquant le niveau de Fermi. b) Dépendance angulaire du gap obtenue à partir des spectres de photoémission de la figure a). La courbe en trait plein correspond à l'ajustement  $d_{x^2-y^2}$ [39].

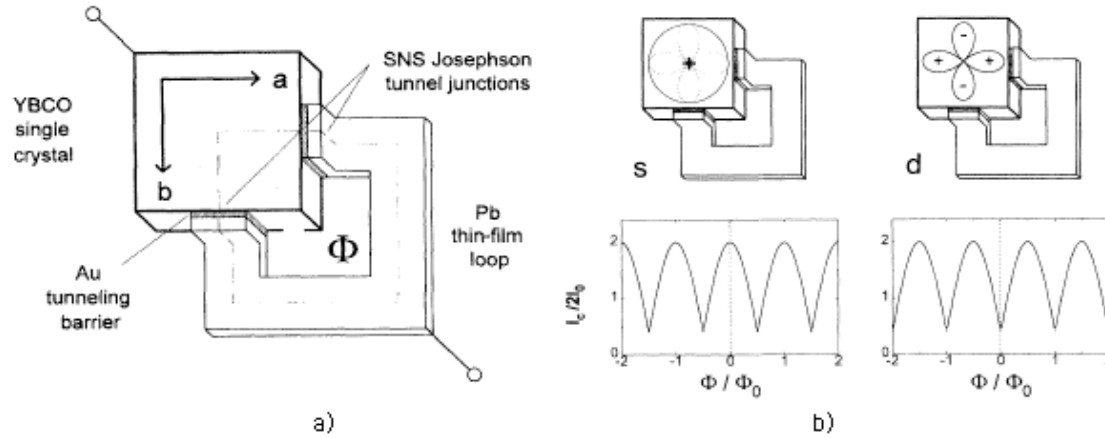


FIG. 1.8 – a) Expérience de type SQUID réalisée pour différencier la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  de la symétrie  $s$  anisotrope. Deux jonctions Josephson sont réalisées sur le coin d'un cristal d' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  avec une couche de  $Pb$ , de façon à ce que l'une des jonctions soit orientée selon l'axe  $a$  et l'autre selon l'axe  $b$ . b) Les courbes  $I_c(\Phi)$  attendues sont calculées pour les deux symétries. Dans le cas d'une symétrie  $d_{x^2-y^2}$ , il existe un déphasage de  $\pi$  dans la boucle du SQUID qui décale les modulations du courant critique d'un demi quantum de flux. Les résultats observés sont nettement en faveur de la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  [146].

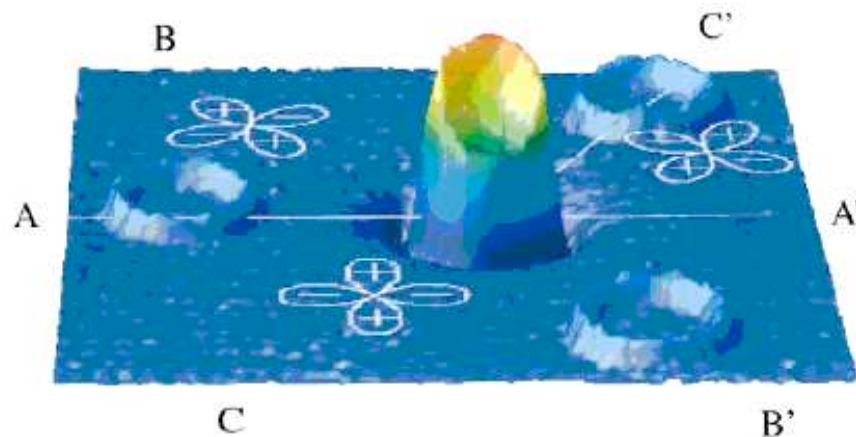


FIG. 1.9 – Expérience du tri-cristal de Tsuei et Kirtley. Un film de Bi2212 est épitaxié sur un substrat composé de trois monocristaux de  $SrTiO_3$  disposés de façon à ce que les trois jonctions Josephson situées au point de jonction du tricristal aient l'orientation décrite sur la figure. Un paramètre d'ordre de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  introduit un déphasage de  $\pi$  autour du point central ce qui génère spontanément un demi quantum de flux détecté par microscopie SQUID [135].

de charges (fig 1.10)[115]. Ces résultats sont en contradiction avec la théorie BCS et suggèrent que la transition supraconductrice des cuprates est très différente de celle des supraconducteurs conventionnels, en particulier dans le régime sous-dopé.

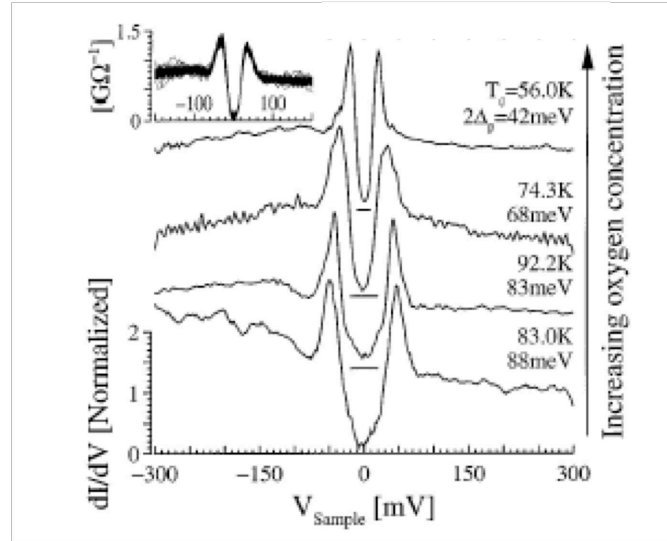


FIG. 1.10 – Spectres tunnel mesurés à 4,2K pour différents dopages du composé au bismuth  $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_{8+\delta}$  (Bi2212). L'origine de la conductance est repérée pour chaque courbe par un trait horizontal. Dans le régime sous-dopé (les deux spectres du bas), l'énergie du gap diminue lorsque le dopage augmente, alors que dans le régime sur-dopé (les deux spectres du haut), l'énergie du gap diminue avec le dopage [115].

### 1.2.3 Les phases « normales »

Si l'état supraconducteur des cuprates est encore mal compris, les propriétés étranges de l'état normal sont encore plus surprenantes et font l'objet de nombreux débats. L'apparition de la supraconductivité résultant d'une instabilité de la phase normale, il est fondamental de comprendre cette dernière au préalable.

Les propriétés physiques des cuprates changent de façon abrupte à la transition supraconductrice ou à la transition de Néel. En revanche, dans la région normale (au-dessus du dôme supraconducteur), les propriétés évoluent de façon graduelle lorsque le dopage est augmenté, et il n'existe pas réellement de ligne de transition stricte. On peut cependant définir trois régions particulières où le comportement des cuprates présente des caractéristiques différentes.

#### 1.2.3.1 La région sur-dopée

L'un des concepts fondamentaux de la physique de la matière condensée est celui de quasiparticule, introduit par Landau. Dans un liquide de Fermi (au sens de Landau), les propriétés des électrons sont renormalisées par les interactions avec les autres électrons et deviennent des quasiparticules. Les propriétés du système électronique peuvent alors être décrites en termes d'interactions résiduelles faibles entre les quasiparticules et leurs excitations. Lorsque cette approche est valide, il existe à température nulle, une frontière bien définie, la surface de Fermi, entre les particules et les trous, en énergie et dans l'espace des vecteurs d'onde. La présence des quasiparticules et l'existence d'une surface de Fermi peuvent être révélées par des mesures d'ARPES.



De façon générale, la théorie de Landau des liquides de Fermi ne permet pas de décrire les propriétés de l'état normal des cuprates car les corrélations entre électrons y sont trop fortes. Cependant, dans la région sur-dopée du diagramme de phase, au fur et à mesure que le dopage augmente, il semble que les propriétés physiques des cuprates se rapprochent de celles d'un liquide de Fermi. Les composés montrent des propriétés « métalliques », leur conductivité dans les plans  $(a, b)$  a une dépendance<sup>4</sup> en  $T^2$  (fig 1.11) et le temps de relaxation des quasi-particules varie en  $\frac{1}{T^2}$ , ce qui correspond à la théorie de Landau des liquides de Fermi. Ceci est également confirmé par les mesures d'ARPES qui montrent une surface de Fermi avec des quasiparticules bien définies [80].

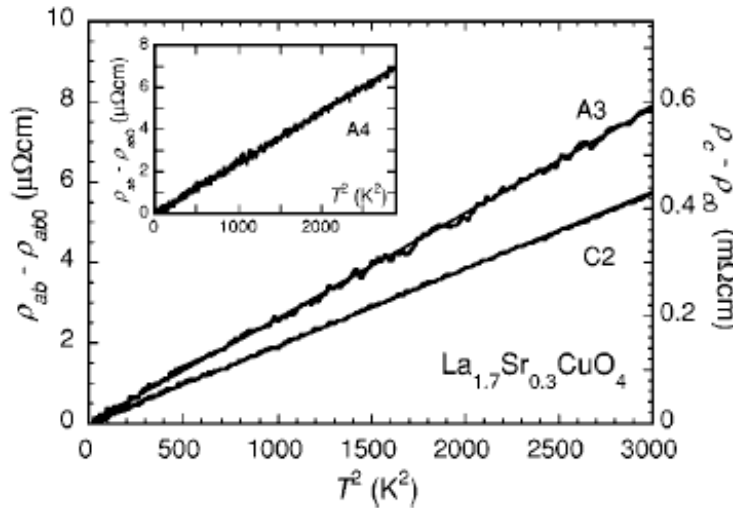


FIG. 1.11 – Résistivité  $\rho_{ab}$  (échantillons A3 et A4) et  $\rho_c$  (échantillon C2) du composé très sur-dopé  $La_{1.7}Sr_{0.3}CuO_4$  en fonction de la température. A ce dopage, le composé ne présente plus de supraconductivité. La dépendance en  $T^2$  est observée entre 100mK et 55K[103].

### 1.2.3.2 La région optimalement dopée

Cette région du diagramme de phase est située au-dessus du sommet du dôme supraconducteur, elle correspond à l'état normal des composés ayant les températures critiques maximales. Leurs propriétés thermodynamiques, telle que la chaleur spécifique, sont en fait assez similaires à celles d'un liquide de Fermi. En revanche, cette région est caractérisée par des lois de transport électronique en fonction de la température exceptionnellement simples et inhabituelles. La résistivité dans le plan  $\rho_{ab}$  est linéaire sur une large gamme de températures pouvant s'étendre de 10K à  $\sim 700$ K dans le cas du composé au Bismuth 2201 (fig 1.13) [17]. Cette dépendance est en principe incompatible avec la théorie du Liquide de Fermi qui prévoit que la résistivité est dominée à basse température par une loi en  $T^2$ . C'est la raison pour laquelle cette région est souvent appelée liquide Fermi anormal ou marginal. Les mesures de spectroscopie par photoémission résolue en angle (ARPES) (fig 1.12) montrent qu'il est possible de définir une surface de Fermi mais que les quasiparticules ne sont pas bien définies [80]. En revanche, il est surprenant de constater que lorsque la température est abaissée au-dessous de  $T_c$  les mêmes expériences montrent l'existence de pics de quasiparticules bien définies dans la phase supraconductrice. Une description phénoménologique du liquide de Fermi marginal a été donnée par Varma et Littlewood[139]. L'idée principale est que les électrons du système interagissent avec un spectre d'excitation bosonique dont la seule énergie caractéristique est la température.

<sup>4</sup>La dépendance exacte en  $T^2$  n'est vérifiée que pour des composés très sur-dopés, au-delà du dôme supraconducteur.

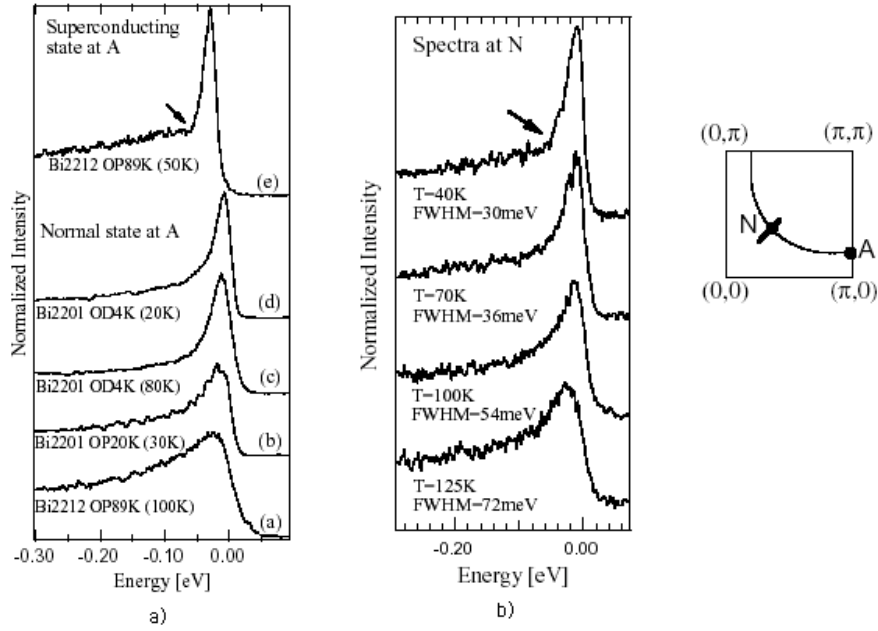


FIG. 1.12 – Spectres d'ARPES mesurés au point A de la zone de Brillouin pour des composés optimalement dopés et très sur-dopés. Le spectre à 100K du composé Bi2212 optimalement dopé ( $T_c=89\text{K}$ ) ne fait pas apparaître de pic de quasiparticules. En revanche ce pic est présent dans l'état superconducteur (40K). Dans le cas des composés sur-dopés Bi2201 ( $T_c=4\text{K}$ ), le pic de quasiparticules est observé à l'état normal quelque soit la température. b) Spectres d'ARPES mesurés au point N de la zone de Brillouin pour le composé Bi2212 optimalement dopé. Dans l'état normal, le pic de quasiparticules évolue continûment en un massif incohérent lorsque la température augmente [80].

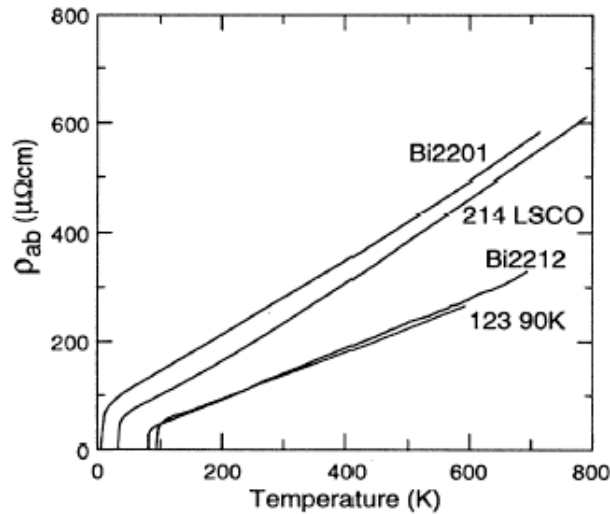


FIG. 1.13 – Résistivité  $\rho_{ab}$  de différents composés optimalement dopés montrant une dépendance linéaire avec la température [17].

### 1.2.3.3 La région sous-dopée

De nombreuses techniques expérimentales ont été utilisées pour sonder les propriétés thermodynamiques et les propriétés de transport des cuprates sous-dopés. Elles révèlent toutes des résultats très différents de ceux observés dans les régions optimalement dopée et sur-dopée. Les anomalies apparaissent généralement en-dessous d'une température  $T^*$  qui varie en fonction du dopage des composés. Expérimentalement, cette ligne de transition  $T^*(x)$  (où  $x$  est le dopage) est mal définie car il est souvent difficile de déterminer précisément les températures auxquelles les phénomènes apparaissent et de concilier les résultats obtenus par les différentes sondes expérimentales. La manifestation la plus frappante du comportement non conventionnel des cuprates sous-dopés est l'ouverture d'un gap partiel dans le spectre des excitations au-dessus de la température de transition critique et en dessous de  $T^*$ . Ce gap semble exister dans tous les cuprates étudiés jusqu'à maintenant, à la fois dans le canal de charge et de spin. Afin de le distinguer du gap supraconducteur qui lui, existe en dessous de la température critique, ce gap partiel a été nommé pseudogap.

Nous présentons ici quelques uns des résultats les plus marquants obtenus sur le pseudogap ces dernières années. Pour une revue complète, le lecteur pourra se référer à l'article de Timusk et Statt [130].

## 1.3 Le pseudogap

### 1.3.1 Résonance Magnétique Nucléaire

Historiquement, il s'agit de la première technique qui a permis de mettre en évidence l'existence du pseudogap dans un cuprate sous-dopé. La RMN permet de sonder les états électroniques sur différents sites du réseau, grâce au couplage des noyaux avec les électrons de conduction. Cependant, elle n'est sensible qu'aux excitations de spin et ne permet pas d'obtenir de renseignements sur l'état des charges. Deux types de mesures font clairement apparaître l'ouverture d'un gap de spin au-dessus de la  $T_c$  : le décalage de Knight (Knight shift) et le temps de relaxation spin-réseau  $T_1$ .

#### 1.3.1.1 Knight shift

Dans un matériau conducteur les spins électroniques des porteurs de charges, qui acquièrent une polarisation sous l'influence du champ magnétique statique, sont en interaction avec les spins nucléaires. Le Knight shift ( $K_S$ ) mesure le décalage de la fréquence de résonance dû à cette interaction ; il est proportionnel à la partie réelle de la susceptibilité de spin  $\chi'(q=0, \omega)$ . Dans un liquide de Fermi, le Knight shift est proportionnel à la densité d'états électroniques au niveau de Fermi et donc indépendant de la température. Dans l'état supraconducteur, on s'attend à ce que la condensation des paires de Cooper dans un état singulet de spin provoque une chute brutale du Knight shift. Walstedt *et al* ont mesuré le Knight shift des noyaux de  $^{63}\text{Cu}$  ( $^{63}K_S$ ) pour des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (fig 1.14)[142]. Dans le composé optimalement dopé, le comportement est celui attendu pour un liquide de Fermi,  $^{63}K_S$  est indépendant de la température dans l'état normal puis chute en dessous de la température de transition. En revanche, dans le cas du composé sous dopé,  $^{63}K_S$  diminue continûment depuis la température ambiante jusqu'à basse température sans faire apparaître de discontinuité à  $T_c$ . Cette décroissance a été interprétée comme l'existence d'un gap à  $q=0$  dans le spectre des excitations de spin. Un comportement identique du Knight shift a également été observé sur les noyaux d' $^{17}\text{O}$  (fig 1.15)[128] et  $^{89}\text{Y}$  (fig 1.14)[5]. Les mesures de  $^{89}K_S$  suggèrent que la température en dessous de laquelle le Knight shift commence à décroître (notée  $T^0$ ) augmente lorsque le dopage diminue.  $T^0$  atteint rapidement des valeurs supérieures à la température ambiante, ce qui rend les mesures d'autant plus délicates.

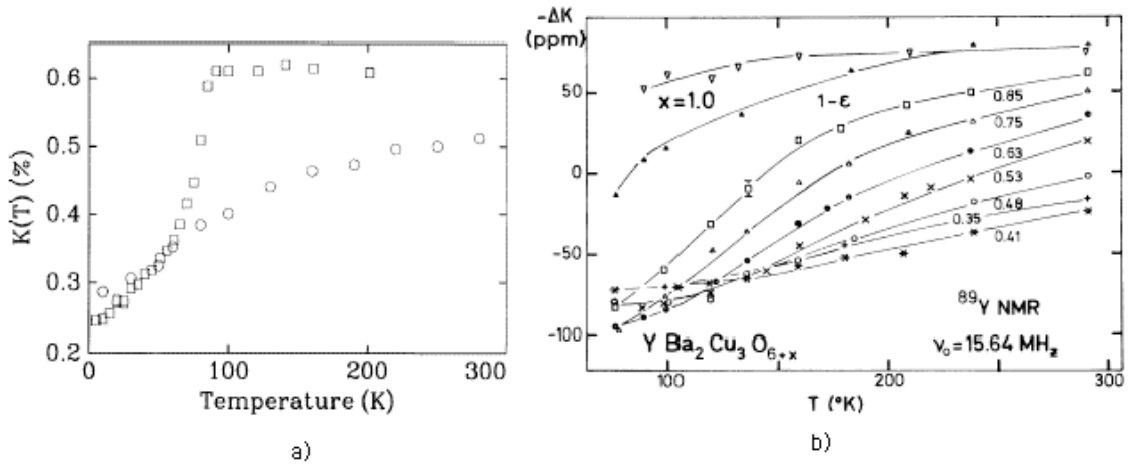


FIG. 1.14 – a) Evolution de  $^{63}K_S$  en fonction de la température pour un composé sous-dopé  $YBa_2Cu_3O_{6.64}$  ( $\square$ ) et un composé optimalement dopé  $YBa_2Cu_3O_{6.95}$  ( $\circ$ )[142]. b) Evolution de  $^{89}K_S$  en fonction de la température pour différents dopages du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ [5].

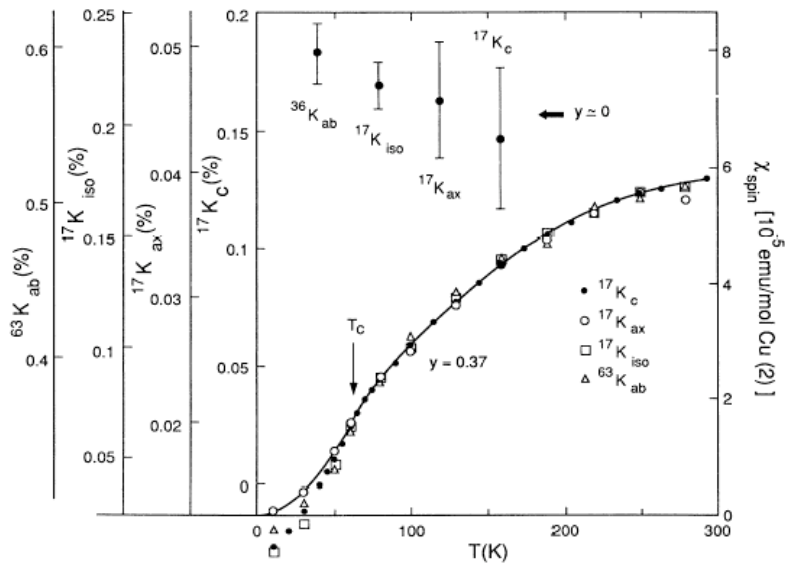


FIG. 1.15 – Evolution des différentes composantes de  $^{63}K_S$  et  $^{17}K_S$  en fonction de la température pour des composés  $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ [128].

### 1.3.1.2 Temps de relaxation spin-réseau

Le temps de relaxation spin-réseau  $T_1$  est relié à la partie imaginaire de la susceptibilité selon l'expression

$$\frac{1}{T_1} = \frac{k_B T}{4\mu_B^2 \hbar^2} \sum_q |F(q)|^2 \frac{\chi''(q, \omega)}{\omega} \quad (1.1)$$

où  $F(q)$  est le facteur de forme du site nucléaire.

Warren *et al* ont été les premiers à observer le pseudogap en mesurant le temps de relaxation des noyaux de  $^{63}\text{Cu}$  de composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  sous-dopé[143]. La figure 1.16 présente les temps de relaxation spin-réseau pour des composés sous-dopés et optimalement dopés. Dans le composé optimalement dopé,  $1/T_1$  augmente avec une loi de type Curie-Weiss lorsque la température diminue, puis chute rapidement en dessous de  $T_c$ . Dans le composé sous-dopé,  $1/T_1$  augmente également lorsque la température diminue, mais commence à décroître à une température supérieure  $T_c$ . En revanche, la variation de  $1/T_1$  observée sur les noyaux d'oxygène est monotone. Dans les deux cas, aucune signature n'est observée à la température de transition, contrairement à ce qui est observé sur les composés optimalement dopés. Ces résultats ont été interprétés comme une preuve de l'existence de fluctuations antiferromagnétiques de spins, de vecteur d'onde  $q = Q_{AF} = (\pi, \pi)$ . Ceci sera confirmé ensuite par des mesures de diffusion inélastique des neutrons [116]. Les différences de comportements entre les différents noyaux s'expliquent par le fait que l'O n'est pas sensible aux fluctuations AF par un effet de facteur de forme, alors que le Cu l'est.

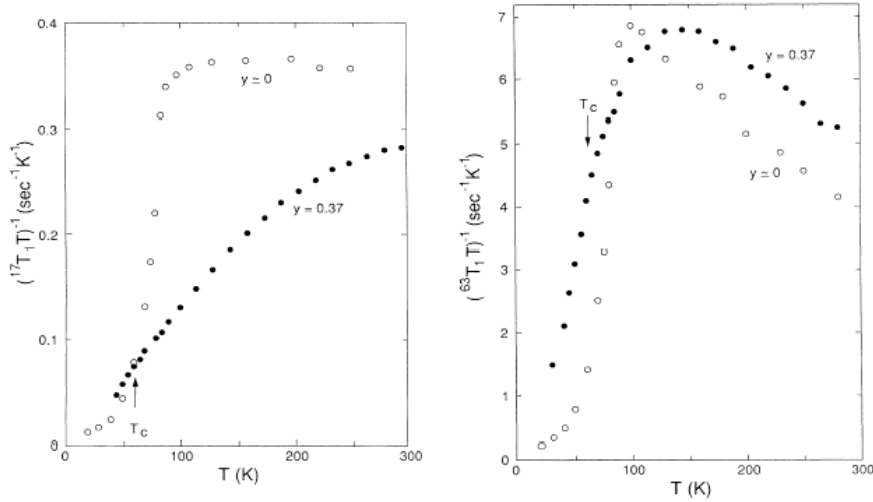


FIG. 1.16 – a) Dépendance en température de  $\frac{1}{T_1 T}$  pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.63}$  sous dopé. b) Dépendance en température de  $\frac{1}{T_1 T}$  pour un composé sous-dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.63}$  et optimalement dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ [128].

### 1.3.1.3 Gap de spin

La dépendance en température anormale du Knight shift et du temps de relaxation spin-réseau dans les cuprates sous-dopés sont les caractéristiques de l'existence d'un gap dans le spectre des excitations de spin. Cependant, les températures où apparaissent les différentes manifestations de ce pseudogap ne sont pas toutes identiques. La chute de  $1/T_1 T$  du  $^{63}\text{Cu}$  à une température  $T^*$  correspond à l'ouverture d'un pseudogap de spin à  $q = Q_{AF}$  qui a été vu sur de nombreux composés ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ ,  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ,  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ ,  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}\dots$ ). Sur tous ces composés, il a été constaté que  $T^*$  diminue lorsque le dopage augmente et devient très proche

de  $T_c$  au dopage optimal.

La susceptibilité statique ( $q = 0$ ) obtenue à partir de  $K_S$  commence à décroître lentement à partir d'une température  $T^0$  très supérieure à  $T^*$  et décroît ensuite plus rapidement au fur et à mesure que la température est abaissée. Ce comportement a également été observé sur tous les composés à un, deux ou trois plans  $CuO_2$ ; il est interprété par l'ouverture d'un pseudogap de spin à  $q = 0$ . A l'heure actuelle, il n'existe toujours pas de consensus concernant le lien exact entre le pseudogap en  $q = (\pi, \pi)$  et en  $q = 0$ .

Dans toutes ces expériences, la réponse des spins ne montre aucune anomalie particulière à  $T_c$ , comme si la formation de singlets se passait à haute température ( $T^*$  ou  $T^0$ ).

### 1.3.2 Spectroscopie tunnel

Dans les années 60, la spectroscopie par jonction tunnel a sans doute été la technique la plus performante pour étudier la densité d'états électroniques et déterminer le gap des supraconducteurs conventionnels [54]. Pour des raisons qui seront développées dans le chapitre 2, l'apport des jonctions tunnel n'a pas été aussi déterminant dans le cas des supraconducteurs à haute température critique. En revanche, le développement récent des microscopes à effet tunnel a ouvert une nouvelle voie à la spectroscopie tunnel et a permis d'obtenir de bien meilleurs résultats qu'avec les jonctions.

La qualité de la surface des échantillons étant un paramètre déterminant, les résultats les plus significatifs ont été obtenus sur des cristaux de Bi2212 qui peuvent être facilement clivés selon les plans  $BiO$  directement dans l'environnement ultra-vide du STM. En 1998, Renner *et al* ont été les premiers à mettre en évidence un pseudogap dans la densité d'états d'un composé Bi2212 sous-dopé (fig 1.17)[115]. A basse température, les courbes font apparaître un gap supraconducteur d'énergie 45 meV avec deux pics de quasiparticules symétriques. Lorsque la température augmente et dépasse  $T_c = 83$  K, les pics de cohérence disparaissent mais un gap partiel persiste dans l'état normal jusqu'à une température proche de l'ambiante. Après les mesures RMN qui montrent l'existence d'un gap de spin, ces mesures confirment qu'il existe également un pseudogap dans le canal de charges.

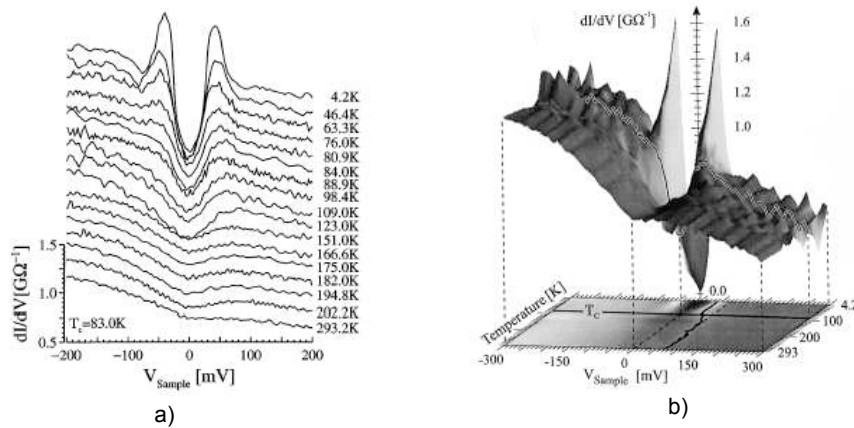


FIG. 1.17 – a) Spectres tunnel mesurés à différentes températures pour un composé Bi2212 sous dopé ayant une  $T_c$  de 83 K. L'origine de la conductance est décalée à chaque température pour plus de clarté. b) Vue en trois dimensions des spectres de conductance présentés en a). On peut vérifier qu'à  $T=4,2$ K, la conductance à  $V_{Sample} = 0$  est quasiment nulle[115].

On notera également dans ces mesures, une asymétrie entre les deux moitiés de la courbe correspondant à une tension de polarisation négative (retrait des électrons du supraconducteur) ou positive (injection d'électrons dans le supraconducteur). Le pic de quasiparticules correspondant à une polarisation positive persiste légèrement dans l'état normal alors que celui correspondant à une polarisation négative disparaît immédiatement à la  $T_c$ . Dans l'état supraconducteur, l'énergie du gap, mesurée pic à pic<sup>5</sup>, est indépendante de la température, ce qui est en contradiction avec la théorie BCS dans laquelle le gap se ferme lorsque la température augmente. Ce comportement est également observé dans le cas du pseudogap, qui se remplit lorsque la température augmente mais dont la largeur en énergie reste constante.

A la vue des spectres de la figure 1.17, il semble qu'il existe une étroite relation entre le gap supraconducteur et le pseudogap. Les deux sont situés au niveau de Fermi ( $V_{sample} = 0$ ), leurs énergies sont indépendantes de la température et ont une valeur identique de part et d'autre de la température de transition. Il semble donc que l'on passe continûment de l'état supraconducteur à l'état normal lorsque la température augmente. Cette expérience constitue l'argument principal mis en avant par les partisans d'une origine commune aux deux phénomènes. Les mesures STM effectuées sous champ magnétique révèlent également la présence d'un pseudogap sans pic de cohérence à l'intérieur du coeur des vortex ce qui suggère que lorsque la supraconductivité est détruite, la phase normale qui apparaît sous le dôme supraconducteur est la phase de pseudogap.

Plus récemment, les expériences de STM ont révélé la présence de modulations de charges de vecteur d'onde incommensurable avec le réseau<sup>6</sup>(fig 1.18), dans un composé Bi2212 sous-dopé[141]. Ces modulations sont observées à la fois dans l'état supraconducteur avec un vecteur d'onde dépendant de l'énergie et dans l'état supraconducteur avec un vecteur d'onde indépendant de l'énergie. Le vecteur d'onde est d'environ quatre fois le pas du réseau, ce qui correspond à la valeur prédite par les modèles de stripes (cf section 1.3.7.1). Cependant, la transformée de Fourier des scan STM (fig 1.19) fait apparaître un « checkerboard » à deux dimensions qui diffèrent de la vision habituelle des stripes unidimensionnelles. Une autre explication évoquée par les auteurs met en jeu un ordre local résultant du piégeage des fluctuations de spins par les défauts. Il pourrait exister une corrélation entre cet ordre de spin observé en diffraction de neutrons[27] et l'ordre de charge mesuré par STM, d'autant que les vecteurs d'onde des modulations semblent correspondre approximativement. Cependant, il n'existe pas aujourd'hui de consensus théorique sur le fait que des fluctuations de spins puissent à elles seules expliquer l'ouverture d'un pseudogap dans le canal de charges.

### 1.3.3 Photoémission résolue en angle

La spectroscopie par photoémission résolue en angle (ARPES) est une technique qui permet de mesurer l'énergie et le moment des états électroniques occupés d'un matériau<sup>7</sup>. Elle a connu un développement très important cette dernière décennie et joué un rôle majeur dans la compréhension des excitations électroniques des oxydes supraconducteurs à haute température critique. La résolution en énergie ( $\sim 1meV$ ) s'adapte bien aux cuprates dont les énergies caractéristiques sont relativement élevées ( $\Delta \sim 20meV$ ). La nature quasi-bidimensionnelle de la structure électronique des cuprates (en particulier les composés au bismuth) permet de déterminer le vecteur  $k$  de l'état initial puisque la composante parallèle est conservée dans le processus de photoémission. En outre, c'est la seule technique spectroscopique qui permet une résolution dans l'espace des  $k$  ce qui en fait un outil privilégié dans l'étude des cuprates qui sont des composés très anisotropes.

Après le succès obtenu dans la détermination de la symétrie  $d$  du paramètre d'ordre supraconducteur, l'une des contributions les plus importantes de l'ARPES à l'étude des supraconducteurs

<sup>5</sup>Il faut également tenir compte de l'effet de convolution par la fonction de Fermi.

<sup>6</sup>Des modulations commensurables ont été observé dans le cas de  $Na_xCa_{2-x}CuO_2Cl_2$ [69].

<sup>7</sup>Le lecteur intéressé par l'ARPES pourra consulter les articles de revue de Campuzano[22] et Damascelli[30].

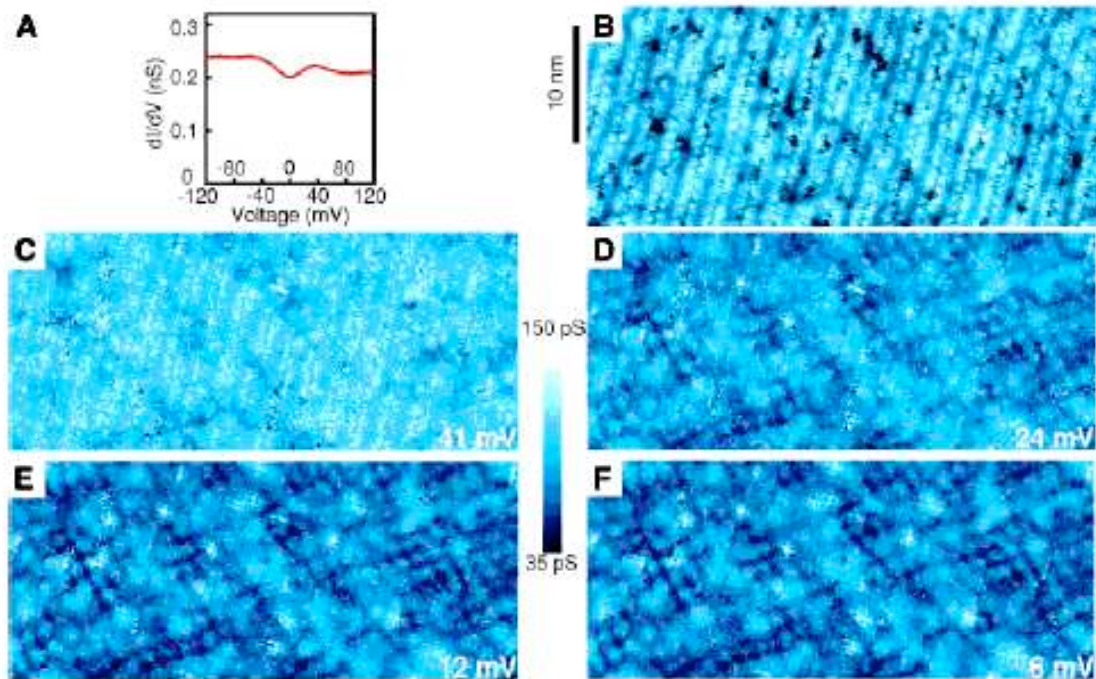


FIG. 1.18 – Les mesures STM présentées dans cette figure ont été obtenues à 100K sur un composé Bi2212 sous-dopé ( $T_c=80\text{K}$ ). a) Spectre de conductance en fonction de la tension qui fait apparaître la présence du pseudogap. b) Topologie de la surface de l'échantillon clivé sous ultra-vide. c→f) Cartes de conductance dans l'espace réel correspondant à différentes énergies qui montrent les modulations spatiales de la densité d'état dans les directions des liaisons Cu-O. [141]

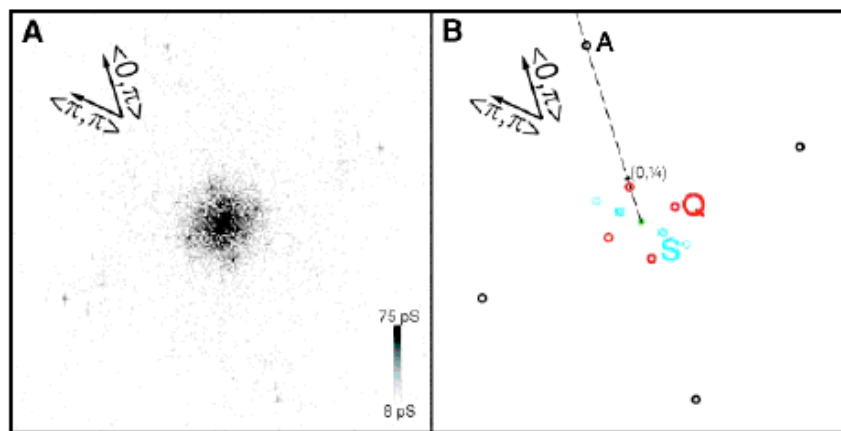


FIG. 1.19 – a) Exemple de transformée de Fourier d'une carte de conductance à 15 meV. b) Interprétation des pics de la transformée de Fourier. Les pics notés A et S correspondent à la structure du cristal et les pics Q aux modulations de la densité d'états électronique. [141]



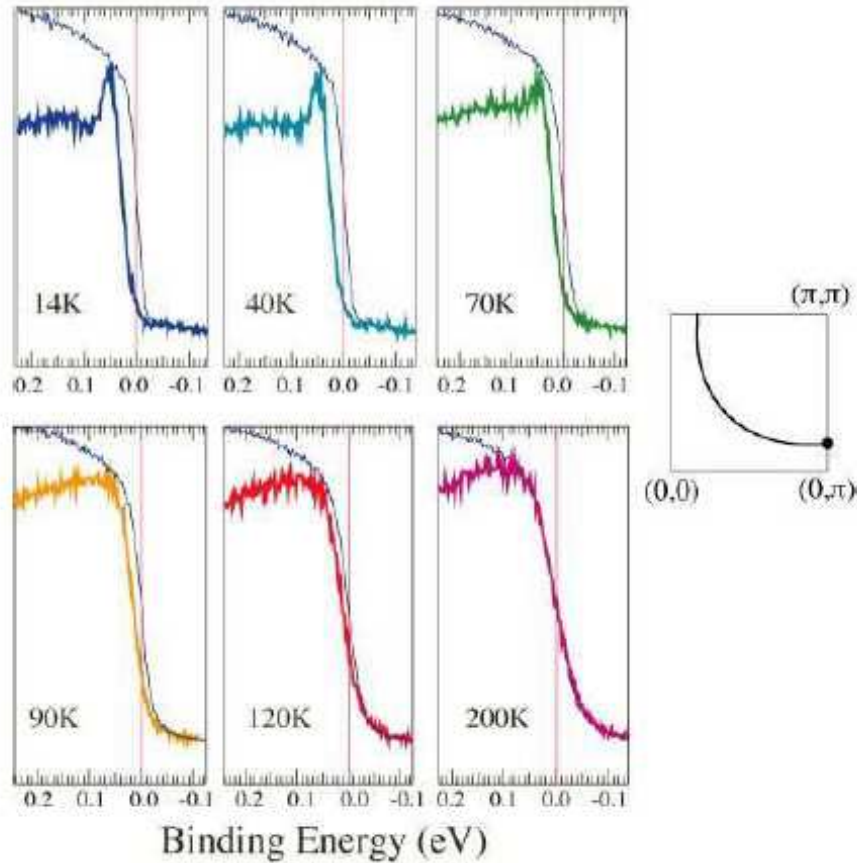


FIG. 1.20 – Spectres ARPES à différentes températures mesurés près du point  $(\pi, 0)$  pour un composé Bi2212 légèrement sous-dopé ( $T_c=83K$ ) (courbe en trait plein épais). Les courbes en traits fins représentent les spectres de référence de l'échantillon de platine [38].

à haute température critique concerne le pseudogap. Dans une expérience de photoémission, la longueur d'échappement des électrons est typiquement de l'ordre de  $10\text{\AA}$ . Il s'agit donc d'une sonde qui nécessite l'utilisation d'échantillons ayant des surfaces très propres. Pour cette raison, les études se sont concentrées sur les composés de type  $Bi_2Sr_2Ca_{n-1}Cu_nO_{2n+4+\delta}$  dont les cristaux clivés sous ultra-vide offrent des surfaces adéquates.

### 1.3.3.1 Pseudogap en $(\pi, 0)$

La figure 1.20 décrit l'évolution en température du spectre ARPES près du point  $(\pi, 0)$  de la surface de Fermi d'un composé Bi2212 légèrement sous-dopé ( $T_c=83K$ ) [38]. A haute température ( $T > T^*$ ), le bord du spectre du supraconducteur coïncide avec le spectre de l'échantillon de référence en platine, ce qui signifie que des états électroniques existent au niveau de Fermi. Lorsque la température est abaissée en dessous de  $T^* \approx 180K$  le bord du spectre (leading edge gap) se déplace en-dessous de l'énergie de Fermi, indiquant une perte de poids spectral : un gap dans les excitations se creuse au niveau de Fermi. Les auteurs observent cette structure de gap pour des températures comprises entre  $T_c = 83K$  et  $T^* = 180K$ . L'apparition de l'état supraconducteur à  $T_c$  se manifeste uniquement par l'apparition du pic de cohérence, les énergies du pseudogap et du gap supraconducteur sont identiques de part et d'autre de la transition. L'évolution entre l'état de pseudogap et l'état supraconducteur se fait continûment comme cela avait été observé dans les expériences de STM. La figure 1.21 présente la dépendance de  $T^*$  en fonction du dopage pour le composé Bi2212, obtenue à partir des spectres d'ARPES.

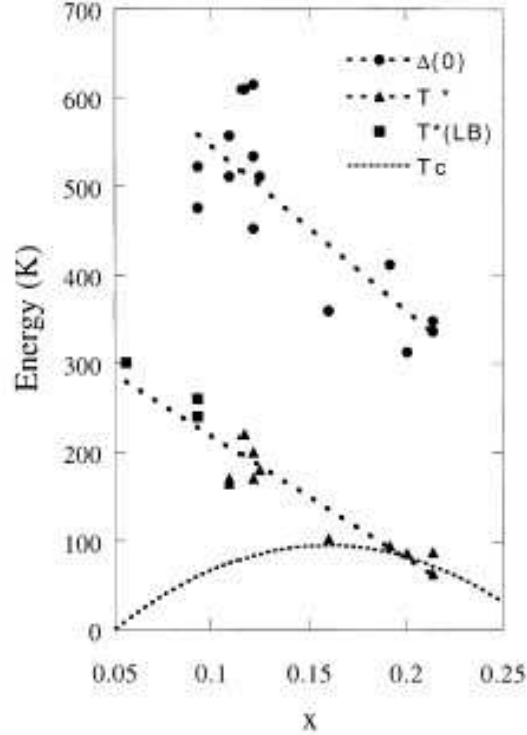


FIG. 1.21 – Evolution de  $T^*$  en fonction du dopage  $x$  en porteur de charges pour le composé Bi2212 (triangles et carrés). Le trait fin représente le dôme supraconducteur obtenu par la relation empirique  $T_c/T_c^{max} = 1 - 82,6(x - 0,16)^2$  ( $T_c^{max} = 95K$ ). La partie supérieure de la figure représente l'évolution du gap maximum  $\Delta(0)$  en fonction du dopage[38].

### 1.3.3.2 Anisotropie du Pseudogap

Nous venons de voir que le pseudogap et le gap supraconducteur observé par ARPES sont très similaires. Se pose alors la question de savoir si le pseudogap a une symétrie identique à celle du gap supraconducteur. La figure 1.22 représente la dépendance en  $k$  du pseudogap pour différents échantillons de Bi2212[30]. La conclusion est que le pseudogap est anisotrope avec une dépendance en  $k$  très similaire à celle du gap supraconducteur. Des résultats identiques ont été obtenus sur des composés Bi2201 et Bi2223[30].

La dépendance en température de cette anisotropie a également été étudiée en détails. La figure 1.23 montre les spectres ARPES d'un composé Bi2212 sous-dopé ( $T_c=83K$ ) obtenus à différentes températures pour trois points de la surface de Fermi correspondant à des valeurs de  $\vec{k}$  différentes[105].

En dessous de  $T_c$ , l'amplitude du gap supraconducteur décroît lorsque le vecteur  $k$  se rapproche du point nodal de la surface de Fermi ( $a \rightarrow b \rightarrow c$ ) comme cela est attendu pour une symétrie  $d$ . Dans les trois cas, les pics de cohérence disparaissent à la même température ( $T_c=83K$ ) et un pseudogap persiste à plus haute température. Cependant il apparaît clairement que le pseudogap se ferme à des températures différentes pour les trois points de la surface de Fermi. Au point a (près de  $(\pi, 0)$ ), le pseudogap existe jusqu'à 180K, mais si on se déplace sur la surface de Fermi vers le point nodal, le pseudogap se ferme à des températures de plus en plus réduites (120K au point b et 95K au point c). Ces résultats sont illustrés sur la figure 1.23 f). Lorsque la température décroît, le pseudogap s'ouvre d'abord près de  $(\pi, 0)$  puis détruit ensuite progressivement la surface de Fermi

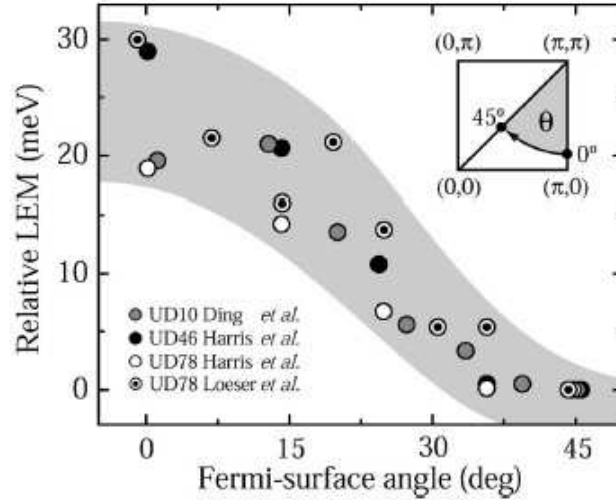


FIG. 1.22 – Dépendance en  $k$  du pseudogap le long de la surface de Fermi supposée pour des échantillons de Bi2212 de différents dopages (les valeurs des  $T_c$  correspondent au nombre donné dans le nom de l'échantillon -ex UD46 signifie  $T_c=46\text{K}$ -). Les énergies du pseudogap ont été décalées de façon à obtenir 0 pour un angle de 45 degrés[30].

jusqu'à ce qu'elle soit réduite en un point unique dans la direction nodale pour une température voisine de  $T_c$ , la précision actuelle des mesures ne permettant pas d'identifier exactement cette température.

### 1.3.4 Chaleur spécifique

La chaleur spécifique est l'une des rares sondes thermodynamiques de l'état supraconducteur, elle a été largement étudiée dans les supraconducteurs à haute température critique. Loram *et al* ont mesuré la chaleur spécifique de composés  $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  pour différents dopages dans le régime sous-dopé et sur-dopé (fig 1.24)[97].

Dans le cas des composés sur-dopés, le coefficient de chaleur spécifique électronique<sup>9</sup>  $\gamma = \frac{C}{T}$  est indépendant de la température dans l'état normal jusqu'au voisinage de  $T_c$ . Étant donné que  $\gamma$  est proportionnel à la densité d'états au niveau de Fermi, ce résultat montre que le composé sur-dopé se conduit comme un métal normal. La dépendance linéaire observée au-dessous de  $T_c$  s'explique par la présence de noeuds dans le paramètre d'ordre supraconducteur. Dans le cas des composés sous-dopés,  $\gamma$  n'est plus indépendant de la température mais commence à décroître en dessous d'une température  $T^*$  supérieure à  $T_c$ . Lorsque le dopage diminue la décroissance observée est plus importante et  $T^*$  augmente. Cet effet a été interprété comme étant la signature d'un pseudogap dans les excitations du supraconducteur. Cependant, la chaleur spécifique étant sensible à la fois aux degrés de liberté de spins et de charges, il n'est pas possible avec ces seules données de conclure sur la nature du pseudogap. Loram *et al* ont également mesuré la susceptibilité magnétique  $\chi$  des différents composés et calculé le rapport  $a_0 = \frac{S}{\chi}$  où  $S$  est l'entropie du système obtenue par intégration de  $\gamma$ . Le rapport est indépendant de la température, ce qui montre que les densités d'états de spins et de charges sont affectées de façon identique.

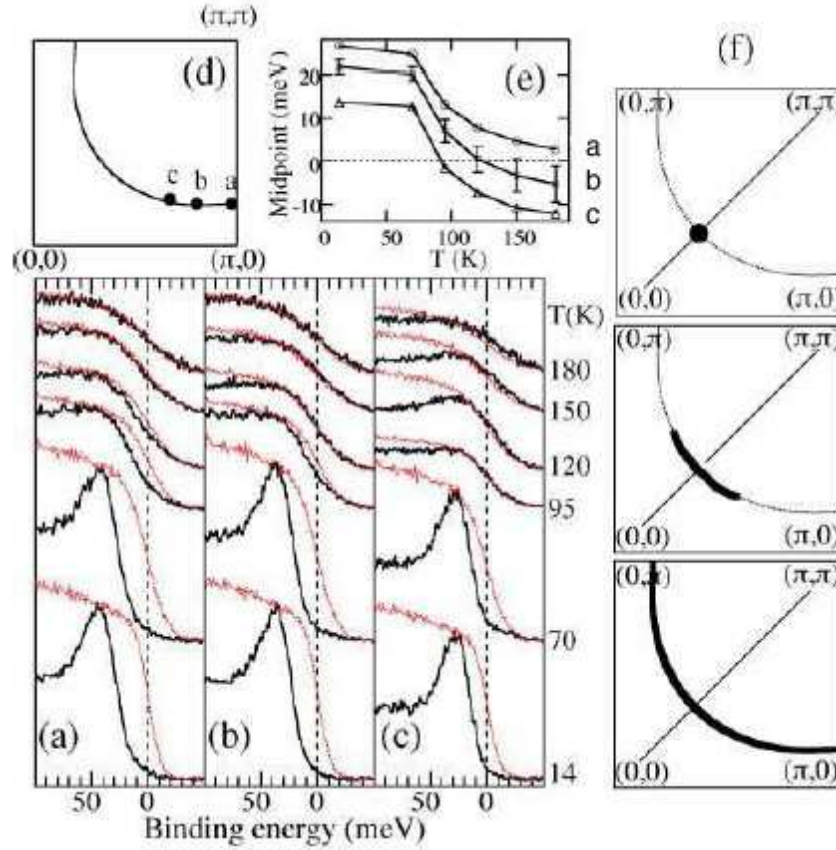


FIG. 1.23 – a,b,c) Spectres ARPES obtenus en trois points de la surface de Fermi montrés en d). Les courbes en traits fins correspondent aux spectres de référence de l'échantillon en platine. e) Evolution du point milieu du bord du spectre en fonction de la température pour les trois points a,b et c. f) illustration de l'évolution en température de la surface de Fermi d'un cuprate sous-dopé. En dessous de  $T_c$  (figure du haut), la surface de Fermi est réduite à un point nodal. Dans le régime du pseudogap, ce point se transforme en un arc qui s'étend lorsque la température augmente (figure intermédiaire) pour former la surface de Fermi au-dessus de  $T^*$  [105].

## 1.3.5 Conductivité optique

### 1.3.5.1 Taux de diffusion

Les mesures de conductivité infrarouge dans le plan ( $a, b$ ) analysées dans le cadre du modèle de drude généralisé permettent de déterminer le taux de diffusion ( $1/\tau$ ) en fonction de la fréquence  $\omega$ . La figure 1.25 montre la dépendance en fréquence de  $1/\tau$  à différentes températures dans le cas d'un composé sous-dopé Bi-2212 [112]. A haute fréquence ( $> 700 \text{cm}^{-1}$ ), la dépendance en fréquence est approximativement linéaire et il n'y a pas de dépendance en température. A basse fréquence ( $< 700 \text{cm}^{-1}$ ), on observe une suppression du taux de diffusion en dessous de 150K de plus en plus prononcée à mesure que la température diminue. Cet effet a été interprété comme une manifestation de l'ouverture d'un pseudogap dans le spectre des excitations de charges. On remarquera également qu'il n'y a pas de modification particulière des spectres lorsque le composé entre dans l'état supraconducteur. La figure 1.25 montre que le spectre du taux de diffusion d'un composé  $YBa_2Cu_3O_7$  optimalement dopé dans l'état supraconducteur est similaire à ceux d'un composé sous-dopé  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  dans l'état de pseudogap et dans l'état supraconducteur, ce qui

<sup>8</sup>Le dopage au calcium permet de balayer une large partie du diagramme de phase autour de  $T_c$  optimale.

<sup>9</sup>Une fois retirée la contribution des phonons.

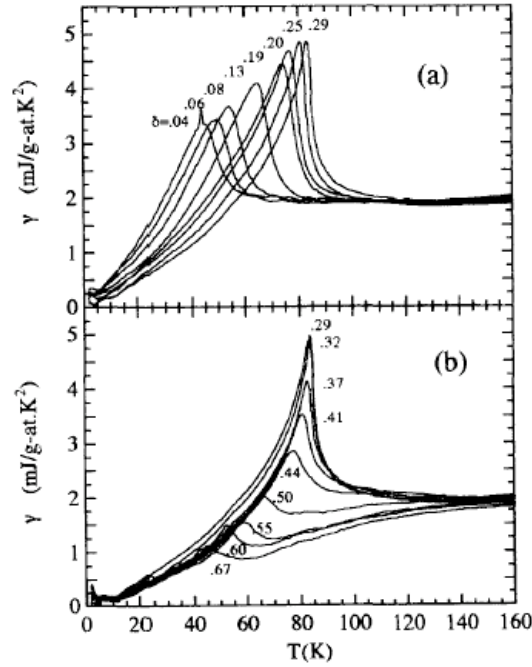


FIG. 1.24 – Dépendance en température du coefficient de chaleur spécifique  $\gamma = \frac{C}{T}$  pour des composés  $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  sur-dopés (en haut) et sous-dopés (en bas)[97].

suggère que le pseudogap et le gap supraconducteur sont étroitement liés[111].

### 1.3.5.2 Conductivité c-axis

L'effet du pseudogap est également clairement observé dans les mesures de conductivité c-axis où il se manifeste par une perte de poids spectral en dessous de  $T^*$ . La figure 1.26 montre les spectres de conductivité après soustraction de la contribution des phonons mesurés sur  $YBa_2Cu_3O_{6.7}$  sous-dopé à différentes températures. A haute température (295K),  $\sigma_c$  est indépendant de la fréquence. La perte de poids spectral apparaît en dessous de  $400cm^{-1}$  lorsque la température est abaissée. On remarquera que cette fréquence ne varie pas avec la température, alors que l'intensité de  $\sigma$  diminue, ce qui est en accord avec les mesures d'ARPES et de STM qui montrent que l'énergie du pseudogap ne dépend pas de la température.

### 1.3.6 Résistivité dc

Les mesures de résistivité  $\rho_{ab}$  dans les composés optimalement dopés montrent une dépendance linéaire avec la température sur plusieurs décades. Dans les composés sous-dopés, cette dépendance linéaire est observée seulement à haute température. Le pseudogap se manifeste par une réduction de la résistivité en dessous d'une température  $T^*$  (fig 1.27)[123]. La figure 1.28 a) présente des courbes  $\frac{\rho_{ab}(T) - \rho_{ab}(0)}{\alpha T}$  ( $\rho_{ab}(0)$  est la résistivité à  $T=0$  et  $\alpha$  la pente de la partie linéaire) obtenues pour des composés  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  de différents dopages[73]. La température à laquelle la déviation est observée augmente lorsque le dopage diminue. Elle correspond approximativement à la température  $T^0$  mesurées en RMN correspondant à la décroissance du Knight shift. Cette réduction de la résistivité est associée à la baisse de la diffusion qui résulte de la perte de poids spectral des excitations.

La réponse selon l'axe  $c$  est très différente de celle des plans  $(a, b)$ . Le pseudogap se manifeste par une augmentation forte de la résistivité lorsque la température diminue, révélant un comportement

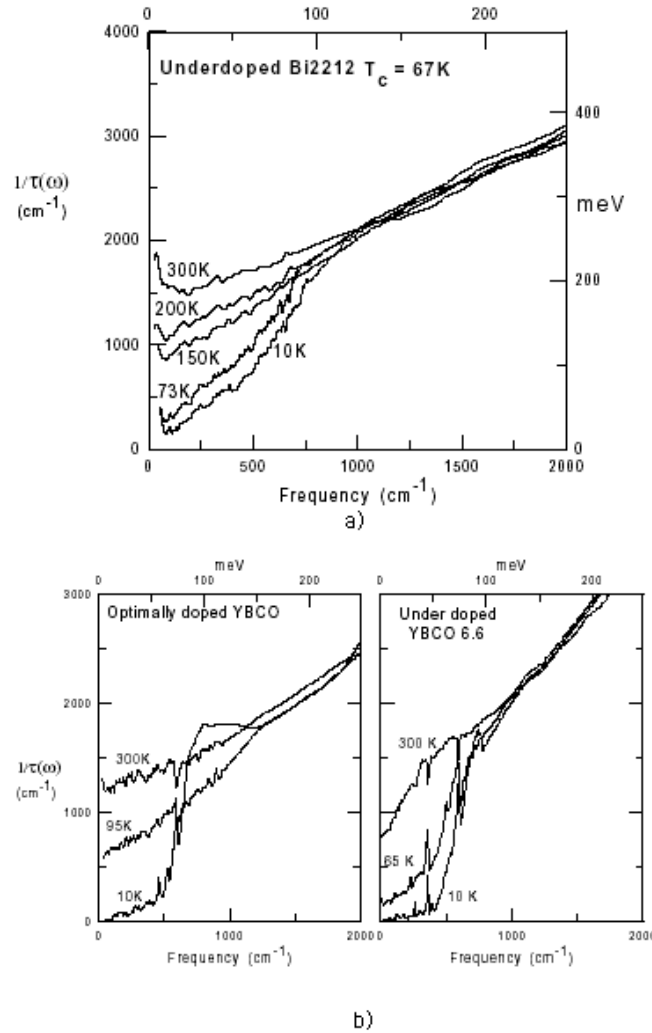


FIG. 1.25 – a) Dépendance en fréquence du taux de diffusion à différentes températures dans Bi2211 sous-dopé ( $T_c=67\text{K}$ )[112]. b) Dépendance en fréquence du taux de diffusion à différentes températures dans un composé  $YBa_2Cu_3O_7$  optimalement dopé et  $YBa_2Cu_3O_{6.7}$  sous-dopé[111].

de type semiconducteur qui s'accroît avec le sous-dopage (fig 1.28 b)[126].

### 1.3.7 Les différents scénarii du pseudogap

Depuis sa découverte en 1989, le pseudogap n'a pas cessé d'occuper une place importante dans les débats sur la physique des cuprates. L'une des difficultés principales dans l'interprétation du pseudogap vient de sa localisation exacte dans le diagramme de phase. Les expériences ont tendance à montrer qu'il existe surtout du côté sous-dopé mais il a été également observé dans le régime optimalement dopé de certains composés, sur une gamme de températures plus réduite. La ligne de transition  $T^*(x)$  est mal définie ; selon les différentes sondes on peut observer des différences de plus de 100K sur la détermination de  $T^*$  (fig 1.29). Dans tous les cas, il s'agit davantage d'un « crossover » continu qu'une ligne stricte de transition. D'un point de vue théorique, l'origine du pseudogap est toujours un mystère et nombre de physiciens pensent que la compréhension du pseudogap pourrait détenir la clé de la physique des supraconducteurs à haute température critique. Nous présentons ici quelques uns des scénarii évoqués pour expliquer son origine. L'objectif n'est pas de décrire en détails les nombreux modèles mais de mettre en évidence les idées principales.

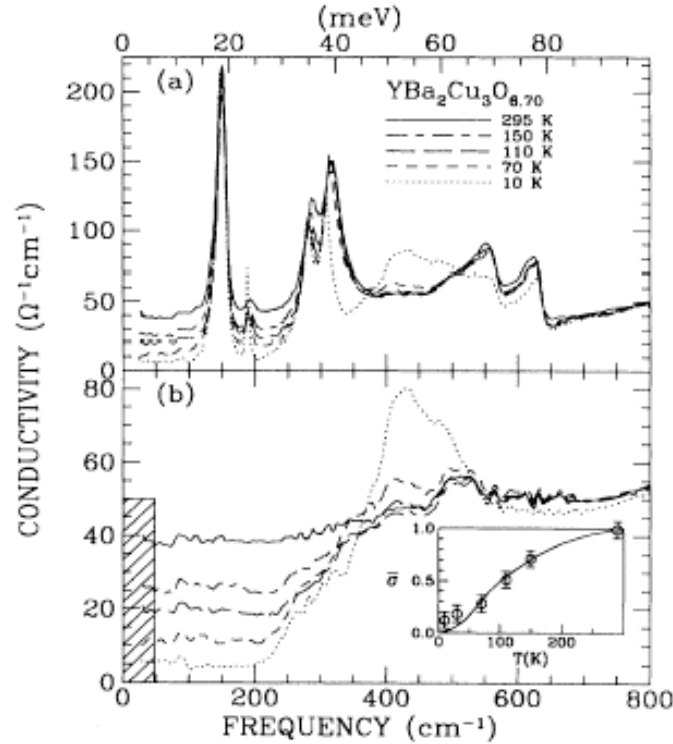


FIG. 1.26 – Conductivité optique selon l'axe  $c$  d'un composé  $YBa_2Cu_3O_{6.7}$  à différentes températures avant (en haut) et après soustraction de la contribution des phonons (en bas)[72].

Bien que nous ayons identifié cinq classes de scénarii, nous garderons à l'esprit qu'ils ne sont pas nécessairement exclusifs et qu'il existe de nombreuses ramifications entre les différents modèles.

### 1.3.7.1 Stripes

Les sripes correspondent à une répartition inhomogène des charges et des spins en des régions métalliques riches en charges et des régions magnétiques riches en spins (fig 1.31). L'ordre de spin a d'abord été détecté par diffusion inélastique de neutrons dans le composé  $La_{2-x}Nd_xSr_xCuO_4$  [133, 132]. En dehors de ce composé, il existe peu d'évidences expérimentales de l'existence de sripes dans les cuprates. Il semble qu'elles apparaissent également dans les composés  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  et YBCO sous-dopé mais de façon moins nette[147, 99]. L'origine microscopique des sripes est encore inconnue même s'il semble que d'un point de vue théorique une approche de type modèle t-J montre qu'un isolant de Mott dopé a tendance à former de zones riches en porteurs de charges et des zones isolantes magnétiques[150, 110].

Emery et Kivelson ont proposé une approche de type stripes qui aboutit au diagramme de phase de la figure 1.30[43]. Dans la phase antiferromagnétique, l'énergie cinétique des trous est frustrée. Lorsque la température est abaissée en dessous de  $T_{stripes}^*$ , les trous sont éjectés de la phase antiferromagnétique pour former des régions métalliques dans lesquelles ils peuvent se déplacer. Cependant, la répulsion Coulombienne ayant tendance à homogénéiser les charges, la séparation de phase ne peut avoir lieu que sur des échelles de distances très courtes. Le système développe des modulations de charge unidimensionnelle (les stripes) en dessous d'une température  $T_{stripes}^*$ . Les charges peuvent se déplacer librement dans une direction mais sont bloquées dans la direction transverse. Au-dessous d'une certaine température, il peut alors devenir favorable pour

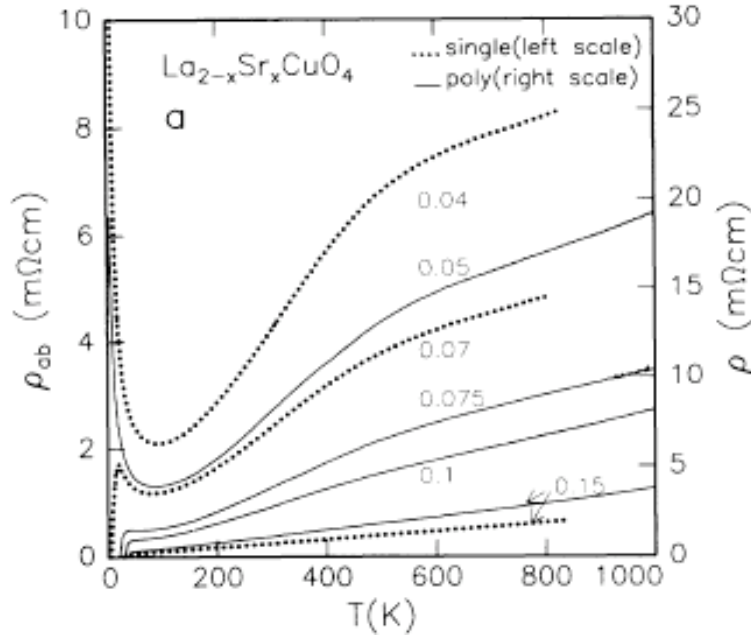


FIG. 1.27 – Dépendance en température de la résistivité de composés  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  pour différentes valeurs de dopages.  $\rho_{ab}$  correspond à des mesures dans le plan  $(a,b)$  de monocristaux et  $\rho$  à des mesures de céramiques polycristallines[123].

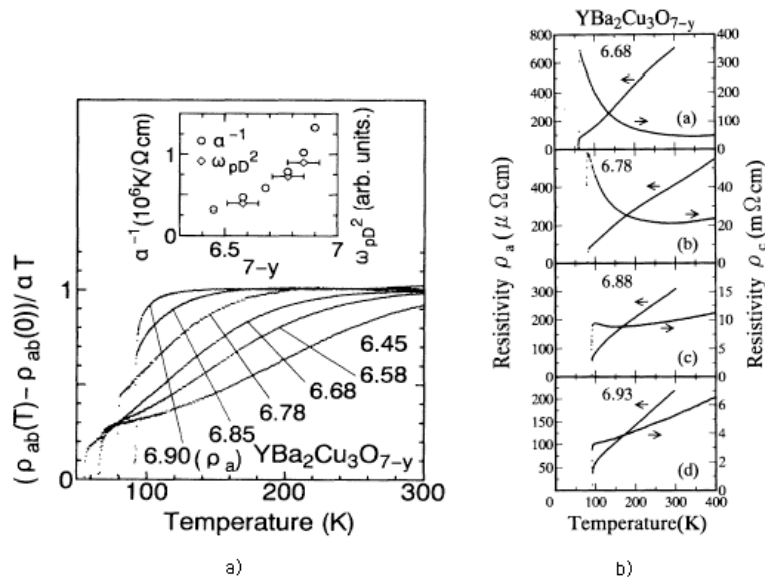


FIG. 1.28 – a) Courbes  $\frac{\rho_{ab}(T) - \rho_{ab}(0)}{\alpha T}$  obtenues à partir d'échantillons d'YBCO de différents dopages.  $\rho_{ab}(0)$  est la résistivité à  $T=0$  et  $\alpha$  la pente de la partie linéaire[73]. b) Mesures de résistivité selon l'axe  $c$  pour différents dopages de cristaux d' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [126].

les charges de former des paires qui peuvent alors diffuser dans la région antiferromagnétique sur le bord des stripes par effet de proximité. Il en résulte la formation d'un gap de spin et l'apparition d'un paramètre d'ordre supraconducteur sans cohérence de phase. La supraconductivité apparaît à  $T_c$  lorsqu'une relation de phase entre les stripes s'établit par effet Josephson.



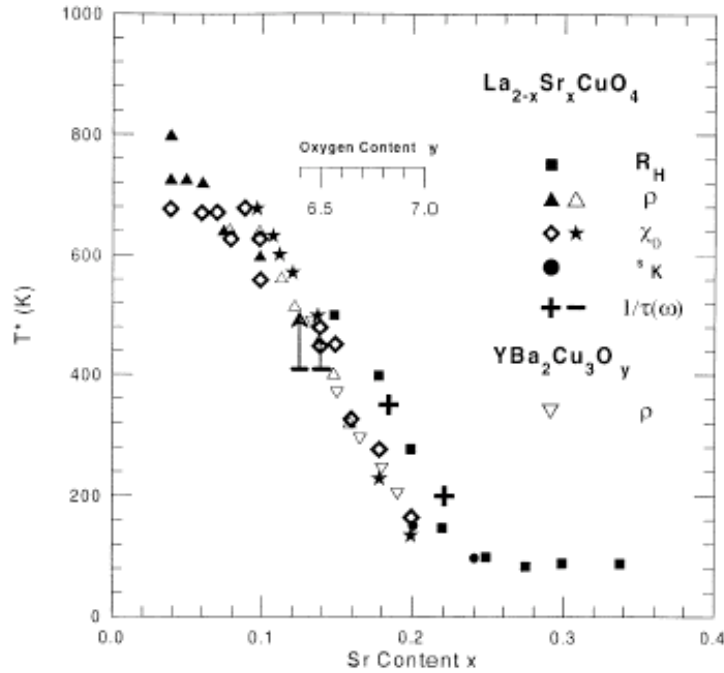


FIG. 1.29 – Variation de  $T^*$  en fonction du dopage dans  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  mesurée par différentes sondes expérimentales. Les carrés correspondent aux mesures d’effet Hall, les cercles à la susceptibilité de spin mesurée à partir du Knight shift, les triangles aux mesures de résistivité dc et les symboles  $\pm$  aux mesures optiques du taux de diffusion[130].

D’un point de vue expérimental, il n’existe pas réellement de corrélations entre la température à laquelle les stripes sont observées et la température d’apparition du pseudogap. En outre, il semble également difficile d’imaginer comment les stripes peuvent expliquer la dépendance angulaire du pseudogap observé par ARPES.

### 1.3.7.2 Fluctuations antiferromagnétiques

A dopage nul, les cuprates sont des isolants antiferromagnétiques. Aussi il peut sembler naturel de penser que les fluctuations antiferromagnétiques jouent un rôle important dans le régime sous-dopé. Le pseudogap refléterait alors l’apparition de corrélations antiferromagnétiques fortes mais sans ordre à longue distance, entre les quasiparticules (hot) localisées près de  $(0, \pi)$  et connectées par le vecteur d’onde  $Q = (\pi, \pi)$ . En dehors de ces points, les quasiparticules (cold) ne sont pas affectées par les fluctuations AF et se comportent comme un liquide de Fermi. Dans cette approche, le pseudogap serait alors en compétition avec la supraconductivité pour les quasiparticules en  $(0, \pi)$  ce qui pourrait expliquer la diminution de  $T_c$  lorsqu’on s’approche de l’état isolant antiferromagnétique. En outre, l’approche de type fluctuations antiferromagnétiques à 2D aboutit naturellement à une symétrie d-wave.

Pines et al ont proposé d’expliquer les résultats RMN par un scénario de fluctuations magnétiques [16, 108, 109]. Leur approche permet de distinguer deux régimes : à haute température il existe un pseudogap faible caractérisé par la décroissance de la susceptibilité statique<sup>10</sup> et à plus basse température, un gap fort apparaît, caractérisé par la chute du taux de relaxation.

<sup>10</sup>Mesurée à partir du Knight shift.

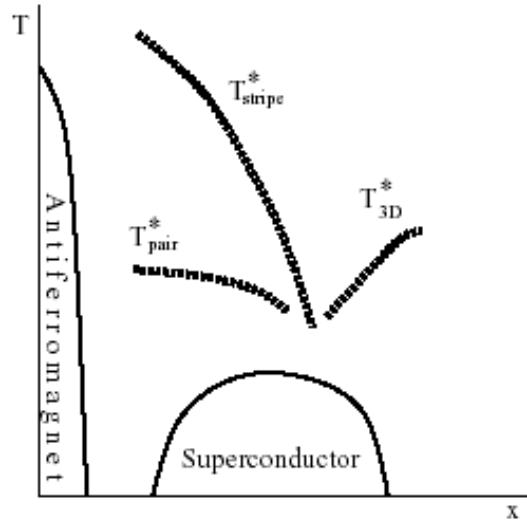


FIG. 1.30 – Diagrammes de phase température en fonction du dopage proposés par Emery et Kivelson dans un scénario de type stripes [43].

### 1.3.7.3 Séparation spin-charge

De nombreux théoriciens ont développé des modèles dans lesquels les degrés de liberté de spin (spinons) et de charge (holons) sont séparés. Les spins se regroupent ensemble pour former des singulets dans un état de symétrie  $d - wave$  précurseur de la symétrie de l'état supraconducteur. L'énergie nécessaire pour les séparer fait alors apparaître un gap de spins dont l'énergie caractéristique est l'énergie d'échange. Son ordre de grandeur  $\approx 100\text{meV}$ , est compatible avec l'énergie caractéristique du pseudogap extrapolée à température nulle. De leur côté les charges restent libres et condensent à  $T_c$  pour former l'état supraconducteur. La séparation spin-charge pourrait expliquer la raison pour laquelle les quasiparticules ne sont pas bien définies dans l'état normal. Dans l'état supraconducteur, où il existe des quasiparticules bien définies, les charges et les spins doivent se reformer.

La plupart des théories de séparation spin-charge, trouvent leur origine dans les idées pionnières du modèle RVB (Resonating Valence Bond) d'Anderson qui contenait déjà la notion de dimères de spins singulets[9]. Historiquement, cet état avait été proposé comme étant l'état fondamental du modèle Heisenberg 2D[8, 47], ce qui s'est avéré ne pas être vrai dans le cas des cuprates qui présentent un ordre de Néel à dopage nul. Cependant l'introduction de trous détruit le réseau antiferromagnétique et l'état RVB pourrait apparaître à partir d'un faible dopage. Les idées d'Anderson ont ensuite été développées par Kotliar et al[88] et Nagaosa et al[102] qui sont parvenus au diagramme de phase RVB de la figure 1.32a). Celui-ci met en jeu deux températures caractéristiques :  $T_{RVB}$  qui correspond à la formation des dimères de spin et provoque l'ouverture d'un gap de spin, et  $T_{BE}$  qui correspond à la température à laquelle les excitations de charges deviennent cohérentes. Pour  $T > T_{BE}$ , on a séparation spin-charge. En dessous des deux températures, le système condense dans l'état supraconducteur.

D'un point de vue expérimental, les mesures de chaleur spécifique qui sondent à la fois les degrés de liberté de spin et de charge et les mesures de susceptibilité magnétique qui sondent uniquement les excitations magnétiques montrent un comportement similaire en température, ce qui est difficile à concilier avec une approche de type séparation spin-charge.

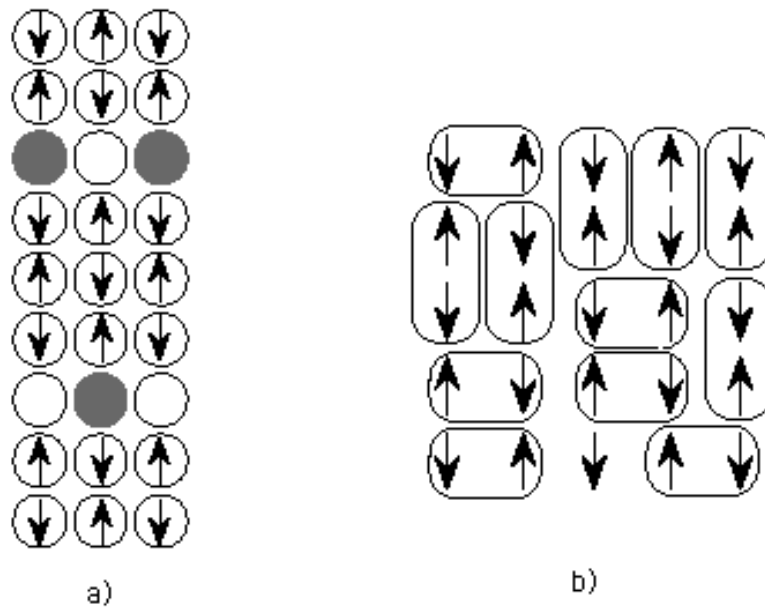


FIG. 1.31 – a) Représentation schématique de l'organisation des spins et des charges en stripes pour un dopage en trous 1/8. b) Liquide de dimères de spins singlets

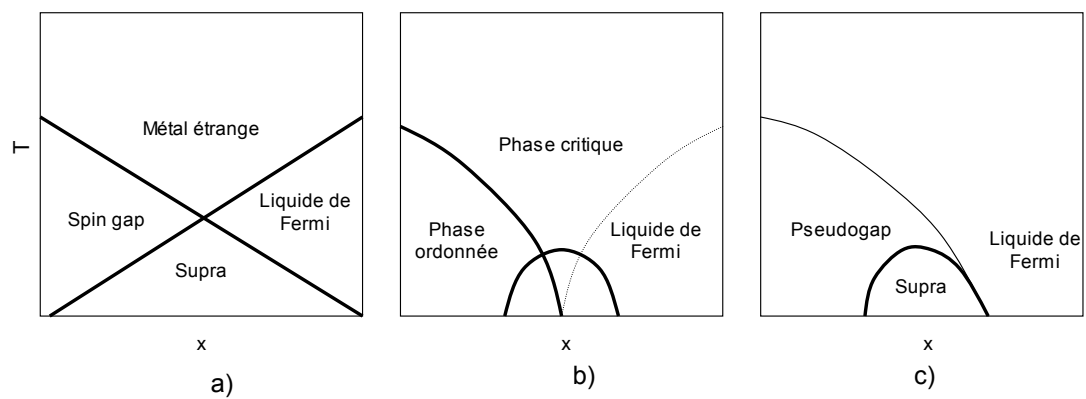


FIG. 1.32 – Diagrammes de phase proposés pour les cuprates. a) Approche RVB. b) Approche point critique quantique. c) Approche paires préformées.

### 1.3.7.4 Point critique quantique

L'une des caractéristiques des scénarii où le pseudogap entre en compétition avec la supraconductivité, est la prédiction d'une ligne de transition qui traverse le dôme supraconducteur et se termine par un point critique quantique à  $T=0K$  (figure 1.32b)[117]. Cette ligne implique l'existence d'une brisure de symétrie; elle doit séparer une phase quantique désordonnée (le liquide de Fermi) d'une phase ordonnée (le pseudogap) dont la nature diffère selon les théories. A la verticale du point critique quantique, la seule énergie caractéristique du système est la température. La dépendance linéaire de la résistivité observée sur les composés optimalement dopés est en accord avec l'existence d'un point critique quantique proche du dopage optimal.

Varma a suggéré que le pseudogap soit dû à des courant orbitaux spontanés circulant sur quatre

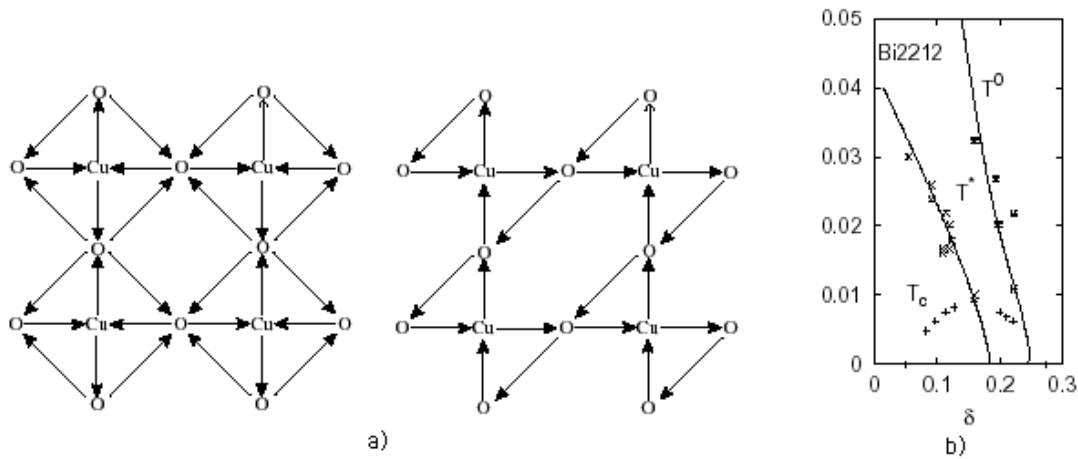


FIG. 1.33 – a) Deux types de courant orbitaux circulant dans les plans  $CuO_2$ , proposés par Varma[138, 121]. b) Diagramme de phase envisagé par le groupe de Rome, faisant apparaître les deux températures  $T^0 = T_{co}^0$  et  $T^* = T_{co}$ [25]. Les points correspondent aux données expérimentales de la référence [38].

plaquettes par maille unité (fig 1.33 a)[138, 121]. Des expériences d'ARPES polarisées ont révélé la présence d'une brisure de symétrie par renversement du temps en dessous de  $T_c$  en accord avec cette théorie[80]. Nous signalerons également des expériences récentes de neutrons polarisés réalisées à Saclay qui mettent en évidence un ordre magnétique également compatible avec cette description théorique[46].

Selon le groupe de Rome, une phase d'onde de densité de charge apparaît en dessous d'une ligne de température dépendante du dopage  $T_{co}(x)$  qui se termine par point critique quantique à  $x=0.19$  (proche du dopage optimal)[24]. Leur modèle met également en évidence une température plus élevée  $T_{co}^0$  qui en l'absence de fluctuations devrait correspondre à la mise en ordre des charges. Elle se traduit par l'ouverture d'un pseudogap faible qui pourrait être liée aux signatures expérimentales observées à très haute température. La température réelle ( $T_{co}(x)$ ) d'apparition de l'onde de densité de charge est alors réduite et déplacée à plus faible dopage; elle correspond à l'apparition d'un gap fort ( $T^*$ ) (fig 1.33 b)[25].

L'une des conséquences des modèles de type ordre en compétition est qu'il devrait normalement apparaître deux énergies caractéristiques en dessous de  $T_c$ , l'une liée au pseudogap et l'autre liée au gap supraconducteur.

### 1.3.7.5 Les paires préformées

Les mesures d'ARPES et de STM montrent une évolution continue de la densité d'états lorsque l'on passe de l'état supraconducteur à l'état de pseudogap. Les expériences d'ARPES résolues en  $k$  révèlent également que la symétrie du pseudogap est identique à la symétrie  $d$  du gap supraconducteur. Il semble alors naturel d'associer le pseudogap à un état précurseur de la supraconductivité. Dans cette approche, le pseudogap serait dû à la formation de paires de Cooper préformées à une température  $T^*$  sans cohérence de phase qui seraient responsables des anomalies observées dans les propriétés de transport, thermodynamiques et spectrales des cuprates sous-dopés. La température de transition  $T_c$  correspondrait alors à la température d'apparition d'une cohérence de phase à longue distance.

Il existe différentes versions de ce scénario. Selon Emery et Kivelson, les fluctuations de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur ont une amplitude telle qu'elles empêchent la transition supraconductrice d'avoir lieu à  $T^*$ .  $T_c$  correspondrait alors à la température à laquelle la phase devient suffisamment robuste pour permettre la condensation[42]. Une autre explication, avancée par Randeria, suggère que la longueur de cohérence des cuprates est si faible que lorsque les paires de Cooper se forment à  $T^*$  elles ne peuvent pas établir de cohérence à longue distance. Il faut alors atteindre une température suffisamment basse ( $T_c$ ) pour que la condensation dans l'état supraconducteur ait lieu[114, 113]. Dans ces approches le pseudogap est un vrai gap dans le spectre de quasiparticules. La température  $T^*$  doit rejoindre  $T_c$  quelque part dans le régime sur-dopé, proche de l'optimal (fig 1.32c)

Deutscher[33] a fait remarquer que les expériences révèlent l'existence de deux échelles d'énergie distinctes ( $\Delta_p$  et  $\Delta_c$ ) dans les oxydes supraconducteurs. La première est déterminée par les expériences de spectroscopie à une particule (STM, ARPES...); elle représente l'énergie d'appariement des électrons en paires. Le seconde apparaît dans les mesures de réflexion d'Andreev<sup>11</sup>; elle est associée à la cohérence de phase du condensat. Dans le régime sur-dopé, les expériences montrent que les deux échelles d'énergie se rejoignent comme cela est le cas dans les supraconducteurs conventionnels où les paires se forment et condensent simultanément à la transition. En revanche, dans le régime sous-dopé, ces deux échelles divergent; alors que  $\Delta_p$  augmente lorsque le dopage diminue,  $\Delta_c$  suit une dépendance similaire à la température critique. Ces résultats sont compatibles avec un scénario dans laquelle la supraconductivité disparaît au-dessus de  $T_c$ , lorsque la cohérence de phase associée à l'énergie  $\Delta_c$  est détruite, mais où l'appariement des électrons associé à l'énergie  $\Delta_p$  subsiste dans la phase normal.

Pour l'instant, il n'existe aucune évidence de l'existence de paires préformées dans l'état de pseudogap. **Une partie du travail de thèse concerne la réalisation d'une expérience capable de sonder l'existence de ces paires.**

<sup>11</sup>Energie en-dessous de laquelle la conductance est double.

## Chapitre 2

# Spectroscopie tunnel et effet Josephson

Lorsque deux métaux sont séparés par une couche isolante suffisamment fine, les électrons peuvent traverser la barrière par effet tunnel. Il s'agit d'un effet purement quantique, puisque classiquement, une barrière est infranchissable pour une particule d'énergie inférieure à la hauteur de la barrière. Généralement, la fonction d'onde d'une particule, dont le carré du module représente l'amplitude de sa probabilité de présence, ne s'annule pas au niveau de la barrière, mais s'atténue exponentiellement à l'intérieur de la barrière. Si, à la sortie de la barrière de potentiel, la particule possède une probabilité de présence non nulle, elle peut donc traverser cette barrière. Lorsque l'un des matériaux est un supraconducteur, le courant tunnel est directement proportionnel à sa densité d'états qui peut ainsi être mesurée expérimentalement. On parle alors de spectroscopie tunnel d'un matériau.

L'effet Josephson est, quant à lui, spécifique aux supraconducteurs. En plus des quasiparticules, deux supraconducteurs séparés par une barrière peuvent également échanger des paires de Cooper de façon cohérente. Cet effet a permis d'envisager de nombreuses applications (cf SQUID chapitre 5) mais s'avère également très utile pour sonder les propriétés fondamentales des supraconducteurs. Il est à la base du travail effectué pendant cette thèse.

La première partie de ce chapitre décrit l'effet tunnel à une particule dans les structures à bases de supraconducteurs. Les parties suivantes seront consacrées à l'effet Josephson. Dans la seconde partie, les équations Josephson et les caractéristiques principales seront dérivées dans le cas où les deux supraconducteurs sont séparés par une barrière isolante. Dans une troisième partie, nous aborderons l'effet Josephson dans le cas où la barrière isolante est remplacée par une couche de métal normal. Enfin, dans une quatrième partie, nous présenterons brièvement les différentes réalisations pratiques de jonctions Josephson avec des supraconducteurs à haute température critique.

### 2.1 Effet tunnel à un électron

Pour décrire l'effet tunnel dans une jonction dont l'une ou les deux électrodes sont dans l'état supraconducteur, nous utiliserons un modèle « semi-conducteur » où les densités d'états en fonction de l'énergie  $N_1(E)$  et  $N_2(E)$  des matériaux sont représentées dans un modèle de bande[145]. Le supraconducteur est alors décrit comme un semi-conducteur de gap  $2\Delta$ . Dans ce modèle, la barrière est supposée idéale et d'énergie très supérieure aux énergies caractéristiques des métaux et supraconducteurs mis en jeu. Il permet cependant d'obtenir une description qualitative et simple de l'effet tunnel en accord avec les résultats obtenus sur les supraconducteurs conventionnels.

### 2.1.1 Courant tunnel

Considérons le cas où une tension  $V$  est appliquée aux bornes de la jonction. Les électrons peuvent traverser la barrière par effet tunnel de la gauche vers la droite avec une densité de courant  $J_{1\rightarrow 2}$  ou de la droite vers la gauche avec une densité de courant  $J_{2\rightarrow 1}$ . Le courant tunnel vaut alors

$$I = (J_{1\rightarrow 2} - J_{2\rightarrow 1})A \quad (2.1)$$

où  $A$  est l'aire de la jonction.

Une grande partie des électrons qui arrivent sur la barrière sont réfléchis, ceux qui parviennent à traverser contribuent au courant tunnel. En ne considérant que les processus élastiques, les transferts de particules à travers la barrière se font à énergie constante. A partir d'un état occupé, un électron peut traverser la barrière s'il existe un état vide de même énergie de l'autre côté. Si nous considérons que le couplage par effet tunnel est une petite perturbation, représentée par l'hamiltonien tunnel  $H_T$ , alors la probabilité par unité de temps  $W_{1\rightarrow 2}$  qu'un électron d'énergie comprise entre  $E$  et  $E + dE$ , transite de l'état 1 vers l'état 2 est donnée par la règle d'or de Fermi[145]

$$W_{1\rightarrow 2} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle 2|H_T|1\rangle|^2 N_2(E)(1 - f(E)) \quad (2.2)$$

où  $N_2$  est la densité d'états du matériau 2 et  $f$  la fonction de Fermi-Dirac donnée par  $f(E) = \frac{1}{1 + e^{\frac{E - \mu}{k_B T}}}$

Le nombre d'électrons d'énergie comprise entre  $E$  et  $E + dE$  qui peuvent traverser de la gauche vers la droite est donc proportionnel à la quantité  $N_2(E)(1 - f(E))$  qui exprime la densité d'états libres dans le matériau 2. Il doit également être proportionnel à la densité d'états occupés dans le matériau 1. La densité de courant de la gauche vers la droite est donc donnée par

$$J_{1\rightarrow 2} = e \int W_{1\rightarrow 2} N_1(E - eV) f(E - eV) dE \quad (2.3)$$

$$J_{1\rightarrow 2} = \frac{2\pi}{\hbar} \int |T|^2 N_1(E - eV) f(E - eV) N_2(E) (1 - f(E)) dE \quad (2.4)$$

où  $T = H_{12} = H_{21}^* = \langle 2|H_T|1\rangle$  est l'élément de matrice qui décrit la probabilité de transition à travers la barrière que l'on suppose indépendante de  $E$ .

On obtient une expression similaire du courant de la droite vers la gauche  $J_{2\rightarrow 1}$ . Le courant total est donné par (2.1)

$$I = \frac{2\pi e A}{\hbar} |T|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} N_1(E - eV) N_2(E) [f(E - eV) - f(E)] dE \quad (2.5)$$

Dans cette expression, les densités d'états  $N_1(E - eV)$  et  $N_2(E)$  dépendent de la nature des matériaux 1 et 2 (métal normal ou supraconducteur). En revanche, la différence des fonctions de distribution  $[f(E - eV) - f(E)]$  ne dépend que du potentiel  $V$ . Sa valeur est proche de 1 pour des énergies comprises entre 0 et  $eV$  et chute à 0 en dehors de cet intervalle. Le courant tunnel sera donc important lorsque  $N_1(E - eV)$  et  $N_2(E)$  prendront des valeurs non négligeables dans cet intervalle d'énergie.

### 2.1.2 Jonction métal normal-isolant-métal normal

Considérons le cas de la figure 2.1 où les deux matériaux sont des métaux normaux. A température nulle, tous les états d'énergie inférieure à l'énergie de Fermi sont occupés et tous

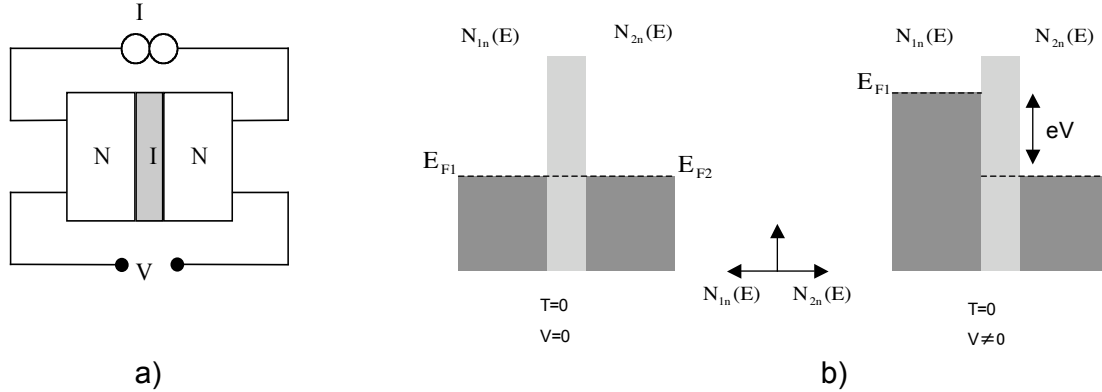


FIG. 2.1 – a) Représentation schématique d’une jonction métal normal-isolant-métal normal (NIN). b) Densités d’états dans une jonction NIN.

les états d’énergie supérieure sont vides. En l’absence d’une tension appliquée aux bornes de la jonction, il n’y a pas d’états disponibles de même énergie et les électrons ne peuvent pas traverser la barrière tunnel. A température finie, l’occupation des états est décrite par la fonction de Fermi-Dirac et l’effet tunnel peut se produire dans les deux directions. Dans l’intervalle d’énergie qui nous intéresse, quelques centaines de meV au voisinage du niveau de Fermi, on peut considérer les densités d’états constantes. Dans ces conditions le courant (2.5) s’écrit

$$I_{nn} = A|T|^2 N_1(E_F) N_2(E_F) eV = G_{nn} V \tag{2.6}$$

La jonction a donc un comportement ohmique.

### 2.1.3 Jonction métal normal-isolant-supraconducteur

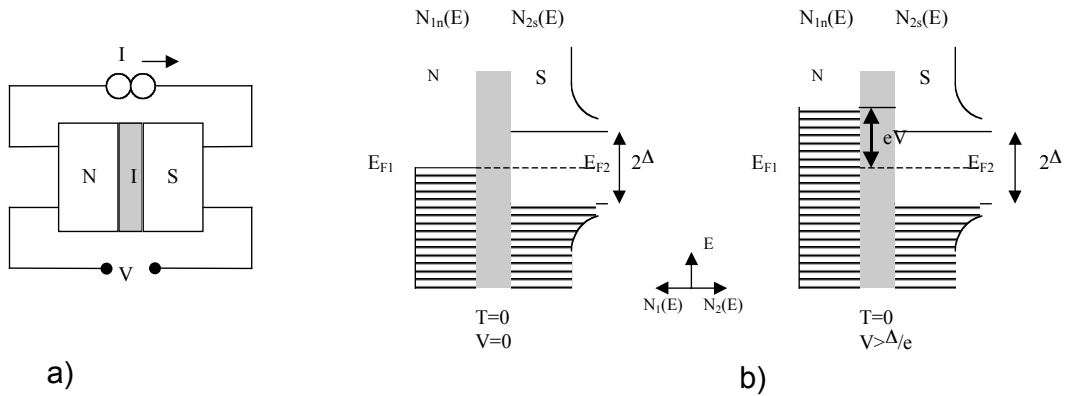


FIG. 2.2 – a) Représentation schématique d’une jonction métal normal-isolant-supraconducteur (NIS). b) Densités d’états dans une jonction NIS.

On considère maintenant le cas de la figure (2.2) où le métal 2 est remplacé par un supraconducteur. La densité d’états du métal 1 est toujours considérée constante et l’expression du courant (2.5) devient



$$I_{ns} = A|T|^2 N_{1n}(E_F) \int_{-\infty}^{+\infty} N_{2s}(E) [f(E - eV) - f(E)] dE \quad (2.7)$$

$$I_{ns} = \frac{G_{nn}}{e} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{N_{2s}(E)}{N_{2n}(E_F)} [f(E - eV) - f(E)] dE \quad (2.8)$$

Dans un supraconducteur conventionnel, il n'y a pas d'excitation de basse énergie. Il existe un gap d'énergie  $2\Delta$  qui correspond à l'énergie nécessaire pour détruire une paire de Cooper. La densité d'états des quasiparticules diverge à  $\Delta$

$$N(E) = N(E_F) \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}} \quad (2.9)$$

A température nulle, il n'y aura aucun courant tant que la tension appliquée sera inférieure à  $\frac{\Delta}{e}$ . A température finie, des états excités peuvent être occupés et un courant peut traverser la jonction à des tensions inférieures à  $\frac{\Delta}{e}$ . A haute polarisation, les densités de la phase supraconductrice et de la phase normale sont quasiment identiques, donc la jonction tend à se comporter comme si le matériau 2 était normal, c'est à dire de façon ohmique (fig 2.3).

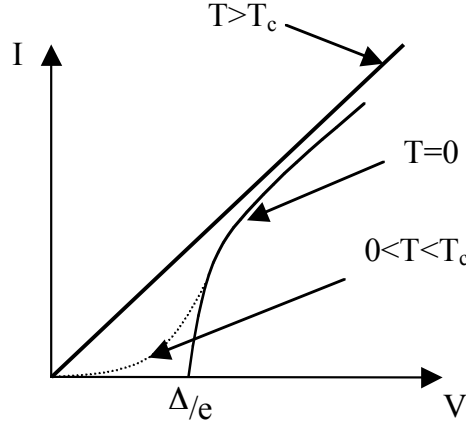


FIG. 2.3 – Caractéristique courant-tension d'une jonction NIS à température nulle (trait plein) et à température finie (trait pointillé).

Il est intéressant de calculer la conductance dynamique de la jonction

$$G_{ns}(V) = \frac{dI_{ns}}{dV} = G_{nn} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{N_{2s}(E)}{N_{2n}(E_F)} \left[ -\frac{\partial f(E + eV)}{\partial eV} \right] dE \quad (2.10)$$

A température nulle, la dérivée de la fonction de Fermi-Dirac est un pic de Dirac et la relation précédente s'écrit

$$G_{ns}(V) = \frac{dI_{ns}}{dV} = G_{nn} \frac{N_{2s}(eV)}{N_{2n}(E_F)} \quad (2.11)$$

Dans la limite des très basses températures, mesurer la conductance dynamique équivaut à mesurer la densité d'états en énergie du supraconducteur. On parle alors de spectroscopie tunnel. A température finie, il est possible de déconvoluer le signal et de remonter ainsi à la densité

d'états. Dans les supraconducteurs conventionnels, cette technique a permis d'obtenir dès le début des années 60 [54] des mesures de densités d'états de très haute résolution et d'observer ainsi directement le gap supraconducteur.

L'effet tunnel permet théoriquement de sonder la densité d'états électroniques sur une distance relativement courte, de l'ordre de la longueur d'onde Fermi  $\lambda_F$ . Etant donné que dans un supraconducteur, les corrélations entre électrons s'étendent sur une distance  $\xi$  (longueur de cohérence) supérieure à  $\lambda_F$ , la spectroscopie tunnel permettra de sonder la densité d'états sur cette distance. Dans les supraconducteurs à hautes températures critiques, la longueur de cohérence est très faible ( $\simeq 10 \text{ \AA}$ ) et la spectroscopie tunnel ne sera donc sensible qu'à la densité d'états électroniques sur les premières couches atomiques. Pour cette raison, les jonctions sont extrêmement sensibles à la qualité de l'interface entre la couche supraconductrice et la barrière, ce qui explique que les résultats ne permettent pas pour l'instant une étude correcte de la densité d'états.

En revanche, depuis une dizaine d'années, une technique voisine, la spectroscopie tunnel réalisée par STM (Scanning Tunneling Microscope) s'est considérablement développée. Le principe consiste à approcher une pointe métallique extrêmement fine au voisinage de la surface d'un supraconducteur, et à mesurer le courant qui traverse par effet tunnel la barrière que constitue le vide entre la pointe et l'échantillon. Les progrès effectués ces dernières années (résolution, stabilité..) en ont fait l'une des techniques les plus performantes pour l'étude des supraconducteurs à haute température critique.

### 2.1.4 Jonction supraconducteur-isolant-supraconducteur

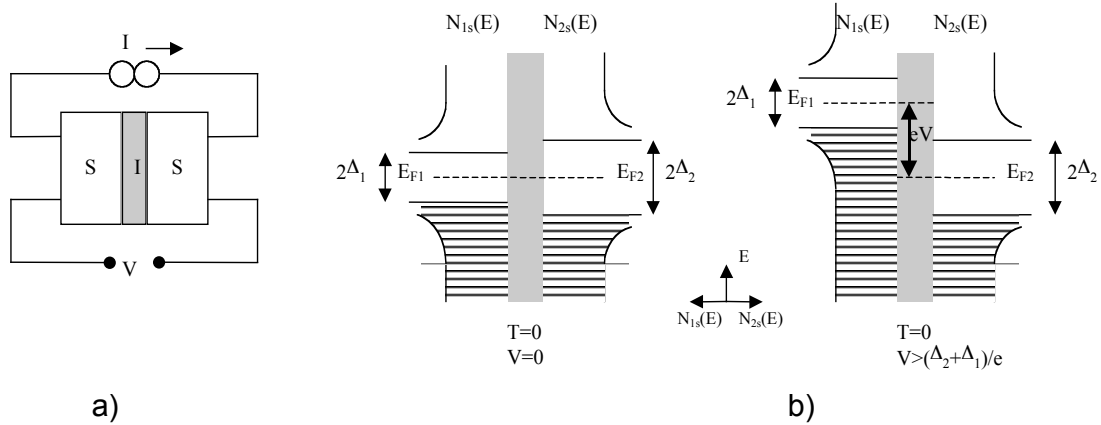


FIG. 2.4 – a) Représentation schématique d'une jonction supraconducteur-isolant-supraconducteur (NIS). b) Densités d'états dans une jonction SIS.

Si les deux matériaux sont supraconducteurs, leurs densités d'états ne peuvent plus être considérées comme constantes.

$$I_{ss} = \frac{G_{ss}}{e} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{N_{1s}(E)}{N_{1n}(E_F)} \frac{N_{2s}(E)}{N_{2n}(E_F)} [f(E - eV) - f(E)] dE \quad (2.12)$$

A température nulle, il n'y a pas d'états disponibles tant que  $eV$  n'atteint pas la valeur  $\Delta_1 + \Delta_2$ . Il y a alors une brusque augmentation de courant due au fait que les singularités dans la densité d'états des deux matériaux se retrouvent à la même énergie. A température finie, il y a un pic de courant à  $|\Delta_1 - \Delta_2|$  puisque à cette tension, le pic de quasiparticules du supraconducteur ayant le plus petit gap est à la même énergie que le maximum d'états disponibles dans l'autre supraconducteur (fig 2.5).

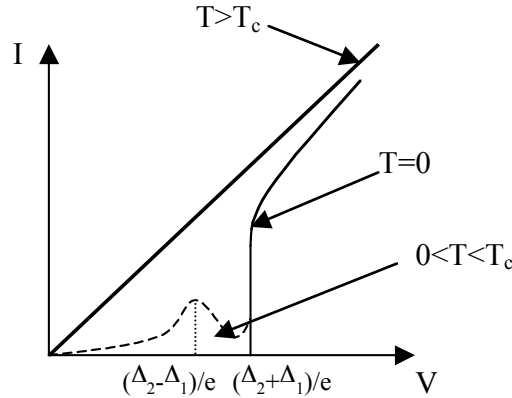


FIG. 2.5 – Caractéristique courant-tension d’une jonction SIS à température nulle (trait plein) et à température finie (trait pointillé).

## 2.2 Effet Josephson

Jusqu’à présent nous avons uniquement considéré les contributions des quasiparticules à l’effet tunnel. Mais lorsque deux supraconducteurs sont séparés par une barrière de potentiel il existe un autre processus où deux électrons formant une paire de Cooper peuvent traverser simultanément la barrière par effet tunnel en conservant leur cohérence. Cet effet tunnel de paires couple nécessairement les états fondamentaux des deux supraconducteurs et un état condensé commun se forme entre les deux supraconducteurs. Ce processus étant cohérent il existe donc un courant supraconducteur à travers la barrière même en l’absence de tension. Cet effet a été prédit en 1962 par Josephson[76, 77] et observé expérimentalement par Anderson et Rowell en 1963 [10]. Il faut souligner que l’effet Josephson existe dans différents types de structures et pas seulement dans le cas de jonctions tunnel. Dans la section 2.3, nous aborderons le cas où la barrière est un métal normal. De façon générale, lorsque deux supraconducteurs sont séparés par une zone où le paramètre d’ordre est affaibli, suffisamment fine pour qu’il y ait recouvrement des deux fonctions d’onde, ils sont alors capables d’échanger des paires de Cooper.

L’effet Josephson a notamment été observé dans les structures suivantes :

- ▶ SIS (supraconducteur-isolant-supraconducteur)
- ▶ SNS (supraconducteur-métal normal- supraconducteur).
- ▶ une constriction où les deux supraconducteurs sont séparés par une zone plus étroite que la longueur de cohérence
- ▶ une zone où la supraconductivité est affaiblie par le désordre. C’est le cas des supraconducteurs à haute température critique, où les joints de grains sont largement utilisés pour la fabrication de jonctions Josephson.

### 2.2.1 Equations Josephson

Il est possible de suivre différentes approches pour obtenir les équations Josephson. Le modèle proposé par Feynman, Leighton et Sands[50] (1976) a l’avantage d’être simple et plus accessible que les modèles microscopiques basés sur l’hamiltonien tunnel [15].

Considérons la structure suivante supraconducteur-isolant-supraconducteur (fig 2.6). Notons

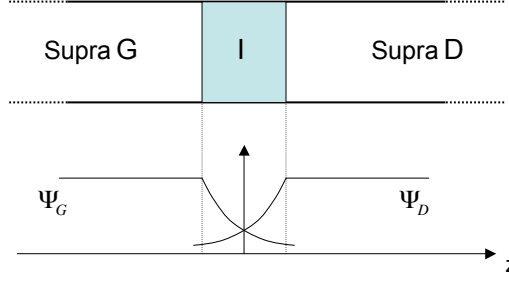


FIG. 2.6 – Représentation schématique d'un couplage Josephson à travers une barrière isolante.

$\psi_D$  ( $\psi_G$ ) la fonction d'onde des paires dans le supraconducteur de droite (gauche) représenté par le ket  $|D\rangle$  ( $|G\rangle$ ).

$$\langle D|\psi_D^*\psi_D|D\rangle = |\psi_D|^2 = n_D \quad \langle G|\psi_G^*\psi_G|G\rangle = |\psi_G|^2 = n_G \quad (2.13)$$

$n_D$  et  $n_G$  sont les densités de paires respectives du supraconducteur de droite et de gauche.

Si l'on tient compte du couplage entre les deux supraconducteurs, il peut exister des mécanismes de transitions entre les deux états  $|D\rangle$  et  $|G\rangle$ . Ce couplage est lié au recouvrement entre les deux fonctions d'onde de paires  $\psi_D$  et  $\psi_G$ . L'état du système est alors décrit comme une combinaison linéaire des deux états  $|D\rangle$  et  $|G\rangle$

$$|\psi\rangle = \psi_D|D\rangle + \psi_G|G\rangle \quad (2.14)$$

ce qui signifie qu'une particule est soit dans l'état « droite » avec l'amplitude  $\psi_D$  soit dans l'état « gauche » avec l'amplitude  $\psi_G$ .

L'évolution du système dans le temps est régie par l'équation de Schrödinger

$$i\hbar\frac{\partial|\psi\rangle}{\partial t} = H|\psi\rangle \quad (2.15)$$

où  $H$  est l'hamiltonien total du système.

$$H = H_D + H_G + H_{couplage} \quad (2.16)$$

où  $H_D = E_D|D\rangle\langle D|$  et  $H_G = E_G|G\rangle\langle G|$  sont les hamiltoniens des états  $|D\rangle$  et  $|G\rangle$  non perturbés.

$$H_{couplage} = K[|G\rangle\langle D| + |D\rangle\langle G|] \quad (2.17)$$

représente l'hamiltonien tunnel entre les deux états.  $E_G$  et  $E_D$  sont les énergies des états fondamentaux des deux supraconducteurs non perturbés.  $K$  est la constante de couplage entre les deux états du système, qui dépend des caractéristiques de la barrière. En l'absence de potentiel vecteur,  $K$  sera supposée réelle. L'équation de Schrödinger (2.15) peut alors être décomposée sur les deux états  $|D\rangle$  et  $|G\rangle$

$$i\hbar\frac{\partial\psi_D}{\partial t} = E_D\psi_D + K\psi_G \quad (2.18)$$

$$i\hbar\frac{\partial\psi_G}{\partial t} = E_G\psi_G + K\psi_D \quad (2.19)$$

Dans un supraconducteur isolé, l'énergie de l'état fondamental est donnée par  $E = 2\mu$  où  $\mu$  est le potentiel chimique. Lorsqu'une tension continue  $V$  est appliquée aux bornes de la jonction les potentiels chimiques des deux supraconducteurs D et G vont être déplacés d'une énergie  $eV$ , et donc  $E_G - E_D = 2eV$ . En choisissant comme origine des énergies la moyenne des énergies des deux supraconducteurs, les deux équations précédentes deviennent

$$i\hbar \frac{\partial \psi_D}{\partial t} = -eV\psi_D + K\psi_G \quad (2.20)$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi_G}{\partial t} = eV\psi_G + K\psi_D \quad (2.21)$$

$\psi_D$  et  $\psi_G$  peuvent être remplacés par leurs expressions respectives

$$\psi_D = \sqrt{n_D} e^{i\phi_D} \quad \psi_G = \sqrt{n_G} e^{i\phi_G} \quad (2.22)$$

En séparant les parties réelles et imaginaires, on obtient le système d'équations couplées

$$\frac{\partial n_G}{\partial t} = \frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_G n_D} \sin \phi \quad (2.23)$$

$$\frac{\partial n_D}{\partial t} = -\frac{2}{\hbar} K \sqrt{n_G n_D} \sin \phi \quad (2.24)$$

$$\frac{\partial \phi_G}{\partial t} = \frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_G}{n_D}} \cos \phi + \frac{eV}{\hbar} \quad (2.25)$$

$$\frac{\partial \phi_D}{\partial t} = \frac{K}{\hbar} \sqrt{\frac{n_G}{n_D}} \cos \phi - \frac{eV}{\hbar} \quad (2.26)$$

où  $\phi = \phi_G - \phi_D$ .

La densité de courant de paires est donnée par

$$J = \frac{\partial n_G}{\partial t} = -\frac{\partial n_D}{\partial t} \quad (2.27)$$

Les relations (2.23) et (2.27) permettent d'obtenir la première équation Josephson

$$J = J_1 \sin \phi \quad (2.28)$$

où  $J_1 = \frac{2K\sqrt{n_G n_D}}{\hbar}$ .

On déduit également des équations (2.25) et (2.26) la seconde équation Josephson qui décrit l'évolution de la différence de phase  $\phi = \phi_G - \phi_D$  lorsque une tension est appliquée aux bornes de la jonction.

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{2eV}{\hbar} \quad (2.29)$$

Lorsque  $V = 0$ , la phase  $\phi$  est constante mais pas nécessairement nulle et d'après l'équation un courant dc peut circuler dans la jonction avec une densité de courant maximum  $J_1$  appelé densité de courant critique Josephson. Bien que les calculs précédents font référence à une jonction tunnel, ils sont également valables dans le cas d'autres « liens faibles » entre deux supraconducteurs. Dans ce cas, des déviations à la relation courant phase sinusoïdale sont possibles.

Dans le cadre de théorie BCS, la description microscopique de l'effet Josephson permet de calculer l'évolution du courant critique d'une jonction SIS avec la température. Ambegaokar et Baratoff[6] ont obtenu l'expression suivante

$$I_1(T) = \frac{\pi \hbar k_B T \Delta_D \Delta_G}{e R_n} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} \left[ [\omega_n^2 + \Delta_G^2(T)][\omega_n^2 + \Delta_D^2(T)] \right]^{-1/2} \quad (2.30)$$

où  $\omega_n = \pi(2n + 1)k_B T$  sont les fréquences de Matsubara.  $\Delta_G$  et  $\Delta_D$  sont les deux gaps supraconducteurs.

Si les deux supraconducteurs sont identiques, cette expression se réduit à

$$I_c(T) = \frac{\pi}{2} \frac{\Delta(T)}{eR_n} \tanh\left(\frac{\Delta(T)}{2k_B T}\right) \quad (2.31)$$

### 2.2.2 Effet Josephson alternatif

Lorsque le courant dépasse sa valeur maximum, la supraconductivité est détruite au voisinage de la jonction et une tension apparaît à ces bornes. D'après la relation (2.29), si  $V \neq 0$ , la différence de phase varie comme  $\phi = \phi_0 + \frac{2e}{\hbar} Vt$  et un courant alternatif circule dans la jonction

$$J = J_1 \sin\left(\phi_0 + \frac{2e}{\hbar} Vt\right) \quad (2.32)$$

avec une fréquence proportionnelle à la tension appliquée  $\omega = 2\pi f = \frac{2eV}{\hbar}$ , où le coefficient  $\frac{2e}{\hbar}$  vaut  $483.6 \text{ MHz}/\mu\text{V}$  ( $\phi_0$  est la différence de phase initiale).

Une jonction Josephson dont le courant dépasse le courant critique agit donc comme un convertisseur tension-fréquence. Inversement, si une tension alternative est appliquée aux bornes de la jonction par irradiation hyperfréquence, le courant de paires a tendance à se synchroniser avec cette fréquence (et ses harmoniques) et il apparaît une tension continue aux bornes de la jonction. Cette synchronisation se révèle dans les caractéristiques courant-tension par l'apparition de marches de courant (marches de Shapiro) pour des valeurs de tensions constantes

$$V_n = \frac{nh}{2e} f_0 \quad (n = \pm 1, \pm 2, \dots)$$

où  $f_0$  est la fréquence de la radiation.

Ce phénomène sera détaillé plus amplement dans le paragraphe 2.2.5. L'exactitude de la relation tension-fréquence et son indépendance vis à vis des conditions expérimentales (température, courant de polarisation, matériaux des jonctions) font des jonctions Josephson des convertisseurs tension-fréquence (ou fréquence-tension) de précision fondamentale qui sont utilisés à l'heure actuelle en métrologie pour définir l'étalon du volt. L'étalon de tension Josephson est un étalon intrinsèque dont la stabilité dépend uniquement de la stabilité de la fréquence qui peut facilement atteindre  $10^{-15}$  dans le cas des horloges atomiques. Il s'agit donc d'une référence très stable de tension qui peut être reproduite partout, quelque soit l'échantillon.

### 2.2.3 Effet d'un champ magnétique

Jusqu'à présent nous avons supposé qu'aucun champ magnétique n'était appliqué et que les courants circulant dans la jonction ne produisaient qu'une quantité négligeable de flux magnétique. Comme nous allons le voir dans la suite de cette partie, le courant Josephson présente la particularité de moduler en fonction d'un champ magnétique appliqué parallèlement à la jonction. De nombreuses applications de l'effet Josephson, notamment les SQUIDS (Superconducting Quantum Interferences Devices), reposent sur cette sensibilité du courant Josephson au flux magnétique.

#### 2.2.3.1 Electrodynamique des jonctions Josephson

Une transformation de jauge modifie le potentiel vecteur  $\vec{A}$  et le potentiel scalaire  $U$  selon

$$\vec{A} \rightarrow \vec{A} + \nabla\chi \quad (2.33)$$

$$U \rightarrow U - \frac{\partial\chi}{\partial t} \quad (2.34)$$

Les quantités physiques observables doivent demeurer inchangées, ce qui implique la transformation suivante pour la phase

$$\phi \rightarrow \phi + \frac{2e}{\hbar} \chi \quad (2.35)$$

La différence de phase invariante de jauge  $\gamma$  le long d'un chemin  $\mathcal{C}$  est alors donnée par

$$\gamma \equiv \phi - \frac{2e}{\hbar} \int_{\mathcal{C}} \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (2.36)$$

En l'absence de champ magnétique la phase invariante de jauge  $\gamma$  se confond avec la phase  $\phi$ .

Calculons la variation de la différence de phase  $\Delta\gamma$  d'une part entre les points  $G_A$  et  $D_A$  et d'autre part entre les points  $G_B$  et  $D_B$  (fig 2.7).

$$\Delta\gamma = [\gamma(D_A) - \gamma(G_A)] - [\gamma(G_B) - \gamma(D_B)] \quad (2.37)$$

$$\begin{aligned} &= [\phi(G_B) - \phi(G_A)] - [\phi(D_B) - \phi(D_A)] - \frac{2e}{\hbar} \int_{G_A D_A} \vec{A} \cdot d\vec{l} \\ &\quad + \frac{2e}{\hbar} \int_{G_B D_B} \vec{A} \cdot d\vec{l} \end{aligned} \quad (2.38)$$

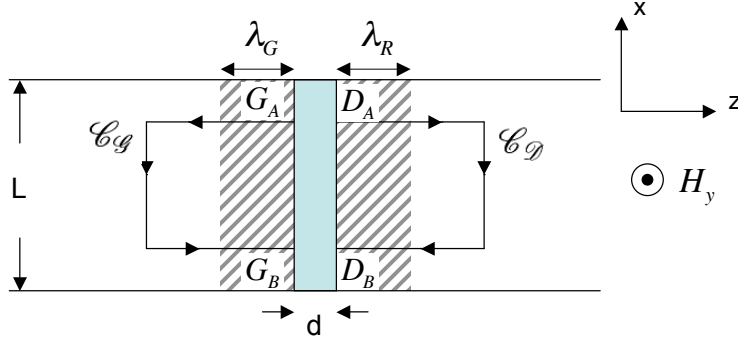


FIG. 2.7 – Définition des contours d'intégration  $\mathcal{C}_G$  et  $\mathcal{C}_D$  utilisés dans le calcul de  $\delta\gamma$ .

En plus du déphasage dû au champ magnétique il faut également tenir compte du déphasage induit par la circulation du courant d'écrantage. Celui-ci est donné par la circulation du vecteur d'onde  $\vec{k}$  le long du chemin suivi par le courant

$$\vec{k} = \frac{\vec{p}}{\hbar} \quad (2.39)$$

où  $\vec{p} = 2m_e \vec{v}$  est l'impulsion d'une paire de Cooper directement reliée à la densité  $\vec{J}_S$  de supercourant par la relation

$$\vec{J}_S = -n_S e \vec{v} \quad (2.40)$$

où  $n_S$  est la densité d'électrons supraconducteurs.

Le déphasage induit par la circulation du courant le long d'un chemin  $\mathcal{C}$  est donc donné par

$$\frac{m}{n_S e \hbar} \int_{\mathcal{C}} \vec{J}_S \cdot d\vec{l} \quad (2.41)$$

Les différences de phase  $\phi(G_B) - \phi(G_A)$  et  $\phi(D_B) - \phi(D_A)$  peuvent être calculées en utilisant les contours  $\mathcal{C}_g$  et  $\mathcal{C}_d$  définis sur la figure 2.7.

$$[\phi(G_B) - \phi(G_A)] = \frac{m}{n_s e \hbar} \int_{\mathcal{C}_g} \vec{J}_S \cdot d\vec{l} + \frac{2e}{\hbar} \int_{\mathcal{C}_g} \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (2.42)$$

$$[\phi(G_A) - \phi(D_B)] = \frac{m}{n_s e \hbar} \int_{\mathcal{C}_g} \vec{J}_S \cdot d\vec{l} - \frac{2e}{\hbar} \int_{\mathcal{C}_d} \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (2.43)$$

Si le chemin d'intégration est pris suffisamment loin de la barrière, la circulation de  $\vec{J}_S$  le long des parties de  $\mathcal{C}_g$  et  $\mathcal{C}_d$  parallèles à la jonction est nulle, les courants d'écrantage y étant négligeables. Dans les zones d'épaisseur  $\lambda$  où pénètre le champ magnétique, les courants d'écrantage sont perpendiculaires au vecteur densité de courant et le produit scalaire  $\vec{J}_S \cdot d\vec{l}$  est nul. On obtient donc

$$\Delta\gamma = \frac{2e}{\hbar} \int_{\mathcal{C}} \vec{A} \cdot d\vec{l} = \frac{2e}{\hbar} \iint_{S_{\mathcal{C}}} \vec{B} \cdot d\vec{S} \quad (2.44)$$

où  $\mathcal{C}$  est la réunion des contours  $\mathcal{C}_g$ ,  $[G_B D_B]$ ,  $\mathcal{C}_d$  et  $[D_A G_A]$ , et  $S_{\mathcal{C}}$  est la surface s'appuyant sur ce contour.

Pour calculer cette longueur, il faut connaître la distribution du champ magnétique dans les supraconducteurs  $G$  et  $D$ . On peut cependant obtenir une estimation correcte, en supposant que ce champ est non nul et égal au champ magnétique appliqué  $\vec{H}$  sur une longueur égale à  $\lambda$ . On obtient alors la variation de la différence de phase

$$\Delta\gamma = \frac{2e}{\hbar} (\lambda_G + \lambda_D + d) H_y \Delta x \quad (2.45)$$

où  $H_y$  est la composante du champ magnétique selon  $y$ ,  $\lambda_G$  et  $\lambda_D$  les longueurs de pénétration respectives dans les supraconducteurs de gauche  $G$  et de droite  $D$

Si on passe à la limite  $\Delta x \rightarrow 0$

$$\frac{\partial\gamma}{\partial x} = \frac{2e}{\hbar} H_y l \quad (2.46)$$

où on a introduit l'épaisseur magnétique de la jonction  $l = \lambda_G + \lambda_D + d$

En effectuant le même raisonnement dans la direction  $y$  on obtiendrait le résultat suivant

$$\frac{\partial\gamma}{\partial y} = -\frac{2e}{\hbar} H_x l \quad (2.47)$$

où  $H_x$  est la composante de  $\vec{H}$  selon  $x$ .

Le courant dans la jonction  $J$  est relié au champ magnétique par le théorème de Maxwell-Ampère. Dans le cas stationnaire

$$\nabla \vec{H} = \mu_0 \vec{J} \quad (2.48)$$

En introduisant la relation courant-phase Josephson (2.28) et les relations (2.45) et (2.47) on obtient

$$\frac{\Phi_0}{2\pi l J_1} \left( \frac{\partial^2 \gamma}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial y^2} \right) = J_1 \sin \phi \quad (2.49)$$



soit

$$\left( \frac{\partial^2 \gamma}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial y^2} \right) = \frac{1}{\lambda_J^2} \sin \phi \quad (2.50)$$

où  $\lambda_J = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 l J_1}}$  est appelée longueur de pénétration Josephson. On a introduit le quantum de flux magnétique  $\Phi_0 = \frac{h}{2e}$ .

Si on suppose que le flux dans la jonction reste petit comparé au quantum de flux  $\Phi_0$  et que la différence de phase  $\gamma$  est négligeable, l'équation (2.50) peut être linéarisée. La solution de cette équation est exponentiellement atténuée. Dans le cas où  $\vec{H} = H_y \vec{y}$

$$\gamma = \gamma_0 e^{-\frac{x}{\lambda_J}}$$

Etant donné que  $J = J_1 \sin \gamma$ , le courant Josephson est donc confiné près des bords de la jonction sur une épaisseur caractéristique  $\lambda_J$ . Il s'agit en fait d'une conséquence de l'écrantage du champ magnétique créé par les supercourants Josephson.

### 2.2.3.2 Cas des jonctions étroites

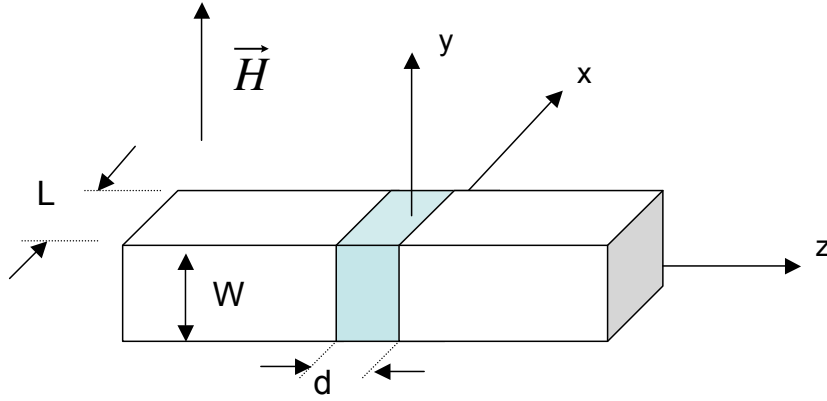


FIG. 2.8 – Représentation schématique d'une jonction Josephson parallèle au plan  $(x, y)$  placée dans un champ magnétique orienté selon l'axe  $y$ .

Considérons une jonction Josephson dont la géométrie est décrite sur la figure 2.8, placée dans un champ magnétique n'ayant qu'une composante selon la direction  $y$ ,  $\vec{H} = H_y \vec{y}$ . L'équation (2.50) se réduit alors à

$$\frac{\partial^2 \gamma}{\partial x^2} = \frac{1}{\lambda_J^2} \sin \phi \quad (2.51)$$

La largeur  $L$  de la jonction dans la direction  $y$  est supposée très inférieure à la longueur de pénétration Josephson  $\lambda_J$ . Dans la jonction, le champ induit par les supercourants est négligeable et le champ magnétique peut être considéré comme constant et égal au champ extérieur. En intégrant l'équation (2.51) on obtient

$$\gamma(x) = \gamma_0 + \frac{2\pi l}{\Phi_0} H_y x$$

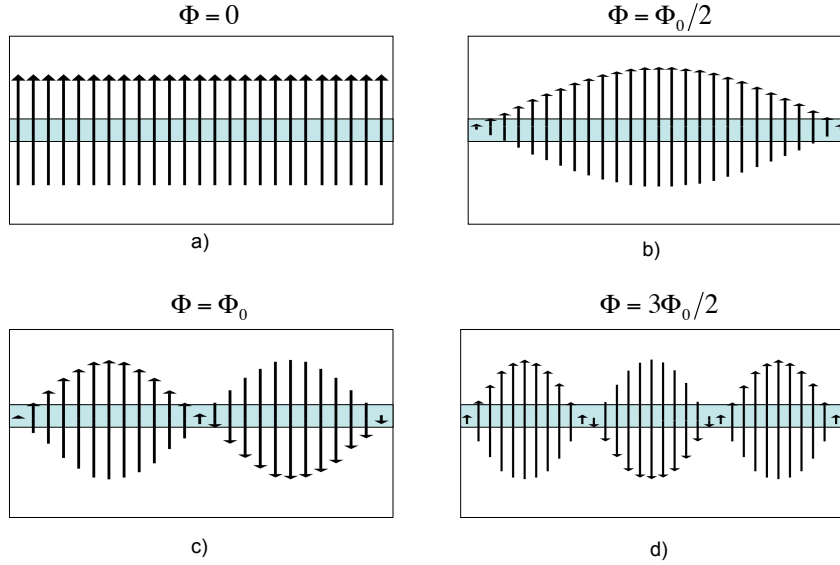


FIG. 2.9 – Distribution de courant dans une jonction Josephson pour des valeurs de champs magnétiques correspondant à  $\Phi = 0, \Phi_0/2, \Phi_0, 3\Phi_0/2$ .

où  $\Phi_0 = \frac{h}{2e}$  est le quantum de flux magnétique et  $\gamma_0$  est une constante d'intégration.

La différence de phase a une dépendance linéaire selon la direction  $x$ , la pente étant proportionnelle au champ magnétique. La densité de courant Josephson s'écrit alors (d'après (2.28))

$$J(x) = J_1(x, y) \sin\left(\frac{2\pi l}{\Phi_0} H_y x + \gamma_0\right) \quad (2.52)$$

où  $J_1(x, y)$  est la densité de courant critique Josephson à champ nul, dans laquelle les variations spatiales ont été introduites afin de tenir compte de la non-uniformité éventuelle de la barrière (fig 2.9).

Le courant total dans la jonction est donné par intégration de la densité de courant (2.52) sur la surface  $S$  de la jonction

$$I = \iint dx dy J_1(x, y) \sin\left(\frac{2\pi l}{\Phi_0} H_y x + \gamma_0\right) \quad (2.53)$$

On définit

$$k = \frac{2\pi l}{\Phi_0} H_y \quad \text{et} \quad \mathcal{J}(x) = \int dy J_1(x, y)$$

où l'intégration est effectuée sur la longueur de la jonction dans la direction  $y$ .

Le courant dans la jonction s'exprime alors en fonction de ces deux grandeurs

$$I(k, \gamma_0) = \int_{-L/2}^{L/2} dx \mathcal{J}(x) \sin(kx + \gamma_0) \quad (2.54)$$

$$= \Im \left[ e^{i\gamma_0} \int_{-L/2}^{L/2} dx \mathcal{J}(x) e^{ikx} \right] \quad (2.55)$$

En maximisant par rapport à  $\gamma_0$ , on obtient le courant critique Josephson  $I_1$  en fonction de  $k$

$$I_1(k) = \left| \int_{-L/2}^{L/2} dx \mathcal{J}(x) e^{ikx} \right| \quad (2.56)$$

L'intégrale peut être étendue à l'infini puisqu'il n'y a pas de courant à l'extérieur de la jonction ( $\mathcal{J}(x) = 0$  pour  $x > L/2$ )

$$I_1(k) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dx \mathcal{J}(x) e^{ikx} \right| \quad (2.57)$$

En présence d'un champ magnétique appliqué parallèlement à la jonction, le courant critique est donné par la valeur absolue de la transformée de Fourier de l'intégrale  $\mathcal{J}(x)$  représentant la distribution de courant dans la jonction.

En particulier, dans le cas d'une jonction rectangulaire comme celle de la figure (2.8) ayant une densité de courant uniforme

$$I_1(k) = I_1 \left| \frac{\sin(\frac{kL}{2})}{\frac{kL}{2}} \right|$$

où  $I_1 = J_1 LW$ .

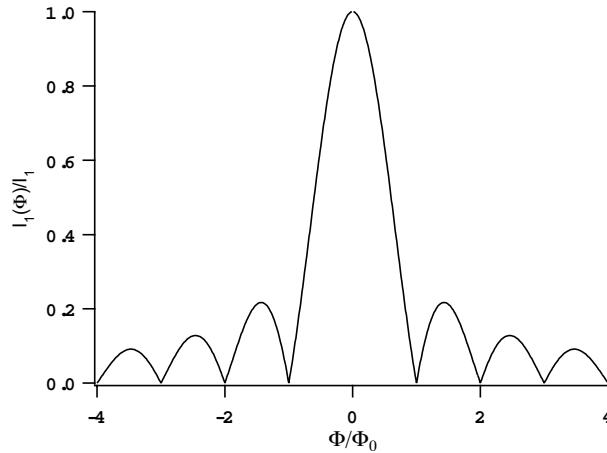


FIG. 2.10 – Modulation du courant critique en fonction du flux dans la jonction dans le cas d'une jonction étroite de forme rectangulaire (figure de diffraction de Fraunhofer).

En notant  $\Phi = H_y l l$  le flux du champ magnétique dans la jonction et en remplaçant  $k$  par son expression on obtient

$$I_1(\Phi) = I_1 \left| \frac{\sin(\pi \frac{\Phi}{\Phi_0})}{\frac{\Phi}{\Phi_0}} \right| \quad (2.58)$$

Cette courbe est appelée figure de diffraction de Fraunhofer par analogie avec le résultat obtenu lors d'une expérience de diffraction de la lumière à travers une fente rectangulaire (fig 2.10). Lorsque la géométrie des jonctions n'est plus rectangulaire ou que la distribution de courant n'est plus uniforme, le résultat obtenu sera différent. Cependant, quelque soit la géométrie de la jonction, la modulation de période  $\Phi_0$  sera toujours visible. Le calcul des caractéristiques  $I_1(H)$  a été discuté en détails dans la référence [15] pour un certain nombre de distributions de courant.

### 2.2.3.3 Cas des jonctions larges

Nous allons maintenant examiner le cas des jonctions larges pour lesquelles  $L > \lambda_J$ . Il n'est plus possible de négliger le champ magnétique produit par le courant Josephson. Celui-ci n'est alors plus uniformément distribué dans la jonction et le calcul des caractéristiques  $I_1(H)$  s'avère très délicat et ne sera pas présenté ici.

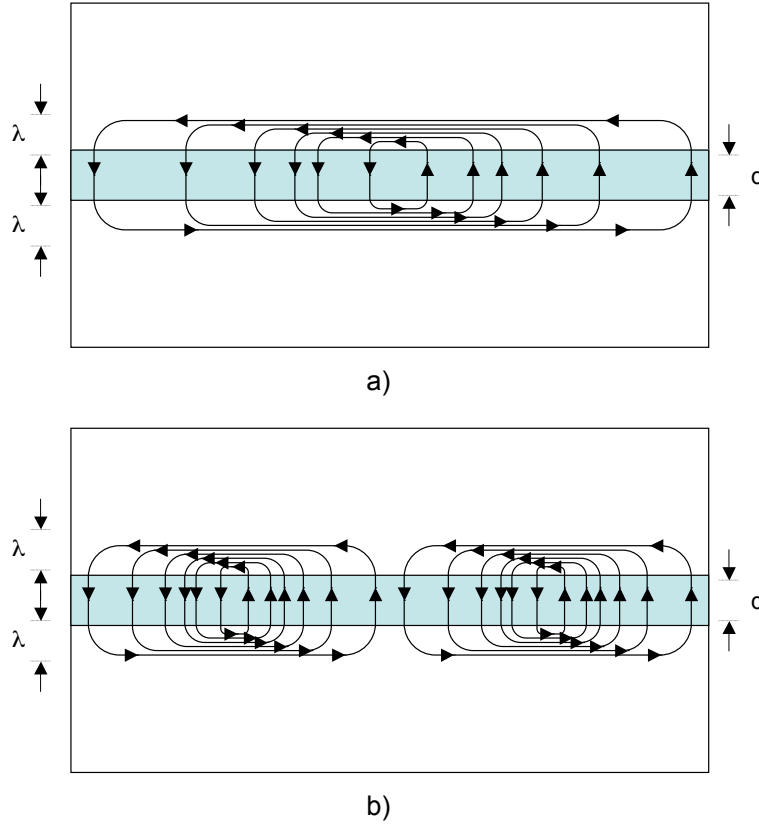


FIG. 2.11 – a) Représentation schématique des vortex Josephson dans une jonction. a) Un seul vortex est généré . b) Deux vortex sont générés.[21]

On peut cependant obtenir une idée assez physique de ce qui se passe dans une jonction lorsque sa largeur est de l'ordre de  $L_J$ , en comparant l'énergie associée au champ magnétique dans la jonction à celle associée au courant Josephson [21].

Pour un champ magnétique constant, l'énergie magnétique stockée dans la jonction est donnée par

$$E_H = \frac{H^2}{2} LWl \quad (l = \lambda_G + \lambda_D + d)$$

Pour un champ  $H$  dont le flux à travers la surface  $Ll$  correspond à  $\Phi_0$

$$E_H = \frac{\Phi_0^2 W}{2Ll}$$

L'énergie associée au courant Josephson est donnée par

$$U_J = \int JV dx dy dt$$

En utilisant les deux équations Josephson (2.28) et (2.29)

$$U_J = \frac{\hbar WL}{2e} \int \sin \gamma d\gamma$$

Ces deux énergies  $U_J$  et  $U_H$  sont égales lorsque

$$L = \lambda_J \left[ \frac{2\pi^2}{\int \sin \gamma d\gamma} \right]^{1/2}$$

Le facteur entre crochets est proche de l'unité. Les deux énergies deviennent donc comparables lorsque la largeur de la jonction  $L$  approche la longueur de pénétration Josephson. Dans le cas d'une jonction étroite ( $L \ll \lambda_J$ ),  $U_J \ll U_H$ , l'énergie associée au courant Josephson sera négligeable et le champ magnétique appliqué n'est pas modifié par le champ engendré par les supercourants. Pour une jonction large,  $L > \lambda_J$  et  $U_J > U_H$ , le champ magnétique n'est plus homogène dans la jonction. Owen et Scalapino[106] ont montré que lorsque le champ magnétique appliqué dépasse une valeur critique  $H_{c1} = \frac{\Phi_0}{\pi d \lambda_J}$  un tube de flux magnétique contenant un quantum de flux  $\Phi_0$  apparaît dans la jonction (fig 2.11). Ces tubes de flux sont appelés vortex Josephson. Cela se traduit notamment par l'apparition de plusieurs branches dans la caractéristique  $I_1(H)$ . Les modulations prennent une forme triangulaire et le courant critique ne s'annule plus. On remarquera que puisque  $\lambda_J$  dépend du courant critique, elle dépendra également de la température. Etant donné que le courant critique d'une jonction augmente lorsque la température diminue une jonction pourra parfois être considérée comme étroite à haute température et large à basse température.

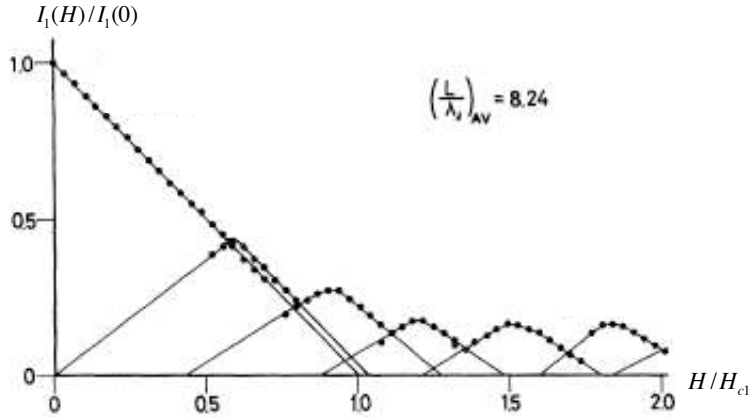


FIG. 2.12 – Modulation du courant critique Josephson d'une jonction large en fonction d'un champ magnétique  $H$  pour  $\frac{L}{\lambda_J} = 8.24$ . Les points correspondent aux données expérimentales et les traits pleins aux prédictions de Owen et Scalapino [106]

## 2.2.4 Le modèle RCSJ

Les deux équations Josephson (2.28) et (2.29) décrivent bien le comportement de jonctions idéales à  $V = 0$  où la totalité du courant est transportée par les paires de Cooper. Dans le cas où la barrière n'est plus un isolant parfait, il est intéressant de modéliser la jonction par le schéma équivalent de la figure (2.13) qui contient une jonction supposée idéale en parallèle avec une capacité  $C$  et une résistance  $R$ . Le circuit est bouclé par une source de courant  $I$ .

L'équation différentielle qui décrit l'évolution du courant dans le circuit est

$$I = I_1 \sin \phi + \frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt} \quad (2.59)$$

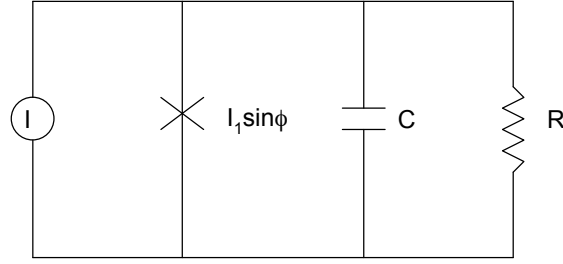


FIG. 2.13 – Circuit équivalent d'une jonction Josephson réelle dans le modèle RCSJ.

En utilisant la seconde équation Josephson (2.29), on peut éliminer  $V$  et exprimer l'équation en fonction de la phase  $\phi$

$$\frac{I}{I_1} = \frac{d^2\phi}{d\tau^2} + \beta_J \frac{d\phi}{d\tau} + \sin\phi \quad (2.60)$$

où on a introduit le temps sans dimension  $\tau = \omega_p t$ , la fréquence de plasma  $\omega_p = \sqrt{\frac{2eI_1}{\hbar C}}$  et le facteur de qualité  $\beta_J = \frac{1}{\omega_p RC}$ .

Dans la littérature, cette équation est parfois exprimée en fonction de grandeurs sans dimensions différentes. On trouvera notamment le facteur de qualité écrit sous la forme  $\beta_c = \frac{1}{\beta_J^2}$  qui est appelé nombre de Mc Cumber. Dans le cas le plus général, l'équation (2.60) ne peut pas être résolue analytiquement. On peut cependant s'intéresser aux deux limites  $\beta_J \gg 1$  et  $\beta_J \ll 1$ .

#### 2.2.4.1 Jonction sur-amortie ( $\beta_J \ll 1$ )

Ce cas correspond en fait à un circuit équivalent où la capacité aurait été négligée, pour cette raison, on parle souvent de modèle RSJ. Le terme du deuxième ordre peut être négligé dans l'équation (2.60)

$$\frac{I}{I_1} = \beta_J \frac{d\phi}{d\tau} + \sin\phi \quad (2.61)$$

Il existe alors une solution analytique.

**Lorsque**  $I < I_1$ , on retrouve naturellement la première équation Josephson  $I = I_1 \sin\phi$

**Lorsque**  $I > I_1$ , on obtient en intégrant (2.61)

$$\phi(\tau) = 2 \tan^{-1} \left[ \sqrt{\frac{(\frac{I}{I_1})^2 - 1}{(\frac{I}{I_1})^2}} \tan\left(\frac{\pi\tau}{T}\right) - \frac{I}{I_1} \right] \quad (2.62)$$

où  $T$  est la période donnée par (fig 2.14)

$$T = \frac{2\pi\beta_J}{\sqrt{(\frac{I}{I_1})^2 - 1}}$$

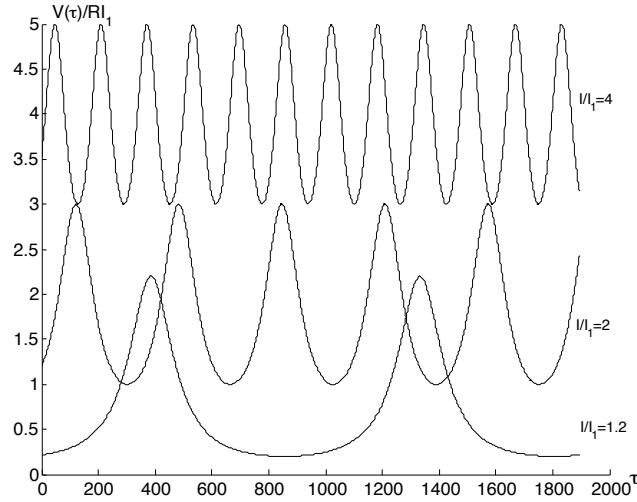


FIG. 2.14 – Caractéristiques  $V(\tau)$  aux bornes de la jonction pour différentes valeurs du rapport  $\frac{I}{I_1}$  obtenues à partir de la relation (2.62).

La tension de aux bornes de la jonction est obtenue en intégrant la seconde équation Josephson (exprimée avec les quantités sans dimensions) sur une période  $T$

$$\bar{V} = RI_1 \beta_J \frac{1}{T} \int_0^T \frac{d\phi}{d\tau} = \sqrt{\left(\frac{I}{I_1}\right)^2 - 1} \quad (2.63)$$

La figure 2.15 montre la caractéristique  $I(V)$  attendue pour une jonction Josephson décrite par un modèle RSJ. Pour des courants importants ( $I \gg I_1$ ) la branche de dissipation s'approche asymptotiquement d'une loi d'Ohm  $\bar{V} = RI$ .

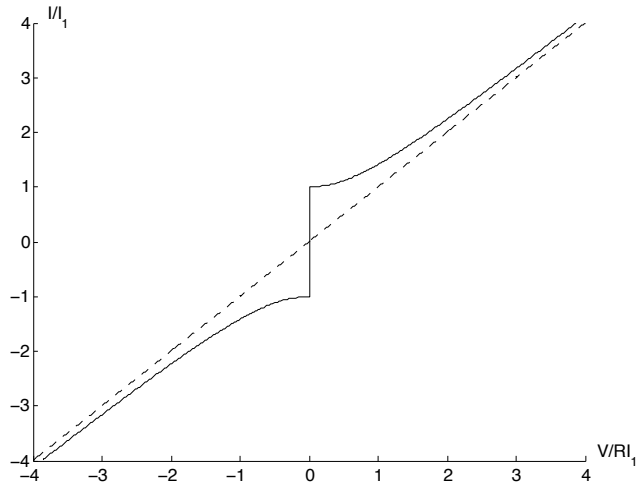


FIG. 2.15 – Caractéristique  $I(V)$  d'une jonction RSJ sur-amortie.

#### 2.2.4.2 Jonction sous-amortie ( $\beta_J < 1$ )

Lorsque  $\beta_J$  n'est plus très supérieur à 1, la branche de dissipation n'est plus mono-évaluée et une hystérésis apparaît dans la caractéristique  $I(V)$ . Si l'on part du point  $(I = 0, V = 0)$  et que

le courant est augmenté, aucune tension n'apparaît jusqu'à ce que le courant critique soit atteint. Une tension apparaît alors brutalement et la courbe  $I(V)$  suit une branche de dissipation qui rejoint asymptotiquement une loi d'Ohm. Si on diminue alors le courant en dessous du courant critique, la tension conserve une valeur finie. Lorsque le courant atteint la valeur  $I_2 \approx \frac{4}{\pi}\beta_J I_1$ , la jonction repasse dans l'état de tension nulle (fig2.16)

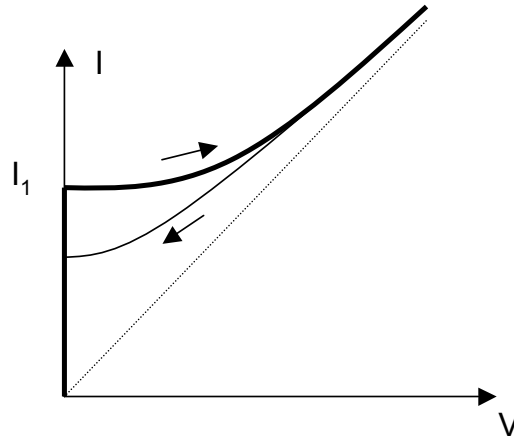


FIG. 2.16 – Représentation schématique de la caractéristique  $I(V)$  d'une jonction sous-amortie ( $\beta_J < 1$ ) faisant apparaître une hystérésis.

### 2.2.5 Effet des micro-ondes

Nous avons vu dans la section 2.2.2 qu'en présence d'une radiation micro-onde de fréquence  $f_0$ , des marches de courant apparaissent dans la caractéristique  $I(V)$  des jonctions pour des valeurs de tension multiples de  $V = \frac{h}{2e}f_0$ . Nous allons détailler ce phénomène en utilisant deux modèles différents pour rendre compte de l'effet des micro-ondes.

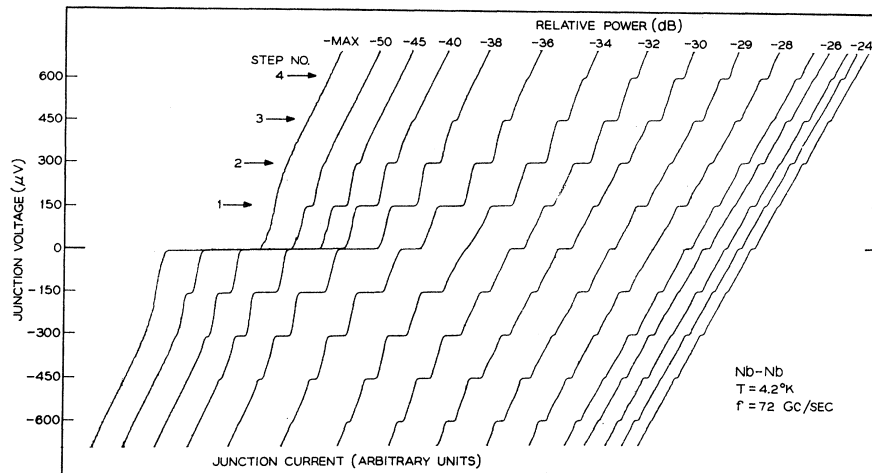


FIG. 2.17 – Caractéristiques  $I(V)$  d'une jonction Josephson point contact Nb-Nb soumise à une irradiation micro-onde de fréquence 72 GHz. Les différentes marches apparaissent lorsque la puissance des micro-ondes est augmentée.[63]



### 2.2.5.1 Modèle de la source de tension

Nous faisons l'hypothèse que l'effet de la radiation de fréquence  $f_0$  se traduit par l'apparition d'un champ électrique alternatif aux bornes de la jonction de fréquence identique. La tension effective appliquée à la jonction est alors

$$U(t) = U_0 + v \cos(\omega_0 t) \quad (\omega_0 = 2\pi f_0) \quad (2.64)$$

La différence  $\phi(t)$  est obtenue en intégrant la seconde équation Josephson (2.29)

$$\phi(t) = \frac{2\pi}{\Phi_0} \left( U_0 + \frac{v}{\omega_0} \sin(\omega_0 t + \phi_0) \right) \quad (2.65)$$

où  $\phi_0$  est une constante d'intégration.

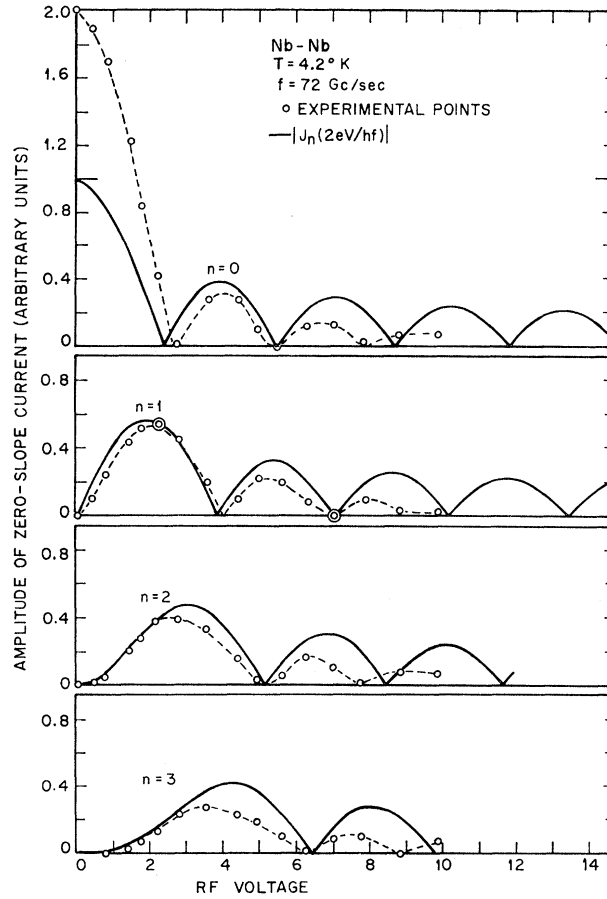


FIG. 2.18 – Evolution de la hauteur des marches de courant ( $n=0, 1, 2$  et  $3$ ) en fonction de la puissance des micro-ondes. Les traits pleins correspondent aux fonctions de Bessel.[63]

Le courant Josephson est alors donné par la relation courant-phase (2.28)

$$J(t) = J_1 \left[ \sin \left( \frac{2\pi}{\Phi_0} (U_0 t + \Phi_0) \right) \cos \left( \frac{v}{\Phi_0 f_0} \sin(\omega_0 t) \right) + \cos \left( \frac{2\pi}{\Phi_0} (U_0 t + \Phi_0) \right) \sin \left( \frac{v}{\Phi_0 f_0} \sin(\omega_0 t) \right) \right] \quad (2.66)$$

Les termes anharmoniques peuvent être développés en série de Fourier

$$\cos\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0} \sin(\omega_0 t)\right) = J_0 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n}\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \cos(2n\omega_0 t) \quad (2.67)$$

$$\sin\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0} \sin(\omega_0 t)\right) = 2 \sum_{n=1}^{\infty} J_{2n-1}\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \sin((2n-1)\omega_0 t) \quad (2.68)$$

où les coefficients  $J_{2n}$  et  $J_{2n-1}$  sont les fonctions de Bessel d'ordre  $n$ .

La relation (2.66) s'écrit alors

$$J(t) = J_1 \left[ J_0\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0}(U_0 t + \phi_0)\right) + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n J_n\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0}(U_0 t + \phi_0) - n\omega_0 t\right) \right. \\ \left. + \sum_{n=1}^{\infty} J_n\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\Phi_0}(U_0 t + \phi_0) + n\omega_0 t\right) \right] \quad (2.69)$$

On voit que chaque fois que la tension  $U_0 = n\Phi_0 f_0$  avec ( $n = 0, \pm 1, \pm 2$ ), il existe dans la somme un terme indépendant du temps, d'amplitude

$$|\bar{J}_n| = J_1 J_n\left(\frac{v}{\Phi_0 f_0}\right) \sin \Phi_0 \quad (2.71)$$

Il existe donc dans la caractéristique  $I(V)$  des marches de courant situées aux tensions de valeurs  $V_n = \frac{nh}{2e} f_0$  ( $n = \pm 1, \pm 2, \dots$ ) (fig 2.17). D'après 2.71, leur hauteur dépend de l'amplitude de la tension alternative  $v$  ce qui correspond à la racine carrée de la puissance de micro-onde incidente (fig 2.18). Ce phénomène, observé pour la première fois par Shapiro[120], est caractéristique du couplage Josephson puisqu'il n'existe que lorsque les deux équations Josephson sont vérifiées. Cet effet peut s'avérer très utile dans le cas de jonctions « liens faibles » comme c'est le cas avec les supraconducteurs à haute température critique où il est parfois difficile de différencier un courant critique Josephson d'un courant critique supraconducteur.

On peut remarquer que les ondes électromagnétiques utilisées pour les télécommunications dont les fréquences sont de quelques GHz, peuvent avoir un effet non négligeable sur le courant Josephson. Dans nos cryostats situés en zone urbaine, nous avons constaté que la puissance de ces ondes était suffisante pour détruire des courants critiques Josephson de quelques microampères. Pour y remédier les cryostats ont été équipés de filtres haute fréquence.

### 2.2.5.2 Modèle de la source de courant

Dans de nombreuses expériences, les marches de Shapiro sont observées mais la dépendance en fonction de la puissance de l'onde incidente ne correspond pas toujours à l'évolution des fonctions de Bessel. Dans le paragraphe précédent, nous avons utilisé le modèle très simple de la source de tension. En pratique, à moins qu'un circuit d'adaptation d'impédance soit utilisé, l'impédance de la source est très supérieure à celle de la jonction. Il est alors plus réaliste d'utiliser un modèle de source de courant. La jonction est alors décrite par un modèle RSJ auquel on a ajouté une source de courant dépendante du temps  $I = i \sin(\omega_0 t)$ .

La différence de phase de la jonction est donnée par l'équation

$$\frac{i}{I_1} \sin(\zeta\tau) + \frac{I}{I_1} = \frac{d\phi}{d\tau} + \sin \phi \quad (2.72)$$

où nous avons introduit le temps sans dimension  $\tau = \frac{2\pi R I_1 t}{\Phi_0}$  et la pulsation sans dimension  $\zeta = \frac{\Phi_0 \omega_0}{2\pi R I_1}$ .

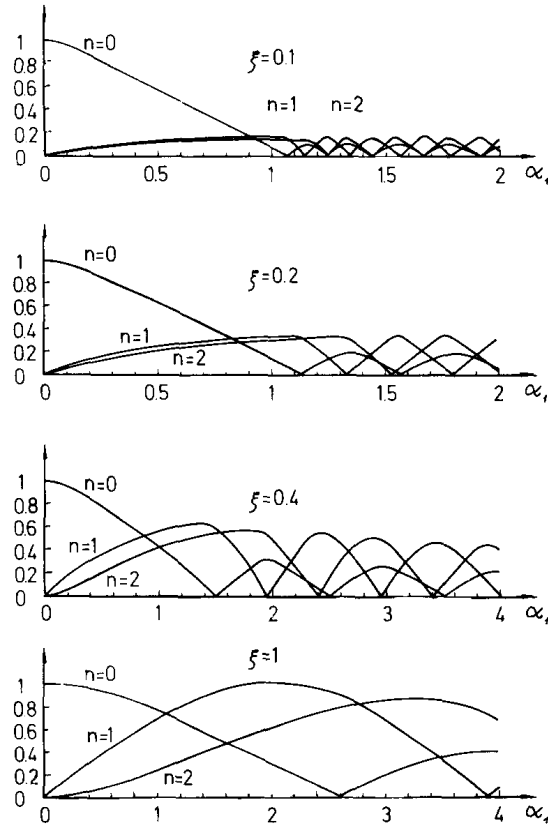


FIG. 2.19 – Evolution de la hauteur en courant des marches de Shapiro ( $n=0$ ,  $n=1$  et  $n=2$ ) en fonction de la puissance des micro-ondes pour différentes valeurs du paramètre  $\zeta$ , obtenues à partir de l'équation (2.72).[15]

Cette équation n'a pas de solution analytique connue mais peut être résolue numériquement. La figure (2.19) montre l'évolution de l'amplitude des trois premières marches ( $n=0$ ,  $n=1$  et  $n=2$ ) en fonction de  $i$  pour différentes valeurs de  $\zeta$ . A la différence du modèle source de tension, on voit ici que la forme des modulations dépend fortement de la valeur de la résistance  $R$ , du courant critique  $I_1$  et de la fréquence de la radiation  $\omega_0$  par l'intermédiaire du paramètre  $\zeta$ .

## 2.3 Jonctions supraconducteur-normal-supraconducteur

Lorsqu'un supraconducteur et un métal normal sont en contact électrique, leurs fonctions d'onde respectives se mélangent, ce qui se traduit par une réduction de la densité de paires de Cooper du côté supraconducteur et par une extension des propriétés du supraconducteur dans le métal normal. Ces deux phénomènes sont appelés respectivement *effet de proximité direct* et *effet de proximité inverse*. Le mécanisme à la base de ces phénomènes a été identifié comme étant la réflexion d'Andreev qui met en jeu des processus cohérents à deux particules dans le métal normal. Dans les jonctions supraconducteur-métal normal-supraconducteur, l'*effet de proximité direct* est à l'origine du couplage Josephson et assure le transport cohérent à travers la structure.

### 2.3.1 Réflexions d'Andreev

La réflexion d'Andreev[11, 12] est le mécanisme qui régit l'effet de proximité entre un métal normal et un supraconducteur. Elle contrôle le transport à travers les interfaces supraconducteur-

normal pour les énergies inférieures à l'énergie du gap supraconducteur. Lorsqu'un électron dont l'énergie est inférieure au gap arrive à une interface entre un métal normal et un supraconducteur, il ne peut pénétrer dans le supraconducteur sous la forme d'une quasiparticule. Il existe cependant un mécanisme à deux particules par lequel l'électron entre dans le supraconducteur sous la forme d'une paire de Cooper et est réfléchi dans le métal normal sous la forme d'un trou de spin opposé (fig 2.20). Si l'électron possède une énergie<sup>1</sup>  $\epsilon$  et un vecteur d'onde  $k_F + \delta k$ , alors le trou réfléchi a une énergie  $-\epsilon$  et un vecteur d'onde  $-k_F + \delta k$ . Ce processus, appelé réflexion d'Andreev, permet de convertir un courant d'électrons dans un métal normal en un supercourant de paires de Cooper dans le supraconducteur. Lorsqu'une paire de Cooper arrive à l'interface entre un supraconducteur et un métal normal, un mécanisme similaire a lieu : un trou est réfléchi sous la forme d'un électron.

Lors d'une réflexion d'Andreev, le trou réfléchi acquiert un déphasage intrinsèque  $\delta\phi = -\arccos \frac{\epsilon}{\Delta}$  où  $\Delta$  est l'amplitude du paramètre d'ordre du supraconducteur. En plus de ce phénomène, la différence de vecteur d'onde entre l'électron incident et le trou diffusé va donner naissance à un déphasage supplémentaire lorsque les particules se propagent dans le métal normal (fig 2.21). Dans un régime balistique, la différence de vecteur d'onde sera donnée par

$$2\delta k = \frac{2\epsilon}{\hbar v_F}$$

On peut considérer que les deux particules seront décorréélées au bout d'une distance

$$L_\epsilon = \frac{\hbar v_F}{\epsilon}$$

qui correspond à une longueur caractéristique de l'effet de proximité, sur laquelle les propriétés du métal sont affectées par le supraconducteur

En régime diffusif, cette longueur est donnée par

$$L_\epsilon = \sqrt{\frac{\hbar D}{\epsilon}}$$

D'après les expressions précédentes, on voit que la longueur caractéristique de l'effet de proximité est définie pour une énergie donnée. Si on se place dans le métal à une distance  $d$  de l'interface, on constate que les paires d'énergie supérieure à  $\epsilon = \frac{\hbar D}{d^2}$  auront perdu leur cohérence. Cette énergie est appelée énergie de Thouless.

A température finie, l'énergie  $\epsilon$  des électrons est de l'ordre de l'énergie thermique et on obtient alors la longueur moyenne de cohérence thermique dans le métal normal

$$\xi_N = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \quad (2.73)$$

### 2.3.2 Théorie de l'effet de proximité dans les systèmes diffusifs

Les systèmes inhomogènes telles que des jonctions supraconducteur-métal normal, ne peuvent pas être décrits dans cadre initial de la théorie BCS qui suppose l'invariance spatiale du paramètre d'ordre et ne traite que des effets à l'équilibre. Seule la théorie générale développée par Gorkov [60, 61] qui ne fait aucune hypothèse d'homogénéité spatiale permet de décrire ces systèmes. Pour cela, il a reformulé la théorie BCS en introduisant les fonctions de Green de la théorie des champs. En plus de la fonction de Green à une particule pour un métal normal  $G(r, r', t)$ , dans un supraconducteur, il faut introduire une fonction de Green anormale  $F^+(r, r', t)$  liée à l'existence des paires de Cooper

$$G(r, r', t) = -i\langle T\{\Psi(r, 0)\Psi^+(r', t)\} \rangle \quad (2.74)$$

$$F^+(r, r', t) = \langle T\{\Psi_\uparrow^+(r, 0)\Psi_\downarrow^+(r', t)\} \rangle \quad (2.75)$$

<sup>1</sup>L'énergie est mesurée à partir du niveau de Fermi.

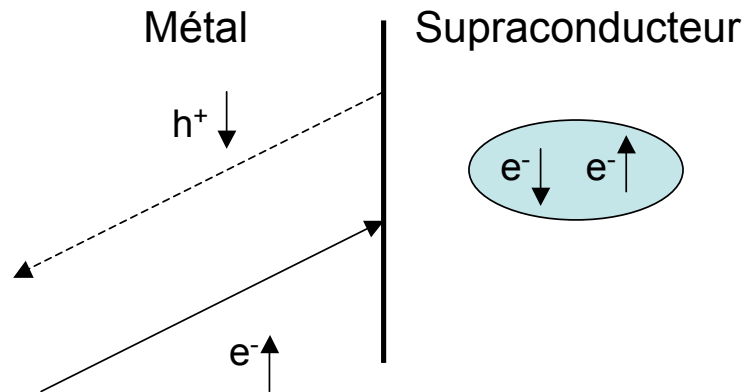


FIG. 2.20 – Mécanisme de la réflexion d'Andreev. Un électron incident sur une interface métal normal-supraconducteur est réfléchi sous la forme d'un trou et une paire de Cooper est transférée dans le supraconducteur.

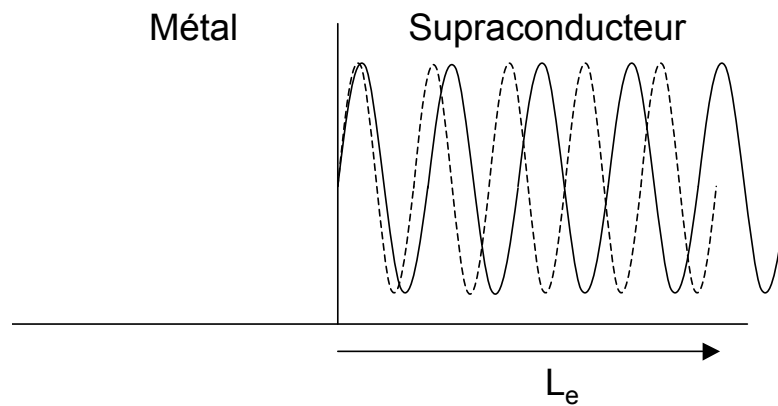


FIG. 2.21 – Le trou réfléchi et l'électron initial perdent leur cohérence de phase sur une longueur  $L_e$  liée à la différence d'énergie entre les deux particules.

où  $\Psi(r, t)$  et  $\Psi^+(r', t)$  sont les opérateurs usuels de destruction et de création d'un électron au point  $r$  et au temps  $t$ ,  $T$  étant l'opérateur de mise en ordre du temps.

Cela permet également de définir le potentiel de paires

$$\Delta(r) = V(r)F(r) \quad (2.76)$$

qui généralise le paramètre d'ordre BCS en introduisant une dépendance spatiale.

$V(r)$  est l'interaction effective électron-électron et la quantité :

$$F(r, r, 0) = \langle \Psi_{\uparrow}(r)\Psi_{\downarrow}(r) \rangle \quad (2.77)$$

est appelée amplitude de condensation de paires ; elle mesure la densité de paires en un point  $r$ . C'est le fait que cette amplitude puisse avoir une valeur non nulle dans un métal normal qui est caractéristique de l'effet de proximité direct. Dans un supraconducteur homogène,  $V(r)$  est constant et  $\Delta(r)$  s'identifie à la largeur de la bande interdite.

Les fonctions de Green normale et anormale satisfont aux deux équations d'évolution couplées

$$\left[ i\omega - \frac{1}{2m} \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e}{c} A(r) \right)^2 + \mu + U(r) \right] G_{\omega}(r, r') + \Delta(r) F_{\omega}^+(r, r') = \delta(r, r') \quad (2.78)$$

$$\left[ -i\omega - \frac{1}{2m} \left( -\frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e}{c} A(r) \right)^2 + \mu + U(r) \right] F_{\omega}^+(r, r') - \Delta^*(r) G_{\omega}(r, r') = 0 \quad (2.79)$$

où  $G_{\omega}(r, r')$  et  $F_{\omega}(r, r')$  sont les transformées de Fourier des fonctions de Green  $G(r, r', t)$  et  $F^+(r, r', t)$

Le paramètre d'ordre  $\Delta(r)$  est alors solution de l'équation self-consistante de Gorkov qui s'écrit

$$\Delta(r) = V(r)k_B T \sum_{\omega} F_{\omega}(r, r') \quad (2.80)$$

où  $\omega = (2n + 1)\pi k_B T$  sont les pôles de la fonction de Fermi et la somme est effectuée sur tous les entiers  $n$  positifs, négatifs ou nuls.

La non linéarité des équations couplées les rend très difficiles à résoudre. On peut espérer connaître le paramètre d'ordre dans un régime de température au voisinage de  $T_c$  où il est possible de développer  $G_{\omega}$  en puissance de  $\Delta(r)$ . Il est alors utile d'utiliser la forme intégrale des équations d'évolution[55]

$$G_{\omega}(r, r') = G_{\omega}^N(r, r') - \int d^3 s d^3 s' G_{\omega}^N(r, s) \Delta(s) G_{-\omega}^N(s', s) \Delta^*(s') G_{-\omega}^N(s', r') \quad (2.81)$$

$$\begin{aligned} F_{\omega}^+(r, r') &= \int d^3 s G_{-\omega}^N(s, r) \Delta^*(s) G_{\omega}^N(s, r') \\ &\quad - \int d^3 s d^3 s' G_{-\omega}^N(s, r) \Delta^*(s) G_{\omega}^N(s, s') \Delta(s') F_{\omega}^+(s', r') \end{aligned} \quad (2.82)$$

où  $G_{\omega}^N$  est la fonction de Green de l'état normal satisfaisant l'équation :

$$\left[ i\omega - \frac{1}{2m} \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e}{c} A(r) \right)^2 + \mu + U(r) \right] G_{\omega}^N(r, r') = \delta^3(r, r') \quad (2.83)$$

En se limitant au premier terme en  $\Delta(r)$ , on obtient l'équation self-consistante linéarisée :

$$\Delta(r) = V(r)K_B T \sum_{\omega} \int G_{\omega}^N(r, r') G_{-\omega}^N(r, r') \Delta(r') d^3 r' \quad (2.84)$$

$$\Delta(r) = V(r)K_B T \int K(r, r') \Delta(r') d^3 r' \quad (2.85)$$

Le noyau de l'intégrale  $K(r, r')$  définit le volume contribuant aux propriétés supraconductrices au point  $\vec{r}$ .

### 2.3.2.1 Approximation de diffusion

A partir de la théorie de Gorkov, de Gennes, Guyon et Werthamer[32, 31, 144] ont développé une théorie de l'effet de proximité dans les systèmes diffusifs où le libre parcours moyen des électrons  $l$  est faible devant la longueur de cohérence  $\xi$  et l'épaisseur de l'échantillon<sup>2</sup> (métal « sale »). Le mouvement des électrons satisfait alors une équation de diffusion et la théorie de Gorkov se simplifie. Dans le cas unidimensionnel, 2.85 s'écrit

$$\Delta(x) = V(x)K_B T \sum_{\omega} \int H_{\omega}(x, x') \Delta(x') dx' \quad (2.86)$$

où  $H_{\omega}(x, x')$  est la valeur moyenne sur les positions des impuretés de  $G_{\omega}^N(x, x') G_{-\omega}^N(x, x')$ .

Dans le cas d'un système métal Normal-Supraconducteur (NS) semi-infini ( $x < 0$  dans N et  $x > 0$  dans S),  $H_{\omega}$  prend la forme[34]

$$H_{\omega}(x, x') = \frac{\pi}{2\hbar|\omega|\xi_S(\omega)} \left\{ e^{-\frac{|x-x'|}{\xi_S(\omega)}} + \frac{N_S \xi_S(\omega) - N_N \xi_N(\omega)}{N_S \xi_S(\omega) + N_N \xi_N(\omega)} e^{-\frac{|x+x'|}{\xi_S(\omega)}} \right\} \quad (2.87)$$

pour  $x > 0$  et  $x' > 0$  dans S

$$H_{\omega}(x, x') = \frac{\pi}{\hbar|\omega|} \frac{N_S N_N}{N_S \xi_S(\omega) + N_N \xi_N(\omega)} e^{-\frac{x}{\xi_N(\omega)}} e^{-\frac{x'}{\xi_S(\omega)}} \quad (2.88)$$

pour  $x < 0$  dans N et  $x' > 0$  dans S.

Les valeurs de  $H_{\omega}$  correspondant aux autres signes de  $x$  et  $x'$  s'obtiennent en interchangeant le rôle de S et N dans les équations précédentes.  $N_N$  et  $N_S$  sont les densités d'états au niveau de Fermi du métal normal et du supraconducteur à l'état normal.  $\xi(\omega) = \sqrt{\frac{D}{2|\omega|}}$  apparaît comme une longueur caractéristique sur laquelle le potentiel de paires varie. L'extension maximum est obtenue pour la plus petite valeur  $|\omega| = \frac{\pi k_B T}{\hbar}$ .

### 2.3.2.2 Dépendance spatiale du paramètre d'ordre dans le métal normal

**Cas où  $V(r) = 0$  dans le métal normal** D'après 2.86,  $\Delta(r)$  est nul dans le métal normal et  $F(r)$  est obtenue à partir de l'équation 2.88 où le volume d'intégration est réduit à la région supraconductrice S. L'amplitude de condensation  $F(r) = \frac{\Delta(r)}{V(r)}$  prend une valeur non nulle sur une distance de l'ordre de  $\xi_N(\omega) = \sqrt{\frac{D}{2|\omega|}}$ . Pour des températures non nulles, la longueur maximum est obtenue pour  $|\omega| = \frac{\pi k_B T}{\hbar}$  et l'amplitude de condensation est donnée pour  $|x|$  grand

$$F_N(x) \approx F_N(0^-) e^{-\frac{|x|}{\xi_N}} \quad (2.89)$$

<sup>2</sup>Les lecteurs intéressés pourront consulter les articles de revue de G. Deutscher et P. G de Gennes [34] et de A. Gilibert [55].

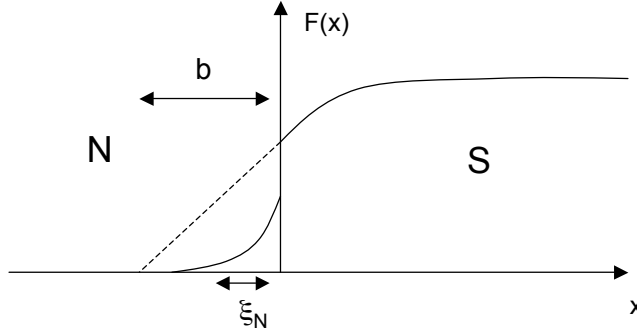


FIG. 2.22 – Représentation schématique de la dépendance spatiale de l'amplitude de condensation de paires dans une structure métal Normal-Supraconducteur (SN).

où  $\xi_N = \sqrt{\frac{\hbar D_N}{2\pi k_B T}}$  est la longueur de cohérence des paires de Cooper dans le métal normal.  $D_N = \frac{1}{3}v_F l$  est le coefficient de diffusion du métal normal,  $v_F$  est la vitesse des électrons au niveau de Fermi et  $l$  le libre parcours moyen.

Dans le cas d'un métal « propre » il faut alors utiliser l'équation 2.85. La dépendance de  $F_N(x)$  est la même que précédemment mais la longueur de cohérence est alors donnée par [34]

$$\xi_N(T) = \frac{\hbar v_F}{\pi K_B T} \quad (2.90)$$

A  $T = 0$  la somme  $\sum_{\omega}$  peut être remplacée par une intégrale continue et la dépendance de  $F_N$  devient hyperbolique dans la limite « propre » comme dans la limite « sale »

$$F_N(x) \sim \frac{1}{x}$$

**Cas où  $V(r) \neq 0$  dans le métal normal** Le cas où N est lui aussi un supraconducteur de température critique  $T_c^N$  est plus difficile à résoudre. Dans la limite « sale », de Gennes et Guyon [32] ont montré que la forme asymptotique de  $F_N$  est exponentielle mais la longueur de cohérence doit être modifiée. Pour des températures supérieures à  $T_c^N$ , elle devient

$$\xi_N(T) = \sqrt{\frac{\hbar D_N}{2\pi K_B T}} \sqrt{1 + \frac{2}{\ln \frac{T}{T_c^N}}} \quad (2.91)$$

Ce résultat s'applique seulement pour  $x > \xi_N$ ; dans le cas  $x \simeq \xi_N$  la dépendance de  $F_N(x)$  n'est plus une simple fonction exponentielle mais s'écrit

$$F_N(x) = \sum_{\xi_N} A_{\xi_N} e^{-\frac{|x|}{\xi_N}}$$

où les  $\xi_N$  sont les racines de l'équation

$$\ln \frac{T_c^N}{T} = \psi\left(\frac{1}{2} - \frac{\hbar D_N}{4\pi \xi_N^2 k_B T}\right) - \psi\left(\frac{1}{2}\right)$$

où  $\psi$  est la fonction digamma, dérivée logarithmique de la fonction d'Euler  $\Gamma$ .



**Conditions de raccordement** Les conditions de raccordement pour  $F$  à l'interface entre un métal et un supraconducteur sont fonctions des caractéristiques propres des deux matériaux. Dans la limite sale, de Gennes[31] obtient :

$$\frac{F_N(0^-)}{N_N} = \frac{F_S(0^-)}{N_S} \quad \text{et} \quad D_N \left( \frac{dF_N}{dx} \right)_{0^-} = D_S \left( \frac{dF_S}{dx} \right)_{0^+} \quad (2.92)$$

où  $N_N(N_S)$  est la densité d'états du métal normal (supraconducteur) et  $D_N(D_S)$  est le coefficient de diffusion du métal normal (supraconducteur).

Il est également intéressant d'introduire la longueur d'extrapolation  $b$  définie sur la figure 2.22. De façon générale, elle est obtenue en résolvant l'équation 2.86 mais il existe peu de cas où cela est possible. Lorsque les densités d'états et les coefficients de diffusion sont identiques du côté supraconducteur et du côté normal, il existe une solution analytique complète [34]. Dans le cas où  $V(r) = 0$  dans le métal normal

$$b \approx 0.92\xi_N \quad (2.93)$$

La valeur de  $b$  mesure l'influence défavorable du métal N sur la supraconductivité dans S, elle doit être comparée à la longueur de cohérence  $\xi$  dans le supraconducteur. Lorsque  $b \ll \xi$ ,  $\Delta$  n'est pratiquement pas perturbé dans le supraconducteur. En revanche, dans le cas inverse, l'effet de proximité se traduira par une réduction importante de  $\Delta$ .

### 2.3.2.3 Jonctions Josephson SNS

Considérons maintenant le cas d'une jonction supraconducteur-normal-supraconducteur (SNS) avec deux interfaces SN à  $|x| = d_N$ . Dans l'approximation de diffusion décrite précédemment, de Gennes [31] a calculé le courant supraconducteur à travers une épaisseur  $2d_N$  de métal normal. Il obtient une relation courant phase sinusoidale identique à celles des jonctions Josephson SIS.

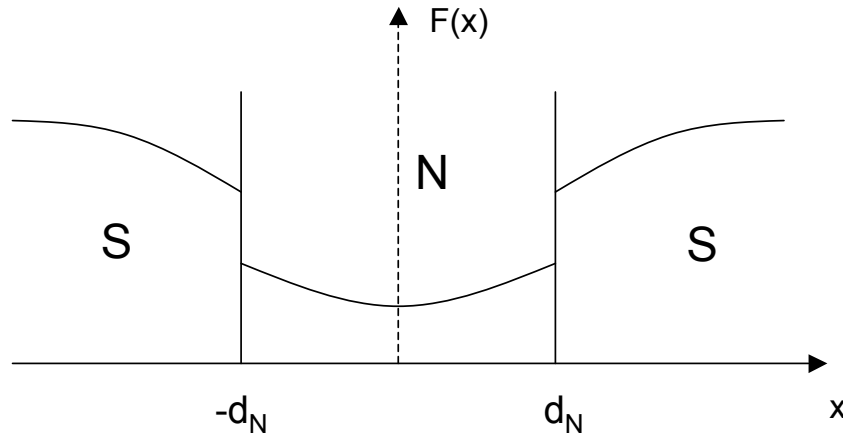


FIG. 2.23 – Représentation schématique de la dépendance spatiale de l'amplitude de condensation de paires dans une jonction Josephson SNS.

$$I = I_m \sin(\phi_1 - \phi_2) \quad (2.94)$$

où  $\phi_1$  et  $\phi_2$  sont les phases respectives des deux supraconducteurs.

La valeur du courant critique a pour expression[31]

$$I_m = \frac{C}{\xi_N} \frac{1}{\sinh(2d_N/\xi_N)} |\Delta_{0+}|^2 \quad (2.95)$$

où  $C$  est une constante du supraconducteur,  $\Delta_{0+}$  est le potentiel de paires du côté supraconducteur à l'interface avec le métal normal et  $\xi_N(T) = \sqrt{\frac{\hbar D_N}{2\pi K_B T}}$  est la longueur de cohérence des paires de Cooper dans le métal normal.

Lorsque  $T$  est proche de  $T_c$  et dans le cas d'une jonction épaisse

$$I_m \sim e^{-2d_N/\xi_N} (T_c - T)^2 \quad (2.96)$$

$I_m(T)$  est donc proportionnel à  $(T_c - T)^2$  pour une jonction SNS alors que dans le cas d'une jonction SIS, la dépendance est linéaire près de  $T_c$ .

L'expression 2.96 prévoit une dépendance exponentielle du courant critique avec l'épaisseur du métal. D'un point de vue expérimental, il s'agit d'un paramètre contrôlable qui permet d'ajuster la valeur du courant critique en fonction de l'utilisation désirée de la jonction.

### 2.3.3 Approche quasiclassique de l'effet de proximité

Cette partie présente très brièvement le formalisme des théories quasiclassiques de la supraconductivité. Le but est d'introduire les équations d'Usadel sous la forme paramétrée que nous utiliserons dans le chapitre 3 consacré aux jonctions fabriquées par irradiation ionique<sup>3</sup>.

Les équations de Gorkov que nous avons introduites dans ce chapitre fournissent un cadre théorique complet pour l'étude des systèmes supraconducteurs inhomogènes. Malheureusement, même dans le cas de systèmes relativement simples, ces équations sont complexes et ne peuvent être résolues exactement. Cependant, une forme simplifiée des équations, plus facilement utilisable, peut être obtenue dans le cadre de l'approximation quasiclassique initiée par Eilenberger.

Cette méthode est basée sur le fait que les énergies mises en jeu dans le phénomène de supraconductivité ( $\simeq \Delta$ ) sont bien inférieures à l'énergie de Fermi ( $E_F$ ) [87]. L'approximation quasiclassique consiste alors en un développement perturbatif des équations de Gorkov en fonction d'un petit paramètre  $\frac{\Delta}{E_F}$ . Cela signifie que toutes les variations des grandeurs physiques sur une échelle de longueur inférieure à la longueur de cohérence  $\xi$  sont intégrées. Cette approximation supprime toutes les informations à l'échelle de la longueur d'onde de Fermi et ne permettra pas non plus de décrire les phénomènes d'interférence à un électron telle que la localisation faible. Dans le cas des supraconducteurs conventionnels le rapport  $\frac{\Delta}{E_F}$  est de l'ordre de  $10^{-3}$  ce qui justifie pleinement l'approximation quasiclassique. Pour les supraconducteurs à haute température, ce rapport peut atteindre  $10^{-2} - 10^{-1}$  et l'approximation reste valable, au minimum près de  $T_c$ .

La théorie quasiclassique utilise les fonctions de Green quasiclassiques qui sont obtenues par intégration des fonctions de Green sur l'énergie au voisinage de la surface de Fermi. En utilisant les notations du formalisme de Nambu [104], la matrice des fonctions de Green quasiclassiques s'écrit

$$\hat{g}_\omega = \begin{pmatrix} g & f \\ f^\dagger & -g \end{pmatrix}$$

où  $g$  est la fonction de Green quasiclassique correspondant aux états à une particule et  $f$  la fonction de Green qui décrit la cohérence à deux particules.

<sup>3</sup>Le lecteur intéressé par le formalisme quasiclassique de la supraconductivité pourra consulter l'article de revue de W. Belzig [19].

### 2.3.3.1 Equations d'Eilenberger

Les équations de Gorkov ont été reformulées par Eilenberger[41] dans l'approximation quasiclassique sous une forme identique à des équations de mouvement. En utilisant les notations du formalisme de Nambu et du formalisme de Matsubara, l'équation quasiclassique d'Eilenberger s'écrit [19]

$$-\hbar v_F [\hat{\partial}, \hat{g}_\omega(v_F, r)] = [\omega \hat{\tau}_3 + \hat{\Delta} + \frac{1}{2\tau} \langle \hat{g}_\omega(v_F, r) \rangle, \hat{g}_\omega(v_F, r)] \quad (2.97)$$

où  $\omega = (2n + 1)\pi k_B T$  ( $n=0, \pm 1, \pm 2, \dots$ ) sont les fréquences de Matsubara et  $\hat{\partial} = \nabla + \frac{ie}{\hbar} A(r) \hat{\tau}_3$  la dérivée covariante.  $\langle \hat{g}(v_F, r) \rangle$  est une moyenne sur les collisions avec les impuretés.

$\hat{\tau}_3$  est la troisième matrice de Pauli

$$\hat{\tau}_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

La matrice de Green doit satisfaire à la condition de normalisation  $\hat{g}_\omega^2(v_F, r) = \hat{1}$  c'est à dire  $g_\omega^2(v_F, r) + f_\omega(v_F, r) f_\omega^\dagger(v_F, r)$

$\hat{\Delta}$  est la matrice du potentiel de paires donnée par

$$\hat{\Delta} = \begin{pmatrix} 0 & \Delta \\ \Delta^\dagger & 0 \end{pmatrix}$$

Les grandeurs spectrales peuvent s'obtenir en effectuant la continuation analytique  $\omega_n \rightarrow i\epsilon + 0^+$ . Les grandeurs thermodynamiques comme le potentiel de paires et le supercourant sont obtenues en effectuant une somme sur les fréquences de Matsubara.

### 2.3.3.2 Equations d'Usadel

Nous considérons maintenant le cas d'un supraconducteur ayant une forte concentration d'impuretés et dont le libre parcours moyen est plus petit que la longueur de cohérence. Les fonctions de Green deviennent alors quasiment isotropes et peuvent être développées en harmoniques sphériques. Dans cette limite, Usadel [136] a simplifié les équations quasiclassiques en moyennant les fonctions de Green sur toutes les directions du vecteur d'onde.

L'équation d'Eilenberger ne dépend alors plus du vecteur d'onde et se réduit à une simple équation de diffusion[19, 85]

$$\hbar [\hat{\partial}, \hat{G}_\omega(r) [\hat{\partial}, \hat{G}_\omega(r)]] = [\omega \hat{\tau}_3 + \hat{\Delta}(r), \hat{G}_\omega(r)] \quad (2.98)$$

où  $D = \frac{v_F l}{3}$  est le coefficient de diffusion et  $\hat{G}_\omega(r)$  est la moyenne sur tous les angles de la matrice des fonctions de Green quasiclassiques.

Lorsqu'il n'y a pas de terme de gradient de phase,  $\hat{G}_\omega(r)$  est entièrement réel et le formalisme de Matsubara sera donc particulièrement bien adapté à la résolution de l'équation d' Usadel.

Le courant est donné par

$$j(r) = -i \frac{\pi \sigma_N}{2e} T \sum_\omega \text{Tr} \left( \hat{\tau}_3 \hat{G}_\omega(r) [\hat{\partial}, \hat{G}_\omega(r)] \right) \quad (2.99)$$

où  $\sigma_N = 2e^2 N_0 D$  est la conductivité à l'état normal ( $N_0$  est la densité d'états de quasiparticules).

L'équation self-consistante du potentiel de paires est alors donnée par

$$\Delta = \lambda 2\pi k_B T \sum_{\omega_n} F(\omega_n, r) \quad (2.100)$$

où  $\lambda$  est la constante de couplage.

Les fonctions  $F$  et  $G$  obéissent à la condition de normalisation

$$F^2 + G^2 = 1$$

qui traduit le fait que le nombre total d'électrons du système est fixé.

Cette propriété permet d'effectuer une paramétrisation des équations d'Usadel en fonction d'un angle d'appariement  $\theta(r)$  et de la phase  $\chi(r)$ [19, 85]

$$G(\omega_n, r) = \cos \theta(r) \quad (2.101)$$

$$F(\omega_n, r) = \sin \theta(r) e^{i\chi(r)} \quad (2.102)$$

$$\hat{G}_\omega = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta(r) e^{i\chi(r)} \\ \sin \theta(r) e^{-i\chi(r)} & \cos \theta \end{pmatrix}$$

Les équations d'Usadel prennent alors une forme simplifiée

$$\frac{\hbar D}{2} \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} - \omega_n \sin \theta_n + \Delta \cos \theta - \frac{\hbar D}{2} \left( \frac{\partial \chi}{\partial x} \right)^2 \sin \theta \cos \theta = 0 \quad (2.103)$$

$$\frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{\partial \chi}{\partial x} \sin^2 \theta \right] = 0 \quad (2.104)$$

L'équation self-consistante du potentiel de paire est alors donnée par

$$\Delta(x) = \lambda 2\pi k_B T \sum_{\omega_n} \sin \theta \quad (2.105)$$

On notera que dans le cas d'une jonction entre un métal normal et un supraconducteur,  $\Delta$  est nul dans le métal normal, (sauf si celui-ci est lui-même un supraconducteur), ce qui simplifie la résolution de l'équation d'Usadel.

Le courant est alors donné par

$$j(x) = -\pi e N_0 D T \sum_{\omega} \frac{\partial \chi}{\partial x} \sin^2 \theta \quad (2.106)$$

Nous voyons que l'équation 2.104 exprime simplement la conservation du courant  $j(x)$ .

**Conditions aux limites et aux interfaces** L'équation différentielle 2.103 doit être résolue avec des conditions aux limites. Dans une jonction Supraconducteur-métal Normal, les équations d'Usadel décrivent la propagation des paires du côté supraconducteur ou du côté normal. Il faut alors ajouter à l'équation, des conditions à l'interface qui traduisent les caractéristiques respectives des deux matériaux. Dans le cas d'une barrière transparente elles sont données par

$$\sigma_S \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)_{x=0^-} = \sigma_N \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)_{x=0^+} \quad (2.107)$$

$$\sin \theta(x=0^-) = \sin \theta(x=0^+) \quad (2.108)$$

où  $\sigma_S$  et  $\sigma_N$  sont les conductivités électriques respectives du supraconducteur et du métal normal.

Pour un supraconducteur BCS loin d'une interface, cette condition s'écrit

$$\tan \theta = \frac{\Delta}{\omega_n} \quad (2.109)$$

## 2.4 Jonctions Josephson à base de supraconducteurs à haute température critique

Depuis la première observation de l'effet Josephson par Anderson et Rowel [10], la fabrication de jonctions Josephson à base de supraconducteurs conventionnels n'a pas cessé de se développer. Les jonctions tunnel dans lesquelles la barrière est réalisée par oxydation d'une couche métallique sont les plus courantes mais il existe de nombreux autres types de jonctions (constriction, SNS, point contact, jonctions  $\pi$  ferromagnétiques...). Du point de vue des applications, la technologie des jonctions Josephson à basse température est maintenant bien établie depuis plusieurs décennies. Elle s'est essentiellement développée sur la base des jonctions SIS empilées  $Nb-Al-Al_2O_3-Nb$ [68] et sont généralement shuntées par une résistance afin de supprimer le comportement hystérique. La fabrication de ces jonctions est bien contrôlée et leurs caractéristiques sont très reproductibles; elles sont utilisées pour certaines applications, notamment les SQUIDs et l'électronique RSFQ (Rapid Single Flux Quantum Interference Devices). En revanche l'utilisation de ces jonctions est limitée par la nécessité d'un système cryogénique fonctionnant avec de l'hélium liquide.

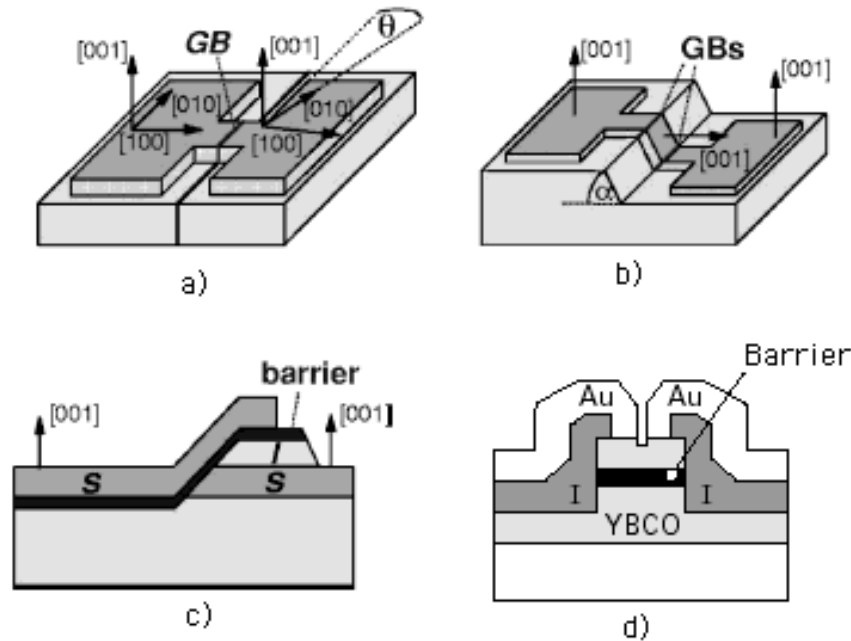


FIG. 2.24 – Différents types de jonctions Josephson.

La découverte des oxydes supraconducteurs à haute température critique a fait naître de nombreux espoirs en ouvrant le champ à des applications s'affranchissant de la contrainte de l'hélium liquide. Pour l'instant une technologie de jonctions Josephson empilées similaire à la technologie  $Nb-Al-Al_2O_3-Nb$  n'existe pas avec des supraconducteurs à haute température critique. Les cuprates sont des matériaux ayant une structure cristallographique complexe qui nécessitent des techniques de croissance particulières (MBE, Coévaporation réactive, Ablation laser, sputtering...) sur des substrats cristallins à paramètres de maille adaptés. Il n'a donc pas été possible d'extrapoler facilement les techniques utilisées pour les supraconducteurs conventionnels (métaux et alliages). En pratique, quelque soit la technique utilisée, une couche mince d'oxyde supraconducteur est formée d'un assemblage polycristallin de grains. Les joints entre les grains se comportent comme des jonctions Josephson naturelles qui altèrent les propriétés supraconductrices des couches. Ces difficultés techniques ont d'abord influencé les procédés d'élaboration des jonctions Josephson et les premières techniques de fabrication ont consisté à réaliser des constriction de petites tailles

(microniques) comprenant plusieurs joints de grains. Ces constriction, bien que de taille supérieure à la longueur de cohérence du supraconducteur, se comportaient comme des liens Josephson et ont permis la réalisation de quelques dispositifs, notamment des SQUIDs. La reproductibilité des jonctions fabriquées par cette méthode n'est pas satisfaisante car elle dépend entièrement de la qualité des couches et de la répartition des joints de grains. Cette technique a ensuite évolué vers l'utilisation de joints de grains créés artificiellement. Deux techniques se sont alors développées [71]. La première consiste à souder deux substrats dont les axes cristallins sont désorientés dans le plan de base (fig 2.24 a). La couche de supraconducteur est ensuite épitaxiée par dessus et un joint de grain se développe le long de la soudure. Les jonctions Josephson sont alors obtenues par gravure de microponts supraconducteurs disposés à cheval sur le joint de grain. Ces jonctions ont d'abord été très largement exploitées pour la fabrication de dispositifs simples tels que les SQUIDs dc mais la technique n'autorise pas une grande intégration, nécessaire à des circuits plus complexes, puisque les jonctions doivent toutes être disposées le long du joint de grains. Une technique alternative consiste à pratiquer une marche dans le substrat, la couche déposée ensuite présentera deux joints de grains localisés sur la marche (fig 2.24 b). Cette technique permet de disposer plus librement les jonctions sur l'échantillon mais les performances sont moins bonnes que celles des jonctions sur substrat bi-cristallin.

Parallèlement aux techniques de joints de grains, se sont développées les jonctions utilisant des barrières extrinsèques entre deux couches de supraconducteurs. D'un point de vue de la croissance, ces jonctions sont plus délicates à réaliser car elles nécessitent l'épitaxie de plusieurs couches. En pratique, il existe peu de barrières non supraconductrices ayant des paramètres de mailles adaptés à la croissance des oxydes supraconducteurs. Le système le plus utilisé est constitué de deux couches d' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  séparées par une couche de  $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Il est alors possible de fabriquer des jonctions « sandwich » en définissant un mesa dans le tricouche (fig 2.24 d). Ces jonctions ont un intérêt pour les études fondamentales mais sont difficilement utilisables pour des applications puisqu'il n'est pas possible de connecter plusieurs jonctions entre elles. La technique la plus développée est connue sous le nom de jonctions rampes (fig 2.24 c). La méthode consiste à déposer une couche de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (axe  $c$ ) sur un substrat standard (généralement  $SrTiO_3$ ) et recouverte d'un isolant. Une gravure est ensuite effectuée avec un faisceau d'ions orienté avec un angle de 10 à 20 degrés par rapport à la verticale de l'échantillon ce qui permet de réaliser la rampe. Pour finir, une couche de  $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  et une couche de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  sont ensuite déposées sur l'échantillon, de façon à fabriquer une jonction dans le plan  $(a, b)$ [59, 140]. Il s'agit d'une technique complexe qui comporte de nombreuses étapes de microfabrication et plusieurs niveaux d'épitaxie.

Dans le chapitre 3 nous présenterons une nouvelle méthode de fabrication de jonctions Josephson basée sur l'irradiation ionique, qui constitue une alternative intéressante aux techniques existantes.



## Chapitre 3

# Etude de nano-jonctions fabriquées par irradiation ionique

La symétrie  $d$  du paramètre d'ordre supraconducteur rend les cuprates très sensibles au désordre. La présence de défauts dans la structure cristallographique affecte fortement la supraconductivité, ce qui se traduit notamment par une diminution de la température critique de transition et une augmentation de la résistivité à l'état normal. Lorsque leur densité est suffisamment élevée, les défauts induisent une transition de l'état supraconducteur vers un état isolant. Le désordre peut être créé artificiellement, de façon contrôlée, en irradiant le matériau supraconducteur avec des ions énergétiques ( $\sim 100\text{keV}$ ). En pénétrant dans le supraconducteur, les ions subissent des collisions avec les atomes de la cible et peuvent les déplacer, si leur énergie est suffisante, créant ainsi un ou plusieurs défauts. Il est donc possible, par ce processus, de rendre isolantes certaines régions d'un film mince sans retirer de matière ce qui permet d'isoler des domaines supraconducteurs en conservant une géométrie plane. A faible dose, l'irradiation ionique peut également être utilisée pour créer des liens faibles Josephson. En combinant des procédés standards de microfabrication et des irradiations ioniques à différentes doses, nous avons mis au point, au cours de cette thèse, une technique de fabrication de jonctions Josephson.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à la description de l'effet de l'irradiation et à la fabrication des jonctions Josephson. Nous aborderons ensuite les différentes caractérisations et nous discuterons de l'intérêt technologique de ces jonctions à travers l'exemple des premiers SQUIDS réalisés pendant cette thèse. Dans la dernière partie de ce chapitre nous proposerons une description plus physique du couplage Josephson dans ces structures en faisant notamment appel aux équations quasiclassiques d'Usadel.

### 3.1 Effet de l'irradiation ionique sur les oxydes supraconducteurs

L'irradiation ionique est une technique d'implantation ; les ions utilisés ont une énergie suffisante ( $\sim 100\text{keV}$ ) pour pénétrer sur des longueurs de l'ordre de l'épaisseur typique des films minces supraconducteurs ( $\sim 100\text{nm}$ ). Il y a très peu d'ions arrachés à la surface du film, contrairement aux techniques de gravure de type Ion Beam Etching qui utilisent des ions d'énergie très inférieure ( $\sim 100\text{eV}$ ). Lorsque les ions pénètrent dans le film, ils déplacent les atomes de leur site cristallographique qui peuvent à leur tour déplacer d'autres atomes de la cible, créant ainsi une cascade de défauts. De façon générale, plus un ion est lourd, plus il crée de défauts et moins il pénètre dans le matériau. Pour un ion donné, plus son énergie est importante, plus la profondeur de pénétration est grande. Le nombre d'ions implantés est généralement grand, de l'ordre de  $10^{13}$  à  $10^{16}\text{at/cm}^2$ , ce qui permet de caractériser la distribution des ions implantés ou des défauts par



des grandeurs statistiques. La figure 3.1 montre la distribution typique des ions issus d'un faisceau infiniment fin, perpendiculaire à la cible. Elle est caractérisée par les grandeurs suivantes :

- ▶ La profondeur de pénétration qui mesure la distance moyenne de la surface à laquelle les ions s'arrêtent
- ▶ L'écart type en profondeur (straggling) qui mesure l'écart moyen à la profondeur de pénétration.
- ▶ L'écart type latéral (straggling latéral) qui mesure l'étalement latéral de la distribution des ions dans la cible.

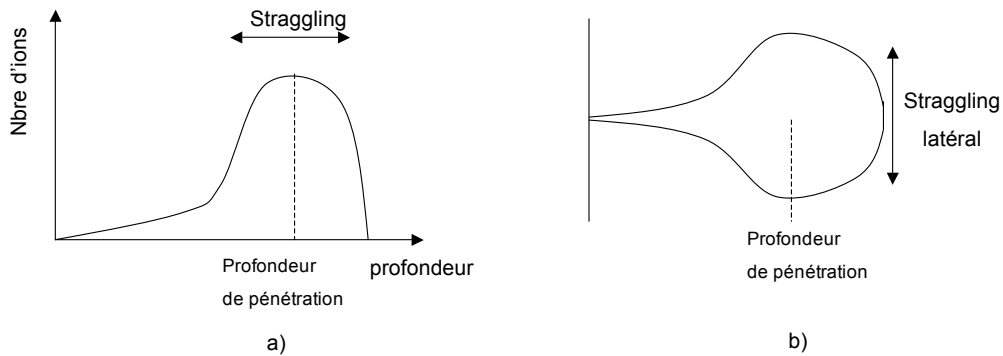


FIG. 3.1 – a) Nombre d'ions implantés en fonction de la profondeur de la cible. b) Distributions en forme de poire des ions implantés dans la cible. Etant donné que les ions produisent un maximum de défauts lorsqu'ils s'arrêtent, la distribution des défauts est étroitement liée à la distribution des ions implantés.

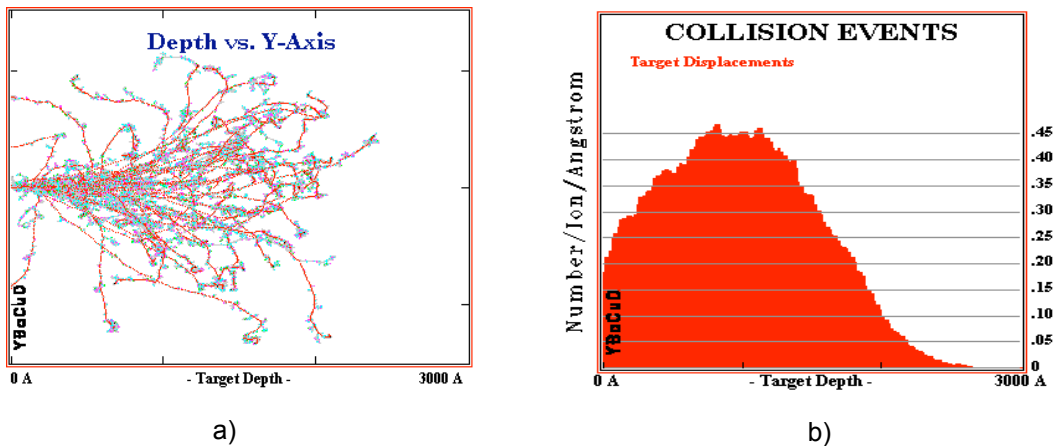


FIG. 3.2 – Simulation TRIM de l'irradiation d'un film d' $YBa_2Cu_3O_7$  avec des ions oxygène de 100keV. a) Trajectoire des ions dans la profondeur du film. b) Profil des défauts  $c$  en fonction de la profondeur.[151]

Pour analyser l'effet de l'irradiation, le paramètre pertinent est le nombre moyen d'atomes déplacés ou déplacement par atomes ( $dpa$ ). Dans le cas de  $YBa_2Cu_3O_7$ , le  $dpa$  nécessaire pour réduire la

température critique à zéro est 0,04 et le matériau devient isolant pour un  $dpa$  de 0,1. Les simulations de type Monte-Carlo effectuées avec le logiciel TRIM fournissent le nombre  $c$  de déplacements par ion incident et par angström de profondeur, en fonction de la profondeur (fig3.2)[151]. Le  $dpa$  est alors donné par

$$dpa = \frac{c\Phi}{d} 10^8 \quad (3.1)$$

où  $\Phi$  est la dose d'ions envoyés en ions par  $\text{cm}^2$  et  $d$  la densité du matériau cible en atomes par  $\text{cm}^3$  ( $YBa_2Cu_3O_7$ ,  $d = 7,53 \cdot 10^{22} \text{at}/\text{cm}^3$ ).

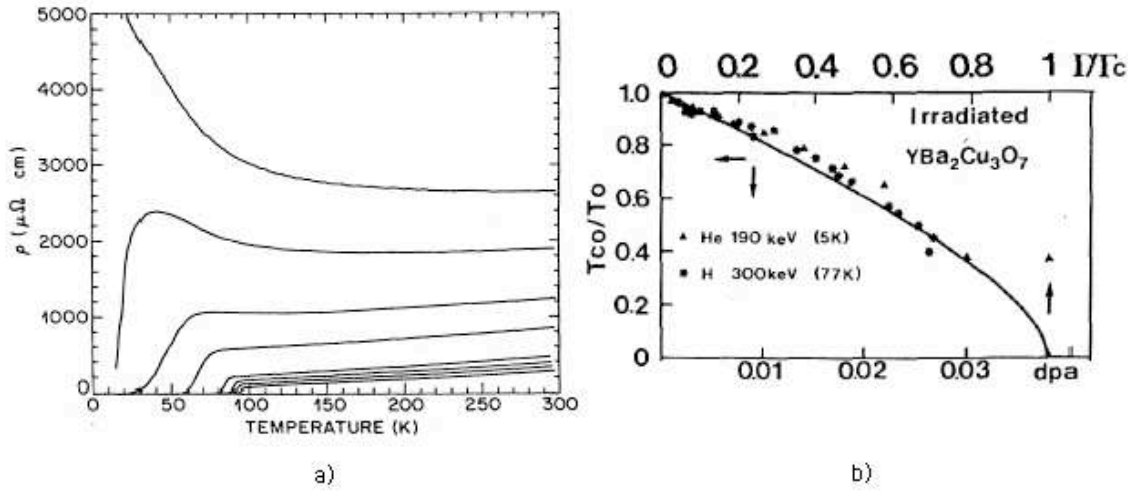


FIG. 3.3 – a) Evolution des caractéristiques  $\rho(T)$  de films d' $YBa_2Cu_3O_7$  irradiés avec des ions Ne, en fonction de la dose[137]. b) Evolution de la  $T_c$  en fonction du terme de pair-breaking pour différentes expériences d'irradiation. Le trait plein représente l'ajustement avec la loi d'Abrikosov-Gorkov correspondant à l'équation 3.4[94].

Depuis la découverte des cuprates en 1986, plusieurs études portant sur l'effet du désordre induit par irradiation ionique, ont été réalisées. Les mesures de transport montrent que la résistivité évolue tout d'abord faiblement avec le  $dpa$  et conserve une dépendance linéaire avec la température (fig 3.3 a) [137, 94, 93]. A plus forte dose, l'augmentation de la résistance est plus importante et la dérivée  $\frac{d\rho}{dT}$  devient négative ce qui est caractéristique d'une transition vers un état isolant. Dans le régime linéaire, on peut déduire des données expérimentales, les lois suivantes

$$\rho(dpa) = \rho_0(1 + 100dpa + 4000dpa^2) \quad (3.2)$$

$$\frac{d\rho}{dT} = \alpha_0(1 + 9.8dpa) \quad (3.3)$$

où  $\rho$  et  $\alpha_0$  sont respectivement la résistivité et la dérivée de la résistivité d'un film d' $YBa_2Cu_3O_7$  non irradié.

La réduction de la température critique est également linéaire à faible dose puis s'accroît lorsque la dose est plus importante (fig 3.3)[137, 94, 93]. Bien que l'énergie des ions incidents soit suffisante pour déplacer les différents types d'ions de la structure de l' $YBa_2Cu_3O_7$ , il a d'abord été supposé que la principale contribution à la baisse de  $T_c$  soit l'effet du désordre dans les chaînes  $CuO$ . En effet, les énergies de déplacement des atomes de cuivre et d'oxygène des chaînes sont respectivement de 10 eV et 15 eV, ce qui est inférieur aux autres atomes[92]. Une étude théorique de Gupta *et al* [66, 67] a montré que des chaînes de  $CuO$  complètement désordonnées suppriment

le transfert de charges vers les plans  $CuO_2$  induisant ainsi une transition vers l'état isolant. Cependant d'après [94], le dpa nécessaire pour réduire la  $T_c$  de  $YBa_2Cu_3O_7$  à 0 est de l'ordre de 0.04, ce qui est trop faible pour désordonner toutes les chaînes  $CuO$ . Il existe donc un autre mécanisme plus efficace pour expliquer les baisses importantes de  $T_c$  observées expérimentalement.

Dans un supraconducteur anisotrope d-wave, les impuretés non magnétiques produisent des effets similaires à ceux des impuretés magnétiques dans les supraconducteurs conventionnels s-wave. La diffusion isotrope modifie le vecteur d'onde initial et peut l'amener dans une direction correspondant à un déphasage de  $\pi$  du potentiel de paires ce qui a pour effet de briser les paires de Cooper. Il en résulte une baisse rapide de  $\Delta$  et de  $T_c$  avec le nombre de défauts.

Lesueur *et al* ont alors proposé de traduire l'effet des défauts en introduisant un temps de vie fini pour les paires de Cooper[94]. La démarche suivie est analogue à la formulation d'*Abrikosov* et *Gorkov* du traitement des impuretés magnétiques dans les supraconducteurs de symétrie  $s$  [3, 4].

La variation de  $T_c$  suit alors une loi de pair-breaking (fig 3.3)

$$\ln \frac{T_c^0}{T_c} = \Psi \left( \frac{1}{2} + \frac{1}{4\pi T_c \tau} \right) - \Psi \left( \frac{1}{2} \right) \quad (3.4)$$

où  $\Psi$  est la fonction digamma,  $T_c^0$  la température de transition du matériau non irradié et  $\tau$ , le taux de diffusion.

La figure 3.3 b) rassemble les variations de  $T_c$  obtenues par différents groupes en irradiant YBCO avec des ions ou des électrons. Les résultats sont en accord avec une loi de pair-breaking.

## 3.2 Conditions d'irradiation

Les irradiations ont été effectuées au Centre de Spectroscopie Nucléaire et de Spectroscopie de Masse à Orsay sur l'implanteur IRMA qui permet d'accélérer des ions positifs jusqu'à des énergies de 200 keV pour des espèces simplement chargées et 400 KeV pour des espèces doublement chargées. La plupart des éléments chimiques peuvent être utilisés, néanmoins dans notre cas, le choix de l'ion doit répondre à certains critères :

- ▶ L'énergie des ions doit être suffisante pour qu'ils puissent pénétrer dans toute l'épaisseur du film supraconducteur mais pas trop importante pour pouvoir protéger certaines zones de l'irradiation en les masquant avec une couche métallique ( $\sim 100\text{nm}$ ) ou une résine lithographique ( $\sim 1\mu\text{m}$ ).
- ▶ Les ions ne doivent pas être trop légers afin de pouvoir créer suffisamment de défauts en un temps raisonnable.
- ▶ Les ions restant dans la couche après l'irradiation ne doivent pas perturber les propriétés du supraconducteur, ce qui élimine notamment les ions magnétiques.

Parmi les ions répondant à ces exigences, l'oxygène semble être le meilleur candidat. Etant naturellement présent dans les oxydes supraconducteurs, il ne devrait pas trop perturber le matériau. Tous les films que nous utilisons sont optimalement dopés en oxygène. Etant donné qu'il est très difficile de sur-doper  $YBa_2Cu_3O_7$ , la stoechiométrie en oxygène ne devrait pas être affectée, d'autant plus que la quantité implantée est très inférieure à la quantité naturelle d'oxygène dans le composé. Pour des ions oxygène accélérés à une énergie de 100 keV, la profondeur maximum de pénétration dans  $YBa_2Cu_3O_7$  est d'environ 2500Å ce qui est parfaitement adapté à l'implanteur IRMA et à l'épaisseur des films minces. L'or étant plus lourd, une couche de 2000 Å est suffisante pour arrêter les ions.

### 3.3 Définition de motifs par irradiation ionique

Pour fabriquer des jonctions sur un film supraconducteur, la première étape consiste à définir les motifs sur lesquels seront disposées les futures jonctions et à les isoler électriquement les uns des autres. La méthode généralement employée consiste à graver le film supraconducteur, jusqu'au substrat, autour des dispositifs par des techniques d'attaque chimique ou de gravure par faisceau d'ions (IBE). Le principal inconvénient de cette méthode est qu'elle laisse des flancs non protégés par lesquels l'oxygène peut s'échapper, dégradant ainsi les propriétés supraconductrices du matériau sur les bords. Cette méthode fonctionnera bien pour des dispositifs dont les tailles caractéristiques sont suffisamment grandes pour que les effets de bords soient négligeables mais permettra difficilement de réaliser des motifs de tailles microniques ou submicroniques. Le plus souvent, une couche isolante est ensuite déposée pour combler la partie gravée de façon à retrouver une géométrie plane.

La technique d'irradiation ionique constitue une alternative intéressante à la gravure. Puisqu'elle n'arrache pas de matière, l'irradiation permet de définir un motif supraconducteur encapsulé dans son film, limitant ainsi les problèmes de diffusion d'oxygène. En outre, la géométrie reste plane ce qui permet une grande intégration du nombre de dispositifs et facilite des éventuelles reprises de contacts sur le dessus du dispositif.

Le principe de la définition de motifs est décrit par la figure 3.4. Le motif désiré est défini dans une couche métallique (généralement de l'or) par des techniques standards de micro fabrication. L'échantillon est ensuite irradié avec des ions oxygène dont l'énergie est choisie en fonction de l'épaisseur du film supraconducteur. La dose utilisée est de  $5.10^{15} \text{ at/cm}^2$ , ce qui correspond à un *dpa* d'environ 0,6 et permet de rendre le film totalement isolant jusqu'au substrat. Les zones protégées par l'or ne sont pas affectées et conservent leurs propriétés supraconductrices. L'or est ensuite retiré soit par une attaque chimique en utilisant une solution aqueuse de  $KI/I_2$  ou par gravure sèche IBE à l'argon. Le  $KI/I_2$  a pour avantage d'être très sélectif puisque sa vitesse de gravure de l'or est environ 50 fois supérieure à celle de l'YBCO. En revanche, l'attaque est rarement homogène et peut laisser la surface de l' $YBa_2Cu_3O_7$  dégradée. Dans le cas de la gravure IBE à l'argon, la sélectivité de l'attaque dépend de l'énergie des ions argon ainsi que de la différence entre l'énergie de sortie de l'or et les énergies de sortie des différents constituants de la couche d' $YBa_2Cu_3O_7$ . Etant donné que celles-ci sont globalement plus faibles que celle de l'or, il est possible de trouver une énergie à laquelle la vitesse de gravure de l'or est beaucoup plus grande que celle d' $YBa_2Cu_3O_7$ .

La résolution de l'irradiation ionique est limitée par le stragglings latéral des ions sous le masque en or. Pour des ions oxygène accélérés à une énergie de 100 à 250 KeV, la finesse de trait obtenue est inférieure à 100 nm.

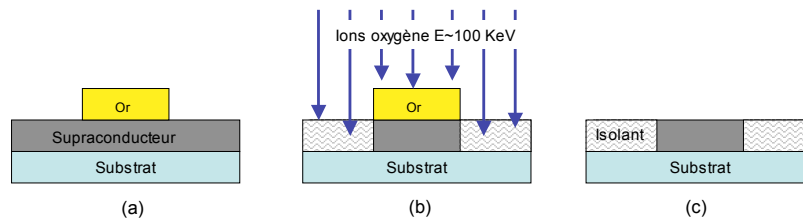


FIG. 3.4 – Principe de l'irradiation ionique. a) un masque est réalisé dans une couche d'or par des techniques standards de lithographie. b) L'échantillon est irradié avec des ions oxygène d'énergie  $\sim 100 \text{ keV}$ , ce qui rend isolantes les parties du supraconducteur non-protégées. c) l'or est retiré par attaque chimique  $KI/I_2$  ou gravure sèche (IBE). Le motif supraconducteur est complètement encapsulé dans la couche d'oxyde.

## 3.4 Fabrication des nano-jonctions Josephson

### 3.4.1 Fabrication

Cette partie décrit la méthode de fabrication de jonctions Josephson par irradiation ionique que nous avons mise au point pendant cette thèse. Les films minces ont été fournis par l'équipe de J-P. Contour à l'UMR Thalès-CNRS et les étapes de microfabrication ont été réalisées au Laboratoire de Photonique et Nanostructures de Marcoussis en collaboration avec G. Faini.

Pour ces expériences, nous utilisons des films d' $YBa_2Cu_3O_7$  de 1500Å déposés sur un substrat de  $SrTiO_3$  par ablation laser pulsé. Les échantillons sont systématiquement recouverts d'une couche d'or d'environ 400Å déposée in-situ après la croissance du film. Il est important de conserver cette couche à certains endroits car elle permettra ensuite d'obtenir des contacts électriques de bonne qualité, nécessaires aux mesures de transport. La géométrie retenue pour la fabrication des jonctions Josephson planaires est la suivante. Les jonctions sont définies au centre d'une croix de Hall de largeur 1 ou 5 microns orientée selon les axes cristallographiques  $a$  ou  $b$  (les films étant maclés, on ne fera pas de différence entre les axes  $a$  et  $b$ ). Les 6 extrémités de la croix (3 de chaque côté) sont connectées grâce à des pistes d'or à des contacts de taille suffisante pour pouvoir y effectuer une soudure par thermo-compression. La figure 3.5 décrit de façon schématique les différentes étapes de fabrication d'une jonction. Les photos des échantillons prises au microscope optique entre ces étapes sont montrées sur la figure 3.6.

**Etape 1** La première étape consiste à réaliser le masque en or comprenant les motifs qui correspondent à la croix de Hall, aux pistes et aux contacts. Etant donné qu'il est difficile de déposer le métal et de le graver ensuite, nous utilisons donc une technique de lift-off plus adaptée dans ce cas. Les motifs désirés sont définis par lithographie électronique dans une résine PMMA d'épaisseur 8000Å (fig 3.5 b, c, d). (photos fig 3.6 a, b, c) Lors de l'insolation, un courant plus faible est utilisé pour définir la croix de Hall avec une meilleure résolution ( $< 50nm$ ) Une couche d'or est ensuite déposée sur la totalité de l'échantillon (fig 3.5 e). En retirant la résine dans un solvant (trichloroéthylène), on élimine le métal qui a été déposé à sa surface, ce qui fait apparaître les motifs métalliques désirés (fig 3.5 d) (photos fig 3.6 d, e).

**Etape 2** La seconde étape consiste à retirer la couche d'or déposée in-situ sur le film supraconducteur (fig 3.5 g) (photos fig 3.6 f, g, h). Une gravure IBE ( $\sim 500$  eV) à l'argon de 30s est suffisante pour faire apparaître le film supraconducteur sur lequel sont disposés les motifs d'or définis lors de la première étape.

**Etape 3** La troisième étape consiste à irradier l'échantillon avec des ions oxygène d'énergie 100 keV et de dose  $5.10^{15}$  ce qui rend isolantes les parties non protégées (fig 3.5 h). La longueur maximum de pénétration ( $\approx 2000\text{Å}$ ) étant peu supérieure à l'épaisseur du film, le profil de défauts dans la profondeur du film est relativement homogène.

**Etape 4** La quatrième étape consiste à retirer l'or sur le centre de la croix de Hall afin de pouvoir réaliser la jonction Josephson. Pour cela un motif rectangulaire est ouvert dans une résine de PMMA (3.5 i, j). Nous effectuons ensuite une gravure IBE à l'argon à une énergie de 250 eV. La couche d'or est retirée en une dizaine de minutes sans que la couche d' $YBa_2Cu_3O_7$  irradiée ne soit trop gravée ( $\sim 100\text{Å}$ ) (fig 3.5 k, l) (photos fig 3.6 i, j).

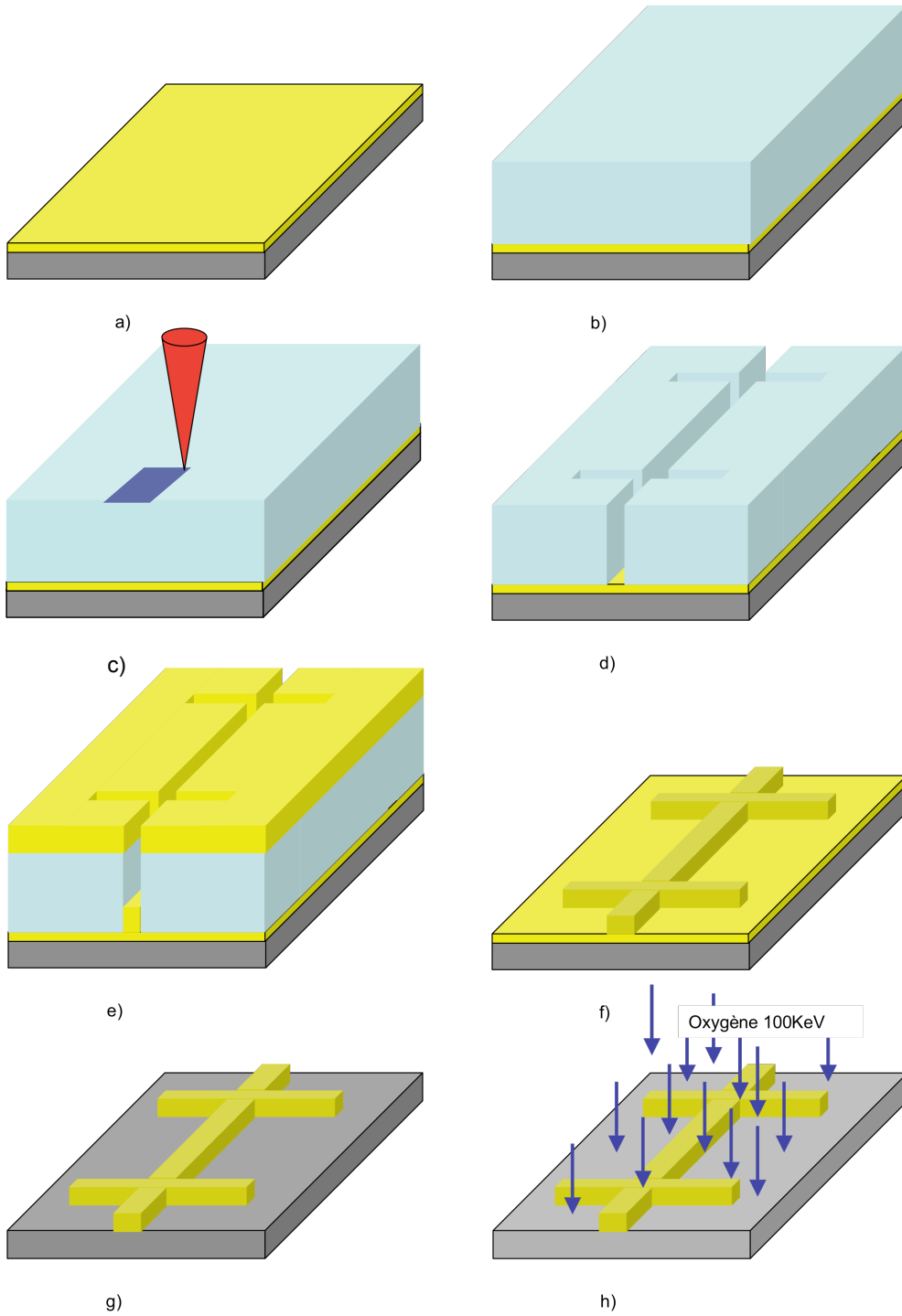
**Etape 5** Lors de la dernière étape, une résine PMMA d'épaisseur 8000Å est déposée sur l'échantillon et une fente de 20nm est définie au centre de la croix de Hall. C'est une étape délicate car on s'approche de la résolution limite de la lithographie électronique, le courant utilisé doit être faible pour éviter le surdosage de l'insolation. Le lien faible de la jonction est créé en irradiant l'échantillon

avec des ions oxygène (100keV) à travers la fente dans la résine (fig 3.5m, n, o) (photos fig 3.6 k, l)<sup>1</sup>. La dose utilisée est réduite à  $\sim 10^{13} \text{at/cm}^2$ , ce qui a pour effet d'abaisser la  $T_c$  de l' $YBa_2Cu_3O_7$  sous la fente mais n'est pas suffisant pour le rendre isolant.

Plusieurs groupes ont essayé de développer des méthodes de fabrication de jonctions par irradiation ionique avec des différences plus ou moins marquées par rapport à la méthode décrite ici (utilisation de masque suspendu pour l'irradiation, fente dans un tricouche de résine, utilisation d'un FIB (faisceau d'ion focalisé)...). A notre connaissance, seuls deux autres groupes [82, 79] sont réellement parvenus à fabriquer des jonctions Josephson présentant des caractéristiques de bonnes qualités (i. e de niveau comparable aux techniques standards de fabrication).

---

<sup>1</sup>La largeur de la fente étant inférieure à la longueur d'onde du visible, la trace visible au microscope correspond à la limite de diffraction.



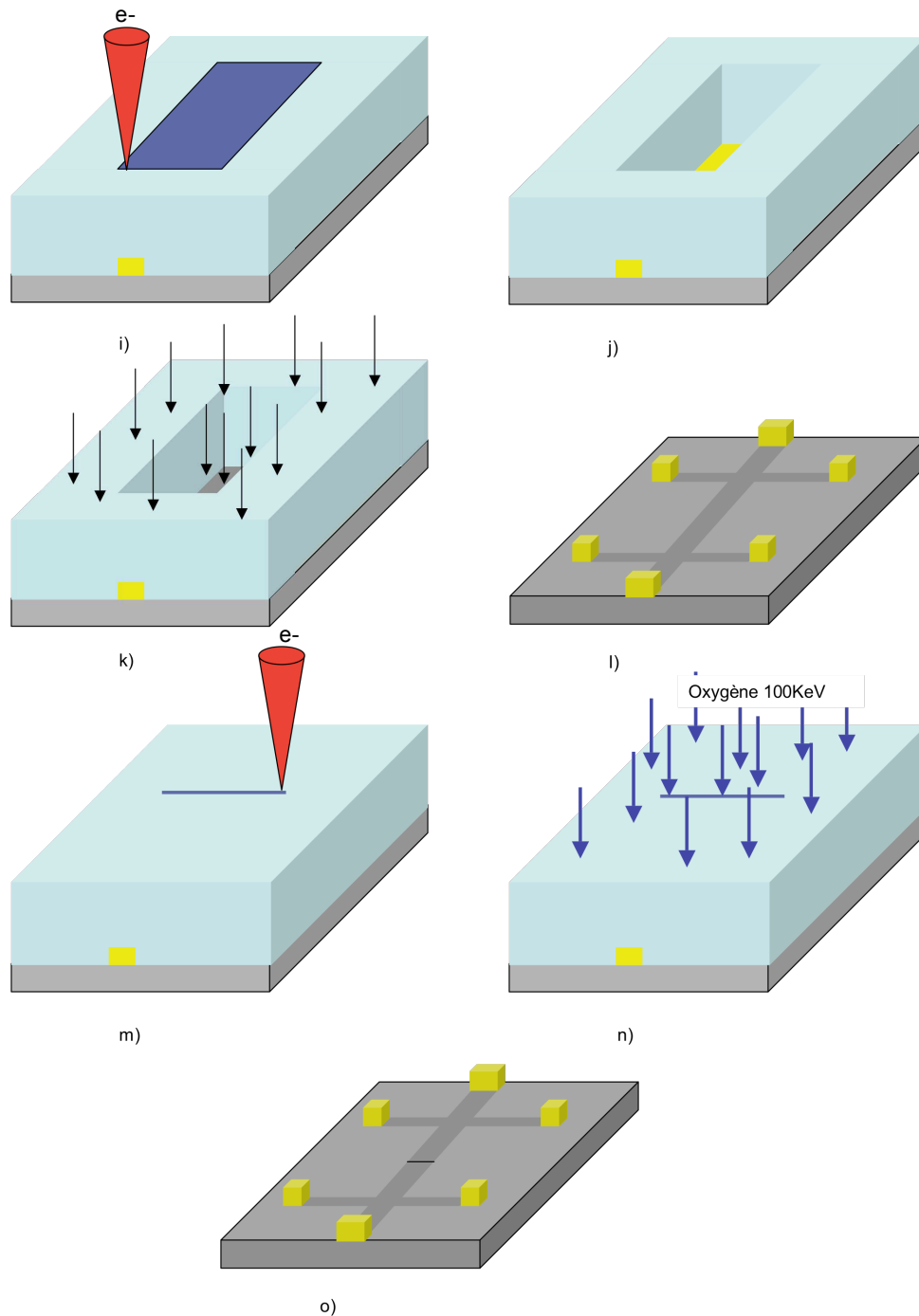
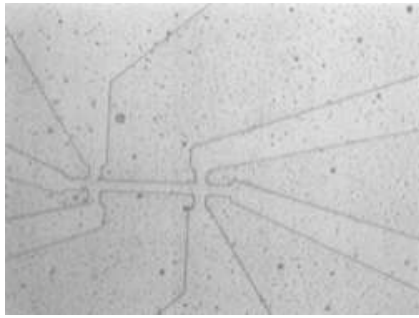
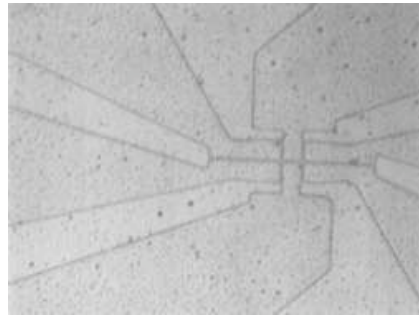


FIG. 3.5 – Fabrication des jonctions planaires : a) film d' $YBa_2Cu_3O_7$  ( $1500\text{\AA}$ ) recouvert d'or, b) dépôt et recuit d'une résine PMMA, c) insolation électronique, d) développement de la résine insolée, e) métallisation ( $2500\text{\AA}$  d'or), f) motifs en or après lift-off dans le trichloroéthylène, g) gravure IBE Argon, h) irradiation oxygène  $100\text{keV}$  dose  $5.10^{15}$ , i) insolation électronique d'une résine PMMA, j) développement de la résine insolée, k) gravure IBE de l'or, l) croix de Hall en  $YBa_2Cu_3O_7$  encapsulée dans le film irradié, m) définition de la fente de  $20\text{nm}$  par insolation électronique, n) irradiation oxygène  $100\text{keV}$  à travers la fente, o) résultat de la fabrication.

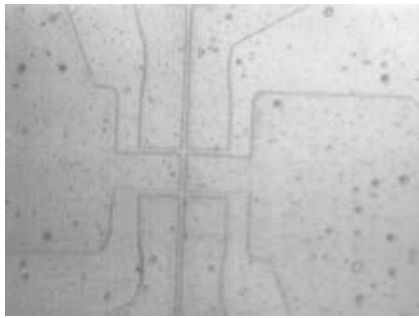




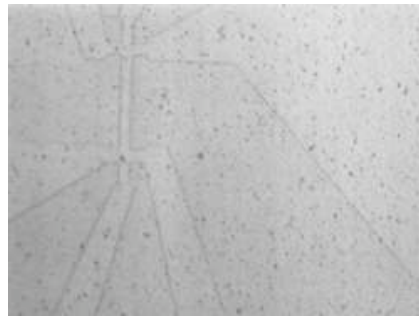
a)



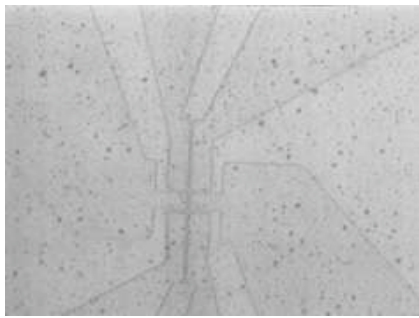
b)



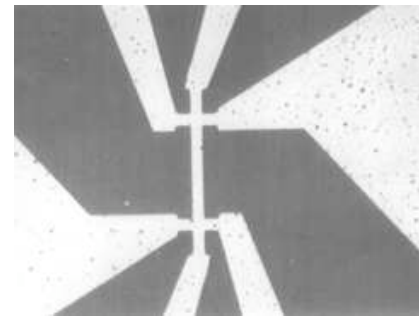
c)



d)



e)



f)

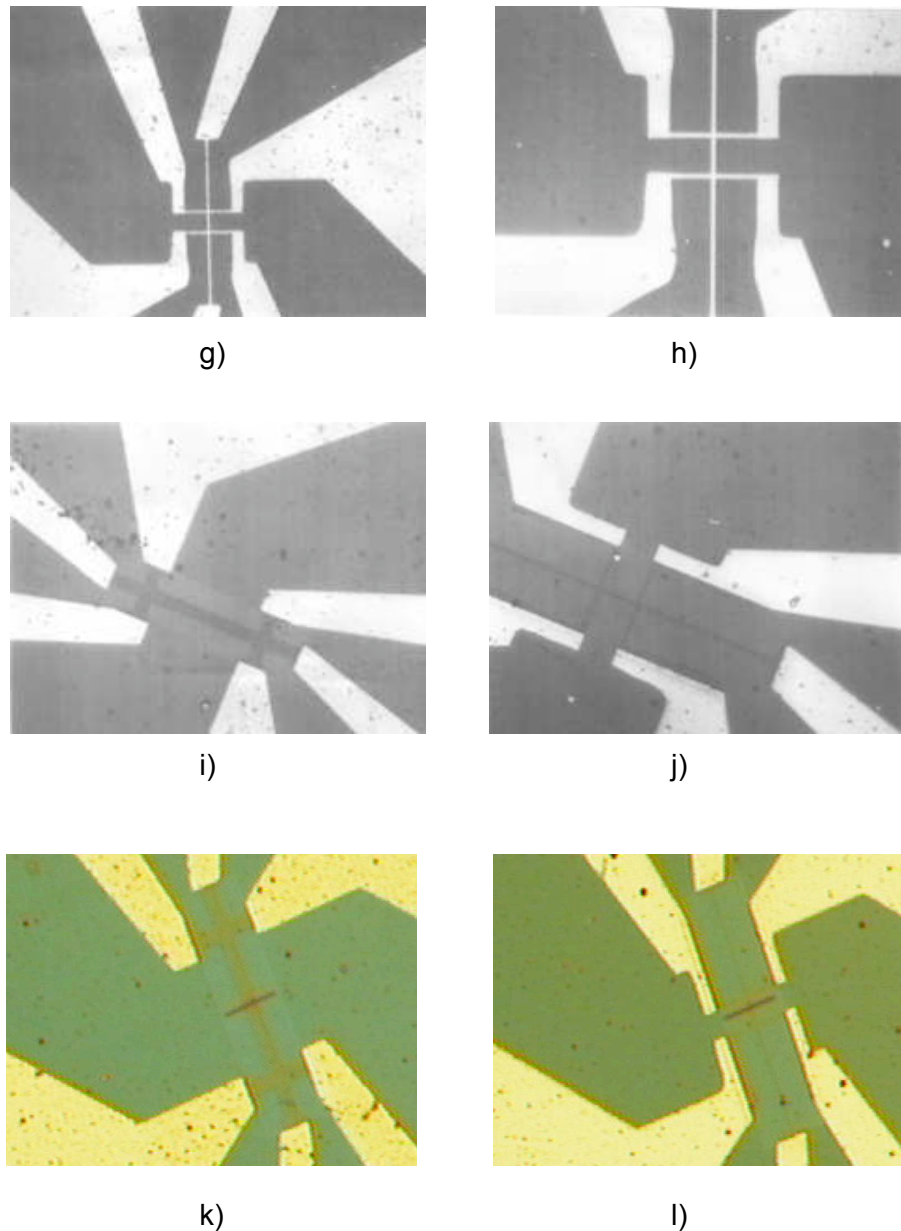


FIG. 3.6 – Photos optiques des différentes étapes de fabrication des jonctions planaires : a) motifs de PMMA correspondant à une croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  sur le film d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  recouvert d'or, b) motifs de PMMA correspondant à une croix de Hall de  $1\mu\text{m}$ , c) identique à b) avec un grossissement plus important, d) motifs en or correspondant à une croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  après métallisation ( $2500\text{\AA}$ ) et lift-off, e) motifs en or correspondant à une croix de Hall de  $1\mu\text{m}$  après métallisation ( $2500\text{\AA}$ ), f) croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  en or sur le film  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  après gravure IBE Ar de la couche d'or in-situ, g) croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  après gravure IBE Ar de la couche d'or in-situ, h) identique à g) avec un grossissement plus important, i) croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  en  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (noir) encapsulée dans le film d'oxyde isolant (gris clair) après irradiation et gravure IBE Ar de l'or au centre de la croix, j) croix de Hall de  $1\mu\text{m}$  en  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (noir) encapsulée dans le film d'oxyde isolant (gris clair) après irradiation et gravure IBE Ar de l'or au centre de la croix, k) fente de  $20\text{nm}$  ouverte par lithographie électronique dans une résine de PMMA, localisée sur une croix de Hall de largeur  $5\mu\text{m}$  (la trace apparente correspond à la limite de diffraction), l) fente de  $20\text{nm}$  ouverte par lithographie électronique dans une résine de PMMA, localisée sur une croix de Hall de largeur  $1\mu\text{m}$ .

### 3.4.2 Distributions de défauts et de températures critiques dans les jonctions

Bien que la fente dans la résine ait une largeur de 20nm, la distribution des défauts dans la zone irradiée est déterminée par le straggling latéral des ions. En tenant compte de l'effet du masque dans les simulations TRIM, le profil de  $dpa$  sous la fente peut être modélisé par une gaussienne[151]

$$dpa(x) = A10^8 \frac{c\Phi}{d} e^{-\frac{x^2}{2\sigma^2}} \quad (3.5)$$

où  $\sigma=400\text{\AA}$  est la demi-largeur,  $\Phi$  la dose d'irradiation,  $c$  le taux de défauts,  $d$  la densité d'YBCO et  $A \approx 0.8$  un facteur géométrique dû à la fente<sup>2</sup>.

La distribution de défauts sous la fente entraîne naturellement une distribution de températures critiques dans le supraconducteur, qui s'étale continûment entre la valeur minimum au centre de la fente correspondant au maximum de  $dpa$ , et la  $T_c$  de l' $YBa_2Cu_3O_7$  (90K) dans les zones non affectées par l'irradiation.

La figure 3.7 présente les distributions de  $dpa$  et de  $T_c$  pour les quatre doses utilisées lors de cette étude  $1.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $4.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ . Le tableau 3.1 résume les valeurs minimum de la température critique au centre de la zone irradiée pour les quatre doses.

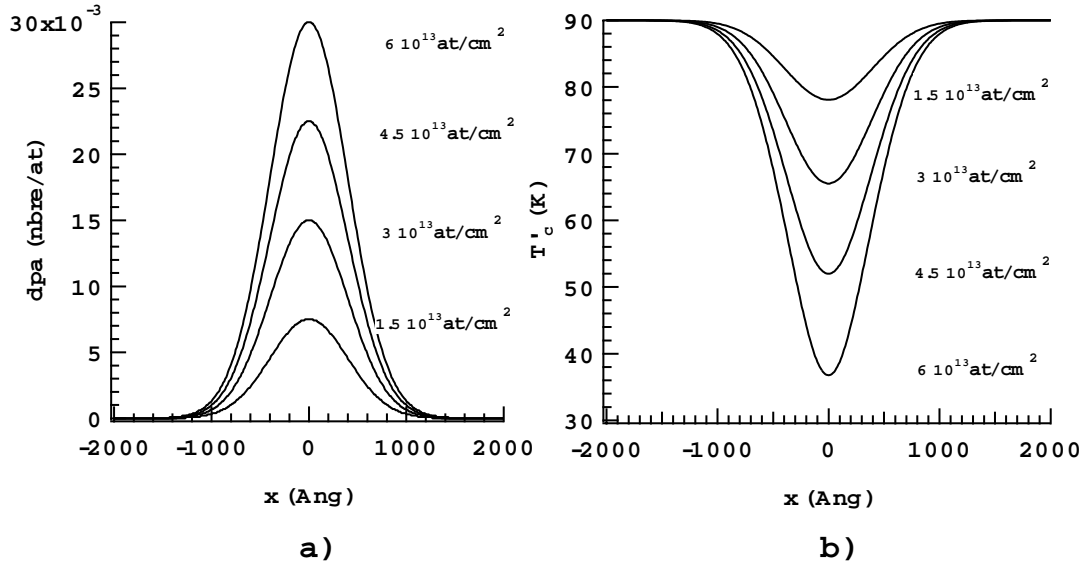


FIG. 3.7 – a) Distributions de  $dpa$  dans la jonction pour les quatre doses utilisées dans cette étude. b) Distribution de  $T_c$  dans la jonction correspondant aux quatre doses. La  $T_c$  bulk est celle de l' $YBa_2Cu_3O_7$  non irradié (90K).

| dose   | $1,5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ | $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ | $4,5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ | $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ |
|--------|------------------------------------|----------------------------------|------------------------------------|----------------------------------|
| $T'_c$ | $\approx 78K$                      | $\approx 66K$                    | $\approx 52K$                      | $\approx 37K$                    |

TAB. 3.1 – Températures de transition au centre de la zone irradiée pour les quatre doses différentes.

<sup>2</sup> $\sigma$  et  $A$  sont données pour une énergie de 100keV.

En utilisant une énergie de 100 keV, la profondeur de pénétration des ions est faible  $\sim 1000\text{\AA}$  et nous considérerons que la distribution de défauts dans la profondeur de l'échantillon est homogène ( $c \approx 0.4$ ). Du point de vue des simulations TRIM ceci est en partie vérifié (fig 3.2 b).

Nous avons réalisé des échantillons de géométries différentes. Au final nous disposons de jonctions de largeur  $5\mu\text{m}$  irradiées avec des doses de  $1.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $4.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et de jonctions de largeur  $1\mu\text{m}$  irradiées avec des doses de  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ .

## 3.5 Dispositifs de mesure

### 3.5.1 Cryostats

Toutes les mesures réalisées au cours de cette thèse ont été effectuées dans des cryostats Hélium 4 standards, qui permettent d'atteindre rapidement des températures comprises entre 4,2 K et la température ambiante<sup>3</sup>. Les échantillons sont mis en place au bout d'une canne qui est ensuite insérée dans le cryostat. Un système de déplacement vertical permet de positionner l'échantillon dans le bain d'Hélium ou juste au-dessus. Un dispositif de chauffage situé sur la canne permet, grâce à un système de régulation, de stabiliser la température au dixième de degré (et même au centième de degré pour les basses températures). Nous avons utilisé couramment trois cryostats dont les caractéristiques (géométrie du porte échantillon, orientation et intensité du champ magnétique, câblage haute fréquence...) ont permis de réaliser les différentes configurations nécessaires à nos expériences. Ils sont tous équipés de filtres haute fréquence en entrée et sortie, ce qui s'est avéré fondamental dans l'étude des jonctions Josephson.

### 3.5.2 Mesures de caractéristiques courant-tension

Les mesures de caractéristiques courant-tension des jonctions Josephson sont effectuées à l'aide d'un oscilloscope numérique Lecroy (9310A). Un signal alternatif ( $\sim 10\text{Hz}$ ) produit par un générateur basse fréquence est injecté sur l'échantillon à travers un transformateur permettant d'isoler l'échantillon du générateur, une résistance de polarisation  $R_1$  et une résistance de mesure  $R_I$  (fig 3.8). La résistance de polarisation  $R_1$ , plus élevée que les autres résistances du circuit assure que l'échantillon est polarisé en courant, ce qui est indispensable pour pouvoir observer le courant critique d'une jonction Josephson. La résistance de mesure  $R_I$  est d'une grande précision et d'une grande stabilité. Le courant injecté dans l'échantillon est obtenu en mesurant la tension aux bornes de la résistance  $R_I$ <sup>4</sup> après amplification et filtrage (amplificateur Stanford SR560). La tension aux bornes de l'échantillon est également amplifiée et filtrée par une chaîne composée d'un pré-amplificateur d'instrumentation bas bruit (fabriqué par nos soins) et d'un amplificateur commercial (Stanford SR560). Les deux tensions sont ensuite envoyées sur l'oscilloscope où la caractéristique courant-tension  $I(V)$  peut être lue en mode X-Y. La résolution du dispositif de mesure est typiquement de l'ordre de  $2\mu\text{V}$ . Les données sont alors collectées avec un ordinateur grâce à une interface Labview.

### 3.5.3 Mesures de caractéristiques conductance-tension

Les mesures de conductance dynamique sont réalisées en utilisant une technique de détection synchrone qui permet de rejeter une grande partie du bruit.

Le principe de mesure est le suivant. Nous appliquons aux bornes de l'échantillon une tension  $V$ , superposition d'une composante continue  $V_{dc}$  et d'une composante alternative  $V_{ac} = v \cos \omega t$

$$V = V_{dc} + V_{ac} = V_{dc} + v \cos \omega t$$

<sup>3</sup>Les cryostats sont reliés à un système de pompage qui permet d'atteindre 1,2K si cela est nécessaire.

<sup>4</sup>La résistance  $R_I$  est d'une grande précision et d'une grande stabilité.

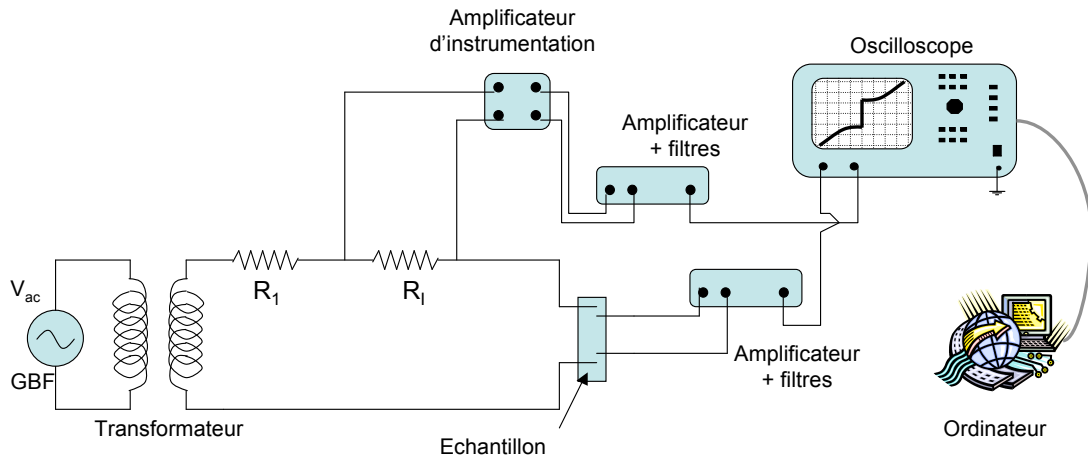


FIG. 3.8 – Schéma de principe du système de mesures utilisé pour mesurer les caractéristiques courant-tension des jonctions.

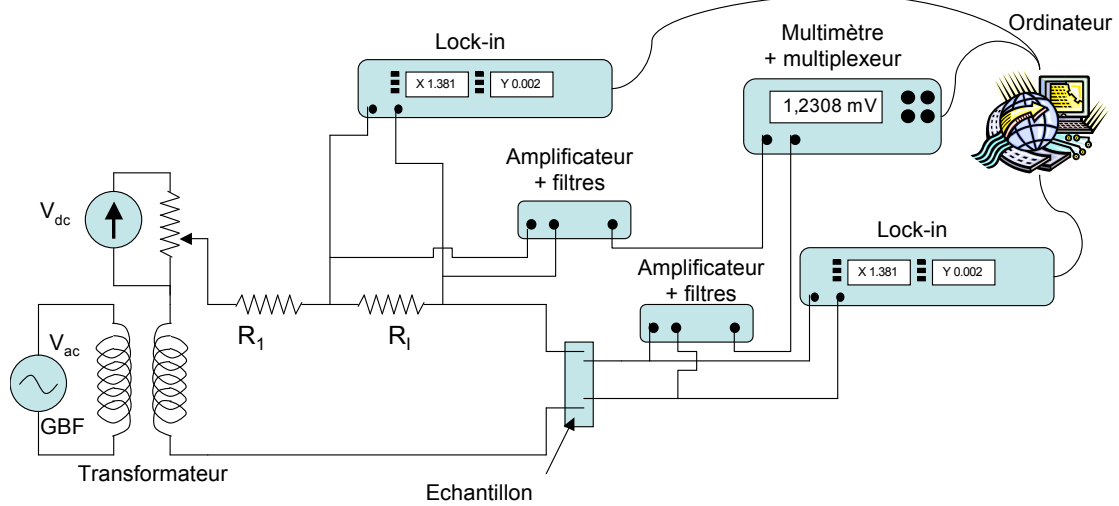


FIG. 3.9 – Schéma de principe du système de mesures utilisé pour mesurer les caractéristiques conductance-tension des jonctions.

où  $v \ll V_{dc}$ . En effectuant un développement au premier ordre du courant dans l'échantillon

$$I(V) = I(V_{dc}) + \left. \frac{dI}{dV} \right|_{V=V_{dc}} v \cos \omega t$$

Le courant total est donc la somme d'un composante continue  $I_{dc} = I(V_{dc})$  et d'une composante alternative  $I_{ac} = \left. \frac{dI}{dV} \right|_{V=V_{dc}} v \cos \omega t$ . La conductance dynamique s'obtient alors en mesurant le rapport  $\frac{I_{ac}}{V_{ac}}$ .

Le dispositif décrit sur la figure 3.9 permet de mesurer à la fois les grandeurs continues ( $I_{dc}, V_{dc}$ ) et les grandeurs alternatives ( $I_{ac}, V_{ac}$ ) nécessaires pour obtenir des caractéristiques conductance-tension ( $G(V)$ ).

Un mélangeur continu-alternatif permet d'injecter le courant total dans l'échantillon par l'intermédiaire des deux résistances  $R_1$  et  $R_I$ . Le courant alternatif  $I_{ac}$  est mesuré par détection synchrone à l'aide d'un Lock-in placé aux bornes de la résistance de mesure  $R_I$  et un second Lock-in permet de mesurer la tension  $V_{ac}$  aux bornes de l'échantillon. Les grandeurs continues  $V_{dc}$  et  $I_{dc}$  sont mesurées par un voltmètre standard (Keithley) après filtrage de la composante  $ac$  et amplification. Les appareils de mesure sont reliés, via un multiplexeur, à un ordinateur qui collecte les données. Le mélangeur continu-alternatif permet d'imposer soit un courant, soit une tension aux bornes de l'échantillon. Lorsque les caractéristiques  $G(V)$  ne sont pas trop non-linéaires, il est intéressant de placer une résistance  $R_1$  importante en série avec l'échantillon, de manière à réduire au maximum l'amplitude du bruit issu des sources.

## 3.6 Caractérisation des jonctions

### 3.6.1 Mesures $R(T)$

La résistance des jonctions en fonction de la température est mesurée à faible courant ( $\sim 500\text{nA}$ ) par une technique à quatre points standard.

La figure 3.10 montre les caractéristiques  $R(T)$  de deux croix de Hall de largeur  $5\mu\text{m}$  et  $1\mu\text{m}$

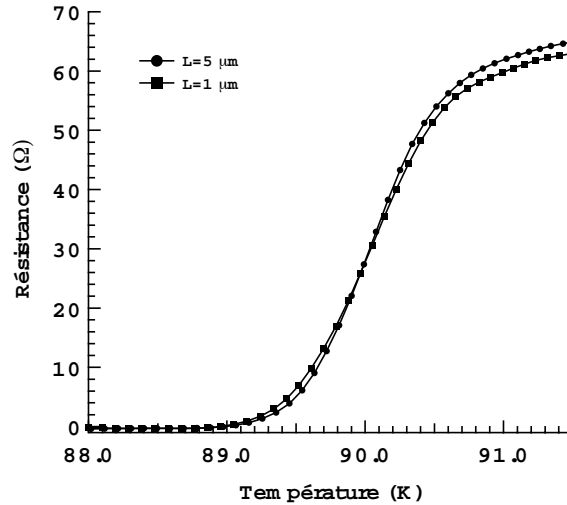


FIG. 3.10 – Résistance en fonction de la température près de  $T_c=90\text{K}$  pour deux jonctions non irradiées de largeurs respectives  $5\mu\text{m}$  et  $1\mu\text{m}$ . Le rapport entre les longueurs des croix de Hall étant identique au rapport entre les largeurs (i. e 5), on s'attend à ce que les résistances soient identiques, ce qui est observé.

correspondant aux géométries de la figure 3.5 i) et 3.5 j), sur lesquelles aucune jonction n'a été fabriquée. Etant donné que la longueur des croix de Hall de  $5\mu\text{m}$  est cinq fois plus grande que la longueur des croix de Hall de  $1\mu\text{m}$ , la résistance mesurée doit être identique. C'est ce que nous observons expérimentalement puisque la différence de résistance est de seulement 3%. La valeur de la  $T_c$  est de  $90\text{K}$  et la largeur de la transition reste inférieure à  $2\text{K}$  ce qui est conforme à ce que nous mesurons sur un film non irradié. Ces mesures montrent que la technique d'irradiation ionique, associée aux différents procédés de fabrication que nous utilisons, permet de définir dans un film supraconducteur, des motifs de petites tailles ( $\sim 1\mu\text{m}$ ) qui conservent des propriétés supraconductrices de très bonne qualité.

Les figures 3.11 et 3.12 présentent les résultats obtenus sur les jonctions de  $1\mu\text{m}$  et  $5\mu\text{m}$  irradiées aux différentes doses.

La transition la plus haute en température ( $T_c \approx 90\text{K}$ ) correspond à la partie non irradiée de l'  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ . En dessous de  $T_c$ , les jonctions présentent une résistance non nulle qui augmente avec la dose d'irradiation. On retrouve par ailleurs le facteur 5 entre les résistances des jonctions de largeur  $5\mu\text{m}$  et  $1\mu\text{m}$ . La température  $T_j$  de la seconde transition dépend de la dose utilisée lors de l'irradiation ionique, plus celle-ci est importante, plus la température de la transition est faible. Cependant, on notera qu'elle est plus élevée que la température de transition  $T'_c$  correspondant au centre de la distribution (tableau 3.2). Dans le régime de température compris entre  $T_c$  et  $T'_c$ , la partie centrale de la jonction est supposée être à l'état normal et la résistance de la jonction devrait être non nulle. Cette transition vers un état non résistif de la jonction est caractéristique de l'apparition d'un couplage Josephson aux bornes de la jonction.

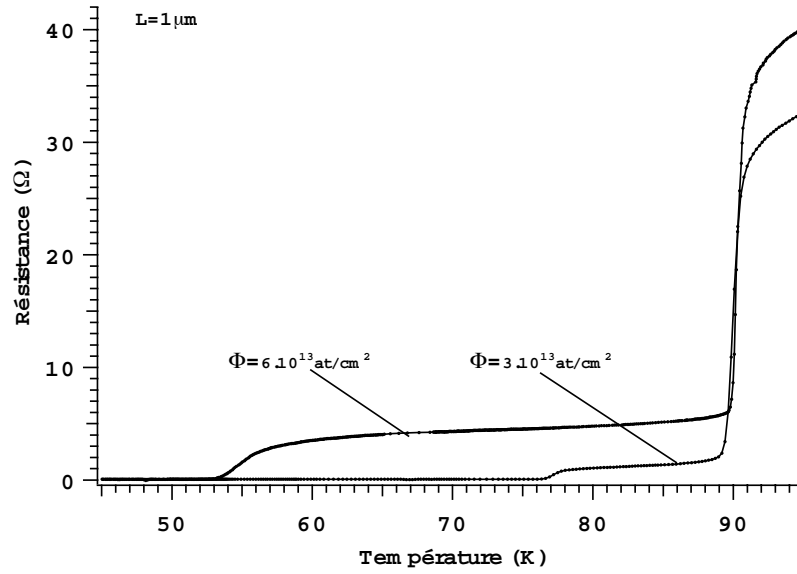


FIG. 3.11 – Résistance en fonction de la température pour deux jonctions de largeur  $L=1\ \mu\text{m}$  irradiées respectivement avec une dose de  $3.10^{13}$  et  $6.10^{13}\ \text{at}/\text{cm}^2$

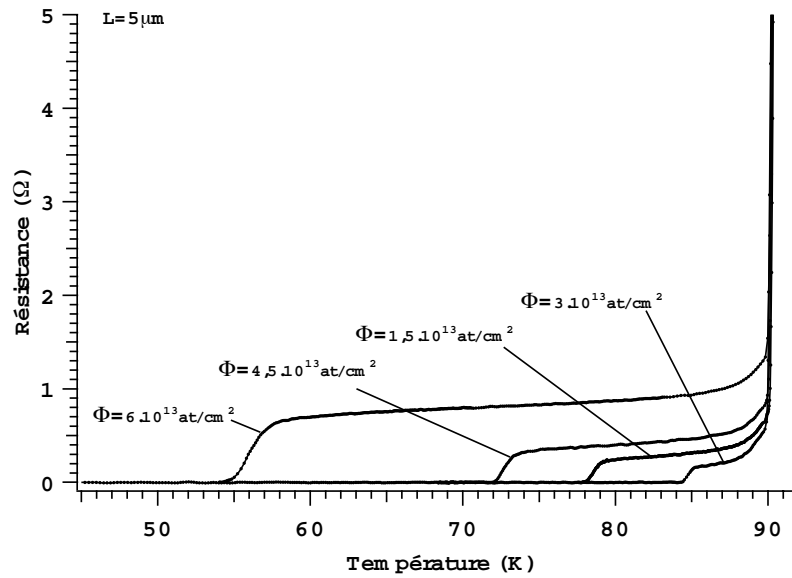


FIG. 3.12 – Résistance en fonction de la température pour quatre jonctions de largeur  $L=5\ \mu\text{m}$  irradiées respectivement avec une dose de  $1,5.10^{13}$ ,  $3.10^{13}$ ,  $4,5.10^{13}$  et  $6.10^{13}\ \text{at}/\text{cm}^2$



| dose   | $1,5 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ | $3 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ | $4,5 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ | $6 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ |
|--------|-------------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------------|
| $T_j$  | $\approx 85K$                       | $\approx 78K$                     | $\approx 72K$                       | $\approx 55K$                     |
| $T'_c$ | $\approx 78K$                       | $\approx 66K$                     | $\approx 52K$                       | $\approx 37K$                     |

TAB. 3.2 – Températures de couplage Josephson  $T_j$  et températures de transition de la zone irradiée pour les quatre doses différentes.

### 3.6.2 Mesures $I(V)$ et $I_c(T)$

Les caractéristiques courant-tension des jonctions sont mesurées à des températures inférieures à la température de la seconde transition ( $T_j$ ). Les figures 3.13, 3.14, 3.15 et 3.16 rassemblent les résultats obtenus sur les jonctions de largeur  $5\mu m$  irradiées aux différentes doses.

A haute température (juste en dessous de  $T_j$ ), les caractéristiques obtenues sont de type RSJ (Resistively Shunted Junction) avec une courbure concave de la branche de dissipation, indiquant un couplage Josephson entre deux électrodes supraconductrices séparées par une zone normale. Lorsque la température diminue, le courant critique augmente et les caractéristiques  $I(V)$  font apparaître une inversion de la courbure de la branche de dissipation, caractéristique d'un régime de flux flow (fig 3.17). La température qui sépare ces deux régimes (Josephson et flux flow) correspond à la température de transition de la partie irradiée (fig 3.17). Elle n'est pas toujours facile à identifier ; elle est bien visible sur les jonctions fortement irradiées mais apparaît moins clairement sur les autres. En tenant compte du facteur géométrique  $A$ , cette température correspond effectivement à la  $T'_c$  d'un film sans jonction, irradié à la même dose.

Le courant critique  $I_c(T)$  montre une dépendance quadratique en fonction de la température dans le régime Josephson (fig 3.18), ce qui est en accord avec les résultats obtenus précédemment par d'autres groupes sur des jonctions également fabriquées par irradiation ionique [82, 79]. Une telle dépendance est également obtenue dans le cadre théorique du modèle de de Gennes-Wertamer des jonctions SNS (cf section 2.3.2.3)[32, 31, 144]. Dans le cas de nos jonctions, le couplage entre les deux supraconducteurs se fait à travers une région irradiée dont la température de transition a été réduite ( $T'_c$ ). Les paires de Cooper diffusent donc dans cette région sur une longueur de cohérence  $\xi_N(T)$ , correspondant à la perte de cohérence due aux excitations thermiques, qui doit tenir compte de l'existence de  $T'_c$

$$\xi_N(T) = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \sqrt{1 + \frac{2}{\ln T/T'_c}} \quad (3.6)$$

où  $D = \frac{v_F l}{3}$  est la constante de diffusion à 3 dimensions,  $v_F$  la vitesse de Fermi et  $l$  le libre parcours moyen.

Le courant critique est alors donné par

$$I_c(T) = I_0 \left(1 - \frac{T}{T_j}\right)^2 \frac{L/\xi_N}{\sinh(L/\xi_N)} \quad (3.7)$$

où  $I_0$  est une valeur typique de courant et  $L$  la longueur de la partie normale qu'on suppose constante en première approximation<sup>5</sup>.

Le terme  $\frac{L/\xi_N}{\sinh(L/\xi_N)}$  varie peu avec la température et la principale dépendance du courant critique est donc quadratique. Le régime de validité de cette expression est restreint aux températures au-dessus de  $T'_c$  et ne peut pas être étendu au régime flux-flow.

Etant donné que les courants critiques présentent une forte dépendance avec la température et que la résistance des jonctions diminue lentement lorsque la température est abaissée (fig 3.13,

<sup>5</sup>Dans une première approximation, nous ne tenons pas compte de la distribution gaussienne de défauts.

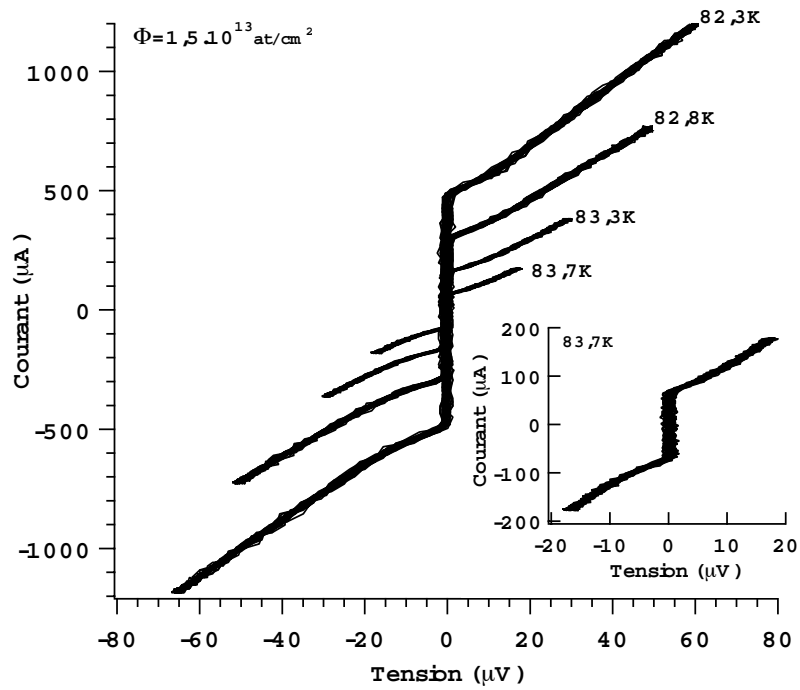


FIG. 3.13 – Caractéristiques courant-tension à différentes températures d'une jonction irradiée avec une dose de  $1,5 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ . Insert : agrandissement de la courbe  $I(V)$  à  $T=83,7\text{K}$ .

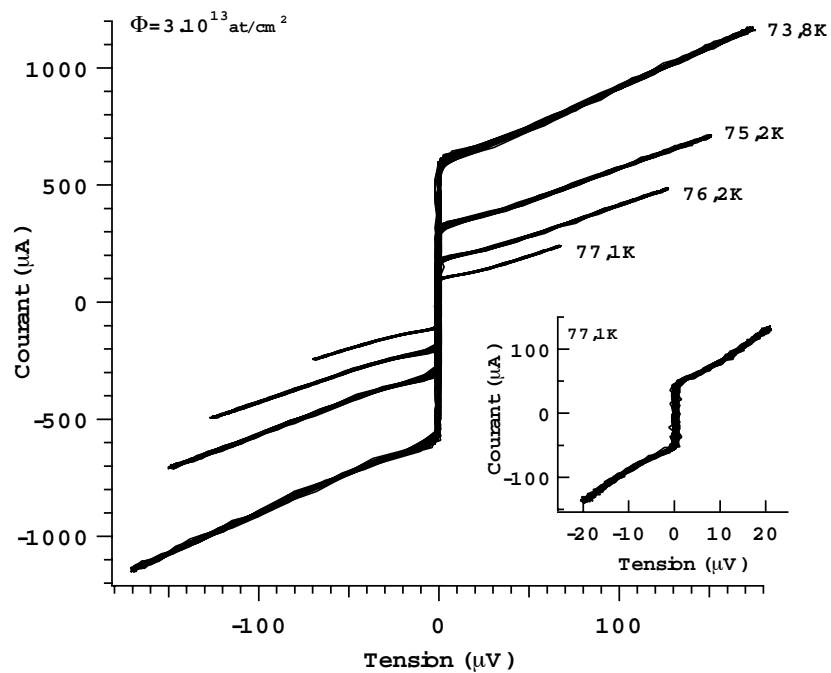


FIG. 3.14 – Caractéristiques courant-tension à différentes températures d'une jonction irradiée avec une dose de  $3 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ . Insert : agrandissement de la courbe  $I(V)$  à  $T=77,1\text{K}$ .

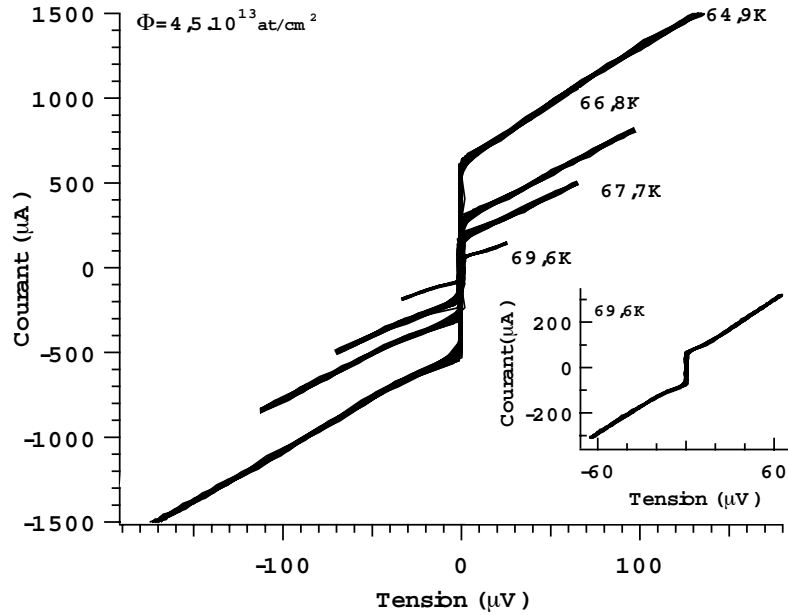


FIG. 3.15 – Caractéristiques courant-tension à différentes températures d'une jonction irradiée avec une dose de  $4,5 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ . Insert : agrandissement de la courbe  $I(V)$  à  $T=69,6\text{K}$ .

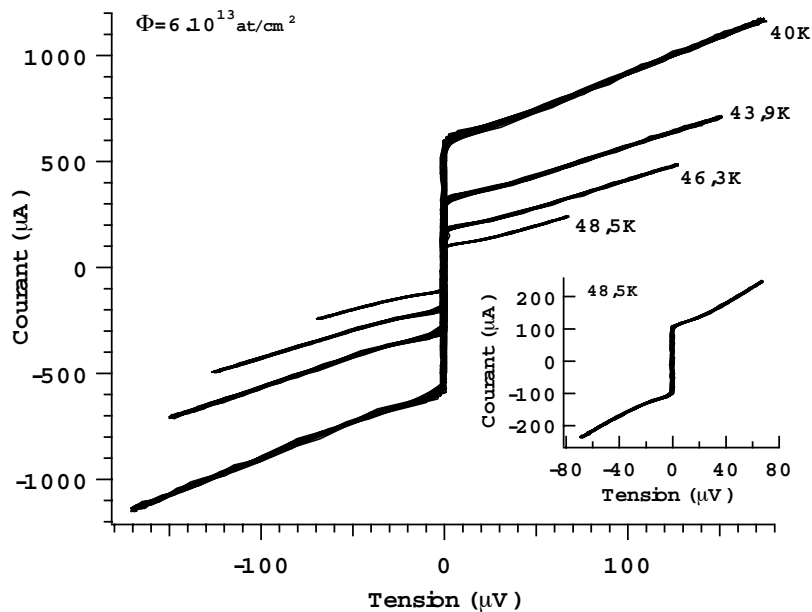


FIG. 3.16 – Caractéristiques courant-tension à différentes températures d'une jonction irradiée avec une dose de  $6 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ . Insert : agrandissement de la courbe  $I(V)$  à  $T=48,5\text{K}$ .

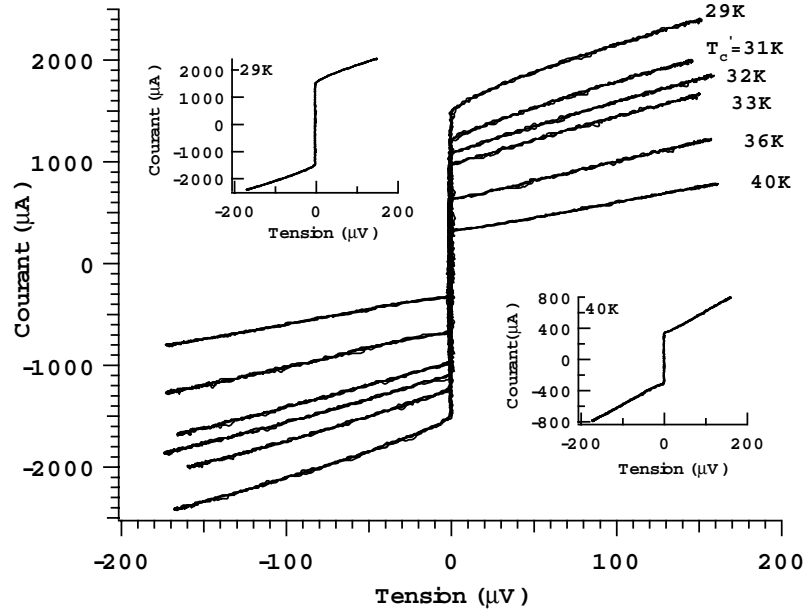


FIG. 3.17 – Caractéristiques courant-tension d’une jonction irradiée avec une dose de  $6.10^{13} \text{at/cm}^2$  mesurées à différentes températures autour de la transition entre le régime Josephson et le régime flux-flow. La température à laquelle l’inversion de courbure de la branche de dissipation est observée correspond à  $T'_c$  (32K). Insert : agrandissements des caractéristiques  $I(V)$  à  $T=40\text{K}$  (régime Josephson) (à droite) et à  $T=29\text{K}$  (régime flux flow) (à gauche)[20].

3.14, 3.15 et 3.16), les valeurs des produits  $I_c R_n$  ont une dépendance forte avec la température (de 0 à  $\sim qq \text{ meV}$ ).

Nous remarquons que plus la dose d’irradiation est faible, plus la plage de température du régime Josephson est réduite. Dans les courbes  $I_c(T)$  de la figure 3.18, ce phénomène se traduit par une augmentation beaucoup plus rapide du courant critique des jonctions faiblement irradiées. Nous verrons dans les paragraphes suivants que ces dépendances plus fortes avec la température à faible dose peuvent s’expliquer par le fait que le potentiel de paires  $\Delta$  varie plus rapidement avec la température près de  $T_c$ .

### 3.6.3 Mesure du courant critique Josephson en fonction d’un champ magnétique

Le test le plus significatif pour connaître la qualité d’une jonction Josephson est l’observation d’une modulation de son courant critique lorsqu’un champ magnétique est appliqué parallèlement à la jonction. La figure 3.19 présente les résultats obtenus à différentes températures pour une jonction de largeur  $5\mu\text{m}$  irradiée avec une dose de  $3.10^{13} \text{at/cm}^2$ . Le comportement d’une jonction Josephson sous champ est déterminé par la longueur de pénétration Josephson

$$\lambda_J = \left( \frac{\hbar}{2\mu_0 e} \right)^{\frac{1}{2}} \sqrt{\frac{tL}{I_c(2\lambda + d)}}$$

où  $(2\lambda + d)$  est l’épaisseur magnétique,  $L$  la largeur de la jonction et  $t$  l’épaisseur du film.

A  $T=73.35\text{K}$ , la largeur  $L = 5\mu\text{m}$  de la jonction est inférieure à la longueur de pénétration Josephson  $\lambda_J \approx 10\mu\text{m}$ , et la courbe  $I_c(B)$  est très proche d’une courbe de Fraunhofer pour une jonction rectangulaire ( $|\frac{\sin x}{x}|$ ) (cf section 2.2.3.2). La période des modulations correspond à un

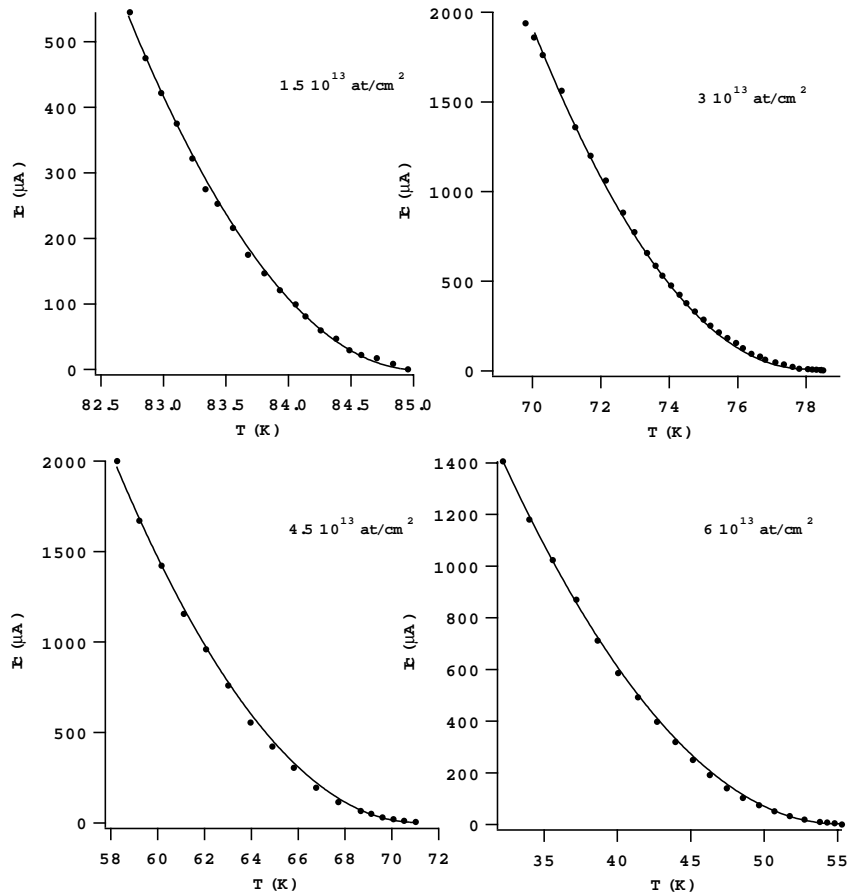


FIG. 3.18 – Evolution du courant critique en fonction de la température obtenue pour quatre jonctions ( $L=5\mu\text{m}$ ) correspondant aux quatre doses d'irradiation  $1,5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $4,5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ . Les points correspondent aux données expérimentales et les traits pleins aux ajustements obtenus avec la relation (3.7).

quantum de flux dans la jonction en prenant une valeur de  $\lambda$  typique d'un film mince (400nm à 73K).

Lorsque la température est abaissée, le courant critique augmente et  $\lambda_J$  devient inférieur à  $W$ . Le modèle de Shapiro et Owen donne, en tenant compte des effets du champ engendré par les supercourants, des modulations de  $I_c$  semblables à celles que nous observons (cf section 2.2.3.3). Le courant critique ne s'annule plus et les modulations prennent une forme triangulaire. Un tel comportement quasi-idéal de  $I_c$  en fonction du champ magnétique a rarement été observé dans les jonctions fabriquées avec des supraconducteurs à haute température critique.

### 3.6.4 Intérêt technologique des jonctions par irradiation

A l'heure actuelle, en l'absence d'une technologie simple et fiable, il existe peu d'applications qui utilisent des jonctions Josephson fabriquées avec des supraconducteurs à haute température critique. Dans l'essentiel des dispositifs, les jonctions utilisées sont des jonctions joints de grains où des jonctions rampes que nous avons présentées dans la section 2.4. Les jonctions par irradiation que nous avons développées constituent une alternative intéressante pour plusieurs raisons :

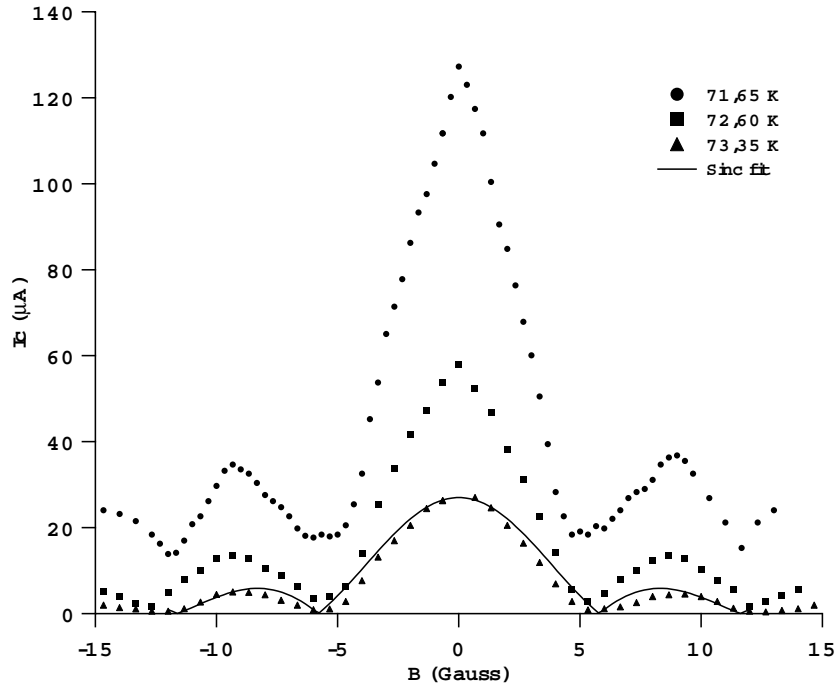


FIG. 3.19 – Modulations du courant critique en fonction d'un champ magnétique parallèle à la jonction, obtenues à différentes températures. Les points correspondent aux données expérimentales et le trait plein à l'ajustement des données à  $T=73.35K$  par une fonction  $|\frac{\sin x}{x}|$  [20].

- Le support de départ est un simple film d' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  recouvert d'une couche d'or<sup>6</sup>. Ceci représente un avantage considérable par rapport aux jonctions joints de grains qui nécessitent un substrat spécial (bicristal) ou aux jonctions rampes qui nécessitent le dépôt de plusieurs couches successives (4 couches au total) avec notamment une reprise d'épitaxie délicate après les premières étapes de microfabrication.
- La méthode de fabrication est simple, les jonctions peuvent être réalisées avec des équipements standards de salle blanche. L'irradiation pourrait apparaître comme une étape contraignante mais les implanteurs standards de l'industrie de la microélectronique peuvent délivrer des ions oxygène d'une centaine de keV.
- Les caractéristiques des jonctions ( $I_c, R_n, T_j$ ) peuvent être ajustées de façon très précise avec la dose d'irradiation ou la largeur de la fente. À titre de comparaison, dans les jonctions joints de grains, le réglage de ces paramètres nécessite de faire varier l'angle entre les orientations des deux cristaux. Il est possible de répondre aux exigences particulières de certaines applications, comme les SQUIDS, qui nécessitent des valeurs précises de courant critique à une température donnée. On peut également obtenir des densités de courant critique très importantes ( $50kA/cm^2$ ).
- La reproductibilité des jonctions semble être bonne (au moins aux faibles doses d'irradiation). Une étude plus détaillée serait nécessaire pour pouvoir quantifier réellement la dispersion. Cela implique de réaliser un grand nombre de jonctions et d'optimiser toutes les étapes de fabrication (contrôle précis des dépôts métalliques, réglages du masqueur électronique, contrôle de la gravure...) ce qui n'était pas notre objectif de départ.

<sup>6</sup>Depuis quelques années, des sociétés commercialisent des films d'YBCO.

- La géométrie des jonctions est planaire, ce qui permet d'intégrer un grand nombre de jonctions pour fabriquer des dispositifs complexes. Le couplage se fait dans le plan de base ( $a, b$ ) où la supraconductivité est la plus robuste.

### 3.7 Fabrication de SQUIDS DC par irradiation ionique

Les SQUIDS sont des capteurs magnétiques d'un grande sensibilité qui sont utilisés dans un vaste domaine d'applications : magnétométrie, RMN bas champ, géophysique, contrôle non-destructif, biomagnétisme...). La technologie tricouche  $Nb/Al_2O_3/Nb$  qui est généralement employée dans la plupart des SQUIDS a permis d'atteindre des sensibilités records de l'ordre de  $10^{-16}T$ . Néanmoins, les températures de transition peu élevées des métaux et alliages supraconducteurs nécessitent l'utilisation de systèmes cryogéniques contraignants et coûteux qui sont parfois difficilement compatibles avec l'environnement des différentes applications. Depuis la découverte des supraconducteurs à haute température critique, de nombreux efforts ont été accomplis pour fabriquer des SQUIDS fonctionnant à la température de l'azote liquide (77K) ou à des températures facilement accessibles grâce aux cryo-cooler. Cependant, en l'absence d'une technologie fiable de jonctions Josephson, il existe aujourd'hui peu de réalisations commerciales utilisant des SQUIDS à haute température critique.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, les jonctions planaires fabriquées par irradiation ionique représentent une technologie intéressante pour les applications à base de jonctions Josephson. C'est donc dans ce but que nous avons commencé la fabrication de SQUIDS dc par irradiation ionique. L'objectif de ce travail était de tester le potentiel des jonctions en réalisant un dispositif simple (2 jonctions en parallèles), nous ne nous sommes donc pas fixé d'exigences particulières concernant les performances.

Le lecteur intéressé par le principe de fonctionnement des SQUIDS dc pourra consulter l'annexe A. Nous rappelons ici le résultat principal : en présence d'un flux magnétique  $\Phi_a$  à travers sa boucle, le courant critique d'un SQUID est donné par l'expression

$$I_c = \left[ (i_{c1} - i_{c2})^2 + 4i_{c1}i_{c2} \cos^2 \frac{\pi\Phi_a}{\Phi_0} \right]^{1/2} \quad (3.8)$$

où  $i_{c1}$  et  $i_{c2}$  sont les courants critiques des deux jonctions Josephson et  $\Phi_0 = 2.10^{-15}Wb$  est le quantum de flux.

Lorsque les deux jonctions Josephson sont rigoureusement identiques,  $i_{c1} = i_{c2}$  et l'expression précédente se réduit à

$$I_c = 2i_c \left| \cos \frac{\pi\phi_a}{\phi_0} \right| \quad (3.9)$$

#### 3.7.1 Structure des échantillons

Les SQUIDS sont formés de deux jonctions Josephson en parallèle fabriquées par la technique d'irradiation ionique décrite dans la section 3.4.1 et contactés avec quatre électrodes. La géométrie de la boucle à été déterminée en tenant compte de deux critères :

- une inductance  $L$  suffisamment faible pour pouvoir travailler dans le régime  $LI_c \ll \Phi_0$  avec des courants critiques pas trop petits ( $\sim 10\mu A$ ).

- une surface de boucle correspondant à des modulations de période de quelques dixièmes de Gauss de façon à ne pas être trop gêné par le champ magnétique terrestre<sup>7</sup>.

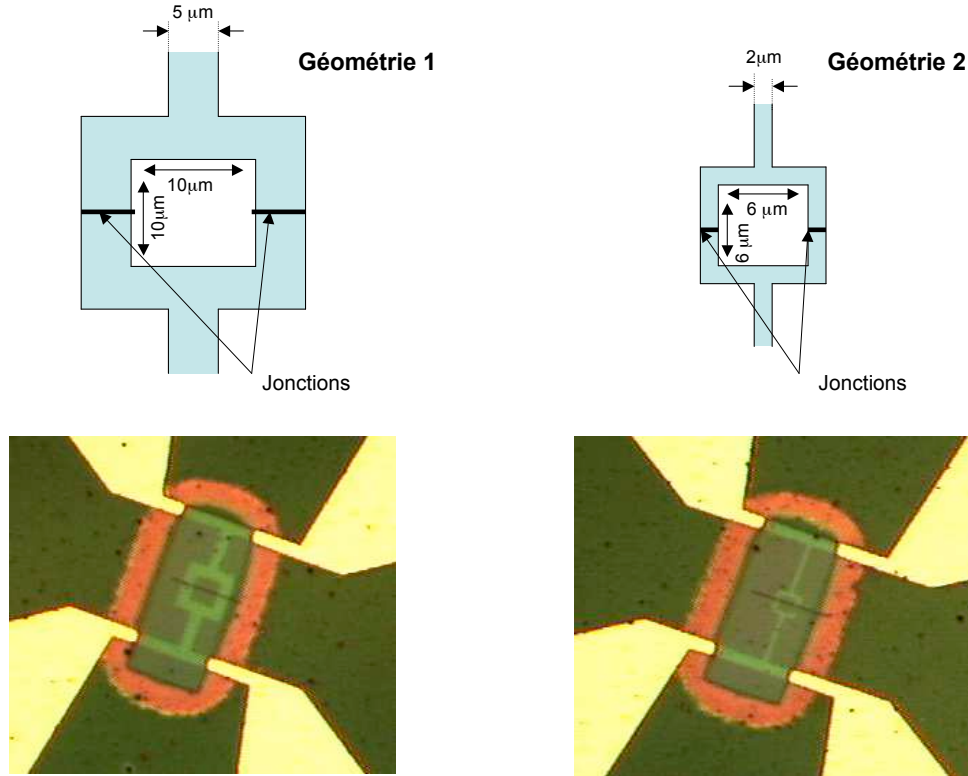


FIG. 3.20 – Schéma des deux géométries de SQUIDs utilisées et photos optiques correspondantes. Sur les photos le trait sur les SQUIDs correspond à la trace de la fente de 20 nm dans la résine.

Lors de cette étude nous avons utilisé deux géométries différentes ; elles sont représentées sur la figure 3.20. Les périodes de modulations attendues sont respectivement de  $\frac{\Phi_0}{10 \cdot 10^{-6} \times 10 \cdot 10^{-6}} = 0.2$  Gauss pour les SQUIDs de géométrie 1 et  $\frac{\Phi_0}{6 \cdot 10^{-6} \times 6 \cdot 10^{-6}} \approx 0.55$  Gauss pour les SQUIDs de géométrie 2.

L'inductance d'une boucle carrée peut être calculée en utilisant la formule donnée dans l'annexe B.

**Dans le cas de la géométrie 1** ,  $S = 20\mu m$ ,  $w = 5\mu m$  et  $t = 150nm$ , ce qui correspond à une inductance  $L = 32pH$ .

**Dans le cas de la géométrie 2** ,  $S = 10\mu m$ ,  $w = 2\mu m$  et  $t = 150nm$ , ce qui correspond à une inductance  $L = 17pH$ .

<sup>7</sup>En pratique nous utilisons un cryostat protégé par du  $\mu$ -métal ce qui réduit en partie le champ terrestre. Une étude de SQUIDs dont la période de modulation serait très inférieure au champ terrestre nécessiterait des équipements mieux adaptés.



La géométrie planaire permet de disposer un grand nombre de structures sur l'échantillon, ce qui est intéressant car de nombreuses applications nécessitent l'utilisation de matrices de SQUIDS (magnéto-encéphalographie...). Sur chaque échantillon, nous réalisons environ une cinquantaine de SQUIDS de chaque géométrie (fig 3.21) qui sont irradiés soit avec une dose de  $3.10^{13}at/cm^2$  soit avec une dose  $6.10^{13}at/cm^2$ .

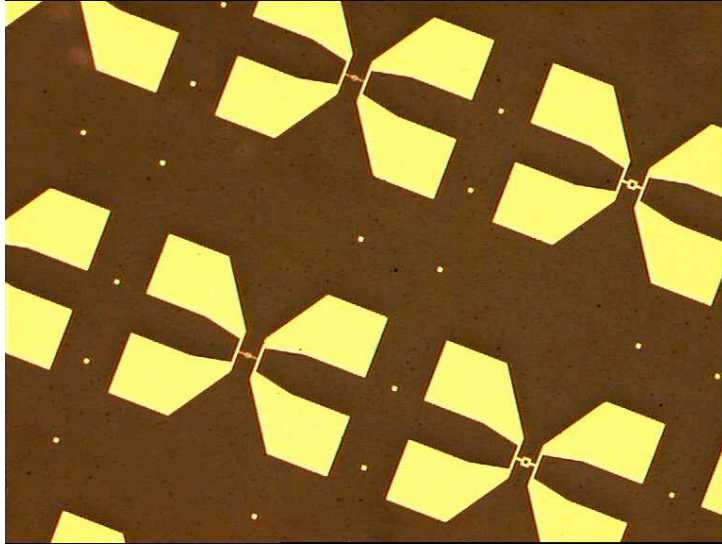


FIG. 3.21 – Photo optique d'un échantillon avant l'étape de gravure de l'or. Les lignes alternent les deux géométries de SQUIDS, au total, chaque échantillon comprend une centaine de SQUIDS.

## 3.7.2 Caractérisation des SQUIDS

### 3.7.2.1 Mesures $R(T)$ et $I(V)$

Les mesures de résistance des SQUIDS en fonction de la température sont en tout point identiques à celles effectuées sur les jonctions simples (fig 3.22). Les courbes font apparaître une chute de résistance à 90K correspondant à la  $T_c$  de l' $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  non irradié. En dessous de cette température, il y a un palier de résistance jusqu'à la température de couplage Josephson  $T_J$  qui dépend de la dose d'irradiation. Les températures de couplage Josephson sont identiques à celles obtenues dans le cas des jonctions simples ( $T_J \approx 78K$  pour une dose de  $3.10^{13}at/cm^2$  et  $T_J \approx 55K$  pour une dose de  $6.10^{13}at/cm^2$ ).

Dans le régime Josephson, les caractéristiques courant-tension sont de type RSJ (Resistively Shunted Junction) semblables à ce qui avait été observé sur les jonctions simples (fig 3.23).

### 3.7.2.2 Modulations SQUID

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué perpendiculairement à travers la boucle, le courant critique du SQUID présente une modulation périodique (fig 3.24). La courbe  $I_c(B)$  est bien décrite par la relation (3.9) mais, on constate que le courant critique ne s'annule pas complètement à chaque modulation. La principale raison est que nous ne sommes pas rigoureusement dans le régime  $LI_c \ll \Phi_0$  qui, pour être vérifié, nécessiterait un courant critique inférieur à  $10\mu A$ . Si nous augmentons légèrement la température, nous constatons que les modulations deviennent quasiment complètes mais les courants critiques sont alors trop faibles pour être mesurés correctement. Cependant, sur certains SQUIDS, il n'est pas possible d'annuler rigoureusement le courant critique, même à température suffisamment élevée, ce qui signifie qu'il demeure toujours une petite

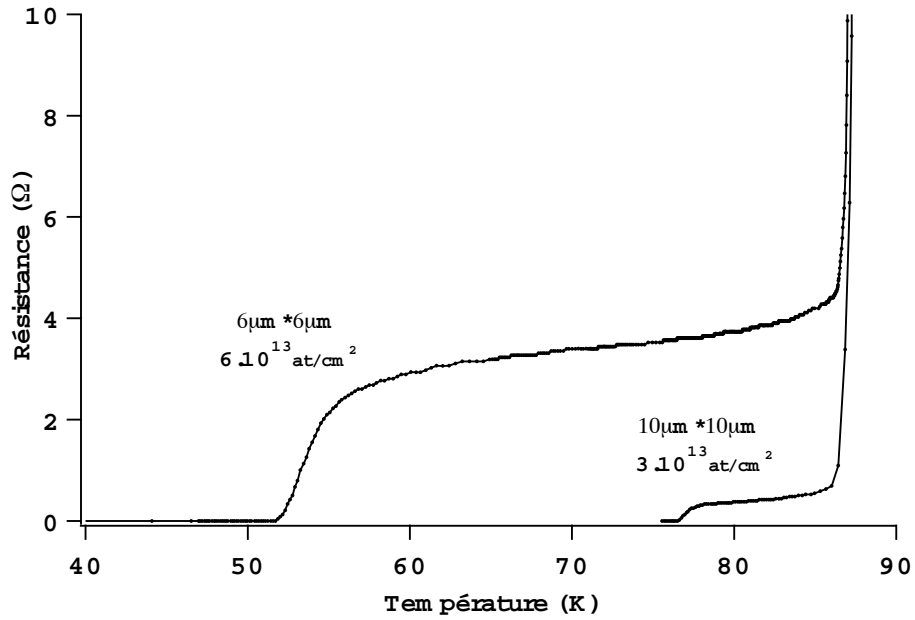


FIG. 3.22 – Mesures  $R(T)$  d'un SQUID de géométrie 1 (boucle  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ ) irradié avec une dose de  $3 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$  et d'un SQUID de géométrie 2 (boucle  $6\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$ ) irradié avec une dose de  $6 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$

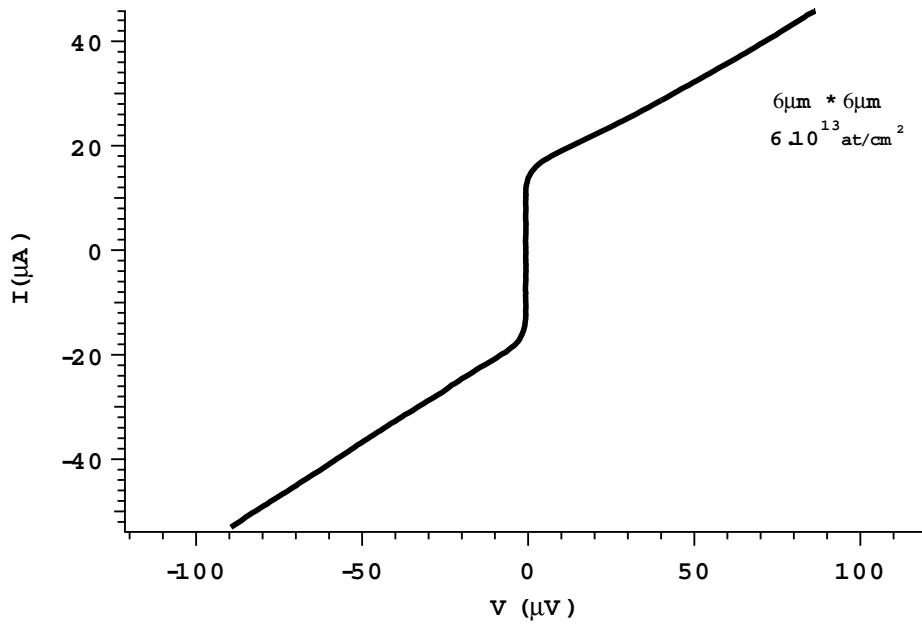


FIG. 3.23 – Caractéristique  $I(V)$  d'un SQUID de géométrie 2 (boucle  $6\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$ ) irradié avec une dose de  $6 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^2$ .

dissymétrie dans les courants critiques ( $< 10\%$ ).

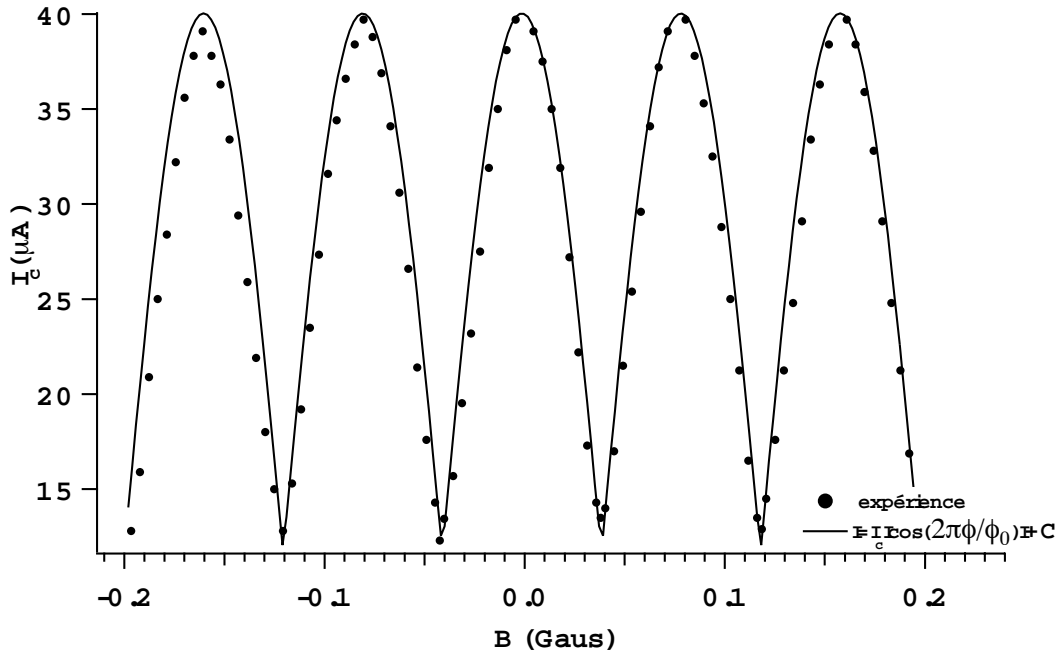


FIG. 3.24 – Modulation du courant critique d’un SQUID de géométrie 1 irradié avec une dose de  $3.10^{13} \text{at/cm}^2$  à  $T=77\text{K}$ . Les points correspondent aux données expérimentales et le trait plein à l’ajustement. La période mesurée est  $\sim 0.08$  Gauss.

Les périodes mesurées sont de 0.08 Gauss dans le cas des SQUIDs de géométrie 1, et de 0.3 Gauss dans le cas des SQUIDs de géométrie 2, ce qui diffère des périodes calculées dans le paragraphe précédent (0.2 et 0.55 Gauss). Ceci est dû au fait que nous n’avons pas tenu compte de l’écrantage du champ magnétique par la boucle du SQUID qui a tendance à concentrer le flux à l’intérieur de la boucle. Compte-tenu de la forme simple de nos SQUID, on peut estimer assez simplement la concentration du flux à travers la boucle (fig 3.25 a). Dans le cas de la géométrie 1, on peut considérer que le flux réel dans la boucle est approximativement équivalent au flux du champ magnétique  $B$  à travers une boucle de surface  $(10 + 2 \times \frac{l}{2})^2 \mu\text{m}^2$  où  $l = 5\mu\text{m}$  est la largeur du bras. On devrait alors s’attendre à des modulations de période 0.088 Gauss, ce qui est proche de la valeur observée. Pour obtenir un résultat plus rigoureux, il faudrait tenir compte de la géométrie réelle du SQUID, notamment des amenées de courant et des quatre coins de la boucle. Dans le cas des SQUIDs de géométrie 2, un raisonnement identique fait intervenir une surface équivalente de  $8 \times 8\mu\text{m}^2$  ce qui correspond à des modulations de 0.31 Gauss.

En pratique, lorsqu’on utilise un SQUID, on mesure rarement les modulations du courant critique qui est une quantité contraignante à mesurer<sup>8</sup>. Pour cette raison, on préférera utiliser la technique de mesure décrite sur la figure 3.25 b) qui consiste à polariser le SQUID avec un courant supérieur au courant critique et à mesurer la tension  $V$  dissipée à ses bornes. Lorsqu’un champ magnétique est appliqué, la réponse du courant critique se traduit également par une modulation de la tension  $V$  (fig 3.26). Dans le cas où les caractéristiques courant-tension des jonctions Josephson sont décrites strictement par un modèle RSJ, on s’attend à ce que les modulations de la tension  $V$  soient sinusoïdales. L’amplitude de la modulation dépend de la valeur du courant de polarisation ;

<sup>8</sup>Le courant critique correspondant à un point de décrochement, il faut utiliser une rampe de courant pour le mesurer.

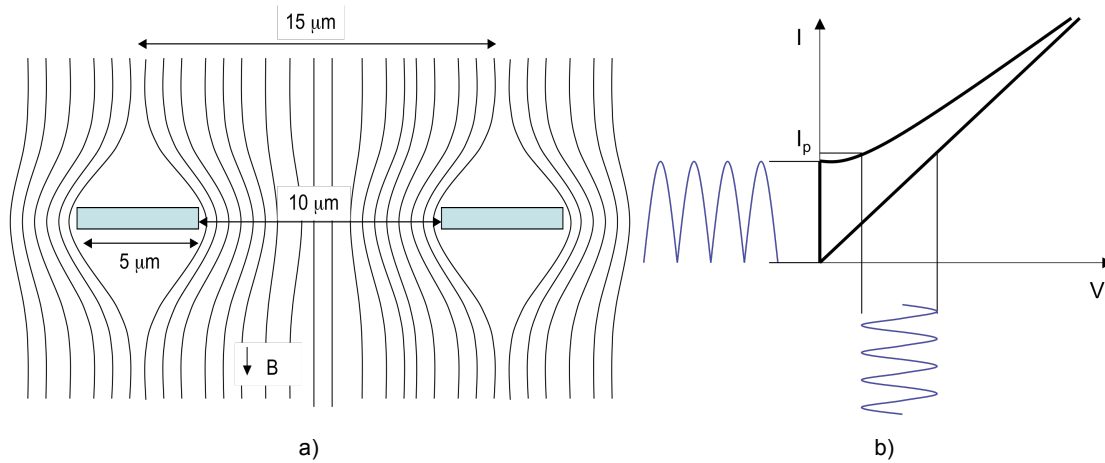


FIG. 3.25 – a) Concentration du flux à travers la boucle due à l'écrantage du champ par les bras du SQUID (géométrie 1). b) Principe de mesure des modulations de la tension  $V$  aux bornes d'un SQUID polarisé par un courant  $I_p$  supérieur au courant critique.

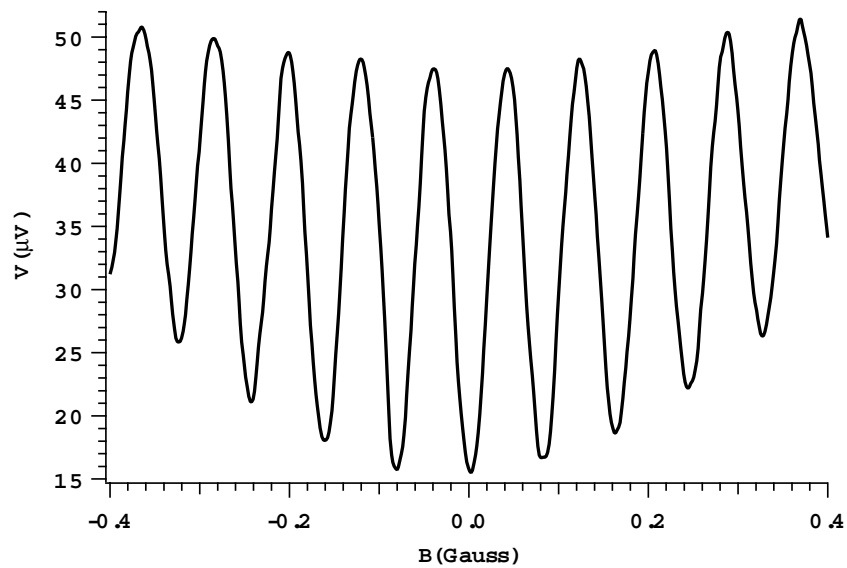


FIG. 3.26 – Modulation de la tension dc aux bornes d'un SQUID de géométrie 1 irradié avec une dose de  $3.10^{13} \text{at/cm}^2$ , en fonction du champ magnétique.

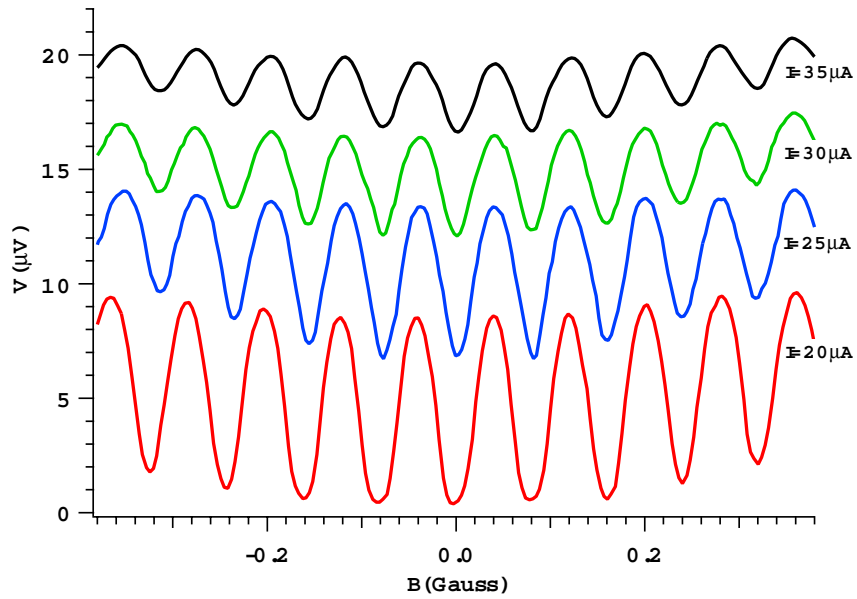


FIG. 3.27 – Modulation de la tension dc aux bornes d'un SQUID de géométrie 1, en fonction du champ magnétique, pour différentes valeurs du courant de polarisation ( $I_c = 18\mu A$ ).

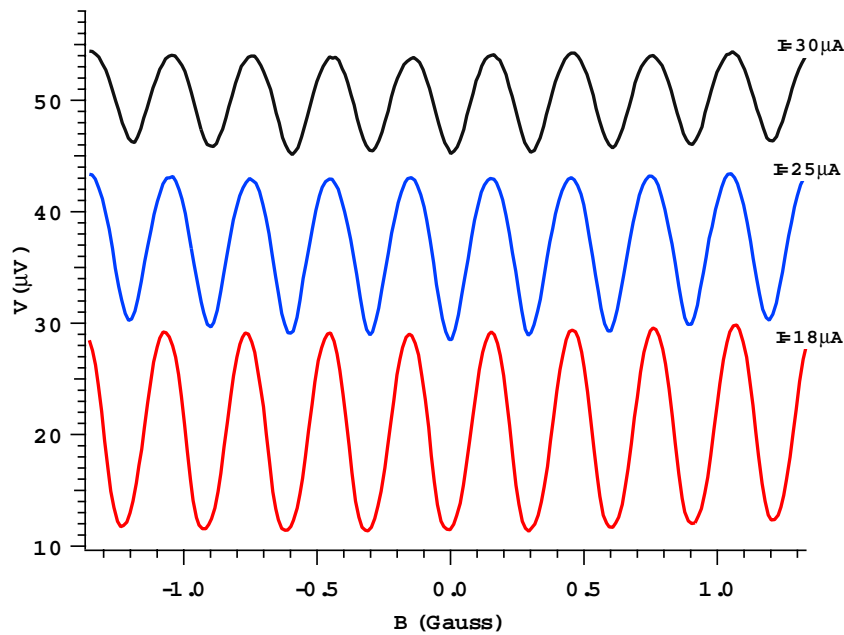


FIG. 3.28 – Modulation de la tension dc aux bornes d'un SQUID de géométrie 2, en fonction du champ magnétique, pour différentes valeurs du courant de polarisation ( $I_c = 15\mu A$ ).

plus il est proche du courant critique, plus l'amplitude est importante ce qui est conforme aux résultats obtenus sur nos SQUIDs (figures 3.27 et 3.28).

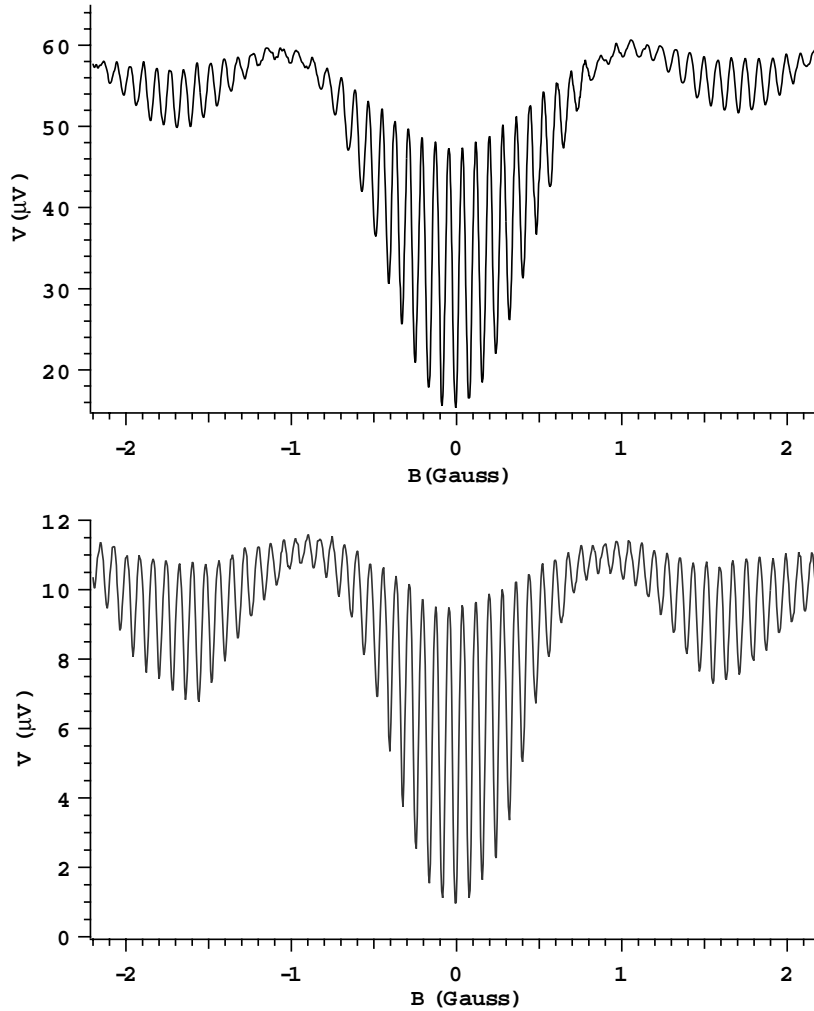


FIG. 3.29 – Modulation de la tension dc en fonction d'un champ magnétique plus intense pour 2 SQUIDs de géométrie 1 irradiés avec des doses de  $3.10^{13}at/cm^2$  (en haut-T=77K-) et  $6.10^{13}at/cm^2$  (en bas-51K-). Dans les deux cas, les modulations SQUID se superposent à la figure de diffraction de Fraunhofer.

Lorsqu'on mesure  $V$  sur une gamme de champ magnétique plus importante, on constate que les modulations SQUID se superposent à la figure de diffraction des jonctions ce qui confirme la qualité des jonctions formant le SQUID (fig 3.26) ainsi que leur faible dissymétrie.

### 3.7.2.3 Conclusion sur les SQUIDs

Les premiers résultats obtenus sur les SQUIDs fabriqués par irradiation ionique sont très encourageants mais il reste encore un travail de caractérisation et de développement important avant de pouvoir espérer réaliser un capteur performant. L'un des points essentiels pour les développements futurs concerne la caractérisation du bruit. La sensibilité d'un SQUID en flux est généralement limitée par le bruit intrinsèque sur la tension  $V$  à ses bornes. En plus du bruit blanc associé aux résistances des jonctions, il existe généralement un bruit à basse fréquence en  $\frac{1}{f}$ . Dans les SQUIDs

fabriqués avec des supraconducteur conventionnels, il n'est généralement pas pertinent sauf pour des fréquences très faibles ( $< 0.1Hz$ ). En revanche dans les SQUIDs à haute température critique fabriqués jusqu'à maintenant (essentiellement avec des jonctions joints de grain), ce bruit domine très largement en dessous de 1 kHz. Il existe deux contributions principales au bruit en  $\frac{1}{f}$  : le mouvement des vortex dans le SQUID et les fluctuations de courant critique dans les jonctions Josephson.

A l'heure actuelle, nous ne disposons pas d'un système totalement adéquat pour réaliser des mesures de bruit, mais les résultats préliminaires montrent qu'il est inférieur à  $100pV/\sqrt{Hz}$  à 100 Hz ce qui est encourageant. Compte-tenu de la fonction de transfert  $\frac{dV}{d\Phi}$  la sensibilité de nos SQUIDs est inférieure à  $5.10^{-4}\Phi_0$ .

Un SQUID est généralement inséré au sein d'un dispositif électronique plus complexe qui permet d'améliorer ses performances. Il inclut principalement un transformateur de flux qui permet d'augmenter la sensibilité au champ en utilisant une boucle de surface plus importante reliée au SQUID via une inductance mutuelle et une boucle de contre-réaction qui permet d'amplifier le signal et réduire le bruit en  $\frac{1}{f}$ . Les développements futurs des SQUIDs fabriqués par irradiation ionique devraient concerner la réalisation d'un tel dispositif.

## 3.8 Etude de l'effet de proximité dans les jonctions fabriquées par irradiation ionique

### 3.8.1 Importance de l'effet de proximité dans les jonctions

Après avoir abordé l'aspect technologique des jonctions, nous allons maintenant essayer de mieux comprendre le couplage Josephson dans ces structures.

L'une des conséquences de l'utilisation de l'irradiation ionique est qu'il existe une continuité chimique du matériau depuis le supraconducteur non affecté par l'irradiation, jusqu'à la partie centrale la plus irradiée. Il n'y a donc pas d'interfaces bien définies comme dans le cas des jonctions constituées de plusieurs couches. Lorsque la température de l'échantillon est comprise entre  $T_c$  et  $T'_c$ , la jonction est de type S-N-S (supraconducteur-normal-supraconducteur) et il est possible de définir une longueur de la partie normale  $L$  en considérant la distribution de  $T_c$  de la figure 3.30. Cette longueur n'est pas fixée, elle évolue avec la température et s'annule à  $T'_c$ .

Compte tenu de la distribution de  $T_c$  et de  $dpa$ , il est possible d'obtenir par simulation numérique l'évolution de la résistance en fonction de la température. D'après les références [137, 94, 93] la résistivité d'un film d'YBCO en fonction du  $dpa$  est donnée par

$$\rho(T, dpa) = \rho_{100}(1 + 100dpa + 4000dpa^2) + \alpha_{100}(1 + 9.8dpa)(T - 100) \quad (3.10)$$

où  $\rho_{100}$  et  $\alpha_{100}$  sont respectivement la résistivité et la dérivée de la résistivité à 100K d'un film non irradié.

La figure 3.31 montre les résultats de la simulation numérique ainsi que les mesures expérimentales dans le cas d'une jonction irradiée avec une dose de  $3.10^{13}at/cm^2$ . La résistance en dessous de  $T_c$  décroît plus rapidement que ce qui est attendu et, comme cela a déjà été évoqué dans le paragraphe 3.6.1, la transition vers un état résistif nul se fait à une température  $T_j$  supérieure à  $T'_c$ . Les expériences réalisées dans le régime de température  $T'_c < T < T_j$  confirment l'existence d'un couplage Josephson entre les deux supraconducteurs. Etant donné que la partie irradiée à l'état normal est en contact avec le supraconducteur, la physique de ce système devrait être étroitement liée à l'effet de proximité. La conséquence directe d'une géométrie sans interfaces est que les propriétés physiques du matériau tel que la le libre parcours moyen ou la vitesse de Fermi, doivent

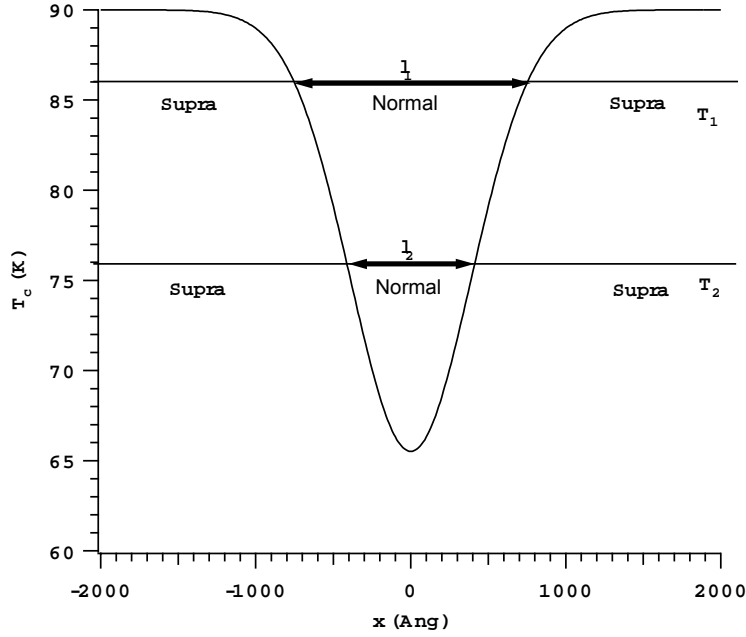


FIG. 3.30 – Evolution de la longueur de la partie normale d’une jonction en fonction de la température (dose  $3.10^{13} \text{at/cm}^2$ ). Lorsque la température diminue, la longueur  $l$  de la partie normale diminue ; ici  $T_1 > T_2$  et donc  $l_1 > l_2$ .

varier continûment, ce qui assure également la continuité de l’amplitude de condensation de paires  $F$  le long de la jonction. On peut donc s’attendre à ce que dans un tel système, l’effet de proximité soit favorisé et joue un rôle très important.

Nous avons vu que dans un système supraconducteur-normal, la dépendance spatiale de  $F$  dans la partie normale est donnée par

$$F_N(x) = F_N(0)e^{-\frac{|x|}{\xi_N}}$$

où  $\xi_N = \sqrt{\frac{\hbar D_N}{2\pi k_B T}}$  et  $F_N(0)$  est la valeur de  $F$  à l’interface SN du côté du supraconducteur.

L’évolution de  $F_N(x)$  en fonction de la température dépend donc de  $\xi_N(T)$  et de  $F_N(0)$  dont la dépendance en température est liée à la fois à l’effet de proximité et à la valeur de  $F$  (ou  $\Delta$ ) dans le bulk (loin de la partie irradiée). Juste en dessous de  $T_c$ ,  $F$  est faible et l’effet de proximité sera donc très limité. Etant donné que la longueur de la jonction est maximum pour ces températures ( $> 2000 \text{\AA}$ ), on n’observe donc pas de supercourant dans la jonction. Lorsque la température est abaissée,  $\xi_N(T)$  et  $F_N(0)$  augmentent et les corrélations supraconductrices s’étendent dans la zone à l’état normal ce qui se traduit par une diminution plus rapide de la longueur de la jonction. Le couplage Josephson se produit lorsque la portée des corrélations devient supérieure à la demi-largeur de la jonction (fig 3.32). En toute rigueur, le couplage apparaît lorsque la valeur de  $F$  au centre de la jonction est telle que le courant Josephson généré est suffisant pour ne pas être détruit par les fluctuations thermiques.

### 3.8.2 Orientation des jonctions dans le plan $(a, b)$

Les caractéristiques courant-tension et les modulations du courant critique en fonction du champ magnétique nous apportent la preuve expérimentale de l’existence d’un couplage Joseph-



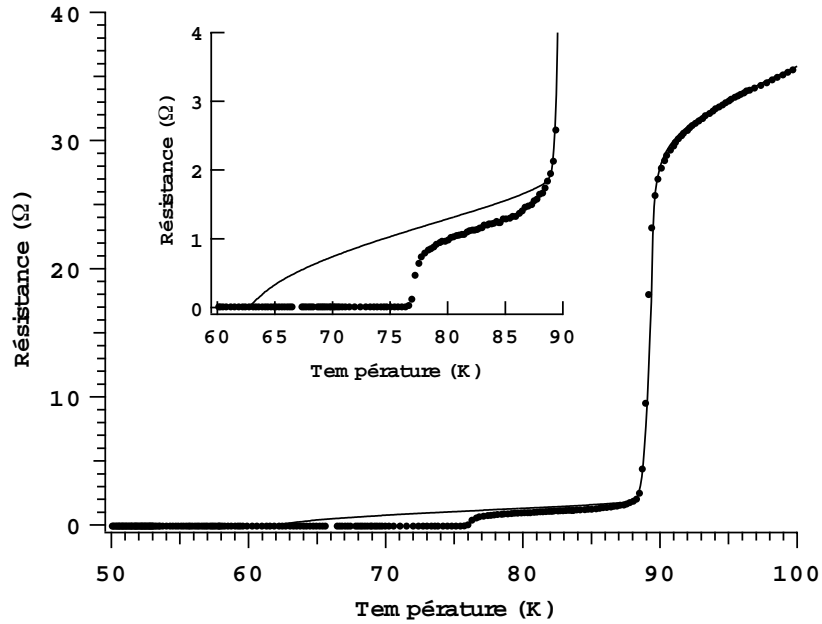


FIG. 3.31 – Caractéristique  $R(T)$  d'une jonction de largeur  $L = 1\mu m$  irradiée avec une dose de  $3.10^{13}$ . La courbe avec les symboles correspond aux données expérimentales et la courbe en trait plein à la résistance attendue sans effet de proximité ( $\sigma = 440\text{\AA}$ ) calculée à partir de l'expression (3.10) à laquelle nous avons ajouté une distribution gaussienne de défauts[20]. La résistance est obtenue en intégrant la résistivité  $\rho(x, T)$  le long de la jonction. Nous avons également tenu compte des fluctuations de  $\rho$  dans le régime de paraconductivité en ajoutant un terme d'Aslamazov-Larkin.

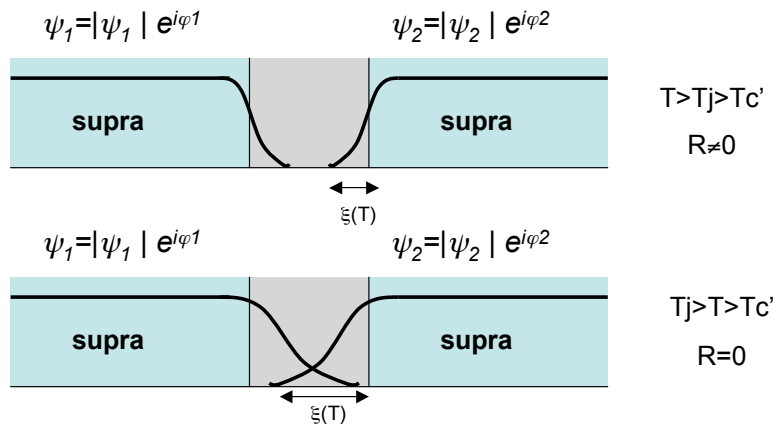


FIG. 3.32 – Description schématique de l'effet de proximité dans les jonctions. La supraconductivité pénètre dans la zone normale sur une longueur  $\xi(T)$  qui augmente lorsque la température diminue. Le couplage Josephson apparaît à  $T_j$  lorsque les deux fonctions d'onde  $\psi_1$  et  $\psi_2$  se recouvrent au centre de la jonction.

son en dessous de la température  $T_j$  de la seconde transition<sup>9</sup>.

En présence d'un milieu diffusant isotrope entre deux supraconducteurs de symétrie  $d$ , on devrait s'attendre à ce que le couplage entre des composantes du paramètre d'ordre déphasées de  $\pi$  réduise considérablement le courant critique. La réduction devrait alors dépendre de la forme du potentiel diffusant et de l'épaisseur de la partie normale. Afin de mieux comprendre le rôle de la symétrie  $d$  et de la diffusion dans ces structures nous avons réalisé des échantillons où les jonctions sont orientées selon un angle  $\theta$  par rapport à l'axe  $a$  (ou  $b$ )<sup>10</sup> (fig 3.33.)

Chaque échantillon comprend au total 8 groupes de 7 jonctions, correspondant aux angles  $\theta = 0^\circ, 10^\circ, 20^\circ, 30^\circ, 40^\circ, 45^\circ, 50^\circ$ . Dans chaque groupe, les jonctions sont très proches les unes des autres, de façon à limiter au maximum la dispersion due au film ou aux différents procédés de microfabrication. Les différents groupes de jonctions ont été irradiés aux ions oxygène d'énergie 100keV avec des doses de  $1.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ,  $4.5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ .

La figure 3.34 montre les courbes  $R(T)$  des jonctions de différentes orientations pour les quatre doses. Pour les faibles doses d'irradiation ( $1.5 \cdot 10^{13}$  et  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ ), on constate que les valeurs des résistances et des températures de couplage sont quasiment identiques pour les différentes orientations, avec une dispersion inférieure à 10%. Dans le cas des jonctions irradiées avec une dose de  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ , les différences sont plus importantes mais il n'est pas possible d'établir une correspondance quelconque avec la symétrie  $d_{x^2-y^2}$ . Cette augmentation de la dispersion à fortes doses peut paraître contre-intuitive. On pourrait penser que lorsque la dose est importante, les caractéristiques de la barrière sont déterminées par l'irradiation et ne dépendent plus de la qualité de la couche supraconductrice utilisée. En fait, il semble que l'irradiation ait plutôt tendance à faire ressortir les défauts intrinsèques (joints de grains, inhomogénéités de croissance..) du matériau de départ. Une seconde explication possible est que la résine de PMMA subisse des modifications structurales lorsque la dose d'irradiation est importante.

Les caractéristiques courant-tension ne révèlent pas non plus de différence entre les orientations (fig 3.35). La forme RSJ est conservée et le courant critique en fonction de la température évolue de façon identique pour toutes les jonctions.

Au total, plus de 40 jonctions de différentes orientations ont été mesurées. Aucun effet susceptible d'être corrélé à la symétrie  $d$  du paramètre d'ordre n'a été observé dans les mesures  $R(T)$ ,  $I(V)$  et  $I_c(T)$ , quelque soit la dose d'irradiation.

### 3.8.3 Interprétation

En présence d'un milieu diffusant strictement normal, la portée des corrélations  $\xi_N$  est donnée par  $\sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}}$ . En prenant des valeurs standards pour la vitesse de Fermi et le libre parcours moyen des cuprates ( $v_F \sim 5 \cdot 10^5 \text{m/s}$  et  $l \sim 100 \text{\AA}$  à  $T \sim 80 \text{K}$ ), on obtient  $\xi_N \sim 50 \text{\AA}$  ce qui est bien inférieur à la largeur de la zone irradiée ( $2\sigma \sim 800 \text{\AA}$ ). Pour expliquer le couplage Josephson, il faut tenir compte de la nature particulière de la barrière. Dans le cas de nos jonctions, la zone irradiée conserve les propriétés d'un supraconducteur avec une température de transition réduite. L'interaction attractive qui apparie les électrons en paires de Cooper est encore présente ce qui a pour effet d'augmenter la portée des corrélations supraconductrices dans la partie normale. Il faut alors tenir compte du fait que cette interaction n'est pas isotrope mais possède la symétrie  $d_{x^2-y^2}$ . On peut donc penser que dans cette situation, le mécanisme d'effet de proximité devient lui-même anisotrope ; les corrélations supraconductrices vont se propager préférentiellement en conservant la symétrie  $d$ . En changeant l'orientation des jonctions, nous ne modifions pas la symétrie du système car l'orientation du paramètre d'ordre reste la même dans le supraconducteur (fig 3.36) ; il semble

<sup>9</sup>Nous avons également vérifié la présence de marches de Shapiro sous irradiation micro-ondes, second test caractéristique de l'effet Josephson.

<sup>10</sup>Nos échantillons étant maclés, nous ne ferons pas la différence entre les axes  $a$  et  $b$ .

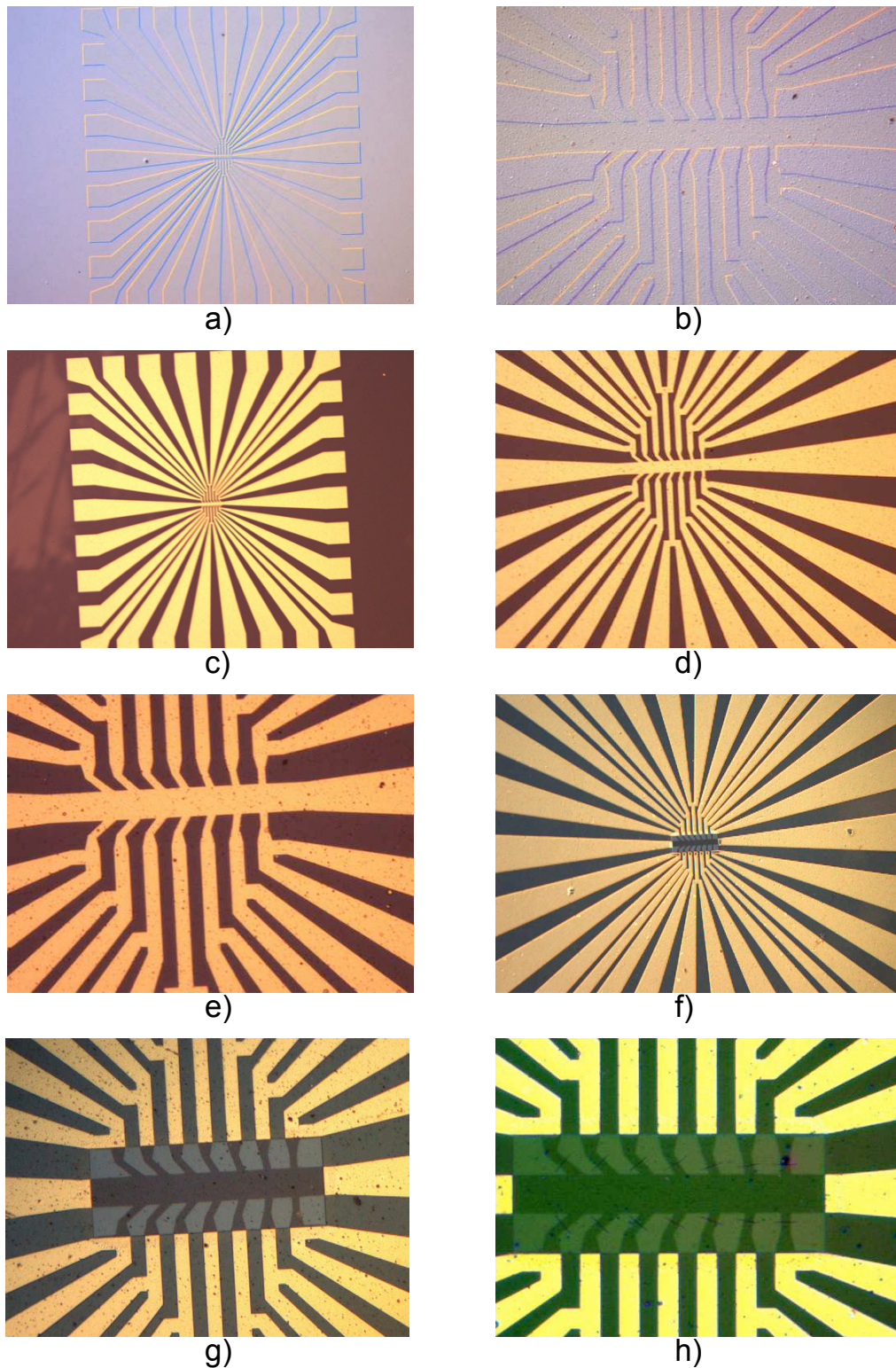


FIG. 3.33 – a) Vue globale de deux groupes de 7 jonctions (14 jonctions au total) après lift-off de la première couche d'or. b) Zoom sur les jonctions. Il y a 2 jeux de 7 orientations différentes. c) Vue globale d'un groupe de jonctions après gravure de la couche d'or in-situ. Les motifs restants vont servir de masque pour l'irradiation. d) et e) Zoom sur les jonctions. f) Gravure de la couche d'or qui recouvre les jonctions. g) Zoom sur les jonctions. Les parties plus foncées correspondent à l'YBCO non irradié. h) Ouverture des fentes de 20 nm dans la résine.

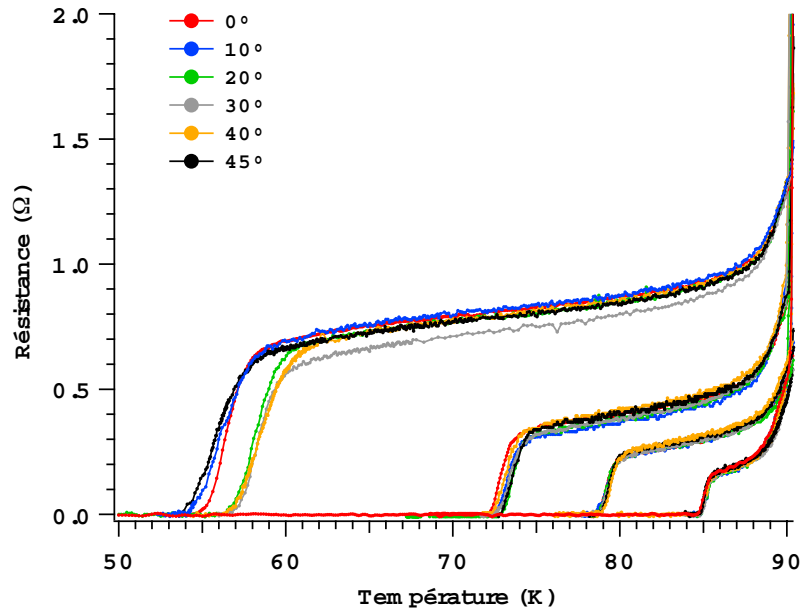


FIG. 3.34 – Courbes  $R(T)$  des jonctions orientées selon les angles  $\theta = 0^\circ, 10^\circ, 20^\circ, 30^\circ, 40^\circ, 45^\circ$  pour les quatre doses d'irradiation  $1, 5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2, 3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2, 4, 5 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$ .

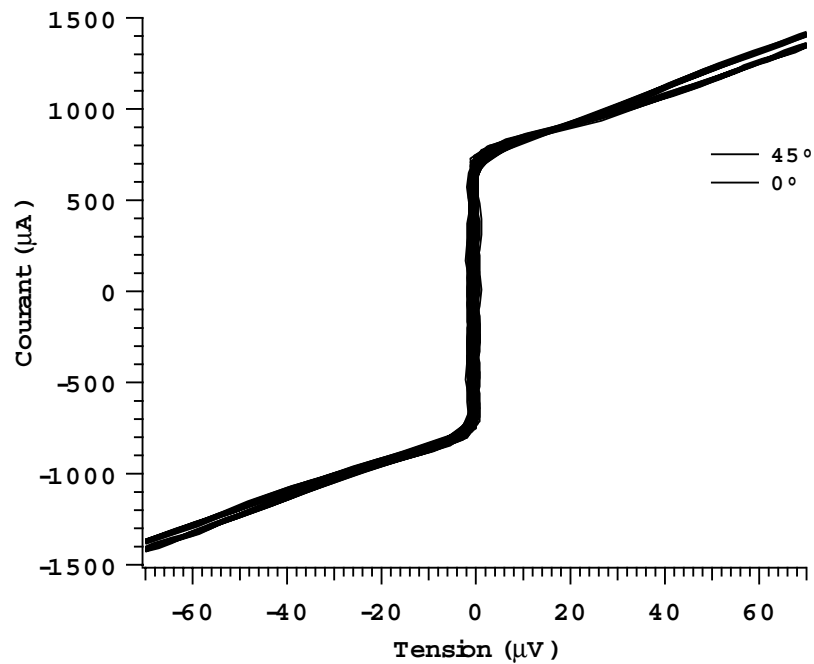


FIG. 3.35 – Caractéristiques courant-tension de deux jonctions irradiées avec une dose de  $3 \cdot 10^{13} \text{at/cm}^2$  orientées selon les angles  $\theta = 0$  et  $\theta = 45$ .

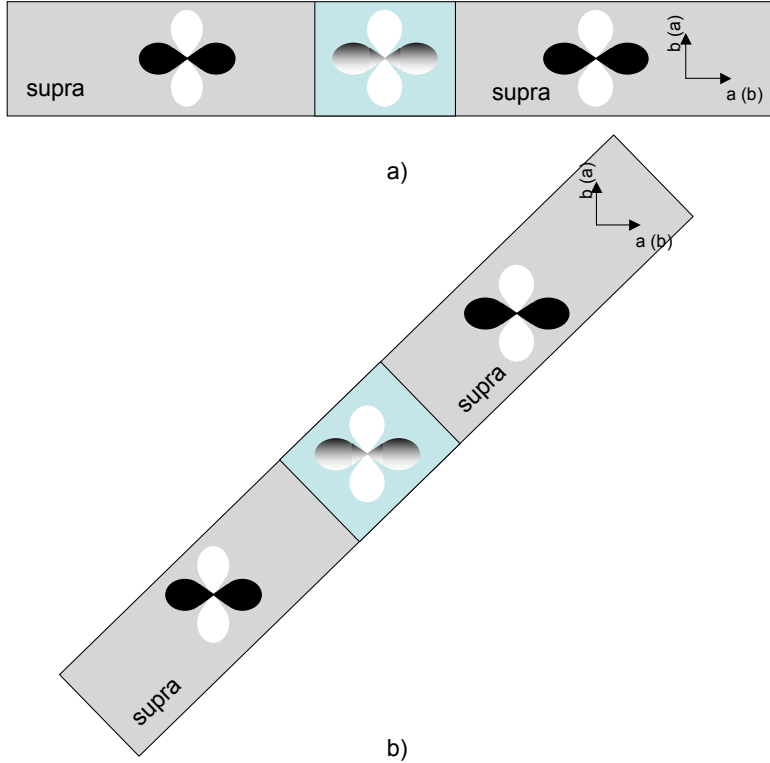


FIG. 3.36 – Représentation schématique de l’orientation du paramètre d’ordre pour deux angles  $\theta$  différents. Dans la partie normale, l’interaction attractive est toujours présente et l’effet de proximité conserve la symétrie.

alors normal que nous observions un comportement identique sur toutes les jonctions.

Dans cette interprétation, la nature de la zone irradiée joue un rôle fondamental dans le mécanisme de l’effet de proximité. L’existence d’une interaction attractive sous-jacente dans cette zone a pour effet d’augmenter considérablement la longueur sur laquelle les corrélations peuvent se propager, mais seulement dans les directions principales du paramètre d’ordre. Dans le cas d’une distribution uniforme de  $T'_c$  l’expression de  $\xi_N(T)$  doit être renormalisée en  $\sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \sqrt{1 + \frac{2}{\ln T/T'_c}}$ . Le deuxième terme diverge lorsque la température s’approche de  $T'_c$ . Cette expression n’est pas adaptée dans le cas d’une distribution spatiale comme la nôtre puisqu’à toute température  $T$  inférieure à  $T_c$ , il existe un point dans la jonction où la température est égale à  $T'_c$  ce qui entraîne une divergence du terme  $\sqrt{1 + \frac{2}{\ln T/T'_c}}$ . Dans la section suivante, nous verrons comment il est possible d’introduire les effets de distribution dans la description du système.

Une seconde explication envisagée est que le couplage Josephson ait lieu entre deux sous-composantes du paramètre d’ordre (symétrie  $s$ ), mais cela semble peu probable. En effet, en dehors du fait que l’existence d’une seconde composante est fortement débattue, si elle existe, on s’attend à ce qu’elle soit faible à haute température, ce qui est difficilement compatible avec les valeurs de couplage que nous mesurons ( $I_c R_n \sim qq$  mV) [64, 95].

### 3.8.4 Approche quasiclassique des équations d'Usadel

Le modèle de de Gennes-Wertamer que nous avons utilisé dans les paragraphes précédents ne permet pas de traiter simplement le cas d'une barrière non uniformément distribuée. La plupart des résultats sont dérivés dans le cas d'une interface bien définie entre le supraconducteur S et la partie normale N, qui n'existe pas dans le cas de nos jonctions. Pour cette raison, nous nous sommes intéressés aux équations quasiclassiques qui sont des équations différentielles dans lesquelles il est possible d'introduire des distributions spatiales. Dans le cas diffusif, l'équation d'Eilenberger se réduit à l'équation d'Usadel qui est plus simple à manipuler.

La description de la jonction que nous proposons est la suivante :

- Nous considérons un micropont supraconducteur dont les caractéristiques sont décrites par la théorie BCS, le terme de couplage  $\lambda$  y est constant et la dépendance en température du gap est donnée par l'équation self-consistante.
- L'effet de l'irradiation se traduit de deux façons dans l'équation. Il introduit tout d'abord une distribution spatiale gaussienne dans le coefficient de diffusion  $D(x) = \frac{v_F l(x)}{3}$  qui est relié à la distribution de  $\rho(x)$  que nous connaissons via le libre parcours moyen par une loi de Drude<sup>11</sup> ( $l(x) \sim \frac{1}{\rho(x)}$ ). Deuxièmement, un terme de dépairage  $\Gamma(x)$  est ajouté à l'équation, il est issu de l'ajustement de  $T_c(dose)$  par une loi d'Abrikosov-Gorkov.

Une autre possibilité aurait consisté à introduire une distribution spatiale dans le terme de couplage  $\lambda$  pour traduire l'effet de l'irradiation. Cependant, la description en terme de dépairage semble beaucoup plus physique puisque ce mécanisme a été identifié comme étant le responsable de la diminution de  $T_c$ .

L'équation d'Usadel sera donc écrite sous la forme[65, 86]

$$\frac{\hbar D}{2} \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} - \omega_n \sin \theta_n + \Delta \cos \theta - \Gamma(x) \sin \theta \cos \theta = 0 \quad (3.11)$$

L'équation self-consistante du potentiel de paire est donnée par

$$\Delta(x) = \lambda 2\pi k_B T \sum_{\omega_n} \sin \theta \quad (3.12)$$

où  $\lambda$  est supposé constant.

Puisque la distribution de défauts est continue dans la jonction et qu'il n'y a pas d'interfaces réelles, toutes les grandeurs physiques sont continues et les seules conditions aux limites nécessaires sont celles du supraconducteur loin de la zone irradiée. Nous utiliserons donc la condition (2.109)  $\tan \theta = \frac{\Delta}{\omega_n}$  où  $\Delta(T)$  est calculé à partir de l'équation self-consistante BCS.

A priori, on pourrait penser que l'équation d'Usadel qui nécessite une approximation isotrope n'est pas adaptée à la description d'un supraconducteur *d-wave*. Néanmoins, d'après les résultats expérimentaux, la seule conséquence de la symétrie *d* que nous ayons mise en évidence concerne le mécanisme de dépairage, ce que nous traduisons dans l'équation d'Usadel. Cette description permet donc de tenir compte à la fois de la symétrie *d* et du potentiel d'appariement sous-jacent dans la jonction. En fait l'équation que nous avons utilisée est en tout point similaire à celle que nous pourrions écrire pour décrire un système supraconducteur conventionnel dans lequel on aurait introduit une distribution spatiale d'impuretés magnétiques.

<sup>11</sup>La dépendance en température est celle de  $\rho(x)$ .

La difficulté principale dans la résolution de l'équation (3.11) vient de la self-consistance associée au potentiel de paires qui est non-nul ( $\lambda \neq 0$ ) ; il n'existe pas à priori de solution analytique simple. Nous avons développé un code numérique basé sur une méthode de relaxation pour résoudre les deux équations (3.11) et (3.12) de façon self-consistante et obtenir pour chaque dose, la distribution de  $\Delta(x)$  le long de la jonction en fonction de la température. Dans nos équations, seule la dose d'irradiation varie, nous utilisons le même jeu de paramètres pour décrire l'ensemble des résultats. La figure 3.37 montre les résultats simulés pour les différentes doses.

Cette approche permet une description très physique du comportement des jonctions. Pour les faibles doses d'irradiation, la dépendance en température du gap est forte et le système évolue très rapidement. Ceci explique la raison pour laquelle le régime Josephson est peu étendu en température, comme nous l'avons observé sur les caractéristiques  $I(V)$ . En revanche, à plus forte dose, les températures mises en jeu ( $T_c$  et  $T_j$ ) correspondent à un régime où la dépendance de  $\Delta$  est plus faible, ce qui se traduit par une évolution plus lente de  $\Delta$ .

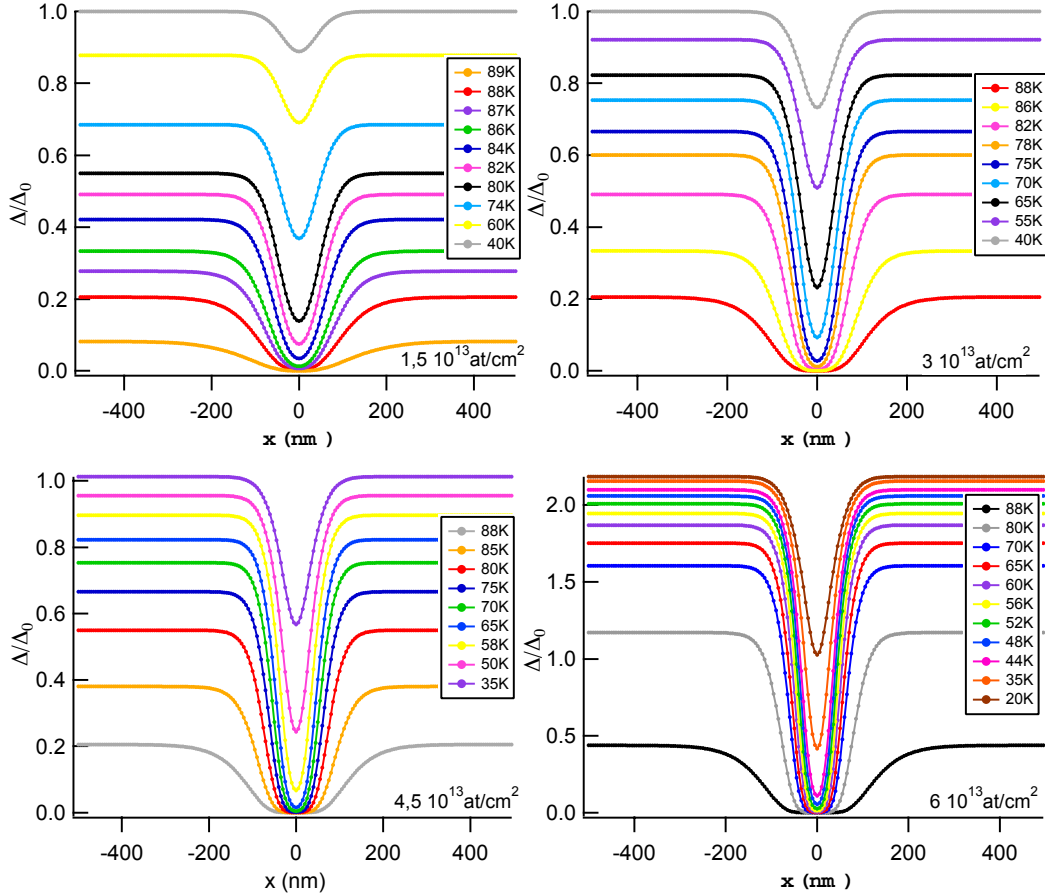


FIG. 3.37 – Evolution du potentiel de paires le long de la jonction, calculé à différentes températures pour les quatre doses différentes. Le terme de dépairage est tiré de l'ajustement de la courbe  $T_c(dose)$ [94, 93]. Le coefficient de diffusion  $D$  utilisé dans les simulations vaut  $8,4 \cdot 10^{-3} m^2/s$  à 80K, ce qui correspond à des valeurs standards  $v_F \approx 5 \cdot 10^5 m/s$  et  $l \approx 150 \text{Å}$ .

Les températures de couplage Josephson peuvent être déterminées en calculant le courant critique Josephson dans la jonction. Nous utiliserons le critère donné par Clarke,  $\frac{I}{T} \approx 2 \cdot 10^{-7} A/K$  qui permet de déterminer le minimum de courant critique  $I$  observable à une température  $T$



donnée compte tenu de la décohérence induite par l'agitation thermique [131]. Lorsque le courant est faible, le dernier terme de l'équation d'Usadel  $\frac{\hbar D}{2} \left( \frac{\partial \chi}{\partial x} \right)^2 \sin \theta \cos \theta$  peut être négligé, ce qui permet de découpler l'équation sur la phase de l'équation principale. On peut alors calculer le courant critique à chaque température en utilisant la relation (2.106)

$$j(x) = -\pi e N_0 D T \sum_{\omega} \frac{\partial \chi}{\partial x} \sin^2 \theta$$

où  $N_0 = 1,5 \cdot 10^{21} \text{ etats}/(\text{cm}^3 \text{eV})$  est la densité d'états de quasiparticules dans YBCO

La température en dessous de laquelle le critère est vérifié correspond à la température de couplage Josephson. Nous pouvons alors tracer un diagramme de phase en déterminant la température de couplage en fonction de la dose et y faire apparaître les résultats expérimentaux obtenus avec les quatre doses d'irradiation différentes (fig 3.38). Les températures de couplage mesurées sont en bon accord avec le résultat des simulations. Lorsque la dose d'irradiation devient trop importante ( $> 6 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ ), elle induit une transition vers l'état isolant et la résistivité du matériau n'est plus linéaire avec la température. La description que nous utilisons n'est alors plus valable.

Pour l'instant nous ne pouvons pas calculer l'évolution du courant critique en fonction de la température car lorsque le courant devient important, il n'est plus possible de le négliger dans l'équation principale, ce qui complique la résolution numérique.

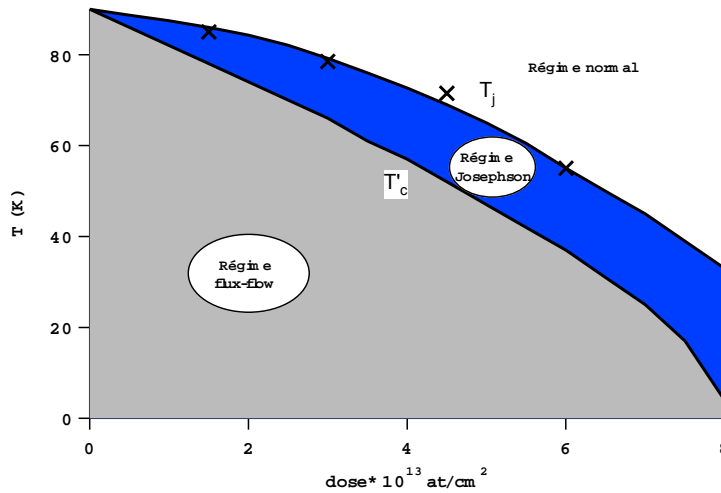


FIG. 3.38 – Diagramme de phase des jonctions fabriquées par irradiation ionique. La courbe  $T_J(dose)$  a été déterminée à partir des équations d'Usadel et la courbe  $T'_c(dose)$  à partir de la loi d'Abrikosov-Gorkov. Les deux courbes définissent le régime Josephson. Les quatre croix correspondent aux  $T_J$  déterminées expérimentalement pour les doses  $1,5 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ ,  $3,1 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ ,  $4,5 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$  et  $6 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ . Pour des doses importantes ( $> 6 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ ), la résistivité n'est plus linéaire avec la température et notre modèle n'est plus valable. On devrait s'attendre à ce que la courbe  $T_J(dose)$  chute plus rapidement.

Lorsque la dose d'irradiation devient trop importante ( $> 6 \cdot 10^{13} \text{ at}/\text{cm}^2$ ), elle induit une transition vers l'état isolant et la résistivité du matériau n'est plus linéaire avec la température. La description que nous utilisons n'est alors plus valable.



### 3.8.5 Perspectives sur les jonctions par irradiation

D'un point de vue fondamental, nous avons vu que les jonctions par irradiation sont un système intéressant pour étudier l'effet de proximité dans les structures à base de supraconducteurs à haute température critique. Expérimentalement des échantillons irradiés avec de nouvelles doses devraient permettre de compléter le diagramme de phase  $T_j(dose)$ . Le travail sur l'approche quasiclassique devrait se poursuivre avec pour objectif de calculer la dépendance du supercourant en fonction de la température à partir des équations d'Usadel. La prochaine étape consisterait à utiliser les équations d'Eilenberger pour tenir compte pleinement de la symétrie du paramètre d'ordre. Cependant, il s'agit là d'un problème complexe qui n'est pas à notre portée pour l'instant.

A plus long terme, deux expériences nous semblent particulièrement intéressantes. En utilisant un STM fonctionnant à basse température il devrait être possible d'étudier l'effet de proximité dans ces structures en mesurant la densité d'états le long de la jonction. L'extension des corrélations supraconductrices pourrait être mesurée directement et comparée aux mesures de transport ainsi qu'aux simulations basées sur l'équation d'Usadel.

Il serait également intéressant d'étudier des jonctions fortement irradiées, lorsque le matériau amorce une transition vers l'état isolant. Par le hasard d'une irradiation mal dosée, nous avons effectué quelques mesures sur un échantillon assez fortement irradié ( $T_j \sim 5K$ ), les résultats sont surprenants. En outre si on parvenait à réduire le stragging latéral sous la fente, en utilisant des ions plus légers, on peut envisager d'atteindre le régime SIS. La possibilité de se déplacer du régime SNS au régime SIS pourrait révéler une physique extrêmement riche, concernant à la fois l'effet Josephson et la transition supraconducteur-isolant.

En ce qui concerne le développement d'applications sur la base de ces jonctions, il reste un travail important à réaliser pour optimiser la fabrication (largeur de la fente, dose, énergie, épaisseur des films...). Une perspective de développement envisagée consisterait à mettre au point une technique d'irradiation utilisant uniquement des masques de résine, ce qui permettrait d'éliminer l'étape de gravure du masque d'or qui introduit le plus de dispersion dans les jonctions. Signalons également que ce type de technologie peut être adapté aux autres oxydes supraconducteurs (composés au bismuth, thallium, mercure....). Plusieurs projets devraient voir le jour en partenariat avec d'autres laboratoires, concernant l'électronique RSFQ, les jonctions pour la détection de photons, l'imagerie ou la métrologie du volt.

# Chapitre 4

## Fluctuations dans les supraconducteurs

L'objectif de ce chapitre est d'introduire quelques notions essentielles sur les fluctuations supraconductrices qui seront nécessaires à la compréhension des expériences du chapitre 5. Nous utiliserons une approche simple, basée sur la théorie de Ginzburg et Landau qui sera présentée brièvement dans la première partie. Nous aborderons ensuite la partie consacrée aux fluctuations du paramètre d'ordre supraconducteur au-dessus de  $T_c$ , nous introduirons les échelles de temps et de longueurs caractéristiques de ces phénomènes. Enfin, nous terminerons ce chapitre par la description d'une expérience d'effet Josephson qui permet de mesurer le spectre des fluctuations d'un supraconducteur au dessus de  $T_c$ .

### 4.1 Théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau

A partir de considérations intuitives, Ginzburg et Landau ont développé en 1950 [56], une théorie phénoménologique de la supraconductivité qui consiste à introduire un paramètre d'ordre complexe pour décrire le système dans l'état supraconducteur. Leur approche s'inscrit dans le cadre plus général de la théorie de Landau des transitions de phase du second ordre. Le paramètre d'ordre introduit pour décrire la transition métal-supraconducteur est une fonction d'onde  $\psi(r)$  dont le module au carré représente la densité d'électrons supraconducteurs  $n_s(r)$ . L'intérêt principal de cette théorie réside dans sa capacité à traiter l'aspect macroscopique de la supraconductivité à grande échelle, plutôt que les détails microscopiques. La recherche du paramètre d'ordre qui rend l'énergie libre minimale, aboutit aux équations de Ginzburg-Landau qui permettent de rendre compte de nombreuses propriétés des supraconducteurs. La longueur de pénétration de London  $\lambda$  (longueur de pénétration du champ magnétique dans un supraconducteur) et la longueur de cohérence  $\xi$  apparaissent naturellement dans ces équations. Cette théorie permet également de prédire les valeurs des champs magnétiques critiques et permet d'aborder concrètement des situations où la supraconductivité est inhomogène, ce qui est difficile dans le cadre de la théorie microscopique BCS. En revanche, la théorie de Ginzburg-Landau ne traite pas les grandeurs spectrales, elle ne sera donc pas adaptée pour décrire les expériences de spectroscopie (spectroscopie tunnel, ARPES..).

En 1959, Gorkov[60, 61] a montré qu'il était possible de dériver la théorie de Ginzburg-Landau à partir de la théorie microscopique reformulée en termes de fonction de Green, dans le cas où la température est proche de  $T_c$  et où les variations spatiales de  $\psi$  et du potentiel vecteur  $A$  ne sont pas trop rapides. Le paramètre d'ordre  $\psi(r)$  est alors proportionnel au gap  $\Delta(r)$  obtenu par la théorie BCS.

#### 4.1.1 Energie libre de Ginzburg-Landau

La dérivation de l'énergie libre du système suit le cadre général de la théorie de Landau des transitions de phase du second ordre. On suppose que le paramètre d'ordre est petit au voisinage de la transition et ses variations spatiales suffisamment lentes pour pouvoir développer, au voisinage de  $T_c$ , la densité d'énergie libre  $f$  en série du paramètre d'ordre

$$f = f_n + \alpha |\psi(r)|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi(r)|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| (-i\hbar\nabla - e^*A)\psi(r) \right|^2 + \frac{\mu_0}{2} h^2(r) \quad (4.1)$$

où  $f_n$  est la densité d'énergie libre dans l'état normal sous champ nul,  $A$  est le potentiel-vecteur et  $h$  est le champ magnétique local.  $m^*$  et  $e^*$  sont respectivement la masse et la charge des « porteurs de charge supraconducteurs », introduites initialement comme des quantités inconnues et qui se sont révélées par la suite être la masse ( $2m$ ) et la charge ( $2e$ ) d'une paire de Cooper.

Comme dans le cas général des transitions de phases du second ordre,  $\alpha = \alpha_0 \epsilon$  ( $\epsilon = \frac{T-T_c}{T_c}$ ) doit changer de signe à  $T_c$  et  $\beta$  doit être positif (dans le cas contraire, il n'y aurait pas de minimum pour l'énergie libre, et donc pas d'état d'équilibre). Les deuxième et troisième termes correspondent au développement au second ordre en  $\psi$ , le quatrième peut être vu comme l'expression invariante de jauge de l'énergie cinétique associée aux paires de Cooper, tandis que le cinquième est simplement la densité d'énergie magnétique.

Dans un supraconducteur homogène, en l'absence de champ magnétique et de gradients, l'équation précédente se réduit à

$$f = f_n + \alpha |\psi(r)|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi(r)|^4 \quad (4.2)$$

On distingue alors deux cas (figure 4.1)

**Si  $T > T_c$  ( $\alpha > 0$ )**, le minimum de  $f$  est obtenu pour  $\psi = 0$  et vaut  $f_n$ , cette situation correspond à l'état normal du système.

**Si  $T < T_c$  ( $\alpha < 0$ )**, le minimum de  $f$  est obtenu pour  $|\psi|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$  et vaut  $f_n + \frac{-\alpha^2}{2\beta}$ . Le paramètre d'ordre étant non nul, cette situation correspond à l'état supraconducteur.

La différence d'énergie libre entre l'état normal et l'état supraconducteur est appelée énergie de condensation. Il s'agit de l'énergie gagnée par le système lorsqu'il se condense dans l'état supraconducteur. On peut la relier naturellement à l'énergie magnétique nécessaire pour détruire complètement la supraconductivité

$$f - f_n = \frac{\mu_0 H_c^2}{2} \quad (4.3)$$

où  $H_c$  est le champ critique thermodynamique.

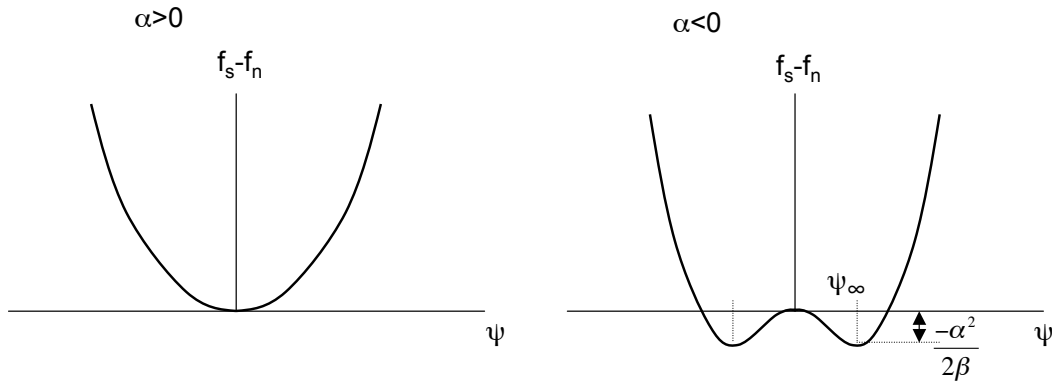


FIG. 4.1 – Energie libre de Ginzburg pour  $T > T_c$  ( $\alpha > 0$ ) et  $T < T_c$  ( $\alpha < 0$ ).

#### 4.1.2 Equations différentielles de Ginzburg-Landau

En l'absence de contraintes qui imposent des champs, des courants ou des gradients, le minimum de l'énergie libre est obtenu pour un paramètre d'ordre constant  $\psi(r) = \psi$ . En revanche, dans le cas d'un système inhomogène  $\psi(r) = |\psi(r)|e^{i\phi(r)}$  s'ajuste de façon à minimiser l'énergie libre donnée par

l'intégration de (4.1) sur le volume total du système. Ce problème variationnel revient à résoudre les équations différentielles de Ginzburg-Landau[28]

$$\alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi + \frac{1}{2m^*}(-i\hbar\nabla - e^*A)^2\psi = 0 \quad (4.4)$$

$$\mu_0 J = \nabla \times (\nabla \times A) = -i\frac{e^*\hbar}{2m^*}(\psi^*\nabla\psi - \psi\nabla\psi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*}|\psi|^2 A \quad (4.5)$$

En notant  $\psi = |\psi|e^{i\phi}$ , l'équation précédente peut également s'écrire

$$\mu_0 J = \frac{e^*\hbar}{m^*}(\hbar\nabla\phi - e^*A) \quad (4.6)$$

Il faut ajouter aux deux équations (4.4) et (4.5) des conditions aux limites que doit satisfaire le paramètre d'ordre. Dans le cas où le courant ne peut pas passer à travers les surfaces de l'échantillon (réflexion spéculaire des paires de Cooper à l'interface avec un isolant), on peut prendre comme condition

$$(-i\hbar\nabla - e^*\vec{A})\psi(r)|_{\vec{n}} = 0 \quad (4.7)$$

Si le supraconducteur est en contact avec un métal normal, le paramètre d'ordre n'est que partiellement réfléchi et cette condition n'est plus valable. En utilisant les équations de Gorkov, De Gennes a montré que la condition à l'interface entre le supraconducteur et le métal normal s'écrivait alors (*cf* chapitre (2))

$$(-i\hbar\nabla - e^*\vec{A})\psi(r)|_{\vec{n}} = \frac{i\hbar}{b}\psi \quad (4.8)$$

où  $b$  est la longueur d'extrapolation à laquelle le paramètre d'ordre s'annulerait dans le métal normal s'il conservait sa pente à l'interface<sup>1</sup>.

L'équation (4.4) permet de calculer le paramètre d'ordre  $\psi(r)$  pour une distribution de potentiel vecteur  $\vec{A}(r)$  donnée. L'équation (4.5) donne accès à la réponse diamagnétique du supraconducteur. En outre, elle rend compte de l'effet Meissner et de la quantification du flux.

#### 4.1.2.1 Longueur de cohérence

Considérons le cas unidimensionnel sous champ nul ( $A = 0$ ). L'équation (4.5) devient

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{d^2\psi}{dx^2} + \alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi = 0 \quad (4.9)$$

On peut supposer  $\psi$  réelle<sup>2</sup> et introduire le paramètre d'ordre sans dimension  $f = \frac{\psi(x)}{\psi_\infty}$  où  $\psi_\infty = \left(\frac{|\alpha|}{\beta}\right)^{1/2}$  est l'amplitude du paramètre d'ordre dans la profondeur de l'échantillon.  $f(x)$  est alors solution de

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*|\alpha|}\frac{d^2f}{dx^2} - f + f^3 = 0 \quad (4.10)$$

Cette équation définit une échelle naturelle de longueur pour les variations spatiales du paramètre d'ordre

$$\xi(T) = \frac{\hbar}{\sqrt{2m^*\alpha_0|T - T_c|}} \quad (4.11)$$

qui est appelée longueur de cohérence de Ginzburg-Landau.

La signification de  $\xi$  apparaît encore plus clairement en posant  $f(x) = 1 + g(x)$  dans l'équation (4.10) et en effectuant un développement au premier en  $g$ [131]

$$\xi^2\frac{d^2g}{dx^2} - 2g = 0 \quad (4.12)$$

La solution de cette équation est une exponentielle décroissante de longueur caractéristique  $\xi$ .

L'expression de  $\xi(T)$  (4.11) a été obtenue à partir du développement de l'énergie libre en puissance du paramètre d'ordre, elle est donc valable seulement dans un régime de température proche de  $T_c$ .

<sup>1</sup>La largeur d'extrapolation a été décrite dans le chapitre précédent.

<sup>2</sup>Les coefficients de l'équation différentielle 4.4 sont réels en l'absence de champ.

### 4.1.2.2 Longueur de pénétration

Nous considérons maintenant le cas d'un supraconducteur placé dans un champ magnétique ( $A \neq 0$ ). En utilisant l'équation de Maxwell-Ampère  $\mu_0 J = \nabla \times \nabla A$  et la relation (4.5) qui donne le supercourant, on obtient la relation

$$\nabla \times \nabla \times A = -i \frac{e^* \hbar}{2m^*} (\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*) - \frac{1}{\lambda^2} A \quad (4.13)$$

Lorsqu'on néglige les variations spatiales de  $\psi$  dans l'équation précédente on retrouve l'équation de London introduite en 1935[96]

$$\nabla(\nabla A) - \nabla^2 A = -\frac{1}{\lambda^2} A \quad (4.14)$$

où on a introduit la longueur de pénétration du champ magnétique (appelée aussi longueur de London).

$$\lambda = \sqrt{\frac{m^*}{n_s e^{*2}}} \quad (4.15)$$

Dans la jauge de London  $\nabla A = 0$ , les solutions de cette équation sont des exponentielles s'atténuant sur une distance  $\lambda$ .

Cette longueur diverge à  $T_c$  (comme  $\frac{1}{(T-T_c)^{1/2}}$ ) mais le rapport de Ginzburg-Landau  $\kappa = \frac{\lambda(T)}{\xi(T)}$  est constant près de  $T_c$

$$\kappa = \frac{m^*}{\hbar e^*} \sqrt{2\beta} \quad (4.16)$$

### 4.1.2.3 Quantification du flux

Dans un supraconducteur, toutes les paires de Cooper sont dans le même état quantique et sont décrites par une fonction d'onde unique  $\psi = |\psi|e^{i\phi}$  dont la phase reste cohérente sur de grandes distances. Pour avoir un sens physique, la fonction d'onde évaluée en un point ne doit prendre qu'une seule valeur. Ceci implique que le long d'une boucle fermée, la phase du supraconducteur ne peut varier que d'un multiple de  $2\pi$ .

$$\int \nabla \phi dl = 2\pi n \quad (4.17)$$

où  $n$  est un entier

En utilisant l'équation (4.6)[131], il est possible d'exprimer la variation de la phase

$$\nabla \phi = \frac{\mu_0 m^*}{e^* \hbar |\psi|^2} J + \frac{e^*}{\hbar} A \quad (4.18)$$

La relation (4.17) s'écrit alors

$$\int \left[ \frac{\mu_0 m^*}{e^* \hbar |\psi|^2} J + \frac{e^*}{\hbar} A \right] dl = 2\pi n \quad (4.19)$$

Cette expression se simplifie en utilisant le théorème de Green

$$\iint_S B ds + \int e^* \hbar |\psi|^2 J dl = n \Phi_0 \quad (4.20)$$

où  $S$  est la surface s'appuyant sur le contour fermé et  $\Phi_0 = \frac{\hbar}{2e}$  est le quantum de flux magnétique.

Comme les courants ne circulent que dans une couche d'épaisseur  $\lambda$ , il est toujours possible de trouver un contour où ils sont négligeables. L'équation précédente se résume alors à

$$\iint B ds = n \Phi_0 \quad (4.21)$$

Le flux à travers un supraconducteur est donc quantifié, sa valeur est un multiple du quantum de flux  $\Phi_0$ .

### 4.1.3 Supraconducteurs de types 1 et 2

Lorsqu'un supraconducteur est placé dans un champ magnétique, deux types de comportement bien différents peuvent être observés.

Dans les supraconducteurs de **type 1**, l'effet Meissner est total jusqu'à ce qu'un champ critique  $H_c$  soit atteint. Au-delà de cette valeur, la supraconductivité disparaît totalement. Ce type de comportement est généralement observé dans les métaux purs comme l'aluminium ou le plomb. Dans les supraconducteurs de **type 2**, l'effet Meissner est total jusqu'à un champ  $H_{c1}$  faible, puis on observe une phase mixte où des zones normales sont incluses dans le supraconducteur, jusqu'à un champ  $H_{c2}$  où la totalité du matériau devient normal.

Il n'y a pas de différence dans le mécanisme de la supraconductivité entre les supraconducteurs de **types 1 et 2**. Dans les deux cas, la supraconductivité résulte du même mécanisme de condensation des électrons en paires de Cooper et les propriétés de la transition sont les mêmes sous champ nul. La différence entre les deux types est reliée au rapport  $\kappa$  des deux grandeurs caractéristiques introduites précédemment, la longueur de cohérence et la longueur de pénétration.

#### 4.1.3.1 Type 1 ( $\xi > \sqrt{2}\lambda$ )

Lorsque  $\xi > \sqrt{2}\lambda$ , le paramètre d'ordre ne peut pas s'annuler sur la longueur de pénétration  $\lambda$  et le champ ne pourra donc pas pénétrer dans le volume du supraconducteur (fig 4.2 a). Le paramètre d'ordre sera donc constant dans le volume du supraconducteur et donné par  $\psi = 0$  lorsque  $T > T_c$  et  $|\psi|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$  lorsque  $T < T_c$  pour des valeurs de champ inférieures à  $H_c$ .

#### 4.1.3.2 Type 2 ( $\xi < \sqrt{2}\lambda$ )

Lorsque  $\xi < \sqrt{2}\lambda$ , le paramètre d'ordre peut s'annuler sur une longueur de pénétration du champ et il est donc possible que des volumes de phases normales soient inclus dans la phase supraconductrice (fig 4.2 b).

Supposons qu'il existe près du champ critique  $H_c$  une seule inclusion cylindrique de phase normale dans le volume du supraconducteur. Cette inclusion fait intervenir deux contributions énergétiques :

1. L'énergie de formation d'un cylindre normal de taille  $\xi$  dans la phase supraconductrice.

$$\Delta E_1 \approx \frac{\mu_0 H_c^2 \pi \xi^2}{2}$$

Cette contribution représente le coût en énergie de formation d'une zone de phase normale ( $\psi = 0$ ) dans le volume supraconducteur.

2. L'énergie de pénétration du champ magnétique dans le supraconducteur.

$$\Delta E_2 \approx -\frac{\mu_0 H_a^2 \pi \lambda^2}{2}$$

Cette contribution représente le gain en énergie du système en permettant au champ magnétique appliqué de pénétrer dans la phase supraconductrice sur une distance de l'ordre de  $\lambda$ . Cette énergie correspond à l'inverse de l'énergie diamagnétique nécessaire pour expulser le champ magnétique sur le même volume.

Le champ  $H_{c1}$  qui commence à stabiliser la phase mixte est atteint lorsque la formation du cylindre normal devient énergétiquement favorable

$$H_{c1} = \frac{\xi}{\lambda} H_c = \frac{1}{\kappa} H_c$$

La phase mixte ne pourra donc exister que dans le cas d'un supraconducteur de **type 2** où  $H_{c1}$  est inférieur à  $H_c$ . On peut également montrer que dans la phase mixte, il est plus favorable pour le système de créer un maximum d'interfaces supraconducteur-normal. Les zones normales vont donc se subdiviser jusqu'à atteindre la taille minimale correspondant à un quantum de flux. Ces tubes de flux magnétiques, appelés vortex, ont été prédits par Abrikosov en 1957 [1, 2]. Lorsque le champ magnétique dépasse  $H_{c1}$

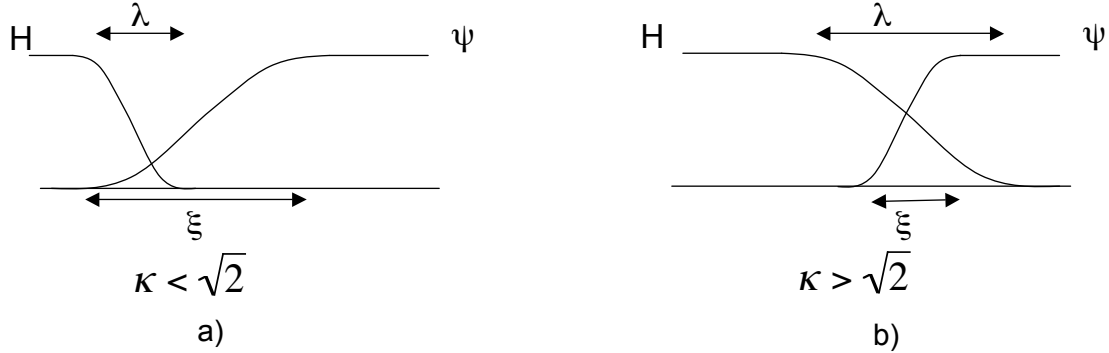


FIG. 4.2 – Variations spatiales du champ magnétique et du paramètre d'ordre dans le cas d'un supraconducteur de type 1 a) et de type 2 b).

le diamagnétisme n'est plus parfait et une partie du champ magnétique pénètre sous la forme de vortex. Lorsque le champ augmente, les vortex forment un réseau compact de symétrie triangulaire qui peut être observé par diffraction de neutrons ou par des techniques d'imagerie magnétique directe (Décoration de Bitter, Microscopie à Force Magnétique). Lorsque le champ atteint  $H_{c2}$  le matériau redevient normal.

## 4.2 Fluctuations dans les supraconducteurs

### 4.2.1 Supraconductivité au-dessus de $T_c$ dans un système de dimension nulle

Dans la théorie de Ginzburg-Landau, la température de transition  $T_c$  est définie comme la température à laquelle le coefficient  $\alpha(T)$  du terme de second ordre dans le développement de l'énergie libre  $F$ , change de signe. Au-dessus de  $T_c$ ,  $F$  est minimum lorsque  $|\psi| = 0$ . Cependant, les fluctuations thermiques induisent des variations de  $F$  d'une quantité  $\sim k_B T$  et  $\psi$  peut alors prendre des valeurs instantanées non nulles. Bien que le supraconducteur soit dans l'état normal, des effets de fluctuations de supraconductivité sont induits au-dessus de  $T_c$ .

Supposons que le paramètre d'ordre  $\psi$  soit uniforme sur le volume  $V$  d'un supraconducteur de dimensions très inférieures à  $\xi$  (limite de dimension nulle). En l'absence de champ magnétique extérieur, l'énergie libre s'écrit (4.1)<sup>3</sup>

$$F = V \left( \alpha(T) |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 \right) \quad (4.22)$$

où  $\alpha(T) = \alpha_0 \epsilon$  et  $\epsilon = \frac{T - T_c}{T_c}$ .

Nous avons vu que le minimum de  $F - F_n$  est obtenu pour

$$|\psi_0|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}; \quad F_0 = -\frac{\alpha^2}{2\beta} \quad T < T_c \quad (4.23)$$

$$|\psi_0|^2 = 0; \quad F_0 = 0 \quad T > T_c \quad (4.24)$$

Les fluctuations de  $|\psi_0|$  peuvent être évaluées en écrivant que la variation moyenne de  $F$  due à la température est de l'ordre de  $k_B T$  [122]

$$\langle F - F_0 \rangle = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 F}{\partial \psi^2} \Big|_{\psi_0} (\delta \psi)^2 \approx k_B T$$

où  $\langle \ \rangle$  représente la moyenne thermodynamique.

<sup>3</sup>Nous avons pris comme référence d'énergie  $F_n = 0$ .

On obtient alors

$$(\delta\psi)^2 = \frac{k_B T}{2\alpha_0 V} \epsilon^{-1} \quad T < T_c \quad (4.25)$$

$$(\delta\psi)^2 = \frac{k_B T}{\alpha_0 V} \epsilon^{-1} \quad T > T_c \quad (4.26)$$

Les fluctuations de  $\psi_0$  sont d'autant plus importantes que la température est proche de  $T_c$ . La divergence apparente à  $T_c$  peut être coupée en tenant compte du terme d'ordre quatre dans l'expression de  $\langle F - F_0 \rangle$ . On remarquera qu'il n'y a qu'un facteur deux de différence entre les expressions (4.25) et (4.26), les fluctuations sont donc du même ordre de grandeurs de part et d'autre de la transition. En revanche, au-dessus de  $T_c$ ,  $\psi_0$  est nul et tous les effets de "supraconductivité" sont dus aux fluctuations.

En remplaçant  $\psi$  par  $\delta\psi$  dans (4.22) et en égalant à  $k_B T$ , on obtient [122]

$$(\delta\psi)^2 = \frac{\alpha}{\beta} \left[ \left( 1 + \frac{2\beta k_B T}{\alpha^2 V} \right)^{1/2} - 1 \right] \quad T > T_c \quad (4.27)$$

Cette expression se réduit en (4.26) lorsque  $T$  n'est pas trop proche de  $T_c$ .

Les fluctuations sont précurseurs de l'état supraconducteur, elles ont un poids maximum à  $T_c$  ( $(\delta\psi)_{T_c}^2 = \left( \frac{2k_B T_c}{\beta V} \right)^{1/2}$ ). Lorsque la température sera proche de  $T_c$ , elles vont influencer toutes les propriétés thermodynamiques et les propriétés de transport de l'état normal. Cela se traduira notamment par l'apparition d'un effet diamagnétique où par une augmentation de conductance au-dessus de  $T_c$ .

## 4.2.2 Variations spatiales du paramètre d'ordre au-dessus de $T_c$

Nous nous sommes pour l'instant limités aux fluctuations d'un supraconducteur dont le volume  $V$  est petit devant la longueur caractéristique de variation du paramètre d'ordre. Pour décrire les variations spatiales de  $\psi$ , il est nécessaire d'introduire le terme de gradient dans l'expression de la densité d'énergie libre (4.1)

$$f = f_n + \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left( -i\hbar \nabla - e^* A \right) \psi \right|^2 + \frac{\hbar^2(r)}{2\mu_0} \quad (4.28)$$

où  $h(r)$  est le champ magnétique local qui peut varier à l'échelle de la longueur de pénétration  $\lambda$  et  $f_n$  est la densité d'énergie libre de l'état normal sous champ nul.

Si nous nous intéressons aux fluctuations au-dessus de  $T_c$ ,  $\psi$  est petit et il est possible de négliger le terme d'ordre quatre dans l'expression précédente. Dans le cas d'un champ nul ( $A=0$ ), il est judicieux de développer le paramètre d'ordre  $\psi(r)$  en série de Fourier

$$\psi(r) = \sum_k \psi_k e^{ik \cdot r} \quad (4.29)$$

En introduisant (4.29) dans (4.28), la densité d'énergie libre s'écrit

$$f = \sum_k \left( \alpha + \frac{\hbar k^2}{2m^*} \right) |\psi_k|^2 \quad (4.30)$$

La valeur de  $|\psi_k|^2$  peut être obtenue par le théorème d'équipartition de l'énergie [131] en attribuant une énergie  $k_B T$  à chacun des modes orthogonaux correspondant à une valeur de  $k$

$$|\psi_k|^2 = \frac{k_B T}{\alpha + \frac{\hbar k^2}{2m^*}} = \frac{k_B T}{\alpha(1 + k^2 \xi(T)^2)} \quad (4.31)$$

Nous avons introduit la longueur de cohérence de Ginzburg-Landau

$$\xi(T) = \xi_0 \epsilon^{-1/2} \quad (4.32)$$

où  $\xi_0 = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m^* \alpha_0}}$  est la longueur de cohérence à température nulle.



Le fait que  $|\psi|^2$  puisse prendre une valeur non nulle au-dessus de  $T_c$  n'implique pas que le matériau soit supraconducteur car l'extension spatiale de la cohérence de phase reste limitée. Cela apparaît clairement si on calcule la fonction de corrélation du paramètre d'ordre.

$$g(\vec{r}, \vec{r}') = \langle \psi^*(\vec{r}) \psi(\vec{r}') \rangle \quad (4.33)$$

Dans un milieu homogène, cette fonction ne dépend que de la coordonnée relative  $\vec{R} = \vec{r} - \vec{r}'$

$$g(R) = \sum_k |\psi_k|^2 e^{-ik \cdot R}$$

En transformant la somme discrète sur les vecteurs  $k$  en une intégrale continue  $\int d^3k/(2\pi)^3$ , on obtient

$$g(R) = \frac{m^* k_B T}{e\pi\hbar} \frac{e^{-\frac{R}{\xi(T)}}}{R} \quad (4.34)$$

Dans le régime de fluctuations au-dessus de  $T_c$ , la forme Lorentzienne de  $|\psi_k|^2$  dans l'espace des vecteurs  $k$  correspond à une décroissance exponentielle de la fonction de corrélation dans l'espace réel, sur une distance caractéristique  $\xi(T)$ . Cela suggère une image simple où les fluctuations au-dessus de  $T_c$  seraient des « gouttes » de supraconductivité de rayon  $\sim \xi(T)$ .

### 4.2.3 Temps de vie des fluctuations

Dans les paragraphes précédents, nous sommes parvenus à une description spatiale des fluctuations qui permet de traiter les phénomènes à l'équilibre thermodynamique. Nous allons maintenant tenir compte du temps de vie des fluctuations, qui va jouer un rôle important pour les phénomènes hors-équilibre. Par exemple, l'excès de conductance au-dessus de  $T_c$  est fonction du courant transporté par les fluctuations qui est directement proportionnel à leur temps de vie.

La discussion précédente était basée sur la densité d'énergie libre de Ginzburg-Landau. Lorsque des gradients, des courants ou des champs sont imposés au système,  $\psi(r) = |\psi(r)|e^{i\phi(r)}$  s'ajuste de façon à minimiser l'énergie libre totale intégrée sur le volume  $V$  du supraconducteur. Comme nous l'avons vu dans la section 4.1.2, ce problème variationnel revient à résoudre les équations différentielles de Ginzburg-Landau.

$$\alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi + \frac{1}{2m^*}(-i\hbar\nabla - e^*A)^2\psi = 0 \quad (4.35)$$

$$\vec{J} = -i\frac{e^*\hbar}{2m^*}(\psi^*\nabla\psi - \psi\nabla\psi^2) - \frac{e^{*2}}{m^*}|\psi|^2A \quad (4.36)$$

La dépendance en temps est introduite dans les équations en considérant que la déviation de  $\psi$  par rapport à l'équilibre thermodynamique, relaxe exponentiellement avec le temps [122]. (4.35) s'écrit alors

$$\alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi + \frac{1}{2m^*}(-i\hbar\nabla - e^*A)^2\psi = -\gamma\hbar\frac{\partial\psi}{\partial t} \quad (4.37)$$

où la constante  $\gamma$  a été déterminée à partir de la théorie microscopique de Gorkov et vaut  $\frac{\pi\alpha_0}{8k_B T_c}$ .

Au-dessus de  $T_c$ ,  $|\psi|$  est petit et l'équation (4.37) peut être linéarisée. On obtient alors pour un champ nul ( $A = 0$ )

$$(1 - \xi^2\nabla^2)\psi = -\tau\frac{\partial\psi}{\partial t} \quad (4.38)$$

où  $\tau = \frac{\gamma\hbar}{\alpha} = \frac{\pi\hbar}{8k_B T_c \epsilon}$  est le temps de relaxation du mode uniforme  $k = 0$ .

Les temps de relaxation des autres modes  $k$  s'obtiennent en injectant  $\psi(r) = \sum_k \psi_k e^{ik \cdot r}$  dans l'équation linéarisée (4.38)

$$\tau_k = \frac{\tau}{1 + k^2\xi^2} \quad (4.39)$$

La fonction de corrélation temporelle de chaque mode décroît alors exponentiellement dans le temps

$$\langle \psi_k^*(0) \psi_k(t) \rangle = \langle |\psi_k|^2 \rangle e^{-\frac{t}{\tau_k}} \quad (4.40)$$

La densité spectrale de  $\psi_k$  est donnée par

$$\langle |\psi_{k,\omega}|^2 \rangle = \int \langle \psi_k^*(0) \psi_k(t) \rangle e^{-i\omega t} dt = \int \langle |\psi_k|^2 \rangle e^{-\frac{t}{\tau_k}} e^{-i\omega t} dt$$

Elle a alors la forme d'une Lorentzienne en fréquence

$$\langle |\psi_{k,\omega}|^2 \rangle = \frac{2\tau_k}{1 + \omega^2 \tau_k^2} \langle |\psi_k|^2 \rangle \quad (4.41)$$

En utilisant (4.31) on obtient

$$\langle |\psi_{\vec{k},\omega}|^2 \rangle = \frac{2k_B T}{\alpha} \frac{\tau}{(1 + k^2 \xi^2)^2 + \omega^2 \tau^2} \quad (4.42)$$

Cette expression a été obtenue dans la limite  $\psi$  petit ce qui a permis de linéariser l'équation (4.37), elle sera donc valable seulement près de  $T_c$ . Cependant, les équations de Ginzburg-Landau sont dérivées dans le cadre d'une approximation de champ moyen ; elles ne seront donc pas valables dans le régime critique, très près de  $T_c$ . La limite de validité de cette approximation peut être calculée par le critère de Ginzburg qui permet de définir le régime gaussien de fluctuations<sup>4</sup>. Dans le cas des supraconducteurs conventionnels ce régime est extrêmement étroit et il est quasiment inaccessible d'un point de vue expérimental  $\frac{\Delta T}{T_c} < 10^{-8}$ . En raison de leur faible longueur de cohérence, ceci n'est pas vrai dans le cas des supraconducteurs à haute température critique où  $\frac{\Delta T}{T_c} \sim 10^{-3}$ , mais ce régime est encore difficilement accessible à cause des inhomogénéités de matériaux.

#### 4.2.4 Effet des fluctuations sur la conductivité au-dessus de $T_c$

La conductivité associée aux fluctuations peut être calculée par une méthode basée sur la formule de Kubo[131]

$$\sigma_{xx}(\omega) = \frac{1}{k_B T} \int_0^\infty \langle J_x(0) J_x(t) \rangle \cos(\omega t) dt \quad (4.43)$$

Nous nous intéressons seulement à la contribution des fluctuations au courant et nous supposons que le courant de quasiparticules n'est pas affecté par la présence des fluctuations. Rigoureusement, ceci n'est pas valable près de  $T_c$  où les fluctuations sont importantes<sup>5</sup>. Le courant est donné par (Ginzburg-Landau)

$$\vec{J} = -i \frac{e^* \hbar}{2m^*} (\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^2) \quad (A = 0) \quad (4.44)$$

$$\vec{J} = \frac{e^* \hbar}{2m^*} \sum_{k,q} (2k+q) \psi_k^* \psi_{k+q} e^{iqr} \quad (4.45)$$

Dans le cas d'un courant uniforme ( $q = 0$ ) selon  $x$  on obtient

$$J_x = \frac{e^* \hbar}{2m^*} \sum_k k_x |\psi_k|^2 \quad (4.46)$$

La fonction de corrélation courant-courant se calcule à partir de l'expression précédente

$$\langle J_x(0) J_x(t) \rangle = \left( \frac{e^* \hbar}{2m^*} \right)^2 \left\langle \sum_{k,k'} k_x k'_x |\psi_k(0)|^2 |\psi_{k'}(t)|^2 \right\rangle \quad (4.47)$$

$\psi_k$  et  $\psi_{k'}$  étant statistiquement indépendants, le terme croisé s'annule

$$\langle J_x(0) J_x(t) \rangle = \left( \frac{e^* \hbar}{2m^*} \right)^2 \sum_k k_x^2 \langle \psi_k^*(0) \psi_k(t) \rangle^2 \quad (4.48)$$

<sup>4</sup>Le terme gaussien fait référence au terme de second ordre dans le développement de l'énergie libre.

<sup>5</sup>Maki et Thompson ont montré que la présence de fluctuations supraconductrices induit également une augmentation de conductivité normale des électrons.

En utilisant l'expression de la fonction de corrélation (4.47) et en effectuant l'intégration, la conductivité s'écrit

$$\sigma_{xx}(\omega) = \left(\frac{e^* \hbar}{2m^*}\right)^2 \frac{1}{k_B T} \sum_k k_x^2 \langle |\psi_k|^2 \rangle^2 \frac{\tau_k/2}{1 + (\omega\tau_k/2)^2} \quad (4.49)$$

La conductivité dc  $\omega = 0$ , est obtenue en insérant les expressions de  $\langle |\psi_k|^2 \rangle$  (4.31) et de  $\tau_k$  (4.39)

$$\sigma_{xx}(0) = \frac{\pi e^2}{\hbar} \left(\frac{T}{T - T_c}\right) \sum_k \frac{k_x^2 \xi^4}{(1 + k^2 \xi^2)^3} \quad (4.50)$$

La somme discrète sur les vecteurs  $k$  peut être remplacée par une intégrale continue en tenant compte de la dimensionnalité de l'espace. On retrouve alors les résultats obtenus par Aslamazov et Larkin en 1968[13].

### Supraconducteur "3D"

$$\sigma_f(0)^{3D} = \frac{1}{32} \frac{e^2}{\hbar \xi(0)} \left(\frac{T}{T - T_c}\right)^{1/2}$$

### Supraconducteur "2D"

$$\sigma_f(0)^{2D} = \frac{1}{16} \frac{e^2}{\hbar d} \frac{T}{T - T_c}$$

où  $d \ll \xi$  est l'épaisseur du film.

### Supraconducteur "1D"

$$\sigma_f(0)^{1D} = \frac{1}{16} \frac{e^2 \xi(0) \pi}{\hbar A} \left(\frac{T}{T - T_c}\right)^{3/2}$$

où  $A \ll \xi^2$  est la section du supraconducteur 1D.

## 4.3 Mesure du spectre des fluctuations d'un supraconducteur conventionnel

### 4.3.1 Susceptibilité de paires d'un supraconducteur

Dans les paragraphes précédents, nous avons vu qu'il existe près de  $T_c$  un régime gaussien de fluctuations dans lequel le paramètre d'ordre peut prendre instantanément des valeurs non nulles (4.2.3) Dans les années 70, Scalapino[118] et Ferrel[49] ont suggéré une méthode originale pour mesurer le spectre des fluctuations dans un métal supraconducteur au-dessus de sa  $T_c$ .

Dans une transition de phase du second ordre (au sens de Landau), le paramètre d'ordre peut être directement couplé à un champ extérieur. La réponse linéaire du paramètre d'ordre à ce couplage détermine alors la susceptibilité associée à l'apparition de l'ordre. Par exemple, dans le cas d'une transition paramagnétique-ferromagnétique, l'aimantation  $\vec{M}$  se couple à un champ magnétique extérieur  $\vec{H}$  définissant ainsi la susceptibilité magnétique  $\chi_M$  telle que  $\vec{M} = \chi_M \vec{H}$ .

Dans le cas de la transition supraconductrice, la susceptibilité pertinente est la susceptibilité de paires qui nécessite le couplage du paramètre d'ordre supraconducteur  $\Delta$  (appelé aussi champ de paires) par nature non diagonal. Pour cette raison, il n'est pas possible de coupler  $\Delta$  à un champ extérieur classique. Ferrel et Scalapino ont alors suggéré que ce rôle pouvait être joué par le champ de paires bien établi d'un second supraconducteur au-dessous de sa  $T_c$ . La susceptibilité est obtenue en mesurant la dépendance en fréquence et en vecteur d'onde de la conductivité d'une jonction Josephson dont l'un des côtés est le supraconducteur d'intérêt (A) et l'autre, un supraconducteur au-dessous de sa  $T_c$  (B). Dans ce cas, le champ de paires du supraconducteur B ayant la  $T_c$  la plus haute produit le couplage non-diagonal nécessaire pour sonder les fluctuations de paires du supraconducteur A au-dessus de sa  $T_c$  (fig4.3). Le résultat principal obtenu par Scalapino[118] est qu'il existe dans la jonction, en plus du courant de quasiparticules, un excès de courant de paires ( $I_{ex}$ ), dû au couplage entre les fluctuations de paires d'un côté et la supraconductivité

bien établie de l'autre. Ce courant est proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité de paires du supraconducteur A.

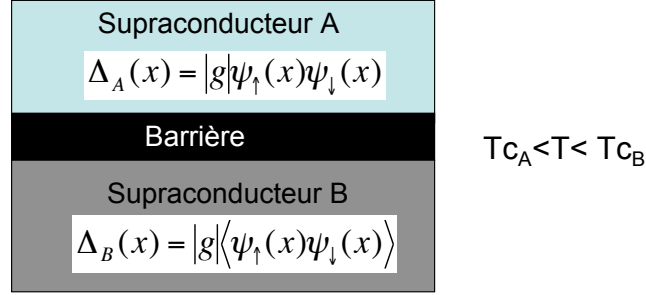


FIG. 4.3 – Jonction Josephson formée de deux métaux supraconducteurs A et B séparés par une barrière isolante. Lorsque la température est fixée telle que  $T_{c_A} < T < T_{c_B}$ , le champ de paires du supraconducteur B est utilisé pour sonder les fluctuations dans l'état normal du supraconducteur A.

### 4.3.2 Excès de courant dû aux fluctuations

Bien que les principaux résultats aient été obtenus par Scalapino et Ferrel, nous présenterons ici l'approche macroscopique de Kadin et Goldman[78] postérieure d'une dizaine d'années mais qui a l'avantage d'être basée sur la théorie de Ginzburg-Landau.

Dans une jonction supraconducteur-métal normal, la supraconductivité pénètre dans le métal sur une distance caractéristique  $\xi_N$  (voir section 2.3). Ce phénomène, appelé *effet de proximité* se traduit par l'apparition d'un paramètre d'ordre induit dans le métal normal. Lorsque les deux matériaux sont séparés par une barrière tunnel, cet effet est plus faible mais continue d'exister. Dans le cas d'une jonction comme celle de la figure 4.3, Kadin et Goldman ont calculé l'expression du paramètre d'ordre induit dans le supraconducteur à l'état normal (A). Leur démarche consiste à trouver la solution qui minimise l'énergie libre de Ginzburg-Landau du supraconducteur A.

Dans le cas d'un supraconducteur au-dessus de  $T_c$ , le terme d'ordre quatre peut être négligé et la densité d'énergie libre (4.1) s'écrit

$$f_0 = f_n + \alpha|\psi(r)|^2 + \frac{1}{2m^*} \left| (-i\hbar\nabla - e^*\vec{A})\psi(r) \right|^2 \quad (4.51)$$

où  $\psi = |\psi|e^{i\theta}$  est le paramètre d'ordre supraconducteur.

Dans le cas qui nous intéresse, il est nécessaire d'ajouter à  $f_0$  un terme d'énergie libre Josephson due au couplage entre les deux supraconducteurs A et B

$$F_j = -\frac{\hbar I_1}{2e} \cos \gamma \quad (4.52)$$

où  $\gamma$  est la différence de phase invariante de jauge aux bornes de la jonction et  $I_1$  le courant critique.

C'est ce terme d'interaction qui va permettre d'induire un paramètre d'ordre dans A et donner naissance à un courant de paires au-dessus de  $T_c$ [78].

Si l'épaisseur  $d$  du film est inférieure à la longueur de cohérence dans le film  $\xi = (\hbar^2/2m^*|\alpha|)^{1/2}$ , le terme d'interaction peut être exprimé sous la forme d'une densité d'énergie

$$f_j = -\frac{\hbar j_0}{2ed} \cos \gamma = -\frac{\hbar \bar{C}}{2ed} |\psi| \cos \gamma \quad (4.53)$$

où  $j_0 = \bar{C}|\psi|$  est la densité de courant critique associée au supercourant  $j_j = j_0 \sin \gamma$ .

Dans le cas où  $|\psi|$  est petit et  $T \ll T_c^B$ ,  $j_0$  est donné par[49]

$$j_0 \approx \frac{G_N \Delta_{ind}}{4e} \ln \frac{T_c^B}{T} \quad (4.54)$$

où  $G_n$  est la conductance de la jonction à l'état normal et  $\Delta_{ind}$  est le gap BCS induit relié à  $|\psi|$ .

Dans le cas le plus général, Ferrel à également donné une expression de  $\bar{C}$  valable à toute température

$$\bar{C} = \frac{\pi G_n T}{e} \sum_{\omega_n} \frac{\omega_n^{-1}}{(\omega_n^2 + \Delta_B^2)^{1/2}} \quad (4.55)$$

où  $\omega_n = (2n + 1)\pi k_B T$  ( $n$  entier) et  $\Delta_B$  est le gap du supraconducteur B.

Dans le cas où une tension constante  $V_0$  est appliquée aux bornes de la jonction et un champ magnétique  $H_0$  appliqué dans le plan de la jonction,  $\gamma$  s'écrit

$$\gamma = \theta - \omega_0 t - q_0 x \quad (4.56)$$

où la fréquence  $\omega_0$  est donnée par la relation Josephson  $\omega = \frac{2eV}{\hbar}$  et le vecteur d'onde donné par la relation  $q_0 = (2e/\hbar)(\lambda_B + d/2 + \delta)H_0$ .  $\lambda_B$  est la longueur de pénétration magnétique dans B et  $\delta$  est l'épaisseur de la barrière.<sup>6</sup>

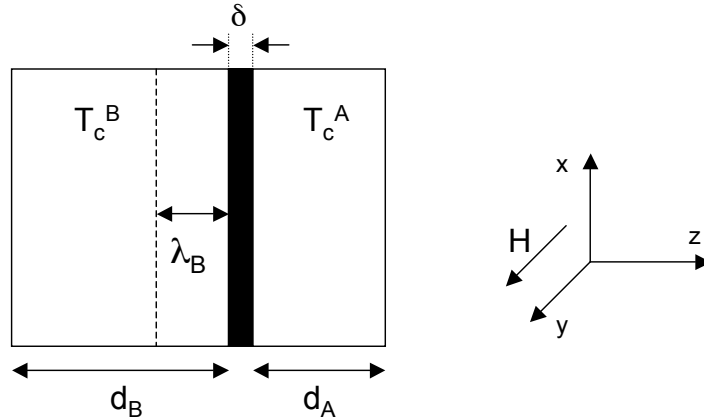


FIG. 4.4 – Représentation schématique de la jonction tunnel. Dans le cas  $T \ll T_c^B$ , la longueur de pénétration  $\lambda_B$  est inférieure à l'épaisseur de B. Le champ magnétique  $H$  est orienté selon  $y$ , il en résulte une modulation de  $\gamma$  dans la direction  $x$ [78].

Dans ces conditions, la densité d'énergie Josephson s'écrit [78]

$$f_J = -\frac{\hbar \bar{C}}{4ed} \left[ \psi e^{-i(q_0 x + \omega_0 t)} + \psi^* e^{-i(q_0 x + \omega_0 t)} \right] \quad (4.57)$$

La minimisation de l'énergie libre totale  $f = f_0 + f_J$  est obtenue par calcul variationnel [28] et aboutit à l'équation de Ginzburg-Landau dépendante du temps

$$\tau \frac{\partial \psi}{\partial t} + \psi - \xi^2 \nabla^2 \psi = C_1 e^{i(q_0 x + \omega_0 t)} \quad (4.58)$$

<sup>6</sup>On a supposé  $\lambda_B$  inférieure à l'épaisseur de B.

où  $C_1 = \hbar\bar{C}/(4ed|\alpha|)$  et  $\tau = \frac{\gamma\hbar}{\alpha} = \frac{\pi\hbar}{8k_B T_c \epsilon}$  ( $\epsilon = \frac{T-T_c}{T_c}$ ).<sup>7</sup>

Dans le cas où le membre de gauche de (4.58) est nul, on retrouve l'expression usuelle de l'équation de Ginzburg-Landau pour  $T > T_c$  que nous avons rencontrée au début du chapitre. Dans le cas présent, la quantité de droite peut être vue comme un champ de paires effectif  $\zeta(x, t)$  qui est couplé au paramètre d'ordre et excite un mode d'oscillation particulier de vecteur d'onde  $q_0$  et de fréquence  $\omega_0$

$$\zeta(x, t) = \alpha C_1 e^{i(q_0 x + \omega_0 t)} \quad (4.59)$$

Le paramètre d'ordre qui satisfait l'équation (4.58) s'écrit

$$\psi_{ind} = \frac{C_1 e^{i(q_0 x + \omega_0 t)}}{i\omega_0 \tau + (1 + \xi^2 q_0^2)} \quad (4.60)$$

Il est alors couplé au champ effectif  $\zeta(x, t)$  par la relation

$$\psi_{ind}(x, t) = \zeta(x, t) \chi(q_0, \omega_0) \quad (4.61)$$

où  $\chi(q_0, \omega_0)$  est la susceptibilité de paires, en fréquence et en vecteur d'onde, associée au paramètre d'ordre.

D'après (4.60) elle est donnée par<sup>8</sup>

$$\chi(q_0, \omega_0) = \frac{1}{[i\omega_0 \tau + (1 + \xi^2 q_0^2)]} \quad (4.62)$$

L'expression de l'excès courant dc est obtenue à partir de la moyenne dans le temps de la densité de courant Josephson  $\bar{j}_j$

$$I_{ex} = \int_0^w \int_0^L dx dy \bar{j}_j \quad (4.63)$$

où  $\bar{j}_j = \overline{\bar{C}|\psi_{ind}| \sin \gamma}$  avec  $\gamma = \theta - q_0 x - \omega t$

Le calcul donne

$$I_{ex} = w\bar{C} \int_0^L dx |\psi_{ind}| \left[ \frac{\text{Im} \psi_{ind} \text{Re} \zeta}{|\psi_{ind}|} - \frac{\text{Re} \psi \text{Im} \zeta}{|\psi_{ind}|} \right] \quad (4.64)$$

$$= \frac{\hbar\bar{C}^2 w L}{4ed} \text{Im} \chi(q_0, \omega_0) \quad (4.65)$$

Soit

$$I_{ex} = \frac{\hbar\bar{C}^2 w L}{4ed} \frac{\omega_0 \tau}{\alpha[(\omega_0 \tau)^2 + (1 + q_0^2 \xi^2)^2]} \quad (4.66)$$

L'expression précédente est vraie en général et ne dépend pas du type de traitement effectué, une expression identique peut être obtenue par la théorie de la réponse linéaire[118] ou à partir de la théorie microscopique [124]. Cet excès de courant de paires peut être considéré comme un effet Josephson du second ordre<sup>9</sup>. Les figures 4.5 et 4.6 montrent l'évolution de  $I_{ex}(V)$  et  $G_{ex} = \frac{dI_{ex}}{dV}$  en fonction de la température réduite  $\epsilon$ .

Dans ce type d'expérience, la tension appliquée aux bornes de la jonction permet de balayer toutes les fréquences  $\omega$  du spectre de fluctuations. A une tension  $V$  donnée, la contribution à l'excès de courant est due aux fluctuations de temps de vie  $\frac{1}{\omega_0} = \frac{\hbar}{2eV}$ . Dans les caractéristiques courant-tension l'excès de courant se traduit par un pic dont le maximum est obtenu pour la tension  $V$  qui correspond au temps de vie statistique  $\tau = \frac{\pi\hbar}{8k_B T_c \epsilon}$  des fluctuations à une température réduite  $\epsilon$  donnée.

<sup>7</sup>Nous avons négligé  $\vec{A}$  dans l'expression de  $f_0$ , son effet peut éventuellement être pris en compte par une réduction de  $T_c$ .

<sup>8</sup>Dans les travaux de Scalapino[118],  $\chi$  est définie de façon à correspondre à  $\Delta_{ind}$  et non à  $\psi_{ind}$ . Il faut alors remplacer  $\alpha$  par  $N(0)(T - T_c)/T_c$  dans (4.58) ( $2N(0)$  est la densité d'état normal au niveau de Fermi).

<sup>9</sup>L'effet Josephson standard couple deux champs de paires supraconducteurs, alors que dans notre cas le couplage se fait entre un champ de paires supraconducteur et un champ de paires fluctuant.

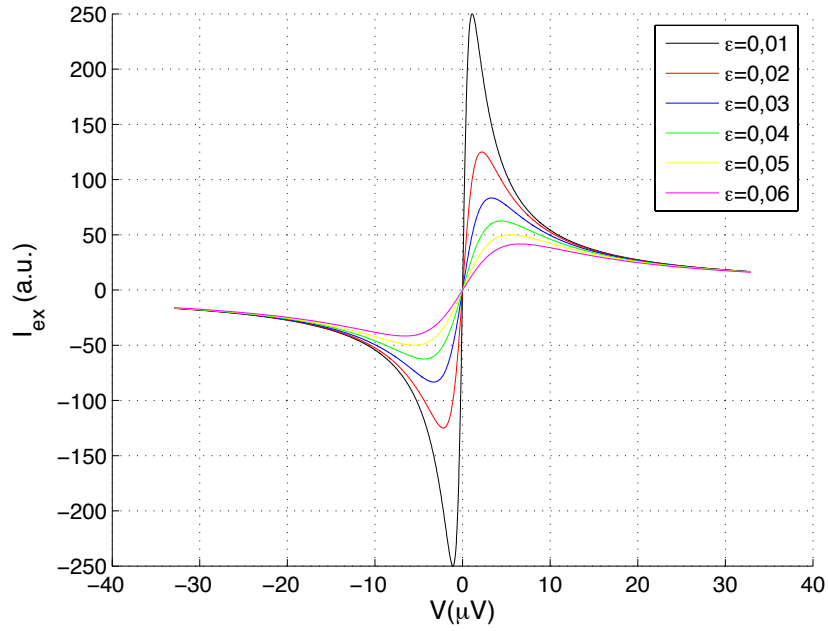


FIG. 4.5 – Caractéristiques  $I_{ex}(V)$  pour différentes températures réduites  $\epsilon$ , obtenues à partir de l'expression 4.66.

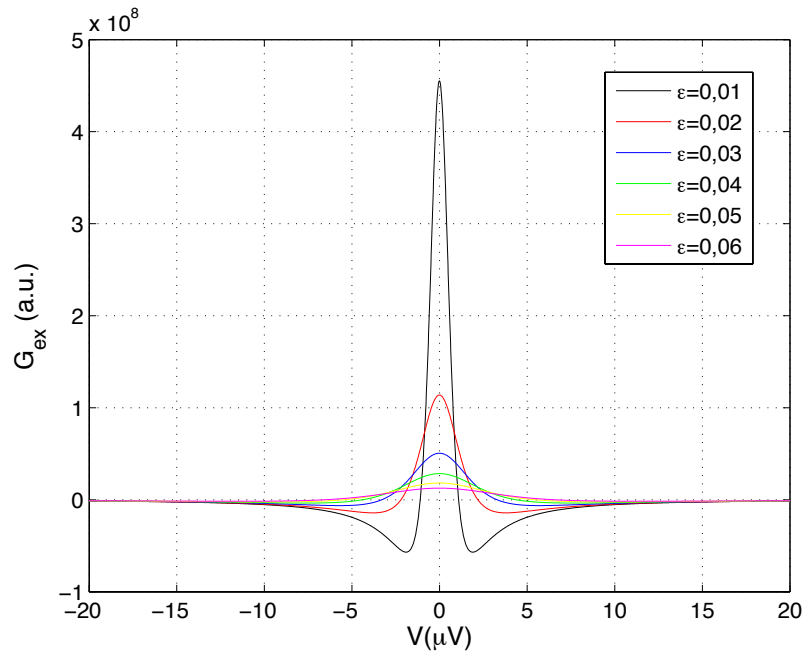


FIG. 4.6 – Caractéristiques  $G_{ex} = \frac{dI_{ex}}{dV}$  pour différentes températures réduites  $\epsilon$ , obtenues à partir de l'expression 4.66.

### 4.3.3 Mesure de $I_{ex}$ dans des jonctions à bases de supraconducteurs conventionnels

Les premières mesures de  $I_{ex}$  ont été réalisées par Anderson et Goldman[7] dans des jonctions Sn-SnO-Pb pour des températures légèrement supérieures à la  $T_c$  de l'étain et inférieures à la  $T_c$  du plomb. L'excès de courant est extrait des caractéristiques courant-tension après soustraction du courant de quasiparticules. Les jonctions étant de type tunnel, la contribution des quasiparticules peut être calculée rigoureusement dans le cadre de la théorie BCS. La figure 4.7 a) montre les caractéristiques  $I_{ex}$  mesurées par les auteurs à différentes températures. Lorsque la température augmente, l'intensité du pic d'excès de courant diminue et la position du pic se déplace vers les hautes tensions comme cela est attendu d'après la relation (4.66). Sur la figure 4.7 b) la courbe expérimentale à  $\epsilon = 2.45 \cdot 10^{-3}$  est comparée au calcul basé sur l'équation 4.66. Le résultat est en accord avec la théorie pour des tensions inférieures à  $V_p = \frac{\hbar}{2e\tau}$ . L'évolution en température de  $V_p$  est représentée sur la figure 4.8 a); elle donne une mesure directe du temps de vie des fluctuations. La tendance et l'ordre de grandeurs de  $V_p$  sont corrects, néanmoins l'accord entre la théorie et l'expérience reste qualitatif.

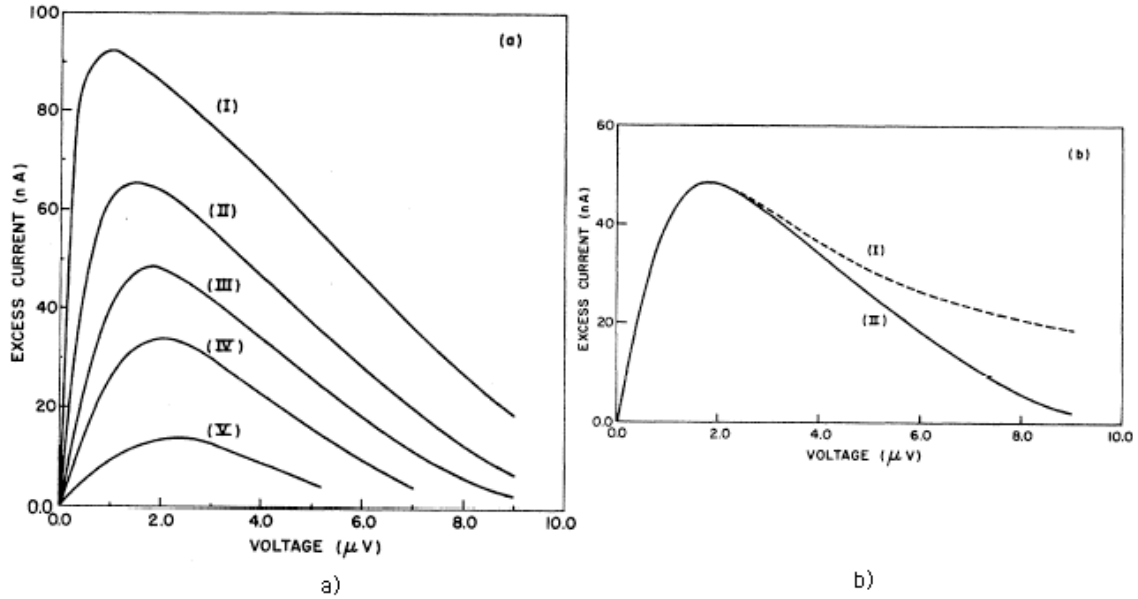


FIG. 4.7 – a) Caractéristiques  $I_{ex}(V)$  d'une jonction Sn-SnO-Pb pour différentes températures correspondant à  $\epsilon = 1,4810^{-3}$ ,  $\epsilon = 2,4510^{-3}$ ,  $\epsilon = 2,9410^{-3}$  et  $\epsilon = 3,9110^{-3}$ . b) Caractéristique  $I_{ex}(V)$  à  $\epsilon = 2,4510^{-3}$ . Le trait plein correspond aux données expérimentales et le trait pointillé au calcul (4.66)[7].

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué parallèlement à la jonction, la position du pic  $V_p$  correspond à la mesure de la fréquence de relaxation des paires de vecteur  $q_0 = (2e/\hbar)H(\lambda + d/2 + \delta)$ . La figure 4.8 b) présente l'évolution de  $V_p$  en fonction de  $H^2$ . Là encore, un accord qualitatif est obtenu avec la théorie qui ne permet cependant pas d'expliquer la saturation observée pour les champs intermédiaires.

### 4.3.4 Effet du bruit thermique

Les calculs précédents supposent que la tension aux bornes de la jonction est constante. En pratique, les mesures étant effectuées à température finie, il y aura toujours du bruit de tension qui va avoir tendance à élargir le pic de courant de paires  $I_{ex}(V)$ . Kadin et Goldman[78] ont introduit ces effets dans le calcul de  $\psi_{ind}$  en ajoutant à la tension  $V_0$ , un bruit en tension  $V_b$  aux bornes de la jonction, dont on suppose qu'il est décrit par une statistique gaussienne. La densité spectrale de bruit est donnée par

$$J(\omega) = \langle |V_b(\omega)|^2 \rangle = \frac{1}{2\pi} \int d\tau \langle V_b(t)V_b(t+\tau) \rangle e^{-i\omega\tau} = \frac{2k_BTR}{\pi(1 + \omega^2(RC)^2)} \quad (4.67)$$



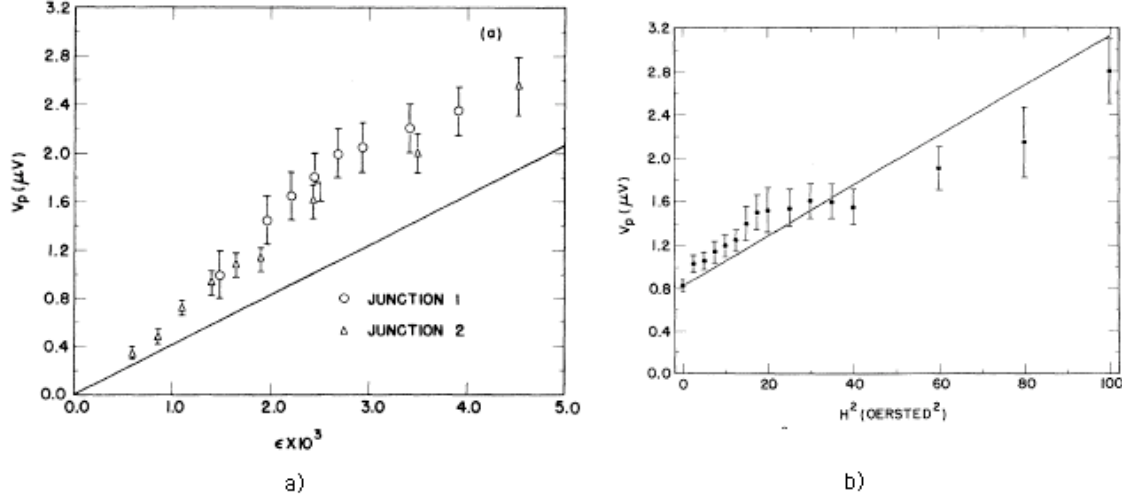


FIG. 4.8 – a) Evolution de la position du maximum de  $I_{ex}$  notée  $V_p$  en fonction de la température pour deux jonctions différentes. Le trait plein représente la variation linéaire attendue d'après (4.66). b) Evolution de  $V_p$  en fonction de  $H^2$  à température constante. Le trait plein représente la variation attendue d'après (4.66) pour  $\epsilon = 1,055 \cdot 10^{-3}$ ,  $d = 1500 \text{ \AA}$ , et  $\lambda = 390 \text{ \AA}$  [7].

où  $\langle \rangle$  représente une moyenne sur le temps,  $R$  et  $C$  sont respectivement la résistance et la capacité de la jonction.

Dans le contexte de la théorie de la réponse linéaire, il est possible d'exprimer la fonction de réponse de paramètre d'ordre

$$\psi_{ind}(x, t) = \int \int \zeta(x', t') \chi(x - x', t - t') dx' dt' \quad (4.68)$$

où  $\chi(x, t)$  est la transformée de Fourier inverse de la susceptibilité, en fréquence et en vecteur d'onde, définie précédemment.

L'effet du bruit est d'introduire un terme additionnel de phase dépendant du temps.

$$\psi_{ind}(x, t) = \int \int \zeta(x', t') dx' dt' e^{\frac{2ie}{\hbar} \int^{t'} V_b(t'') dt''} \chi(x - x', t - t') \quad (4.69)$$

Les auteurs obtiennent alors l'expression du courant de paires

$$I_{ex} = \frac{4e|\bar{C}|^2 A}{d\hbar N(0)\epsilon} \text{Im} \int d\omega e^{-i\omega_0 \tau} \chi(\tau) F(\tau) \quad (4.70)$$

où

$$F(\tau) = \exp \left[ \left( -\frac{8e^2}{\hbar} \right) \int d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} \sin^2 \left( \frac{\omega \tau}{2} \right) \right]$$

$$F(\tau) = \exp \left[ \left( -\frac{4e^2 R k_B T}{\hbar^2} \right) \left( |\tau| + RC \left( e^{-\frac{|\tau|}{RC}} \right) - 1 \right) \right]$$

Pour obtenir l'expression de  $I_{ex}$ , il faut prendre la transformée de Fourier  $\tilde{F}(\omega)$  de  $F(\tau)$ . Celle-ci peut s'exprimer en fonction de la fonction hypergéométrique confluente  $\phi(x, y, z)$  [90, 91]

$$\tilde{F}(\omega) = \text{Re} \left[ \frac{2RC}{x + i\omega RC} \phi(1, x + 1 + i\omega RC, x) \right] \quad (4.71)$$

où  $x = \frac{4e^2 R^2 k_B T C}{\hbar^2}$

$\phi$  possède une expression analytique sous la forme d'une série et peut être programmée facilement sous Matlab.

Dans la limite  $RC$  petit et  $RC$  grand devant les temps caractéristiques de  $\chi$  (de l'ordre de  $\tau_{GL} = \frac{\pi\hbar}{8k_B T_c \epsilon}$ ), l'expression de  $\tilde{F}(\omega)$  se simplifie

$$\tilde{F}(\omega) = \frac{\Gamma_1}{\pi(\omega^2 + \Gamma_1^2)} \quad RC \ll \tau_{GL} \quad (4.72)$$

$$\tilde{F}(\omega) = \frac{e^{-\frac{\omega^2}{\Gamma_2^2}}}{\sqrt{\pi}\Gamma_2} \quad RC \gg \tau_{GL} \quad (4.73)$$

où  $\Gamma_1 = \frac{4e^2 R k_B T}{\hbar^2}$  et  $\Gamma_2 = \frac{2e}{\hbar} \left( \frac{2k_B T}{C} \right)^{\frac{1}{2}}$

L'équation (4.70) s'écrit alors

$$I_{ex}(V_0) = \frac{4e|\bar{C}|^2 A}{d\hbar N(0)\epsilon} \text{Im} \int d\delta\omega \chi(\omega_0 + \delta\omega) \tilde{F}(\delta\omega) = \int d\left(\frac{2e\delta V}{\hbar}\right) I_{ex}^0(V_0 + \delta\omega) \tilde{F}\left(\frac{2e\delta V}{\hbar}\right) \quad (4.74)$$

où  $I_{ex}^0$  est l'excès de courant en l'absence de bruit donné par l'expression (4.66).

Par exemple dans le cas  $RC \ll \tau_{GL}$  on obtient

$$I_{ex}(V, H) = \frac{4e|\bar{C}|^2 A}{d\hbar N(0)\epsilon} \frac{\frac{\omega}{\Gamma}}{\left(1 + \xi^2(T)q^2\right)^2 + \left(\frac{\omega}{\Gamma}\right)^2} \quad (4.75)$$

où  $\Gamma = \frac{1}{\tau_{GL}} + \Gamma_1$

Le bruit thermique aura généralement tendance à élargir le pic d'excès de courant. Le temps caractéristique qui correspond au maximum de  $I_{ex}$  ne sera, alors, plus donné par le temps de vie des fluctuations mais par  $\frac{1}{\frac{1}{\tau_{GL}} + \Gamma_1}$ , ce qui aura pour effet de « couper » les temps de vie longs. Cela signifie que lorsqu'on sonde les fluctuations par cette expérience de type Josephson, on introduit des temps caractéristiques dus aux imperfections de la sonde. On peut également remarquer que tous les types de bruits en tension (radiofréquence notamment) auront un effet similaire sur le courant de paires.



## Chapitre 5

# Test des fluctuations de paires dans le pseudogap

Parmi les scénarios proposés pour expliquer la présence d'un pseudogap dans les cuprates sous-dopés, il a été suggéré qu'il pourrait s'agir de la signature de paires fluctuantes se formant à haute température, sans cohérence de phase, et condensant dans l'état supraconducteur à  $T_c$  (cf chapitre 1). D'un point de vue expérimental, cette idée s'appuie notamment sur les sondes spectroscopiques comme l'ARPES et le STM, deux techniques qui ont joué un rôle majeur dans l'étude du pseudogap. Les résultats montrent une évolution continue de la densité d'états de quasiparticules, du régime de pseudogap au régime supraconducteur, sans discontinuité à  $T_c$ , suggérant plus un "crossover" qu'une transition bien définie entre les deux régimes. Les mesures de RMN ont également mis en évidence une chute de la susceptibilité de spin à  $T^*$  en accord avec la formation d'un état de spin singulet dans le pseudogap. Cependant, il s'agit là de preuves très indirectes car la plupart des techniques expérimentales (la totalité?) utilisées pour sonder le pseudogap ne sont pas directement sensibles aux paires et ne sont donc pas adaptées pour détecter leur présence éventuelle au-dessus de  $T_c$ . C'est notamment le cas de l'ARPES et du STM qui ne sont sensibles qu'à la densité d'états à une particule.

En 1999, Janko *et al* ont proposé une expérience de type Josephson, similaire à celle décrite dans le chapitre 4 qui permet d'aborder le problème des fluctuations de paires sous un jour nouveau[74]. L'effet Josephson étant propre aux paires de Cooper, il s'agit d'une sonde assez naturelle pour cette problématique. Une partie importante de ce travail de thèse a été consacrée à la réalisation d'une telle expérience.

Après avoir présenté brièvement les prédictions théoriques de Janko dans une première partie, la suite de ce chapitre sera consacrée à la mise en oeuvre de cette expérience ainsi qu'aux résultats obtenus.

## 5.1 Jonctions Josephson pour l'étude du pseudogap : l'expérience de Janko

### 5.1.1 Description de l'expérience et prédiction théorique

Le dispositif proposé par les auteurs est présenté sur la figure 5.1. Il s'agit de fabriquer une jonction planaire, orientée selon l'axe  $c$ , constituée d'un supraconducteur A sous-dopé (de température de transition  $T_A^c$ ) et d'un supraconducteur B optimalement dopé ( $T_c^B$ ) séparés par une couche d'isolant. En se plaçant à une température  $T$ , supérieure à  $T_c^A$  et inférieure à  $T_c^B$ , le couplage entre le champ de paires rigides de B et le champ de paires fluctuantes de A devrait donner lieu à un courant de paires incohérent à travers la jonction, qu'il serait alors possible de détecter.

Le calcul étant relativement complexe, nous n'en donnerons ici que les principaux résultats. Les auteurs obtiennent l'expression suivante du courant de paires[74]

$$\frac{I_{ex}}{I_1} \approx \frac{E_J}{E_c} \text{Im}t(\omega, q) \quad (5.1)$$

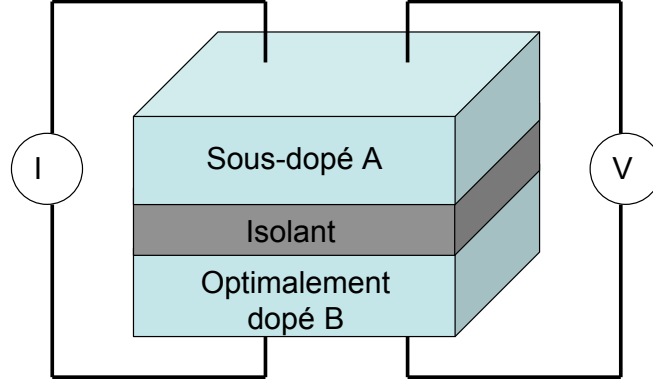


FIG. 5.1 – Configuration proposée pour tester les fluctuations de paires dans le pseudogap. La couche A est un supraconducteur sous-dopé et la couche B un supraconducteur optimalement dopé. Lorsque la température est fixée telle que  $T_c^A < T < T_c^B$ , le champ de paires du supraconducteur B est utilisé pour sonder les fluctuations dans l'état de pseudogap du supraconducteur A [74].

où  $E_J = \hbar I_1 / (4\pi e)$  est l'énergie du couplage Josephson à  $T = 0$ ,  $E_c$  l'énergie de condensation de la couche B et  $I_1$  le courant critique à  $T = 0$ .

$Imt(\omega, q)$  est la partie imaginaire de la matrice particule-particule caractéristique du cuprate sous-dopé dont l'expression dépend du scénario adopté pour les fluctuations dans le pseudogap. Janko utilise une expression en fonction de la susceptibilité de paires  $\chi(\omega, q)$  et de la constante d'appariement  $g$  valable (selon les auteurs) pour un large choix de théories

$$Imt(\omega, q) = \frac{-g^2 Im\chi(\omega, q)}{[1 + gRe\chi(\omega, q)]^2 + [gIm\chi(\omega, q)]^2} \quad (5.2)$$

La fréquence  $\omega$  est reliée à la tension aux bornes de la jonction par la relation Josephson  $\omega = \frac{2eV}{\hbar}$ .

Pour  $q = 0$  et des fréquences suffisamment faibles, l'expression précédente se simplifie

$$Imt(\omega, q) = \frac{\gamma\omega}{\alpha^2(\omega - \omega_0)^2 + \omega^2}$$

où  $\omega_0 = \frac{\gamma}{\alpha} \left( \frac{T}{T_c^A} - 1 \right)$  et  $\alpha$  et  $\gamma$  dépendent de la constante  $g$ .

**Couplage faible ( $\alpha \approx 0$ )** Dans le cas d'un couplage faible ( $\alpha \approx 0$ ), les fluctuations de paires sont associées à la transition de phase supraconductrice. Elles ont été observées dans les supraconducteurs conventionnels (voir section 4.3.3) et sont également prédites dans le cas de cuprates sur-dopés.

**Couplage intermédiaire ( $\alpha \approx 1$ )** Dans le cas de cuprates sous-dopés, on s'attend à un couplage plus important ( $\alpha \approx 1$ ). La valeur de  $\omega_0$  est alors fortement réduite, ce qui donne lieu à une résonance importante de  $Imt$  à cette fréquence. Le comportement de  $Im\bar{t}$  pour ces deux limites  $\alpha \approx 0$  et  $\alpha \approx 1$  est représenté sur la figure 5.2. Dans le cas  $\alpha \approx 1$ ,  $Im\bar{t}$  présente un pic prononcé et asymétrique ce qui devrait fournir une signature forte de la présence de paires préformées. Le pic devrait persister jusqu'à des températures élevées de l'ordre  $T^*$  (température de pseudogap). L'asymétrie du pic est reliée à l'asymétrie de la densité d'états du pseudogap (introduite dans le modèle des auteurs [75, 98, 26]) et pourrait être liée à celle observée dans certaines mesures de STM [115].

Il est possible d'estimer l'ordre de grandeur du courant de paires  $I_{ex}$  en tenant compte des caractéristiques propres de nos jonctions. L'énergie de condensation pour un composé  $YBa_2Cu_3O_7$  ayant une température de transition de l'ordre de 60K est environ  $2.10^4 J/m^3$ . En prenant une jonction de surface

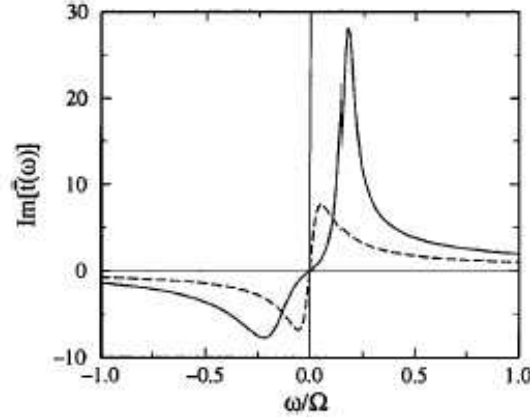


FIG. 5.2 – Dépendance en tension du courant de paires, obtenue pour  $T/T_c \approx 1, 1$ . La courbe en pointillés correspond au cas  $\alpha \approx 0$  (fluctuations gaussiennes associées à la transition supraconductrice) et la courbe en trait plein au cas  $\alpha \approx 1$  (fluctuations associées à des paires préformées).  $\Omega = 100\text{meV}$  représente l'énergie caractéristique associée au pseudogap[74].

$S \sim 25 \cdot 10^{-12} \text{m}^2$  et en considérant que le couplage s'effectue avec une couche d'épaisseur<sup>1</sup>  $\xi_c \sim 2\text{\AA}$  on obtient l'énergie totale de condensation  $E_c \sim 5 \cdot 10^{-16} \text{J}$ . Pour un courant Josephson  $I_c \sim 100\mu\text{A}$ , l'énergie de couplage Josephson est  $E_J \sim 3 \cdot 10^{-20} \text{J}$ . En se reportant à la figure 5.2, pour  $T/T_c \approx 1, 1$ ,  $Imt \sim 30$  et on obtient un courant maximum  $I_{ex} \sim I_c \frac{E_J}{E_c} Imt \sim 1\mu\text{A}$ .

### 5.1.2 Commentaires

Cette expérience étant basée sur le principe de l'effet Josephson, il n'est pas nécessaire que la barrière soit de type tunnel et les prédictions restent valables dans le cas de jonctions « lien faible ». Il s'agit là d'un point fondamental, puisqu'à l'heure actuelle il n'existe pas de technologie de jonctions tunnel avec des supraconducteurs à haute température critique. En revanche, cela introduit une difficulté supplémentaire puisque les caractéristiques courant-tension vont alors refléter des mécanismes de transport de quasiparticules propres aux « liens faibles » (diffusion, réflexion d'Andreev, états localisés, canaux de conduction...). Il faudra alors distinguer la contribution du courant de paires dû aux fluctuations, de la contribution du courant de quasiparticules, ce qui peut s'avérer complexe.

Une seconde difficulté attendue est liée au bruit thermique inhérent aux températures élevées ( $\sim 60\text{K}$ ) auxquelles doivent être effectuées les mesures. Nous avons vu au chapitre 4 (section 4.3.4) que le bruit en tension introduit des dépendances en énergie, liées à la résistance et à la capacité de la jonction qui ont pour effet de masquer (en partie) les temps de relaxation associés aux fluctuations.

La prédiction d'un pic asymétrique dans les caractéristiques  $I(V)$  est obtenue dans le cadre d'un modèle théorique particulier de fluctuations pour le pseudogap. L'auteur souligne que des scénarios analogues mettant en jeu des fluctuations de paires devraient donner une signature similaire : un pic d'excès de courant dont les caractéristiques (symétrie, largeur en énergie...) et l'évolution en température seraient dépendantes du modèle[74]. Dans l'hypothèse où le pseudogap serait lié à des fluctuations de paires, on peut s'attendre à la présence d'un **pic d'excès de courant qui devrait persister jusqu'à  $T^*$** . En revanche, dans le cas de fluctuations gaussiennes associées à la transition supraconductrice, l'excès de courant devrait être observé seulement au voisinage de  $T_c^A$ .

<sup>1</sup>Les auteurs préfèrent utiliser l'épaisseur d'une couche atomique  $l_c$ . Dans un système 3D,  $\xi$  est a priori la bonne quantité physique, à 2D le transport perpendiculaire au plan est plus ambigu.

## 5.2 Test des fluctuations de paires dans le pseudogap

L'article de Janko a été publié en 1999 et, à notre connaissance, il n'existe toujours pas de publications concernant la réalisation d'une telle expérience. Comme nous allons le voir par la suite, les difficultés sont nombreuses, à commencer par la fabrication d'une jonction adéquate.

### 5.2.1 Géométrie de la jonction et choix des matériaux

Les différentes technologies de jonctions Josephson à haute température critique ont été décrites dans le chapitre 2. La seule possibilité pour fabriquer une jonction formée de deux supraconducteurs différents (optimalement dopé et sous-dopé) est de réaliser une structure épitaxiée comprenant les deux supraconducteurs séparés par une barrière extrinsèque (les jonctions joints de grains ne sont pas appropriées dans ce cas). Il y a alors deux géométries possibles : la géométrie mesa où les trois couches sont empilées l'une sur l'autre ou la géométrie « rampe ». Cette dernière n'est pas conseillée pour des études fondamentales puisqu'elle nécessite des étapes de microfabrication (gravure) entre les dépôts des différentes couches, ce qui entraîne généralement une dégradation des propriétés supraconductrices au niveau des interfaces. Pour éviter cela, nous avons donc opté pour une géométrie empilée où les trois couches sont déposées in-situ, les mesas étant fabriqués par la suite.

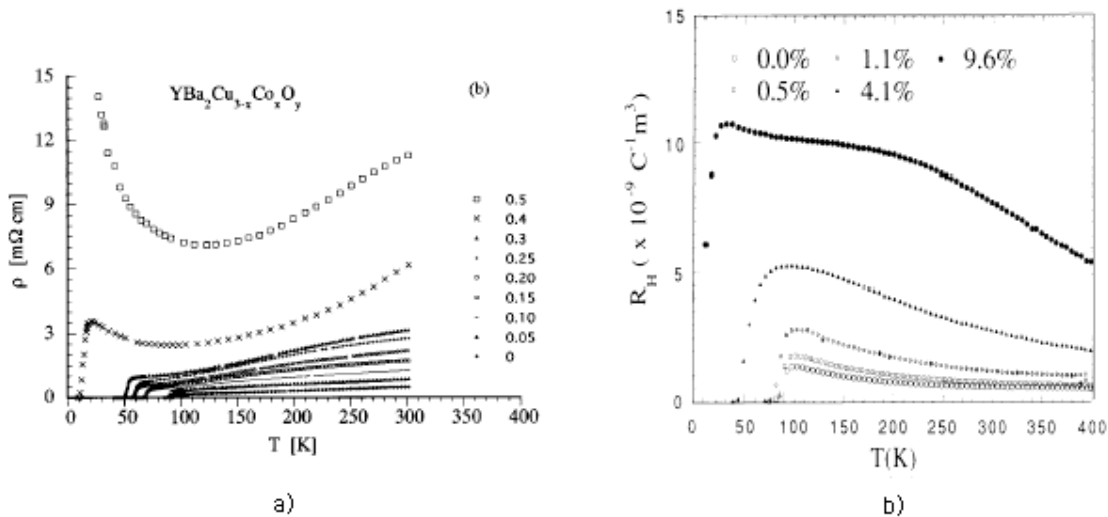


FIG. 5.3 – a) Caractéristiques  $R(T)$  de poudre de  $YBa_2Cu_{3-x}Co_xO_7$  pour différentes valeurs de  $x$ . La  $T_c$  diminue lorsque le dopage en Co augmente[51]. b) Mesures de la résistance de Hall pour différents dopages en Co de monocristaux de  $YBa_2(Cu_{1-x}Co_x)_3O_7$ . Le nombre de porteurs de charges diminue lorsque le dopage augmente[23].

Le choix des trois matériaux doit répondre à deux exigences bien précises.

1. La barrière isolante doit pouvoir être épitaxiée sur la première couche supraconductrice et permettre ensuite une reprise d'épithaxie pour déposer la seconde couche supraconductrice. Cela signifie que la barrière doit avoir une structure cristallographique proche de celle des oxydes supraconducteurs.
2. Pour réaliser cette expérience dans les meilleures conditions, il est impératif de garantir un dopage homogène et différent dans chacune des couches (dopage optimal et sous-dopage). La croissance étant effectuée à haute température  $\sim 700^\circ C$  où la diffusion est importante, il ne sera pas possible de réaliser des dopages en oxygène différents dans les deux couches.

Il existe en fait peu de systèmes, parmi les différentes familles cuprates, qui soient capables de répondre à de telles exigences. Notre choix s'est porté sur une structure à base du composé  $YBa_2Cu_3O_7$ . Alors que toutes les autres terres rares  $RE$  donnent des composés  $REBa_2Cu_3O_7$  supraconducteurs, le composé

à base de praséodyne  $PrBa_2Cu_3O_7$  est isolant, ce qui en fait le candidat naturel pour la barrière. Nous avons donc utilisé la structure suivante :

- ▶ Le substrat est un monocristal de  $SrTiO_3$
- ▶ La couche inférieure optimalement dopée est en  $NdBa_2Cu_3O_7$  (NBCO), elle a une épaisseur de 200 nm. L'utilisation du  $Nd$  permet d'obtenir une rugosité de surface inférieure à celle du composé à l' $Y$ , ce qui limite les risques d'avoir une barrière percée par les excroissances de la couche.
- ▶ La barrière de la jonction est réalisée avec une couche de  $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$  (PBCGO).  $PrBa_2Cu_3O_7$  est un isolant faible contenant des états localisés. La substitution d'atomes de  $Cu$  par des atomes de  $Ga$  dans les chaînes permet d'augmenter la résistivité du composé. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement. Les résultats présentés dans cette étude ont été essentiellement obtenus avec des barrières d'épaisseur 30 ou 50 nm.
- ▶ La couche supérieure sous-dopée est en  $YBa_2Cu_{2.8}Co_{0.2}O_7$ , elle a une épaisseur de 100 nm. Le sous-dopage est obtenu par substitution de  $Co$  dans les chaînes  $CuO$  (fig 5.3), ce qui a l'avantage de ne pas introduire de désordre dans les plans  $CuO_2$ . Avec ce niveau de dopage, la  $T_c$  est d'environ 60 K[51].

La croissance de ces échantillons est réalisée par ablation laser pulsé dans l'équipe de J.P Contour à L'UMR Thales-CNRS. Les tricouches sont systématiquement recouverts d'une couche de protection en or déposé in-situ après la croissance, qui garantit des contacts solides et peu résistifs entre l'or et le supraconducteur.

## 5.2.2 Barrière de $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$

### 5.2.2.1 Transport de quasiparticules

Les mesures de transport dans le plan  $(a,b)$  de  $PrBa_2Cu_3O_7$  montrent un comportement d'isolant de localisation. La résistivité en fonction de la température est bien décrite par un modèle de saut à longueur variable (Variable Range Hopping)[101] à travers les états localisés :  $\rho = \rho_0 \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/2}$ . L'exposant  $\frac{1}{2}$  correspond au cas où la répulsion Coulombienne sur les sites localisés est prise en compte<sup>2</sup>[40].

Lorsqu'on s'intéresse au cas d'une jonction, la couche de  $PrBa_2Cu_3O_7$  utilisée comme barrière est généralement fine ( $\sim 10nm$ ); le transport  $c$  axis ne met en jeu qu'un nombre réduit d'états localisés et le modèle VRH n'est plus adapté. Glazman et Matveev ont développé un modèle qui décrit les processus de conduction par saut entre un faible nombre d'états localisés dans des barrières peu épaisses[57, 89, 58]. Le comportement de la conductance en fonction de la température à  $V = 0$  est donné par l'expression

$$G(T) = G_{dir} + G_{res} + \sum_{\geq 2} G_n(T) \quad (5.3)$$

$G_{dir}$  est la conductance associée à l'effet tunnel direct qui décrit généralement les jonctions SIS.

et  $G_{res}$  est la conductance associée à l'effet tunnel résonnant donnée par[89, 148]

$$G_{res} = \frac{\pi e^2}{h} g a E_0 e^{-\frac{d}{a}} \quad (5.4)$$

où  $g$  et  $a$  sont la densité et le rayon de l'état localisé,  $d$  l'épaisseur de la barrière et  $E_0$  est la hauteur en énergie de la barrière.

Les termes  $G_{dir}$  et  $G_{res}$  décrivent des processus élastiques, ils ne dépendent pas de la température.

<sup>2</sup>Initialement, le cas traité par Mott ne tenait pas compte de la répulsion Coulombienne, l'exposant est alors  $\frac{1}{4}$  à 3D et  $\frac{1}{3}$  à 2D[100].



$G_n$  ( $n \geq 2$ ) représente la contribution des canaux comprenant  $n$  états localisés [89, 148]

$$G_n(T) = \nu_{nT} \frac{e^2}{h} g^n E_0^{2/(n+1)} \lambda^{(n-1)/(n+1)} (k_B T)^{(n^2+n-2)/(n+1)} a^{2n-1} d^{n-1} e^{-\frac{2d}{(n+1)a}} \quad (5.5)$$

où  $\nu_{nT}$  est un paramètre numérique.

Lorsque le nombre d'états localisés mis en jeu est supérieur à 2, le transport devient inélastique ; il se fait par sauts entre états localisés avec émission ou absorption d'un phonon.

La dépendance de la conductance en fonction de la tension est identique à celle en température [148]. Pour  $n \geq 2$ , elle est donnée par l'expression

$$G_n(V) = \frac{dI}{dV} = \frac{n^2 + 2n - 1}{(n+1)a} \nu_{nV} g^n E_0^{2/(n+1)} \lambda^{(n-1)/(n+1)} (eV)^{(n^2+n-2)/(n+1)} a^{2n-1} d^{n-1} e^{-\frac{2d}{(n+1)a}} \quad (5.6)$$

où  $\nu_{nV}$  est un paramètre numérique.

Il n'existe pas de consensus sur l'origine des états localisés dans  $PrBa_2Cu_3O_7$ . Les prédictions théoriques de la structure électronique de ce composé montrent une hybridation forte des orbitales  $f$  de  $Pr$  avec les orbitales  $p$  des oxygènes voisins qui pourrait être responsable de ce phénomène[48, 125]. Une autre hypothèse envisagée est que la substitution de l' $Y$  par le  $Pr$  entraîne une redistribution des trous qui ont alors tendance à se déplacer des plans vers les chaînes[83]. Dans les deux cas, les plans ( $a, b$ ) deviennent isolants mais il existe des états accessibles dans les chaînes.

### 5.2.2.2 Effet Josephson

Le modèle de Glazman et Matveev ne traite que le cas des quasiparticules et ne prend pas en compte les processus mettant en jeu les paires de Cooper. De nombreuses études ont montré l'existence d'un effet Josephson dans des jonctions YBCO/PBCO/ YBCO de type « empilé » ou « rampe » [59, 140, 149, 52]<sup>3</sup>, pour des épaisseurs de barrière pouvant aller jusqu'à 1500 Å ce qui est très supérieur à la portée de l'effet tunnel standard ( $< 100$  Å ). Il a été suggéré que le mécanisme responsable du couplage Josephson à longue portée serait dû à un effet tunnel résonnant de paires de Cooper à travers un état localisé[35, 36]. Devyatov a montré que l'extension importante de la cohérence était une conséquence de la faible énergie de la barrière et de l'effet résonnant[35]

$$\alpha = \frac{1}{\sqrt{2m(V - \mu)}}$$

où  $m$  est la masse des porteurs de charges,  $\mu$  le potentiel chimique et  $V$  la hauteur en énergie de la barrière (fig 5.4 b).

### 5.2.2.3 Réflexion d'Andreev

A énergie non nulle, le modèle de Glazman et Matveev n'est pas suffisant pour décrire le comportement d'une jonction dont les électrodes sont dans l'état supraconducteur. Devyatov introduit les mécanismes de réflexion d'Andreev aux interfaces entre électrodes et les états localisés (fig 5.4 c)[37]. Le calcul du courant est alors plus complexe car il fait intervenir les caractéristiques propres des états localisés. Un exemple de caractéristique  $I(V)$  calculé par Devyatov dans le cas d'un canal contenant un seul état localisé, est représenté sur la figure 5.4 d).

De façon générale, plus le nombre d'états localisés sera grand, plus le nombre de mécanismes mis en jeu sera important (tunnel direct ou résonnant, hopping, réflexion d'Andreev...). Pour l'étude des fluctuations de paires, seul le couplage Josephson nous intéresse et tous les autres mécanismes sont susceptibles de perturber l'analyse. Nous avons donc tout intérêt à réduire le plus possible l'épaisseur des barrières, l'idéal étant de travailler avec un seul état localisé. Les études [148] montrent que l'épaisseur de la couche de  $PrBa_2Cu_3O_7$  doit alors être inférieure à 5nm, ce qui représente un risque important que la barrière soit trouée par les excroissances intrinsèques de la couche inférieure de NBCO. Pour cette raison nous avons utilisé une barrière de  $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$ . La substitution d'atomes de  $Cu$  par des atomes de  $Ga$  dans les chaînes entraîne une diminution du nombre d'états localisés et une augmentation de la résistance[59]. Ceci nous permet d'utiliser des couches plus épaisses de façon à diminuer les risques de court-circuit à travers la barrière sans pour autant augmenter le nombre d'états localisés.

<sup>3</sup>Voir également les références incluses.

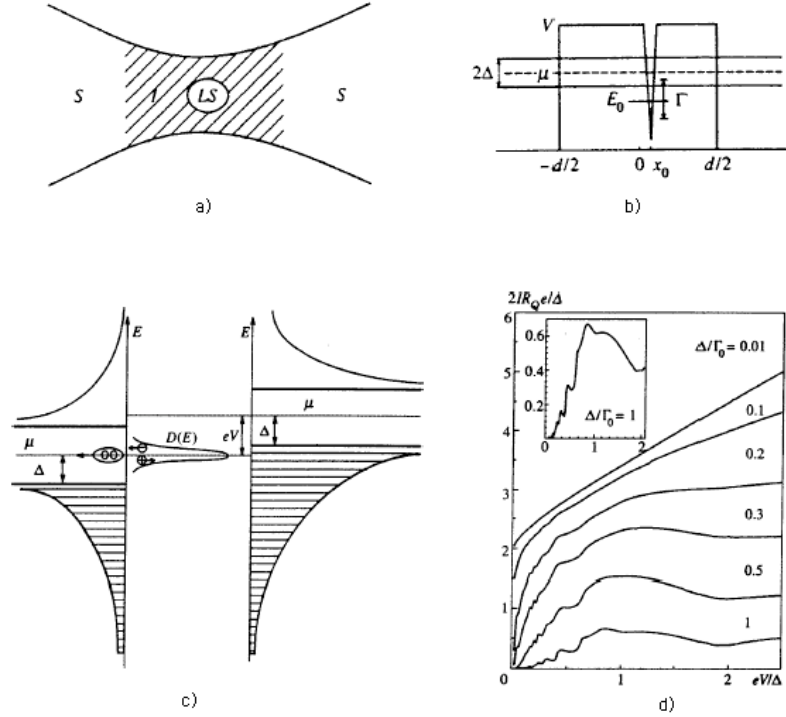


FIG. 5.4 – Approche de Devyatov des jonctions SIS où I contient un état localisé. a) Schéma de la jonction. b) Diagramme d'énergie de la structure. La barrière de largeur  $d$  et d'énergie  $V$  contient un état localisé positionné en  $x_0$ , d'énergie  $E_0$  et de largeur en énergie  $\Gamma_0$ . c) Mécanisme de la réflexion d'Andreev entre un état localisé et une électrode supraconductrice. d) Caractéristiques  $I(V)$  d'une jonction où l'état localisé est situé en  $x_0 = 0$  et  $\xi_0 = 0$ , obtenues pour différents rapports  $\frac{\Delta}{\Gamma_0}$ . [36, 37]

### 5.2.3 Fabrication des jonctions

La technique standard de fabrication de jonctions empilées est décrite sur la figure 5.5. La première étape consiste à définir le mesa de taille micrométrique par gravure du tricouche<sup>4</sup> (fig 5.5 b). Après cette étape, les flancs de la jonction sont exposés à l'air et il y a inévitablement une diffusion d'oxygène vers l'extérieur. Pour cette raison, il ne sera pas possible de fabriquer des mesas de dimensions trop petites (qq  $\mu m$ ) sans altérer les propriétés des couches supraconductrices. Une couche d'isolant est ensuite déposée autour du mesa (fig 5.5 c). Enfin les électrodes métalliques (de l'or le plus souvent) sont déposées de façon à pouvoir effectuer des mesures de transport à quatre points (fig 5.5 d) (deux électrodes pour le courant et deux électrodes pour la tension).

Dans le but d'éviter toute dégradation de la jonction, notamment en laissant les flancs du mesa non protégés, nous avons développé une nouvelle méthode de fabrication qui combine des procédés standards de microfabrication avec l'irradiation ionique. La figure 5.7 décrit de façon schématique les différentes étapes de fabrication des jonctions. Les photos des échantillons prises au microscope optique entre ces étapes sont montrées sur la figure 5.8.

**Étape1** Avant de commencer les étapes de microfabrication, une couche d'or supplémentaire est déposée sur la couche d'or in-situ de façon à obtenir une épaisseur totale de 2000Å (fig 5.7 a). Une résine photoli-

<sup>4</sup>Lors de la gravure, le mesa est protégé par une résine lithographique.

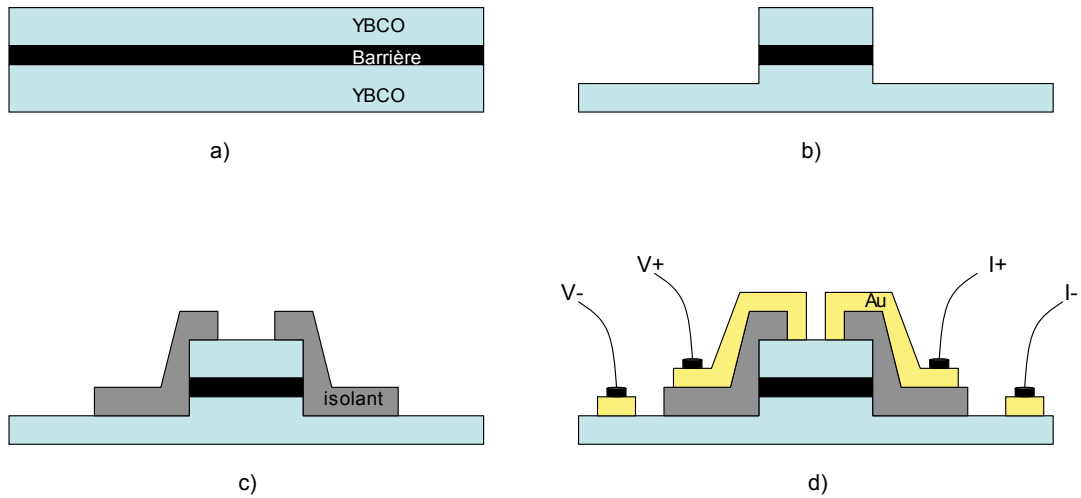


FIG. 5.5 – Technique standard de fabrication de jonctions empilées. a) Tricouche supraconducteur-isolant-supraconducteur. b) Gravure du mesa par faisceau d’ions. c) Dépôt d’une couche d’isolant. d) Dépôt des contacts en or.

thographique négative<sup>5</sup> AZ5214 est étalée sur l’échantillon ( $1,5\mu\text{m}$ ) et insolée à travers un premier masque dont la forme permet de créer deux motifs de résine (épaisseur  $1,5\mu\text{m}$ ) (fig 5.7 b) (photos fig 5.8 a et b). Une couche d’or ( $\sim 3000\text{ \AA}$ ) est ensuite déposée sur la totalité de l’échantillon (fig 5.7 c) puis un lift-off<sup>6</sup> est réalisé dans un solvant organique (fig 5.7 d) (photos 5.8 c). Le résultat final consiste en un dépôt d’or sur la totalité de l’échantillon excepté à l’endroit des deux motifs de résine (photos fig 5.8 d et e).

**Étape 2** La seconde étape consiste à isoler les jonctions les unes des autres et à préparer le masque d’or pour l’irradiation ionique. Pour cela, une résine positive AZ5214 est insolée à travers un second masque dont la forme permet de définir un motif de résine rectangulaire positionné sur les deux motifs précédents (fig 5.7 f et g) (photos fig 5.8 f et g). La couche d’or autour des motifs de résine est ensuite retirée par une gravure à l’Argon (fig 5.7 h), ce qui laisse apparaître une structure en or, en forme de marches d’épaisseur  $2000\text{ \AA}$  ou  $5000\text{ \AA}$  qui va servir de masque pour l’irradiation ionique (fig 5.7 i) (photos fig 5.8 h et i).

**Étape 3** La troisième étape consiste à irradier l’échantillon avec une dose de  $5.10^{15}$  ions oxygène par  $\text{cm}^2$ , d’énergie  $250\text{ KeV}$ . (fig 5.7 j). Dans les parties non protégées par l’or, les ions pénètrent jusqu’au substrat et le tricouche devient isolant sur la totalité de son épaisseur. La couche d’or de  $5000\text{ \AA}$  est suffisamment épaisse pour stopper les ions avant qu’ils n’atteignent le tricouche, les zones ainsi protégées conservent leurs propriétés supraconductrices. En revanche, la couche de  $2000\text{ \AA}$  permet seulement de ralentir les ions qui vont alors pénétrer dans le tricouche avec une énergie réduite, insuffisante pour parvenir jusqu’au substrat. En s’appuyant sur les simulations SRIM (fig 5.6), on peut choisir judicieusement l’épaisseur de la couche d’or et l’énergie des ions de façon à ce que les ions s’arrêtent néanmoins dans la dernière couche et rendre ainsi isolante seulement la partie supérieure du tricouche. Cette irradiation permet de définir un mesa central très fin qui va devenir la jonction ainsi que deux mesas de taille plus importante reliés à la jonction par deux « chemins » conducteurs définis dans la couche inférieure.

La conformité des résultats avec les simulations a été vérifiée en réalisant des irradiations sur des couches d’épaisseurs différentes. Tous les résultats indiquent que les mesas sont bien définis. Néanmoins, il existe toujours une incertitude de l’ordre de 20% sur l’épaisseur des couches d’or due à l’incertitude sur la lecture des quartz piezoélectriques lors de l’évaporation des couches successives. Les épaisseurs nominales

<sup>5</sup>Une résine négative est une résine qui une fois développée, présente des motifs identiques aux motifs opaques du masque alors qu’une résine positive présente les motifs complémentaires du masque. La résine AZ5214 peut être utilisée soit de façon positive soit de façon négative en utilisant un traitement thermique particulier.

<sup>6</sup>Les résines négatives ont des flancs inversés, ce qui facilite les lift-off.

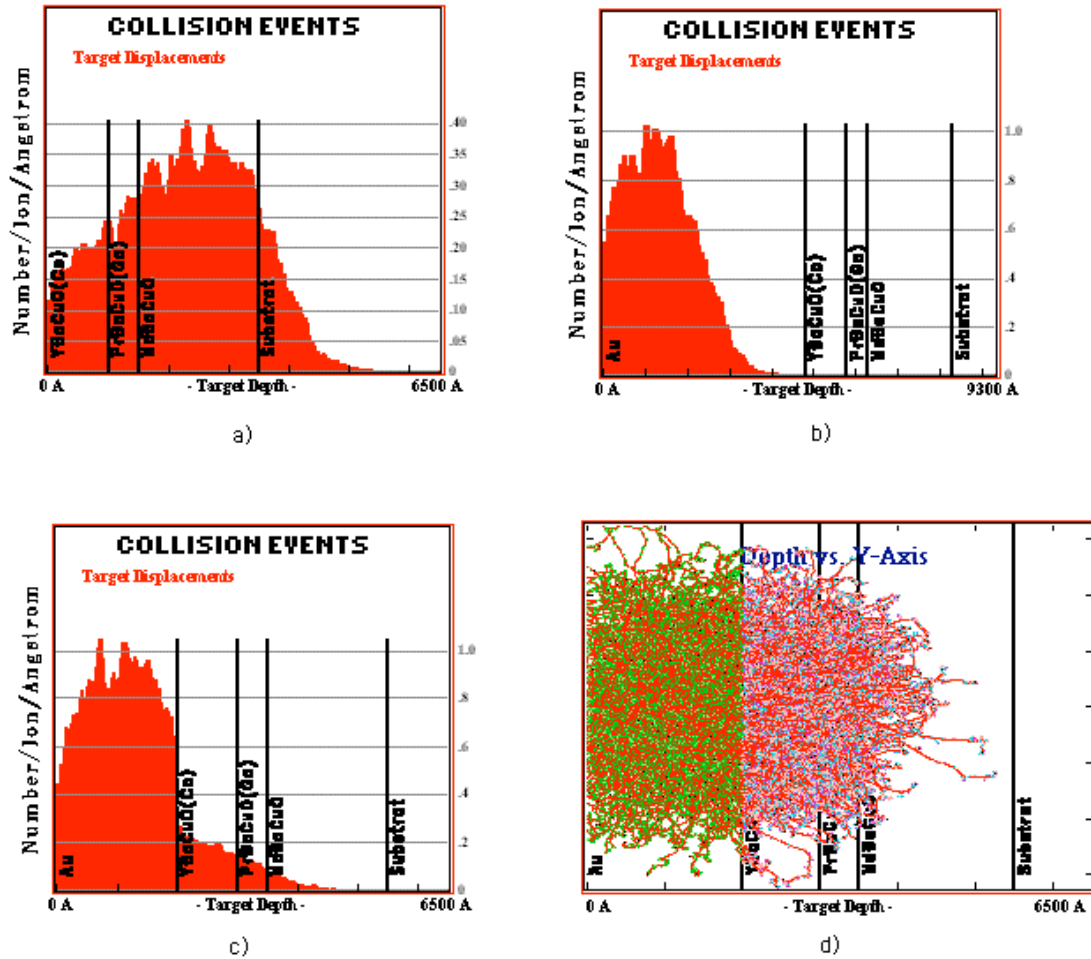


FIG. 5.6 – Simulation TRIM de l'irradiation des tricouche avec des ions oxygène d'énergie 250 KeV. a) Paramètre  $c$  en fonction de l'épaisseur dans les parties du tricouche non-protégées. b) Taux de défauts  $c$  en fonction de l'épaisseur dans les parties du tricouche protégées par une couche d'or d'épaisseur 5000 Å . c) Taux de défauts  $c$  en fonction de l'épaisseur dans les parties du tricouche protégées par une couche d'or de 2000 Å . d) Trajectoire des ions issue d'un faisceau infiniment fin, perpendiculaire à la surface de l'échantillon, dans le cas où le tricouche est recouvert d'une couche d'or de 2000 Å .

des couches d'or et de la couche inférieure de NBCO sont donc calculées en prenant une marge de sécurité.

En utilisant l'irradiation ionique, il n'y a pas de matière enlevée et la jonction est complètement encapsulée dans le tricouche. Ceci est l'un des points forts de notre technique qui permet d'éviter la perte d'oxygène par les flancs du mesa et le dépôt d'une couche d'isolant.

**Etape 4** Cette étape consiste à déposer les quatre électrodes en or qui permettront ensuite de contacter la jonction sur la canne de mesure. Pour cela, une résine négative AZ5214 est déposée sur l'échantillon et insolée à travers un troisième masque dont les motifs définissent les formes des contacts (fig 5.7 k et l) (photos fig 5.8 j et k). Une couche d'or est ensuite déposée et un lift-off est réalisé dans un solvant organique (fig 5.7 m et n). Deux électrodes sont ainsi connectées sur le dessus de la jonction et deux électrodes sont connectées au-dessous de la jonction via les deux mesas de taille plus importante et les chemins de courant définis par irradiation (fig 5.7 o) (photos fig 5.8 l).

**Etape 5** La dernière étape consiste à retirer les parties du masque d'or utilisé pour l'irradiation, qui court-circuitent la jonction. Pour cela un quatrième niveau de lithographie est réalisé de façon à ouvrir dans une résine positive deux motifs rectangulaires au-dessus des zones de court-circuit (fig 5.7 p). L'or est ensuite retiré par gravure chimique dans une solution de  $KI/I_2$  (fig 5.7 q), afin d'obtenir la structure définitive de la jonction (fig 5.7 r et s) (photos fig 5.7 m et n). Pour éviter d'avoir un trop grand nombre de contacts sur l'échantillon, les jonctions ont une électrode commune (photo fig 5.8 o).

En utilisant l'irradiation ionique, il n'y a pas de matière enlevée et la jonction est complètement encapsulée dans le tricouche. La couche d'or sur la jonction est celle qui a été déposée in-situ après la croissance ; à aucun moment lors de la fabrication, le mesa n'est en contact avec le milieu extérieur. Ceci est l'un des points forts de notre technique qui permet ainsi d'éviter toute dégradation de la jonction. Au cours de cette thèse nous avons développé plusieurs jeux de masques qui ont permis de faire évoluer la géométrie des jonctions. Dans la version finale, correspondant à la plupart des résultats présentés ici, 32 jonctions sont fabriquées sur chaque échantillon. La répartition est la suivante :

- ▶ 8 jonctions de  $40\mu m \times 40\mu m$
- ▶ 8 jonctions de  $20\mu m \times 20\mu m$
- ▶ 8 jonctions de  $10\mu m \times 10\mu m$
- ▶ 8 jonctions de  $5\mu m \times 5\mu m$

Le large choix de taille est essentiel, car il permet de s'assurer de la conformité de la fabrication en vérifiant que les grandeurs tels que le courant critique et la résistance varient proportionnellement à la surface de la jonction. Cependant, comme nous le verrons dans la suite, les jonctions les plus intéressantes sont les plus résistives, et la majorité des mesures ont été effectuées sur les jonctions de petites tailles  $5\mu m \times 5\mu m$  et  $10\mu m \times 10\mu m$ .

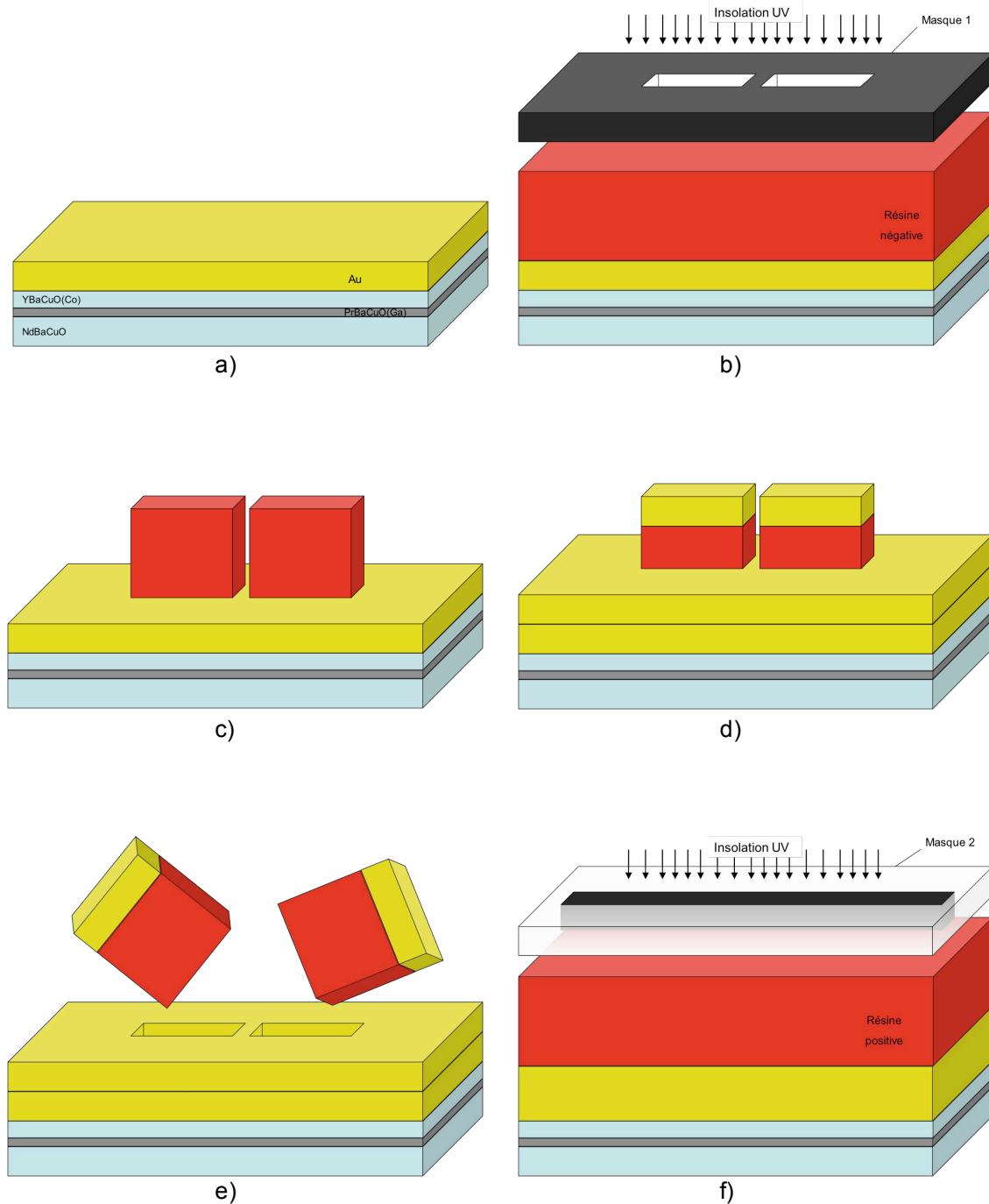
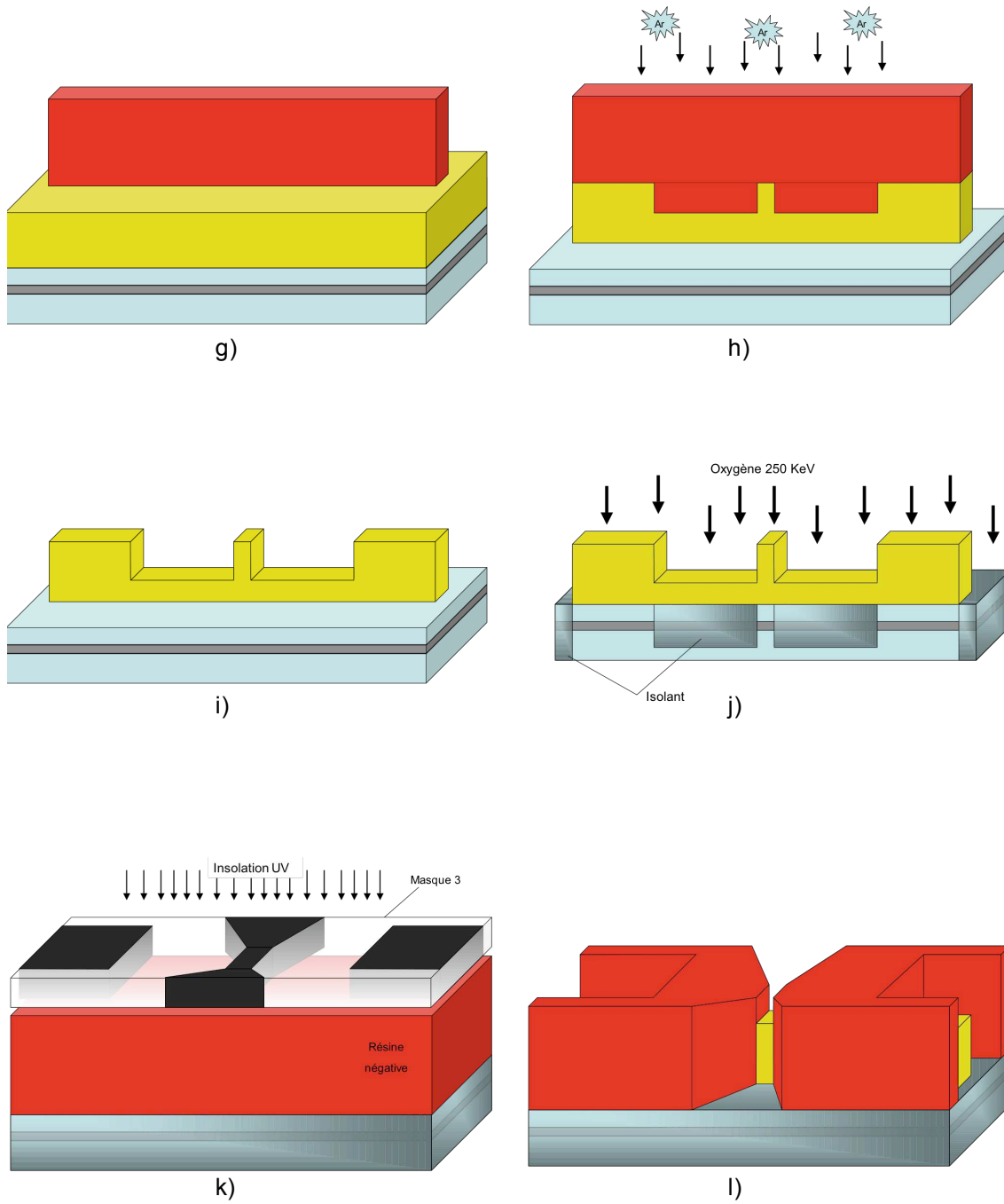
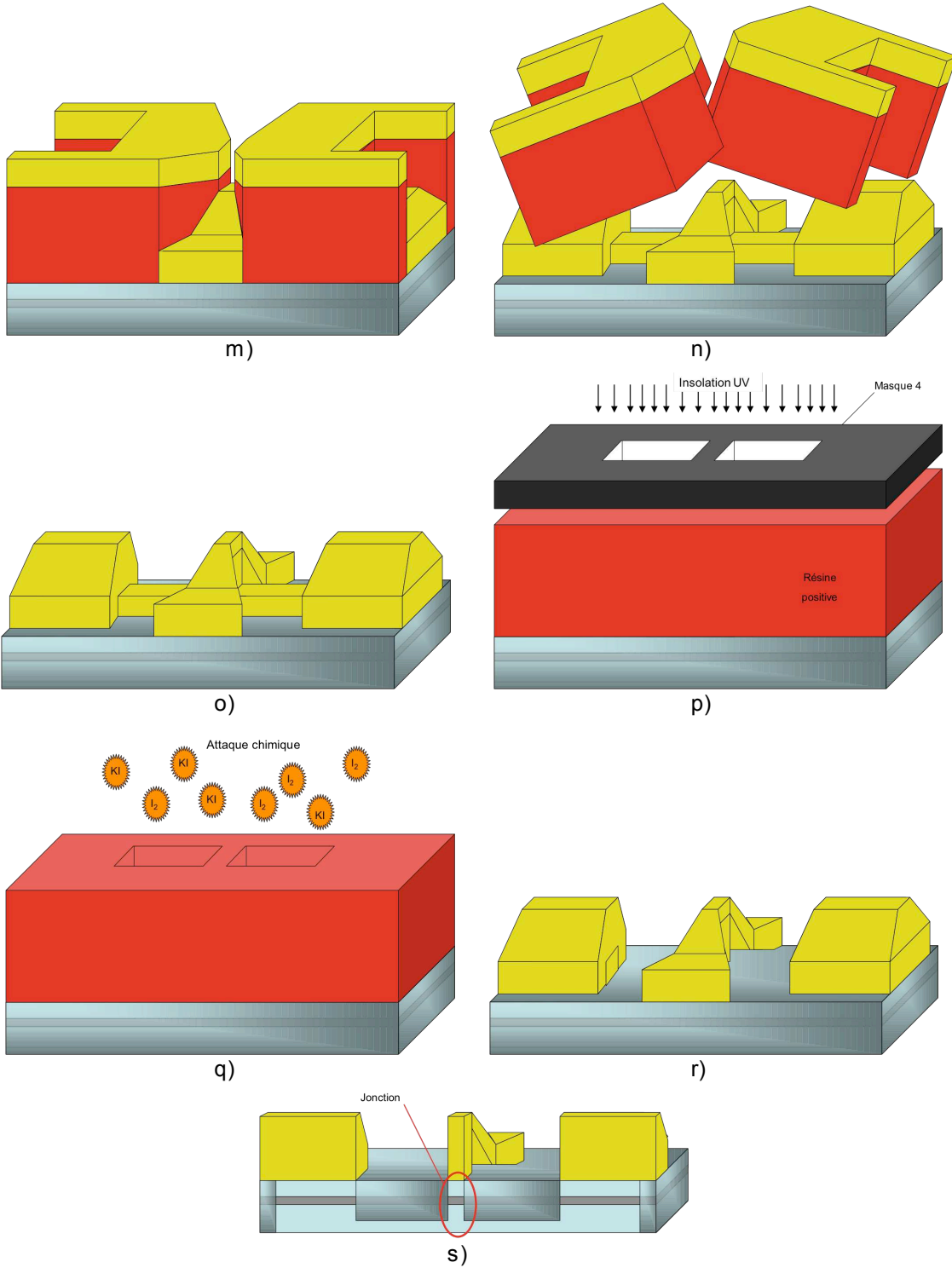


FIG. 5.7 – a) Tricouche recouvert d'une couche d'or de 2000 Å b) Insolation UV du premier niveau (Résine négative). c) Développement du premier niveau. d) Dépôt d'une couche d'or de 3000 Å . e) Lift-off dans l'acétone. f) Insolation UV du second niveau (résine positive). g) Développement du second niveau. h) Gravure de l'or par faisceau d'ions Argon (IBE). i) Masque d'or pour l'irradiation. j) Irradiation oxygène 250 KeV  $5.10^{15} \text{at/cm}^2$ . k) Insolation niveau 3 (résine négative). l) Développement du niveau 3. m) Dépôt d'une couche d'or 2800 Å . n) Lift-off dans l'acétone. o) Résultat après lift-off. p) Insolation niveau 4 (résine positive). q) Gravure de l'or par attaque chimique  $KI/I_2$ . r) Résultat final de la microfabrication. s) Vue en coupe de la jonction.







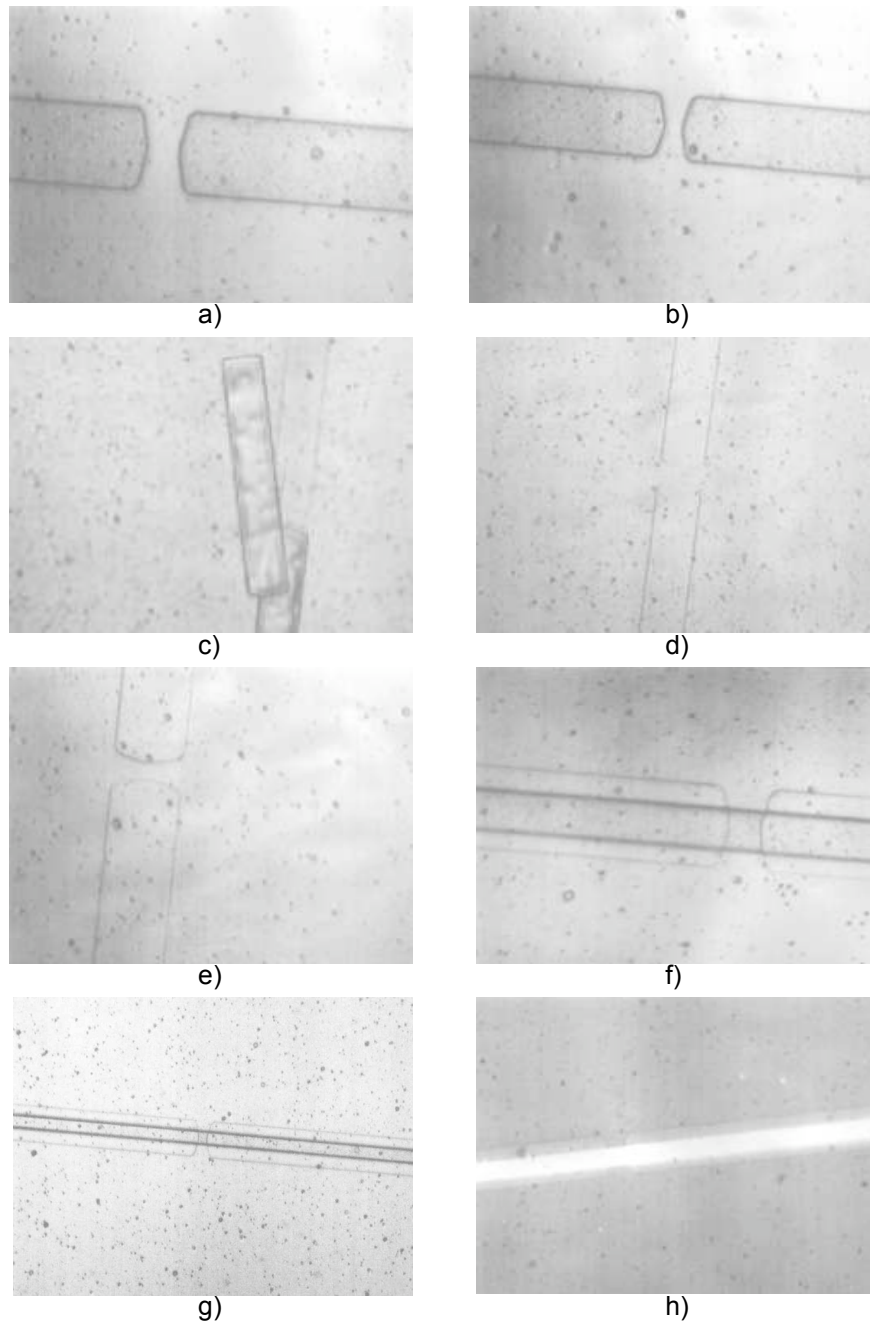
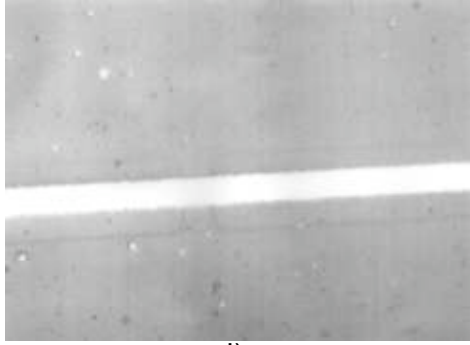


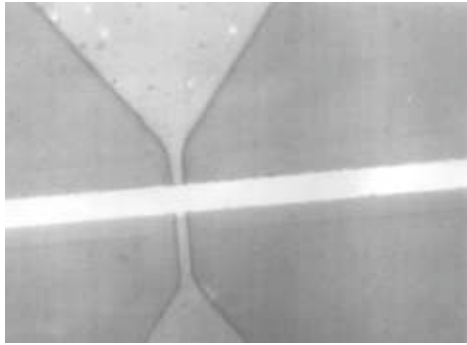
FIG. 5.8 – a) Premier niveau de résine d'une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . b) Premier niveau de résine d'un jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . c) Lift-off après métallisation : la résine est dissoute dans l'acétone et entraîne la couche d'or. d) Résultat du lift-off pour une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . e) Résultat du lift-off pour une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . f) Second niveau de résine d'une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . g) Second niveau de résine d'une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . h) Résultat de la gravure à l'Argon pour une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . i) Résultat de la gravure à l'Argon pour une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . j) Troisième niveau de résine d'une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . k) Troisième niveau de résine d'une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . l) Résultat de la métallisation et du lift-off pour une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . m) Résultat de l'attaque chimique pour une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ . n) Résultat de l'attaque chimique pour une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ . o) Vue d'ensemble d'un groupe de 2 jonctions.



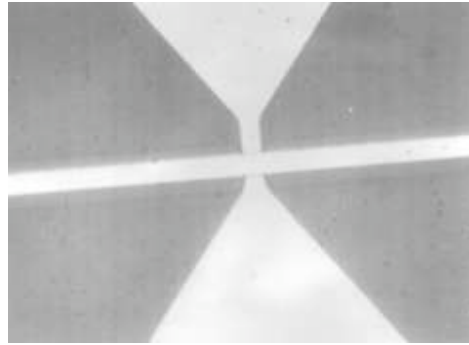
i)



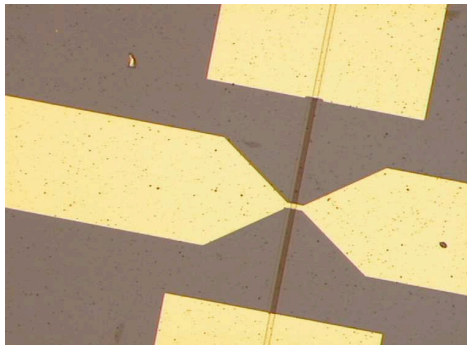
j)



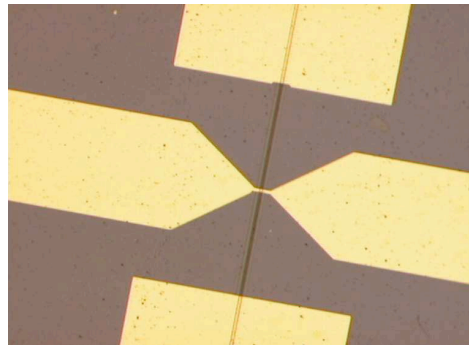
k)



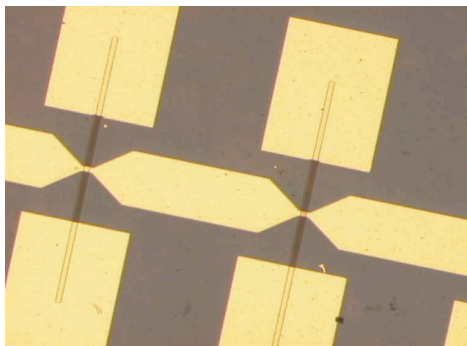
l)



m)



n)



o)

## 5.3 Résultats

### 5.3.1 Mesures $R(T)$

La figure 5.9 présente une caractéristique typique de résistance en fonction de la température mesurée sur une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière de PBCGO d'épaisseur 30 nm.

A  $T=90\text{K}$ , la contre électrode optimalement dopée devient supraconductrice, ce qui se traduit par une redistribution du courant dans la jonction et un léger saut de résistance apparente. En dessous de cette température, la résistance de la barrière ( $\approx 16\Omega$ ) et la couche d'or équipotentielle sur la jonction garantissent une distribution homogène du courant selon l'axe  $c$ . La résistance de la couche d'YBCO(Co) selon l'axe  $c$  et de la couche d'or étant négligeable ( $\sim 100\text{m}\Omega$ ), la résistance mesurée aux bornes de la jonction correspond alors à la résistance de la barrière de PBCGO. Lorsque la température devient inférieure à la température de transition de la couche sous-dopée d'YBCO(Co) ( $T_c^{SD} = 61\text{K}$ ), un couplage Josephson apparaît entre les deux supraconducteurs, et la résistance de la jonction devient nulle.

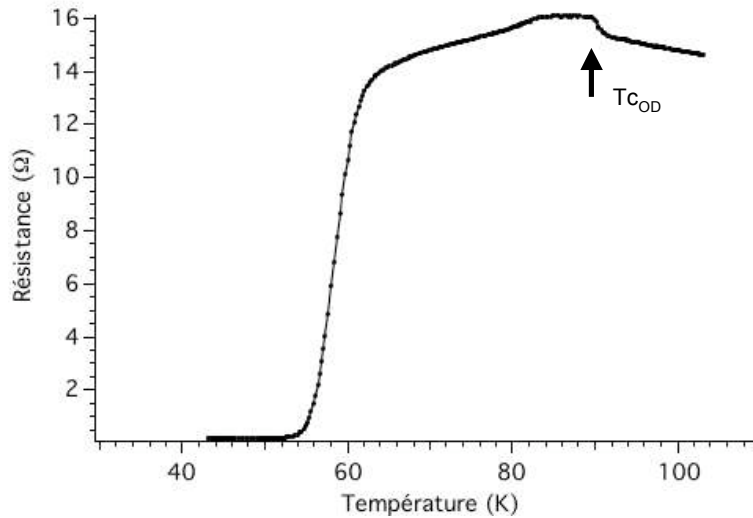


FIG. 5.9 – Mesure  $R(T)$  d'une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière de 30 nm de PBCGO. La flèche indique le léger saut de résistance correspondant à la  $T_c$  de la couche optimalement dopée (90K).

Dans une structure tricouche comme la nôtre,  $T_c^{SD}$  ne peut se mesurer que de façon indirecte, via l'apparition du couplage Josephson car la couche OD court-circuite toute mesure dans le plan de l'échantillon. Afin de s'assurer que cette température correspond bien à  $T_c^{SD}$ , nous avons également mesuré la température de transition d'une couche d'YBCO(Co) par magnétométrie à SQUID<sup>7</sup>. Pour se rapprocher le plus des conditions de croissance du tricouche, cette couche a été déposée sur 1000 Å de PBCGO. La  $T_c$  mesurée est d'environ 63K, ce qui est cohérent avec la température à laquelle apparaît le couplage Josephson (fig 5.10).

Les deux températures (61K et 90K) définissent les limites du régime d'intérêt de notre expérience dans lequel le composé optimalement dopé est dans l'état supraconducteur et le composé sous-dopé est dans l'état de pseudogap.

<sup>7</sup>Les mesures d'aimantation par magnétomètre à SQUID-dc sont les mieux adaptées pour des mesures de  $T_c$  de par leur précision et le fait qu'elle sonde la totalité de l'échantillon.

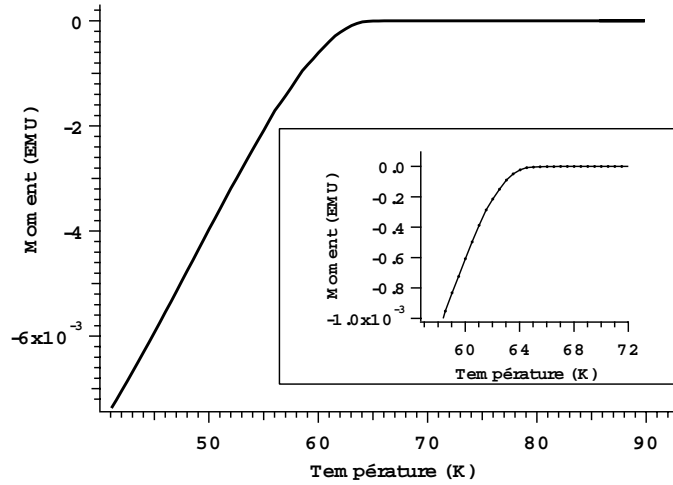


FIG. 5.10 – Mesure d’aimantation en fonction de la température, d’une couche de YBCO(Co) déposée sur une couche de 1000 Å de PBCGO, effectuée par magnétométrie à SQUID. Insert, zoom sur les températures proches de  $T_c$ .

## 5.3.2 Effet Josephson

### 5.3.2.1 Caractéristiques $I(V)$

Avant de s’intéresser au régime intermédiaire de température ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ ), il faut s’assurer qu’à basse température, lorsque les deux électrodes sont à l’état supraconducteur ( $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ ), la jonction présente bien le couplage Josephson nécessaire à la réalisation de l’expérience.

Les figures 5.11 et 5.12 présentent les caractéristiques courant-tension à différentes températures de deux jonctions de dimensions  $5\mu m \times 5\mu m$  et  $10\mu m \times 10\mu m$  ayant respectivement des barrières d’épaisseurs 30 nm et 50 nm. Les courbes sont de type Josephson RSJ (Resistively Shunted Junction) à la limite du comportement hystérétique, ce qui correspond à une valeur du paramètre  $\beta_J$  proche de l’unité (cf section 2.2.4). La légère pente du supercourant Josephson est due à la résistance en série de l’électrode en or ( $\sim 100m\Omega$ ) sur le dessus de la jonction. Dans le régime Josephson, cette électrode n’est pas nécessaire, les deux composés étant supraconducteurs, le courant se répartit de façon homogène à travers la barrière. En revanche, dans le régime intermédiaire ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ ), la résistance latérale de la couche sous-dopée à l’état normal, peut être supérieure à celle de la barrière et le rôle de l’électrode en or devient fondamental pour garantir une distribution homogène du courant dans la jonction.

A 4,2K, la jonction de la figure 5.11 présente une résistance  $R_n$  de  $10\Omega$  et un courant critique de  $200\mu A$ , soit un produit  $I_c R_n$  de l’ordre de  $2mV$ . La jonction de la figure 5.12 de barrière moins épaisse mais de surface 4 fois plus petite, présente une résistance  $R_n$  de  $16\Omega$  et un courant critique de  $100\mu A$ , soit un produit  $I_c R_n$  de l’ordre de  $1.6mV$ . La figure 5.13 montre l’évolution du courant critique en fonction de la température de la jonction de  $10\mu m \times 10\mu m$  ayant une barrière de 50nm. La dépendance en température ne correspond pas à une loi d’Ambegaokar-Baratof, ce qui confirme que la jonction n’est pas de type tunnel SIS (cf section 2.2.1). La décroissance ne correspond pas non plus à une loi de puissance attendue pour une jonction SNS (cf 2.3.2.3), indiquant ainsi que la barrière de PBCGO ne se comporte pas comme dans ces deux limites.

Pour s’assurer que les caractéristiques  $I(V)$  correspondent bien à un couplage Josephson nous nous sommes intéressés au comportement des jonctions sous irradiation micro-ondes et sous champ magnétique.

### 5.3.2.2 Effet des micro-ondes

Nous utilisons un générateur de micro-ondes dont la fréquence peut être réglée entre 4 et 10 Ghz. Un atténuateur de 0 à 50 dB est placé à la sortie de la source de façon à en modifier la puissance. Le cryostat est équipé d’une tige semi-rigide en Cu-Be adaptée pour les hautes fréquences ( $< 18GHz$ ) qui se termine par quelques millimètres d’âme dénudée assurant le rôle d’antenne au-dessus de l’échantillon. En règle

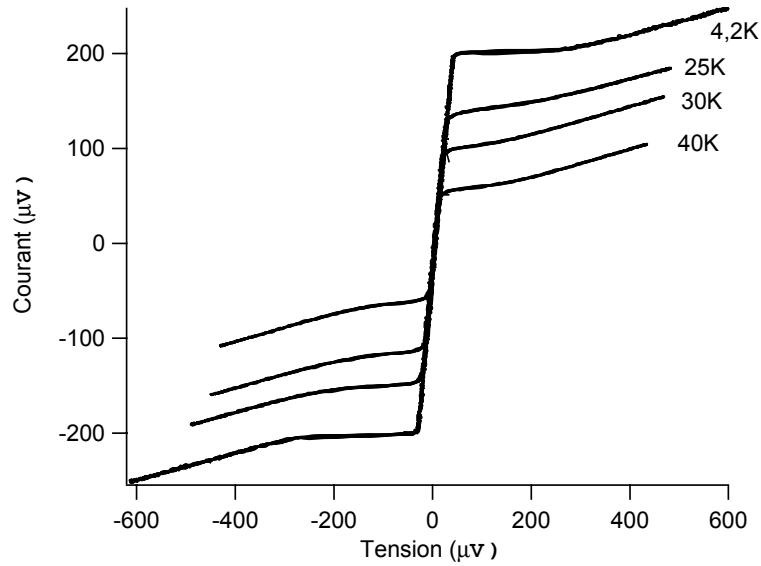


FIG. 5.11 – Caractéristiques  $I(V)$  à différentes températures d'une jonction  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  avec une barrière de 50nm. La pente du courant Josephson est due à la résistance en série de l'électrode en or.

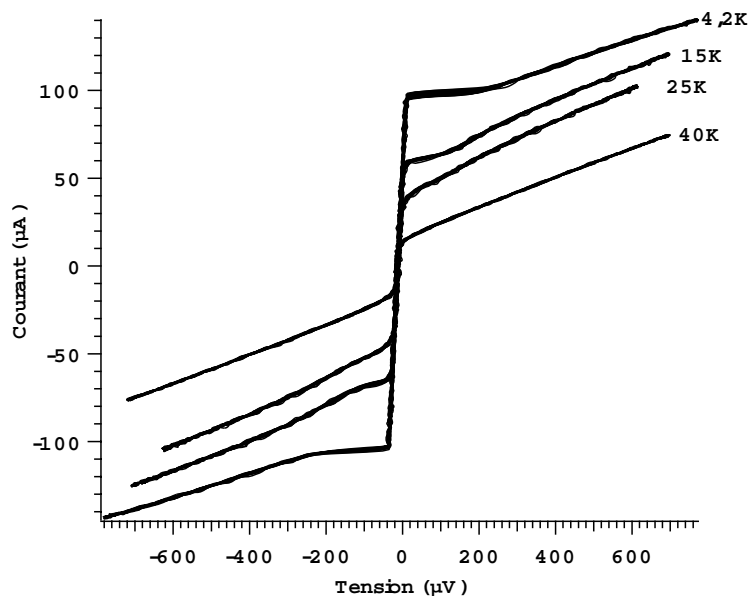


FIG. 5.12 – Caractéristiques  $I(V)$  à différentes températures d'une jonction  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  avec une barrière de 30nm. La pente du courant Josephson est due à la résistance en série de l'électrode en or.

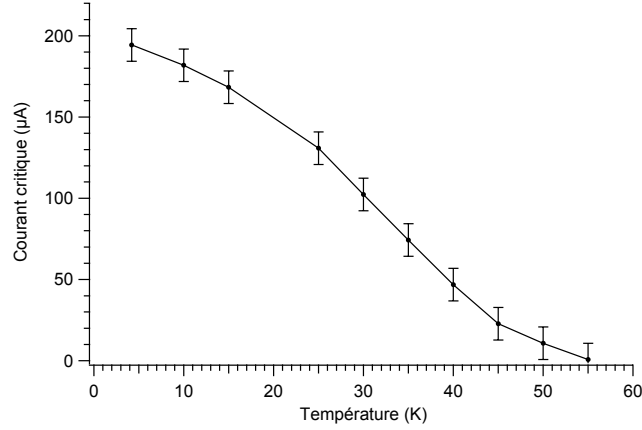


FIG. 5.13 – Evolution du courant critique Josephson en fonction de la température d’une jonction  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  ayant une barrière de 50nm.

générale, la puissance des micro-ondes qui se couple à l’échantillon n’est pas connue de façon absolue mais elle peut être modifiée grâce à l’atténuateur .

Les figures 5.14 et 5.15 montrent les caractéristiques  $I(V)$  des deux jonctions lorsqu’elles sont soumises à une radiation micro-ondes de fréquence 8 GHz. Les courbes font clairement apparaître des marches de Shapiro de largeur en tension  $\sim 16\mu\text{V}$ . En faisant varier la fréquence  $f_0$  de la radiation, nous vérifions que la longueur des marches en tension satisfait bien la relation linéaire  $V = \frac{h}{2e}f_0$ . La régression linéaire des données expérimentales de la figure (5.16) donne  $\frac{V}{f_0} \approx 482\text{MHz}/\mu\text{V}$  ce qui est proche de la valeur théorique  $\frac{h}{2e} = 483,6\text{MHz}/\mu\text{V}$ .

A faible puissance, seules les premières marches ( $n=0, 1, 2$ ) sont visibles dans les caractéristiques  $I(V)$ . Lorsque la puissance est augmentée, les marches d’ordres supérieurs apparaissent les unes après les autres. La figure 5.17 décrit l’évolution des marches de Shapiro  $n=0$  (courant critique) et  $n=1$  en fonction de la puissance des micro-ondes. Nous vérifions bien que la hauteur des marches en courant oscille en fonction de la puissance comme cela est attendu d’après les équations Josephson (cf section 2.2.5.2). Etant donné que nous n’utilisons pas de système d’adaptation d’impédance, le fonctionnement de la jonction sous irradiation micro-ondes devrait être mieux décrit par un modèle de source de courant que par un modèle de source de tension. L’amplitude de modulations des marches  $n=0$  et  $n=1$  étant très faible ( $\sim 10\mu\text{A}$ ) par rapport à la valeur du courant critique, on s’attend à obtenir une valeur de la pulsation sans dimension  $\zeta$  très inférieure à 1 (cf section 2.2.5.2). En tenant compte du courant critique, de la résistance de la jonction et de la fréquence des radiations, le calcul donne  $\zeta = \frac{\Phi_0\omega_0}{2\pi R I_c} \sim 0.01$ , ce qui est cohérent avec les résultats. En l’absence d’un code numérique efficace pour la résolution de l’équation (2.72), il n’a pas été possible de parvenir à une description quantitative des modulations de la hauteur des marches en fonction de la puissance.

Les marches de Shapiro ne peuvent être observées que lorsque les deux équations Josephson sont vérifiées. Cette étude des caractéristiques  $I(V)$  sous irradiation micro-ondes nous a donc permis de confirmer l’existence d’un couplage Josephson entre les deux couches supraconductrices lorsque  $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ . Sur toutes les jonctions étudiées nous n’avons jamais observé de marches à des valeurs demi-entières de  $n\frac{h}{2e}f_0$  ce qui montre que la relation courant phase est essentiellement sinusoïdale. S’ils existent, les termes anharmoniques ont donc un poids très faible.

### 5.3.2.3 Effet d’un champ magnétique parallèle à la jonction

Le second test caractéristique de l’effet Josephson consiste à appliquer un champ magnétique parallèle à la jonction, le courant critique doit alors moduler avec une période équivalente à un quantum de flux  $\phi_0 = \frac{h}{2e}$  à travers la jonction. La géométrie de nos jonctions ( $L = 5\mu\text{m}$  et  $l = 2\lambda + d \sim 3000\text{Å}$ ) devrait donner des valeurs de champ correspondant à  $\Phi_0$  de l’ordre de la dizaine de Gauss. Lorsque nous effectuons la mesure, nous n’observons pas de modulations franches du courant critique (fig 5.18). Il semble cependant qu’il existe des modulations de faible amplitude à l’échelle de quelques dizaines de Gauss qui se

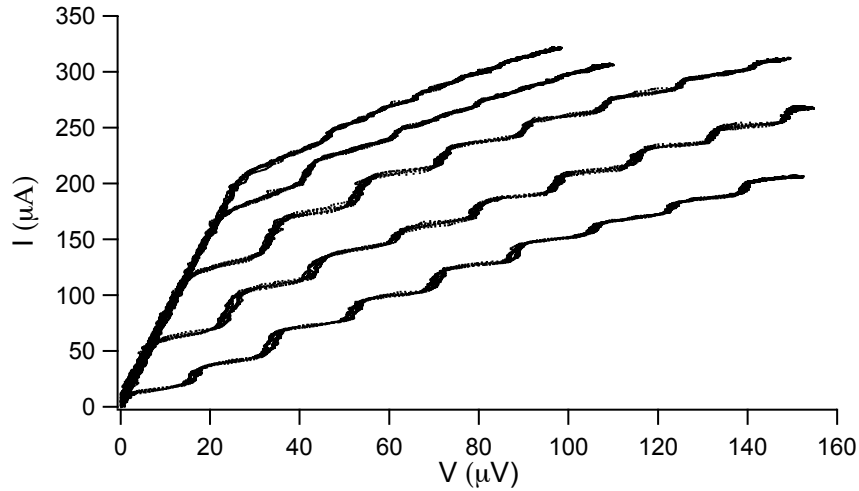


FIG. 5.14 – Branches positives de caractéristiques  $I(V)$  d'une jonction ( $10\mu m \times 10\mu m$ , barrière 50 nm) soumise à une radiation micro-ondes de fréquence  $f_0 = 8GHz$  obtenues pour différentes puissances. A faible puissance seules les marches d'ordre  $n=0, 1$  et  $2$  sont visibles (courbe du haut). En augmentant la puissance, on fait apparaître les marches d'ordres supérieures.

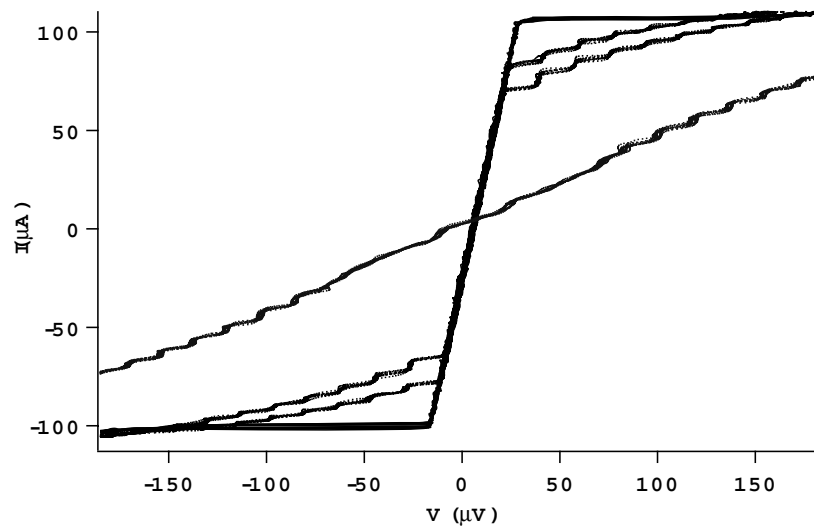


FIG. 5.15 – Caractéristiques  $I(V)$  d'une jonction ( $5\mu m \times 5\mu m$ , barrière 30 nm) soumise à une radiation micro-ondes de fréquence  $f_0 = 8GHz$  obtenues pour différentes puissances de micro-ondes.

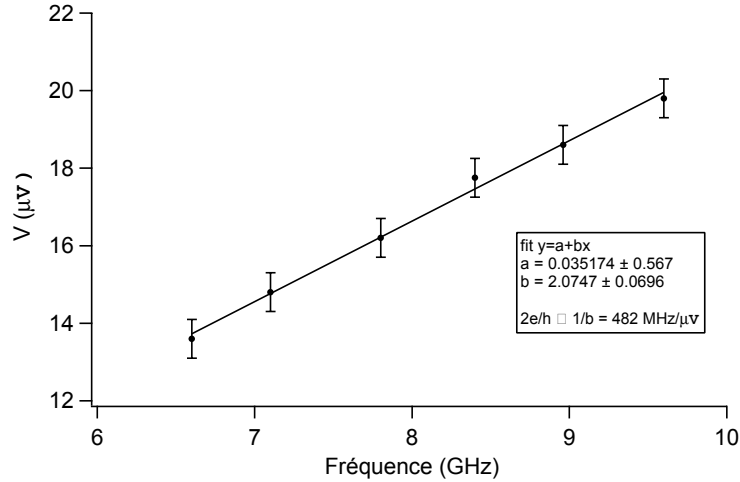


FIG. 5.16 – Vérification de la relation linéaire entre la fréquence des radiations micro-ondes et la largeur en tension des marches de Shapiro. Les points correspondent aux données expérimentales. La régression linéaire (en trait plein) donne  $\frac{V}{f_0} \approx 482 \text{ MHz}/\mu\text{V}$ , ce qui est proche de la valeur théorique  $\frac{h}{2e} = 483,6 \text{ MHz}/\mu\text{V}$ .

superposent à des variations à plus grande échelle. Lorsque le champ est augmenté jusqu'à 4 T, le courant critique diminue en moyenne mais nous n'avons jamais réussi à l'annuler complètement.

Si on calcule la longueur de pénétration Josephson pour la jonction de la figure (5.18) de dimensions ( $L = 5 \mu\text{m}$  et  $l \sim 3000 \text{ \AA}$ ), on obtient  $\lambda_J \approx 14 \mu\text{m}$ . On devrait donc se trouver dans une configuration de jonction étroite (à la limite) où les modulations devraient être observées. Si on s'intéresse aux résultats concernant les jonctions YBCO/PBCO/YBCO, publiés dans la littérature scientifique, on s'aperçoit que les modulations du courant critique sont très souvent rapportées dans le cas de jonctions orientées dans le plan (axe  $a$  ou  $b$ ) [149]. En revanche, à notre connaissance, les résultats concernant les jonctions orientées selon l'axe  $c$  sont plus ambigus. Des modulations du courant critique sont parfois observées mais leur forme révèlent des distributions de courant non homogènes et des effets de bord importants [52].

L'étude des marches de Shapiro nous indiquent pourtant la validité du couplage Josephson et il est donc surprenant de ne pas observer les modulations de  $I_c$  qui découlent des mêmes équations. Une explication plausible pourrait être liée à la nature de la barrière de PBCGO. Ce matériau est connu pour comporter des états localisés (section 5.2.2) qui définissent des canaux de conduction à travers la barrière. Dans l'hypothèse où ces canaux seraient séparés d'une distance supérieure à  $\xi$ , la distribution du supercourant ne serait alors plus homogène à l'échelle de la barrière. La surface correspondant à une quantum de flux  $\Phi_0$  ne serait donc plus liée à la géométrie de la jonction mais à la celle des canaux de dimensions bien inférieures. Il est difficile de déterminer les paramètres des états localisés à partir de nos données car nous ne disposons pas de suffisamment d'échantillons d'épaisseurs. Les études réalisées par d'autres groupes montrent que la taille caractéristique d'un état est de l'ordre de quelques nanomètres [149], ce qui représente des champs correspondant à  $\Phi_0$  supérieurs à 100T. De plus, une distribution de canaux en parallèles dans la jonction pourrait éventuellement donner lieu à des effets d'interférences, ce qui se traduirait par des caractéristiques  $I_c(B)$  complexes dans lesquelles plusieurs échelles apparaîtraient (dimensions des canaux, distances entre les canaux, taille de la jonction...).

Dans le cas de l'irradiation micro-ondes, les caractéristiques des marches de Shapiro ne font pas intervenir de paramètre géométrique<sup>8</sup> ce qui explique que, malgré la nature de la barrière, nous avons observé un comportement tout à fait conforme à celui prédit par les équations Josephson.

<sup>8</sup>Rigoureusement, la géométrie peut intervenir de façon indirecte, dans les modulations des marches en fonction de la puissance, via la résistance de la jonction.



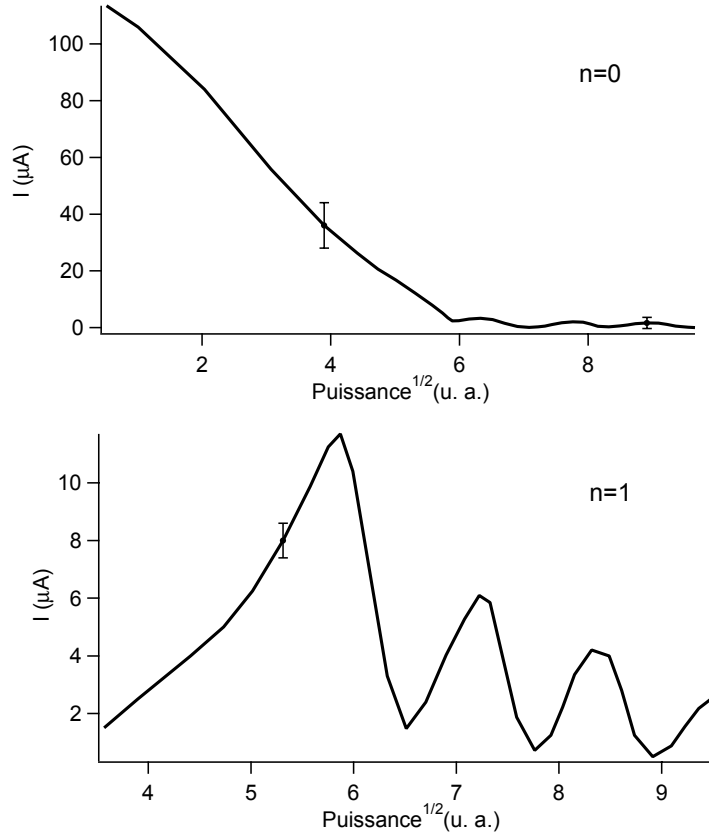


FIG. 5.17 – Evolution de la hauteur des marches de Shapiro  $n=0$  (figure du haut) et  $n=1$  (figure du bas) en fonction de la puissance des micro-ondes pour une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  ayant une barrière d'épaisseur 50 nm et soumise à une radiation de fréquence 8 GHz.

### 5.3.3 Transport de quasiparticules à travers la barrière de $PrBa_2Cu_{2.8}Ga_{0.2}O_7$

#### 5.3.3.1 Transport de quasiparticules à $T_c^{SD} < T \approx T_c^{OD}$

Avant de s'intéresser à la contribution des fluctuations au courant de paires, il est nécessaire de bien caractériser le transport de quasiparticules à travers la barrière. Les caractéristiques  $I(V)$  que nous avons présentées dans les paragraphes précédents, permettent de mesurer le courant critique des jonctions mais ne sont pas suffisamment sensibles pour une étude approfondie du transport à énergie non nulle. On préférera donc mesurer la conductance dynamique  $G = \frac{dI}{dV}$  de la jonction à l'aide de la technique de détection synchrone décrite dans le chapitre 3 (section 3.5). Nous avons vu dans la section 5.2.2 que le transport de quasiparticules dans PBCGO est généralement décrit par le modèle de Glazman et Matveev de sauts à travers les états localisés. La conductance est alors donnée par une somme de puissance de  $V$

$$G(V) = \sum_{n=1} \alpha_n V^{(n^2+n-2)/(n+1)} \quad (5.7)$$

où  $n$  est le nombre d'états localisés.

Pour vérifier ce comportement, il faudrait en principe se placer dans un régime de température où les deux couches de supraconducteurs optimalement dopé et sous-dopé sont à l'état normal. En effet, comme nous allons le voir dans la suite, la présence de supraconductivité dans les couches en contact avec la barrière ajoute des contributions supplémentaires qui mettent en jeu les quasiparticules (réflexion d'Andreev) et peuvent modifier la relation (5.7). Le problème que nous rencontrons est que lorsque la contre-électrode optimalement dopée n'est plus dans l'état supraconducteur, les résistances latérales dans

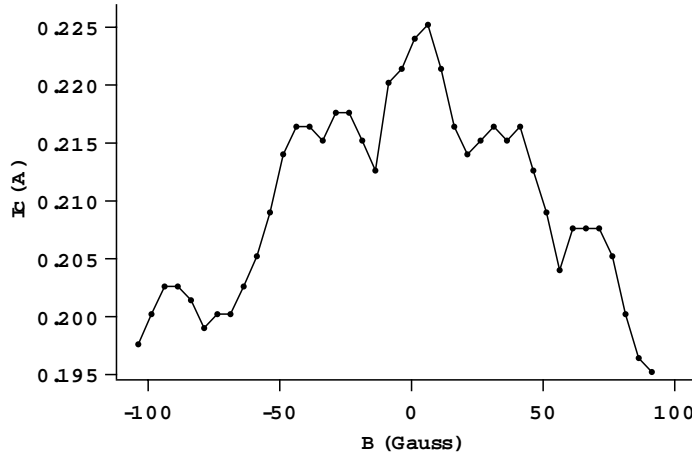


FIG. 5.18 – Courant critique d’une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  (barrière 30 nm) en fonction d’un champ magnétique parallèle au plan de la jonction.

le plan ( $a, b$ ) des couches supraconductrices sont du même ordre de grandeur que la résistance de la barrière. La distribution de courant n’est plus homogène dans la jonction et la mesure est alors impossible. Cependant, il existe une solution qui consiste à réaliser la mesure à une température quelques Kelvin en dessous de  $T_c^{OD}$  lorsque le gap supraconducteur de la couche optimalement dopée est en train de se fermer. Les modifications de la conductance dues aux effets de la supraconductivité sont alors minimales et restreints aux basses énergies. La figure 5.19 présente les résultats obtenus sur une jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  ayant une barrière d’épaisseur 50nm.

La conductance est correctement ajustée par une loi correspondant à trois états localisés  $G = G_0 + \alpha V^{4/3} + \beta V^{5/2}$ . Comme nous le verrons dans la suite, la conductance des jonctions d’épaisseur 30nm dépend très peu de la tension et de la température et il est difficile de s’affranchir des effets liés à la supraconductivité de la contre-électrode optimalement dopée. Pour cette raison il n’a pas été possible de réaliser un ajustement rigoureux des données. Cependant, compte tenu du fait que le transport à travers une barrière de 50nm est bien décrit par une loi de conductance à trois états localisés, on s’attend logiquement à ce que le transport à travers une barrière plus fine (30nm) met en jeu 1 ou 2 états localisés ce qui correspondrait à une loi de conductance du type  $G = G_0 + \alpha V^{4/3}$ .

### 5.3.3.2 Transport de quasiparticules à $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$

La figure 5.20 montre les mesures de conductance dynamique  $G = \frac{dI}{dV}$  en fonction de la tension, effectuées sur une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière de 30nm pour différentes températures  $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ . A énergie nulle, le pic correspondant à la conductance infinie du courant Josephson a été coupé. A haute énergie ( $V > 40\text{mV}$ ), la conductance ne montre qu’une faible dépendance avec la tension et la température, ce qui est cohérent avec une loi de transport de quasiparticules à travers seulement 1 ou 2 états localisés comme nous l’avons évoqué dans le paragraphe précédent. A plus basse énergie on observe d’abord une chute nette de la conductance en dessous de  $40\text{mV}$  puis celle-ci commence à augmenter lorsque l’énergie diminue.

La figure 5.21 montre les mesures de conductance dynamique effectuées sur une jonction ayant une barrière d’épaisseur de 50nm. A haute énergie, la conductance a une dépendance importante avec la température et l’énergie qui correspond à la conductance à travers 3 états localisés de la figure 5.19. Il n’y a pas de chute de la conductance comme cela est observé sur les jonctions ayant une épaisseur de barrière moins importante. En revanche, à partir de  $\sim 100\text{mV}$  la conductance augmente lorsque l’énergie diminue.

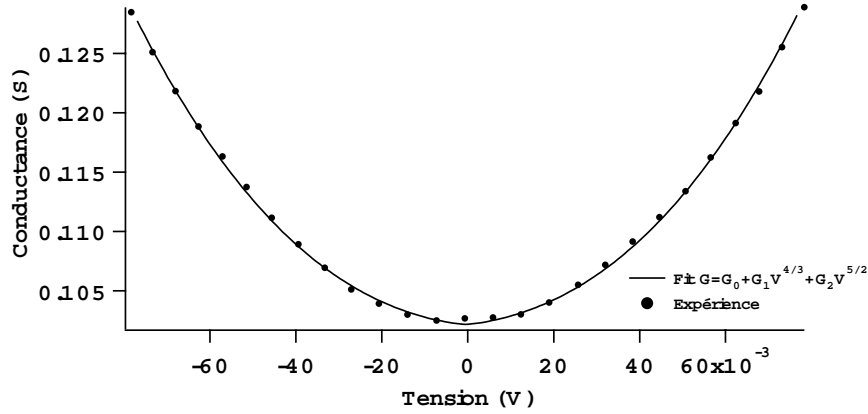


FIG. 5.19 – Conductance en fonction de la tension à  $T=85\text{K}$  d'un jonction de  $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  avec une barrière de 50 nm. Les points correspondent aux données expérimentales et la courbe en trait plein à l'ajustement obtenu à partir de la loi de Glazman et Matveev pour trois états localisés. La température de la mesure correspond à la limite inférieure de  $T_{cOD}$ . A basse énergie, il reste un léger effet de la supraconductivité du composé optimalement dopé ce qui explique que l'ajustement est moins bon.

### 5.3.3.3 Interprétation

Plus l'épaisseur de la barrière est importante, plus les mécanismes qui dominent le transport de quasi-particules mettent en jeu un grand nombre d'états localisés. Comme seuls les mécanismes de tunnel direct et de tunnel résonnant à travers 1 état localisé sont élastiques, les jonctions ayant des barrières de faible épaisseur où ces mécanismes ont un poids non négligeable, feront apparaître un effet de densité d'états lié aux gaps supraconducteurs. C'est le cas de la jonction de la figure (5.20) où on observe une chute de la conductance en dessous de 40 mV. Dans une géométrie  $c$ -axis, cette tension devrait correspondre à  $\frac{\Delta_{SD} + \Delta_{OD}}{e}$ .  $\Delta_{OD}$  étant généralement estimé à  $\sim 20\text{meV}$  dans le cas d' YBCO, la valeur mesurée de  $40\text{meV}$  est donc tout à fait raisonnable même si on s'attend à ce que  $\Delta_{SD}$  soit légèrement supérieure à  $20\text{meV}$ . Lorsque la température augmente, la perte de conductance est moins importante, ce qui correspond à l'effet attendu de la température sur les gaps supraconducteurs. En revanche, dans le cas de la jonction de la figure 5.21 ayant une barrière d'épaisseur 50 nm, les mécanismes élastiques ont une probabilité plus faible et il n'y a pas de chute de conductance associée aux gaps supraconducteurs.

Nous nous intéressons maintenant à l'augmentation de conductance observée à basse énergie. Ce phénomène est présent sur les jonctions de toutes dimensions et son amplitude relative reste identique (fig 5.22 et 5.23). Ceci élimine la possibilité d'effets de bords éventuellement liés à la microfabrication, qui dans ce cas, devraient être plus importants sur les jonctions de petites tailles. Il s'agit donc d'un phénomène intrinsèque à la physique des jonctions.

Nous pensons que ce phénomène peut être attribué à des mécanismes de réflexion d'Andreev à l'interface entre les états localisés et la barrière. Lorsque les deux électrodes sont à l'état supraconducteur, les réflexions ont lieu à chacune des interfaces de la barrière. Cela se traduit par la présence de résonances (Multiple Andreev Reflexion -MAR-) à des énergies correspondant à des fractions de  $\frac{\Delta_{SD} + \Delta_{OD}}{e}$  qui apparaissent clairement sur la fig 5.24 à basse température. Lorsque la température est augmentée, les résonances s'estompent, ce qui est cohérent avec un mécanisme lié à un effet de densité d'états comme c'est le cas des MAR. La possibilité de réflexion d'Andreev à travers des états localisés a été suggérée et analysée par Devyatov (cf section 5.2.2). Dans le cas d'une jonction SIS où l'isolant contient un état localisé, il obtient des caractéristiques courant-tension qui présentent une augmentation de conductance à basse énergie, similaires à ce que nous observons (fig 5.4 d).

Dans le cas de la jonction plus épaisse de la figure 5.21 l'augmentation de conductance commence à apparaître à une énergie beaucoup plus importante ( $\sim 100\text{mV}$ ). En toute rigueur le mécanisme de réflexion

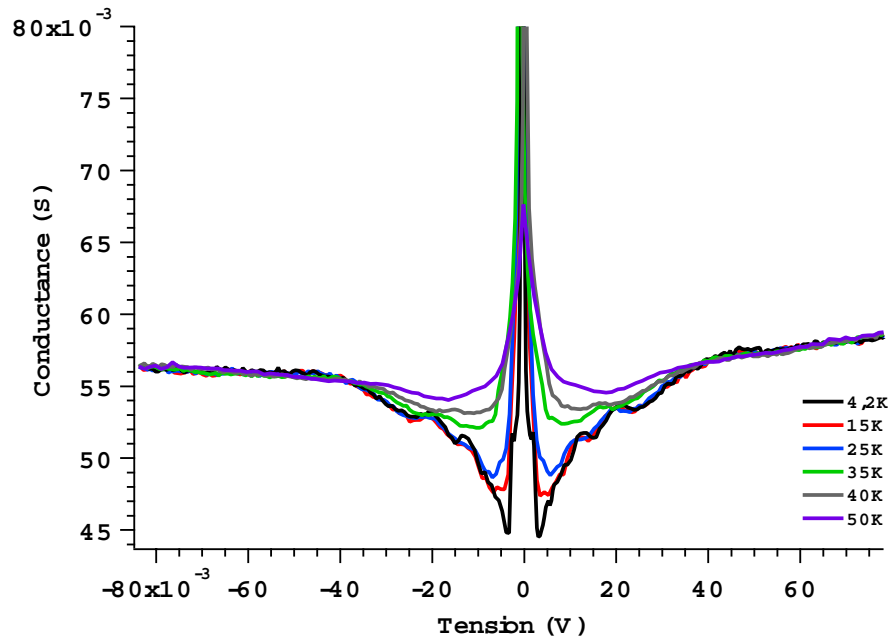


FIG. 5.20 – Conductance en fonction de la tension d’une jonction  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière de 30 nm pour différentes températures  $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ .

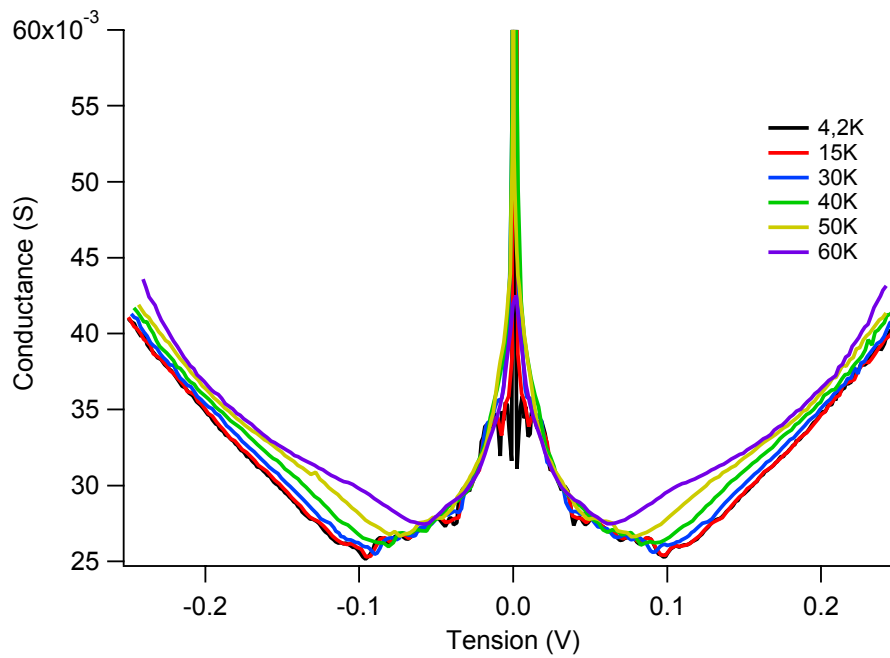


FIG. 5.21 – Conductance en fonction de la tension d’une jonction  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière de 50 nm pour des températures  $T < T_c^{SD} < T_c^{OD}$ .

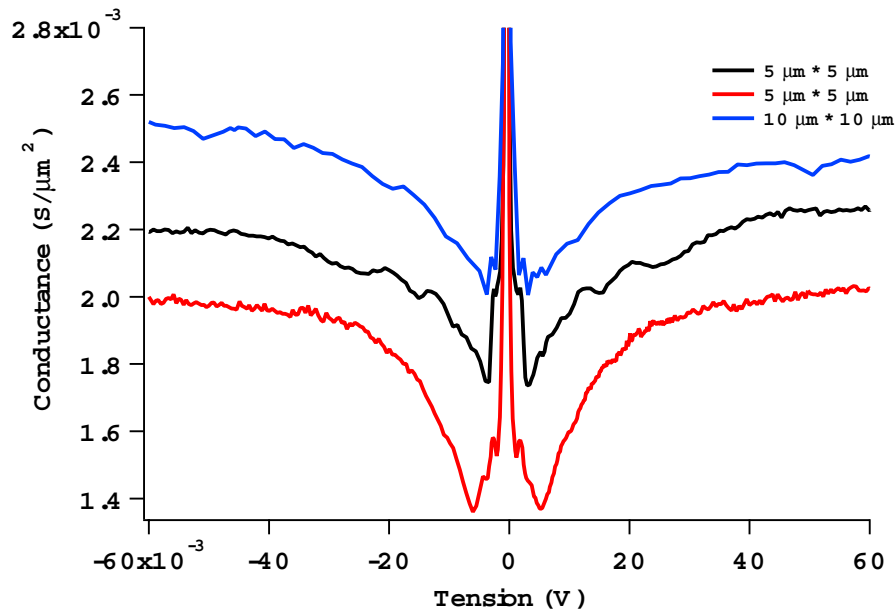


FIG. 5.22 – Comparaison de la conductance en fonction de la tension à  $T=4,2K$  pour 3 jonctions différentes ayant une barrière de 30 nm. La conductance a été normalisée par unité de surface.

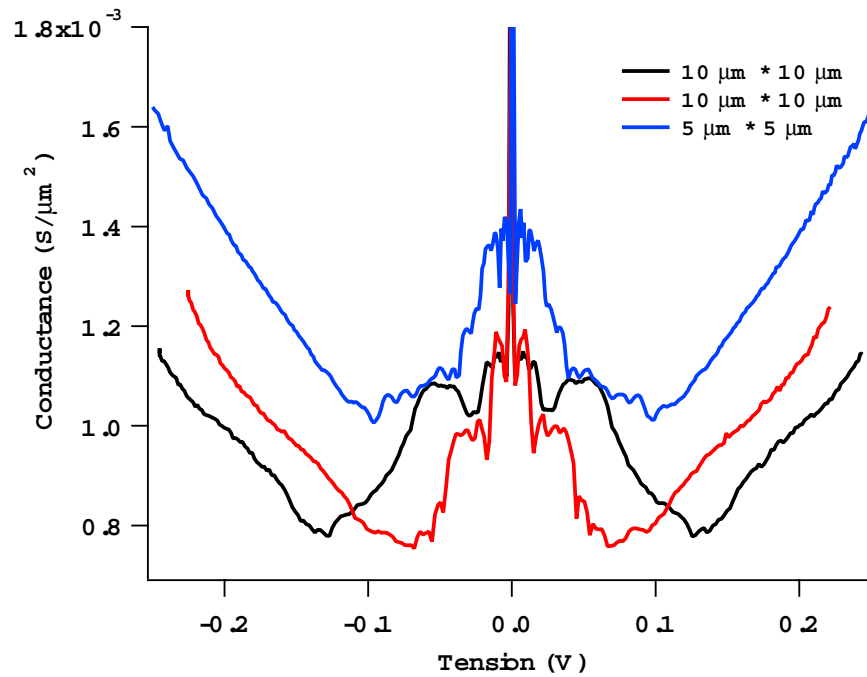


FIG. 5.23 – Comparaison de la conductance en fonction de la tension à  $T=4,2K$  pour 3 jonctions différentes ayant une barrière de 50 nm. La conductance a été normalisée par unité de surface.

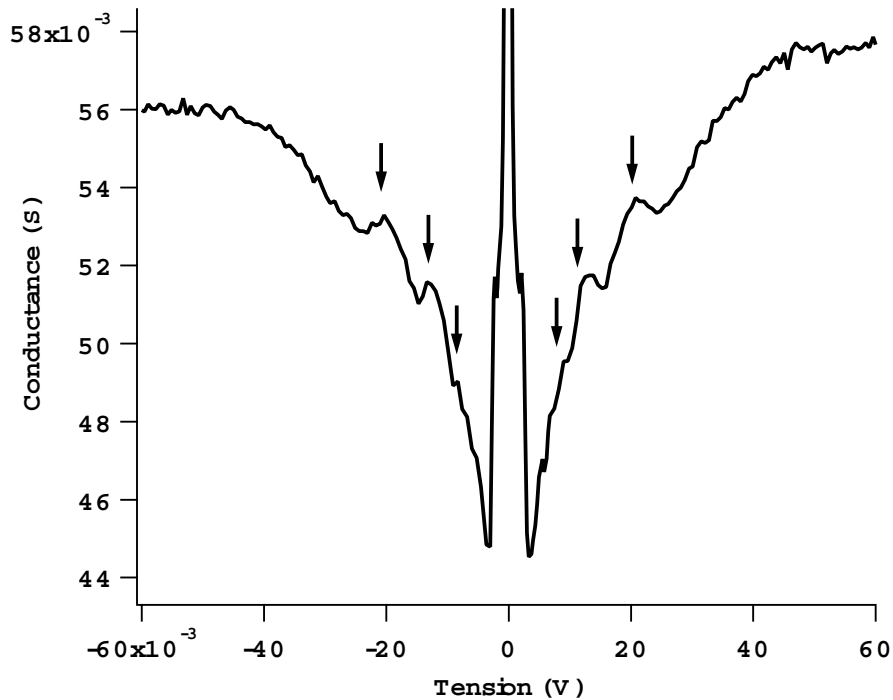


FIG. 5.24 – Conductance en fonction de la tension d’une jonction  $5\mu m \times 5\mu m$  ayant une barrière de 30 nm à  $T=4,2K$ . Les flèches indiquent les principales résonances dues aux réflexions d’Andreev multiples.

d’Andreev est limité à des énergies inférieures à celle du gap. Cependant, dans une barrière de 50 nm d’épaisseur, le mécanisme de réflexion d’Andreev se retrouve en série avec les mécanismes de transport des quasiparticules par saut à travers les états localisés. Ainsi une quasiparticule issue de l’une des électrodes pourrait traverser la barrière par sauts successifs avant de subir une réflexion à l’interface avec la seconde électrode. Cela pourrait expliquer l’étalement en énergie de l’augmentation de conductance observée sur la figure 5.21. Lorsque la température augmente, l’énergie en dessous de laquelle la conductance commence à augmenter, diminue ce qui est cohérent avec l’évolution des gaps supraconducteurs en température.

Tant que l’une des électrodes est à l’état supraconducteur, les mécanismes de réflexion d’Andreev devraient être observés. Comme nous le verrons dans la suite, ce phénomène disparaît à la température correspondant à la  $T_c$  de la couche optimalement dopée ce qui confirme notre interprétation.

Il n’existe pas, pour l’instant, de théorie permettant de décrire quantitativement les mécanismes de réflexion d’Andreev dans des matériaux réels tel que le  $PrBa_2Cu_3O_7$ . Les prédictions de Devyatov se limitent pour l’instant au cas d’un seul canal contenant un unique état localisé. La généralisation à plusieurs canaux contenant un nombre d’états localisés supérieurs à un, pourrait à terme, permettre une analyse plus complète du transport dans les jonctions au PBCO.

### 5.3.4 Test des fluctuations de paires dans le régime de pseudogap ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ )

#### 5.3.4.1 Excès de conductance

Dans les paragraphes précédents, nous avons montré que les jonctions présentent le couplage Josephson nécessaire pour sonder les fluctuations de paires dans le régime de pseudogap. Nous sommes également parvenus à une description qualitative du transport de quasiparticules à travers la barrière de PBCGO qui devrait nous permettre de distinguer cette contribution du courant de paires. Nous nous intéressons

maintenant au régime intermédiaire de température ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ ) dans lequel le composé optimalement dopé est à l'état supraconducteur et le composé sous-dopé est dans l'état de pseudogap.

La figure 5.25 présente des caractéristiques conductance-tension  $G(V)$  typiques, mesurées, à différentes températures du régime intermédiaire, sur une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière d'épaisseur 30 nm.

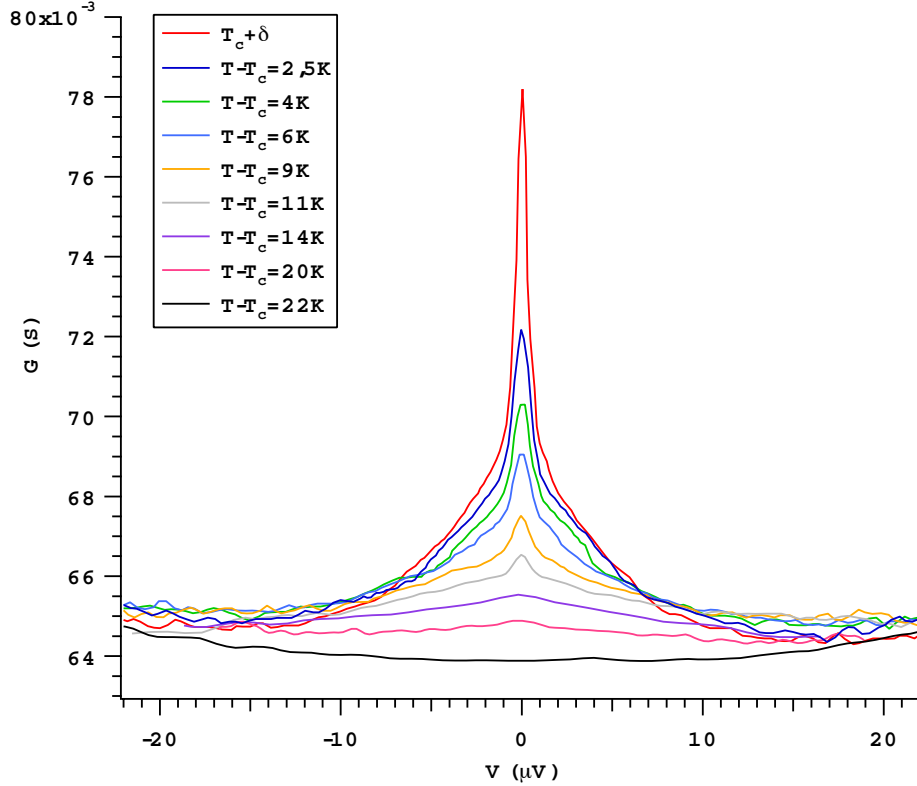


FIG. 5.25 – Courbes  $G(V)$  pour différentes températures dans le régime intermédiaire  $T_{cSD} < T < T_{cOD}$  mesurées sur une jonction de  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  ayant une barrière d'épaisseur 30nm. La courbe ayant le pic le plus prononcé a été mesurée à une température proche de  $T_c^{SD} \approx 61\text{K}$ . Lorsque la température augmente, l'amplitude du pic central diminue et il n'est plus visible sur la courbe mesurée 14K au dessus de  $T_c^{SD}$ .

A haute énergie ( $> 20\text{mV}$ ), la conductance ne montre qu'une dépendance faible avec l'énergie et la température, ce qui indique que le transport des quasiparticules est dominé par 1ou 2 états localisés. Ceci est conforme à ce que nous avons déjà observé sur la figure 5.20 à basse température. A énergie nulle, un pic de conductance, distinct du « background » de quasiparticules, émerge du courant Josephson lorsque la température devient supérieure à  $T_c^{SD} \approx 61\text{K}$ . L'amplitude du pic décroît ensuite rapidement lorsque la température est augmentée et celui-ci disparaît à environ 14K au dessus de  $T_c^{SD}$ . Cette température est très inférieure à la température  $T^*$  caractéristique de l'ouverture du pseudogap, située à environ  $250\text{K}$  pour le sous-dopage de notre échantillon. Nous n'observons aucune contribution à plus haute énergie, ni aucune asymétrie particulière comme cela était prévu par Janko[74]. En conséquence, nous pensons que l'excès de conductance contenue dans le pic ne peut pas être lié à l'existence de paires préformées à haute température. En revanche il semble tout à fait légitime d'associer ce pic de conductance à la présence de fluctuations de paires gaussiennes, similaires à celles observées au voisinage d'une transition supraconductrice conventionnelle. Avant de s'intéresser plus en détails aux caractéristiques de ce pic, nous signalons également que l'augmentation de conductance due à la réflexion d'Andreev à l'interface entre la barrière et la couche optimalement dopée, déjà présente à basse température, l'est toujours dans le

régime intermédiaire. Cela se traduit par la présence d'un massif dont la largeur en énergie et l'amplitude diminuent lorsque la température augmente et qui ne disparaît qu'à l'approche de  $T_c^{OD}$ . Dans le cas de la jonction de la figure 5.20, la dernière courbe correspondant à  $T - T_c = 24K$  ( $T=85K$ ) montre une dépendance en énergie plus conforme à celle attendue en l'absence de supraconductivité. Cependant, il n'est pas possible de s'approcher trop près de  $T_c^{OD}$  sans dépasser la densité de courant critique de la couche<sup>9</sup> OD et nous ne mesurons donc pas rigoureusement la loi attendue  $G = G_0 + \alpha V^{4/3}$ .

Dans le cadre théorique du modèle de fluctuations gaussiennes développé dans le chapitre 4, la largeur typique du pic de conductance  $G_{ex}$  est donnée par  $\Delta V = \frac{4k_B}{\pi e}(T - T_c)$ . Pour des températures de quelques degrés au-dessus de  $T_c$ ,  $\Delta V \sim 1mV$ , ce qui correspond à l'ordre de grandeur mesuré sur les courbes de la figure 5.25. En tenant compte de l'effet du bruit en tension décrit dans la section 4.3.4, nous pouvons calculer les caractéristiques  $G_{ex}(V)$  attendues dans le cas de la jonction de la figure 5.26. La résistance de la jonction est connue ( $R \approx 15\Omega$ ) et la valeur de la capacité peut être obtenue en considérant que les caractéristiques  $I(V)$  de la jonction étant faiblement hystérétiques à 4,2 K, le nombre de Mac Cumber est proche de 1, ce qui donne  $C \approx 1,4 \cdot 10^{-14}F$ . Le calcul est effectué en utilisant la fonction hypergéométrique confluyente (section 4.3.4). En pratique, le résultat est proche de celui calculé dans la limite  $RC < \tau_{GL}$ .

Le résultat des simulations numériques est montré sur la figure 5.26. L'effet principal du bruit est de

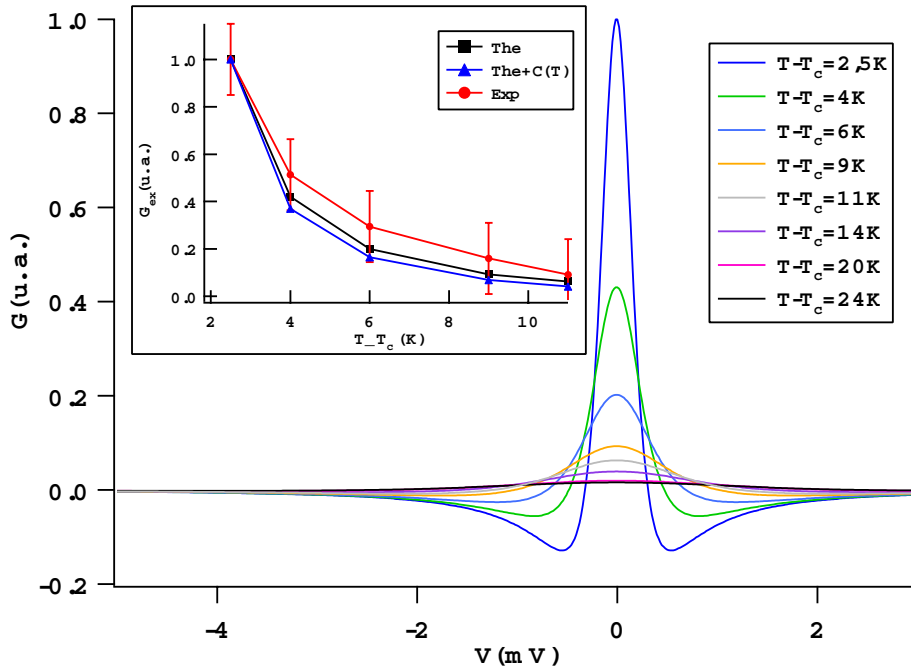


FIG. 5.26 – Calcul de l'excès de conductance obtenue d'après (4.66) pour les températures correspondant à celles de la figure (5.20). La figure en insert montre l'évolution de l'amplitude du pic de conductance mesurée sur la figure 5.25 (Exp), comparée avec les données obtenues par simulation (The). Nous avons également effectué le calcul en tenant compte de la dépendance en température du coefficient  $C$  dans la relation 4.29 ce qui apporte une faible correction.

couper la partie du spectre correspondant aux longs temps de vie  $\tau$  des fluctuations. Cela signifie que près de  $T_c$  l'énergie caractéristique du pic de conductance sera davantage liée aux propriétés de la barrière ( $R$  et  $C$ ) qu'au spectre des fluctuations et il ne sera pas possible d'observer un pic infiniment fin. Il faut également préciser qu'il est difficile de définir une valeur précise de  $T_c^{SD}$  étant donné la largeur ( $\sim 5$  K)

<sup>9</sup>Les chemins définis dans la couche OD par irradiation ont des sections fines ( $\sim 5\mu m \times 500\text{\AA}$ ). Lorsque la température est proche de  $T_c^{OD}$  les courants de mesures deviennent rapidement supérieurs au courant critique.



de la transition<sup>10</sup> (fig 5.9). Rigoureusement, il faudrait tenir compte d'un effet de distribution de  $T_c$ .

Globalement, l'évolution de l'amplitude du pic en fonction de la température (fig 5.26 insert) est en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux (fig 5.20). Il faut souligner que dans une expérience de type réponse linéaire, le courant est proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité qui est indépendante de la force du champ extérieur. De plus, si on se réfère à l'article de Ferrel[49], la dépendance en température du coefficient  $C$  dans la relation 4.29 qui lie l'excès de courant à la susceptibilité, est faible dans la gamme de températures qui nous intéresse (fig 5.26 insert). En conclusion, la décroissance du pic de conductance que nous observons ne peut pas être attribuée à la dépendance en température du gap supraconducteur de la couche OD.

En l'absence d'un modèle quantitatif du transport à travers la barrière, il n'est pas possible de retirer la contribution des quasiparticules afin d'extraire  $G_{ex}$  sans introduire des dépendances artificielles dans les caractéristiques. Bien que cela nous empêche de réaliser une étude complète des fluctuations gaussiennes, notamment de l'évolution du spectre en fonction de la température, cela ne change pas, en revanche, le résultat principal concernant le régime restreint de température où les fluctuations sont observées.

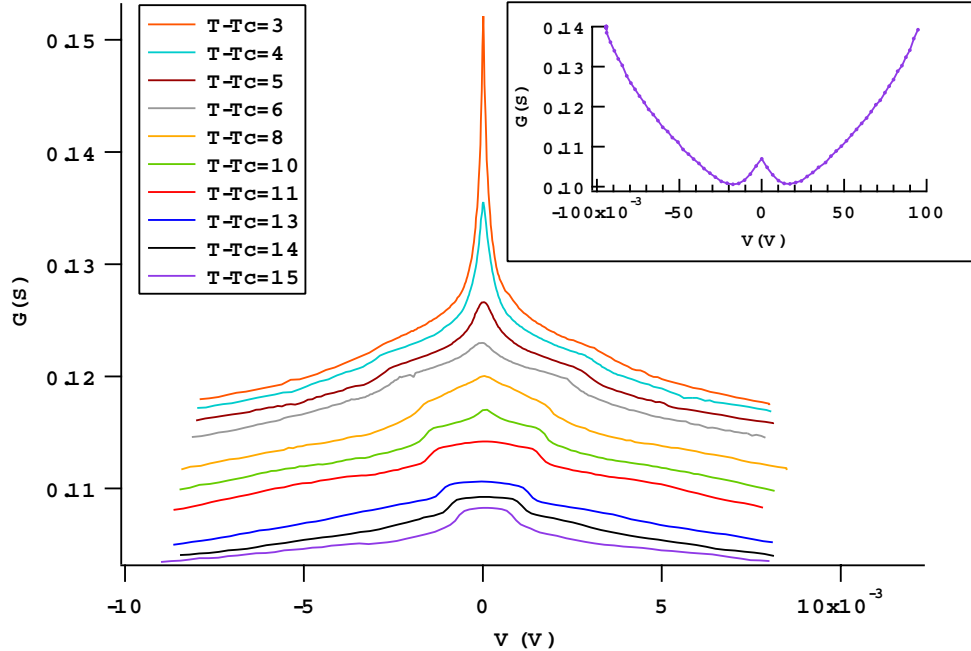


FIG. 5.27 – Courbes  $G(V)$  pour différentes températures dans le régime intermédiaire  $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$  mesurées sur une jonction de  $10\mu m \times 10\mu m$  ayant une barrière d'épaisseur 50nm. Le pic d'excès de courant est visible jusqu'à environ 10K au-dessus de  $T_c^{SD}$  (courbe verte) malgré la forte dépendance en température de la contribution des quasiparticules. La courbe en insert est une mesure à plus haute énergie de la courbe  $T - T_c^{SD} = 15K$  qui montre la contribution des mécanismes de réflexion d'Andreev superposée au background qui suit une loi de Glazman et Matveev  $G = G_0 + \alpha V^{4/3} + \beta V^{4/3}$ . Lorsque la température atteint  $T_c^{OD}$ , ces mécanismes disparaissent et la courbe évolue vers celle de la figure 5.19.

L'ordre de grandeur du régime de fluctuations  $\sim 15K$  est conforme à ce qui est attendu dans les cuprates. Par exemple, le calcul de la contribution des fluctuations à la paraconductivité dans le modèle de Lawrence-Doniach, 15K au-dessus de  $T_c$ , indique que l'excès de conductivité n'est déjà plus que de 5%. Expérimentalement il est difficile de déterminer le régime de fluctuations gaussiennes dans les cuprates sous-dopés car la plupart des sondes expérimentales sont sensibles au pseudogap et les effets de

<sup>10</sup>Ceci est un problème récurrent avec les cuprates qui ont toujours une certaine largeur de  $T_c$  même dans le cas des meilleurs cristaux.

fluctuations gaussiennes au voisinage de  $T_c$  se retrouvent masqués. En revanche, dans le cas des composés optimalement dopés ou sur-dopés, cet ordre de grandeur correspond tout à fait au régime de température sur lesquels les effets de fluctuations se font sentir dans de nombreuses expériences (résistivité, RMN, chaleur spécifique....). Par exemple, les mesures RMN du taux de relaxation que nous avons présentées dans le premier chapitre (figure 1.16) montrent que dans le cas d'YBCO optimalement dopé,  $\frac{1}{T_1 T}$  commence à chuter à une température d'environ 10 à 20 K au dessus de  $T_c$ .

Dans le cas des jonctions ayant une barrière de 50nm d'épaisseur, le pic d'excès de conductance est également observé (fig 5.27). Sa largeur en énergie est d'environ  $1meV$  et le régime de température sur lequel il est observé est d'environ 10K, ce qui est très similaire aux jonctions de 30 nm. Le large massif déjà observé à basse température est toujours présent tant que la température est inférieure à  $T_c^{OD}$ . Il fait apparaître une sous-structure dans la conductance qui évoluent fortement avec la température.

### 5.3.4.2 Effet des micro-ondes et du champ magnétique

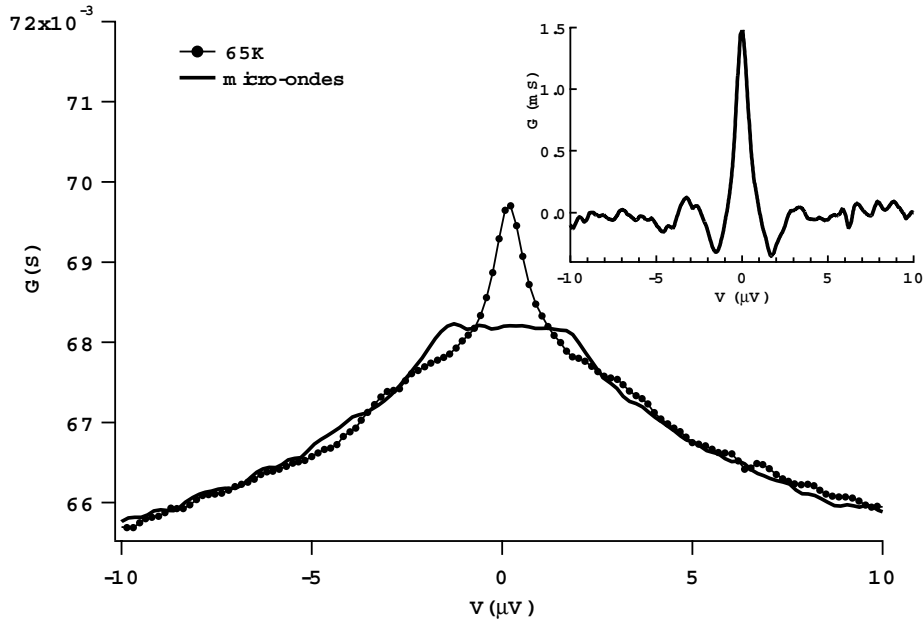


FIG. 5.28 – Effet des micro-ondes sur les caractéristiques  $G(V)$  de la jonction de la figure 5.25. Le pic de conductance est rapidement supprimé sous irradiation micro-ondes. En effectuant la soustraction entre les deux courbes on obtient la conductance en excès (en insert) dont l'allure est proche des courbes simulées de la figure 5.26.

Dans le régime intermédiaire, le pic de conductance est très facilement supprimé par les micro-ondes, ce qui va dans le sens de notre interprétation puisque les radiations jouent sur la différence de phase de l'effet Josephson (fig 5.28). Nous avons tout d'abord pensé qu'il serait possible d'utiliser la conductance mesurée sous radiation pour la soustraire à la conductance totale et déterminer ainsi les caractéristiques  $G_{ex}(V)$  (fig 5.28 insert). Cependant, les caractéristiques mesurées sous radiation sont très dépendantes de la puissance des micro-ondes et il n'a pas été possible de séparer les contributions des paires et des quasiparticules sans introduire des dépendances en énergie artificielles.

En présence d'un champ magnétique parallèle à la jonction, la différence de phase Josephson  $\gamma$  présente des modulations de vecteur d'onde  $q_0 = \frac{2e}{\hbar} H(\lambda + d/2 + \delta)$  (cf section 4.56). La largeur en énergie du pic de conductance est alors donnée par  $\Delta V = \frac{\hbar}{2e\tau} [1 + q_0^2 \xi^2]$ . Dans le cas de nos jonctions,  $(\lambda + d/2 + \delta) \sim 3000 \text{ \AA}$  et un rapide calcul donne  $q_0 \sim 6.10^8 H$ . Compte tenu des faibles valeurs de  $\xi$  dans les cuprates ( $\sim 10 \text{ \AA}$ ), il faudrait atteindre des champs importants ( $>1$  Tesla) pour observer une modification significative de la largeur du pic. L'expérience devient délicate lorsqu'on applique un champ de cette valeur sur une jonction

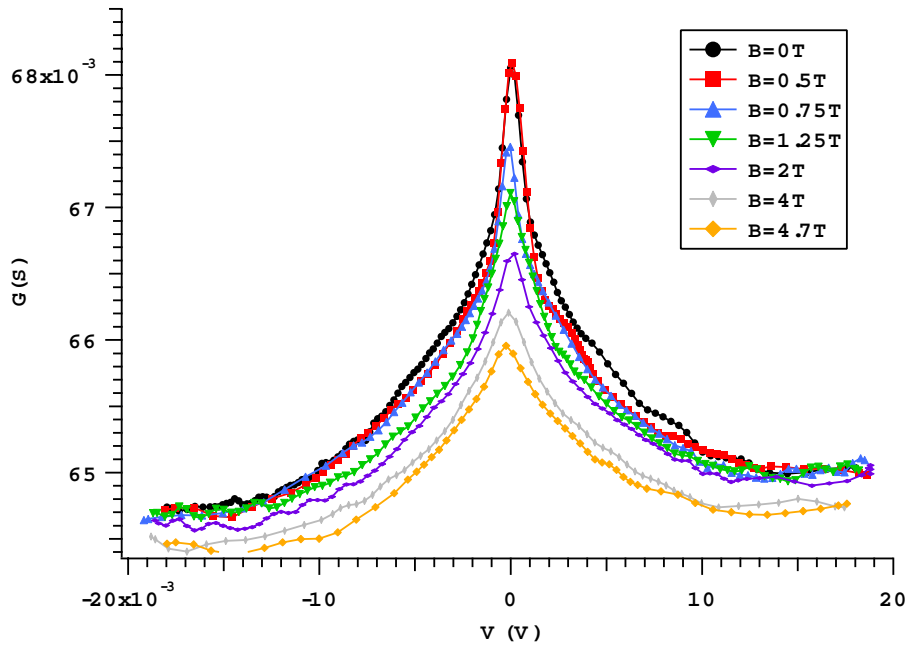


FIG. 5.29 – Effet d'un champ magnétique parallèle à la jonction sur la caractéristique  $G(V)$  de la jonction de la figure 5.25 à  $T=68\text{K}$ .

Josephson car de nombreux effets parasites peuvent apparaître (vortex, magnétorésistance...). Lorsque nous réalisons l'expérience, les premiers effets apparaissent effectivement pour des champs de cet ordre de grandeur. Nous n'observons pas réellement de modifications de la largeur du pic, en revanche, on assiste à une réduction de son amplitude qui s'accroît lorsque le champ est augmenté (fig 5.29). Cet effet est probablement dû à la destruction des fluctuations par le champ magnétique.

### 5.3.5 Conclusion

Dans le régime intermédiaire de température ( $T_c^{SD} < T < T_c^{OD}$ ), les expériences révèlent clairement un pic d'excès de conductance à énergie nulle. De façon qualitative ce pic présente les caractéristiques d'une structure liée aux fluctuations de paires gaussiennes qui ne survivent qu'au voisinage de  $T_c$  ( $<15\text{K}$ ). Nous n'excluons pas la possibilité de petites contributions à plus haute température, plus faible que la résolution expérimentale, mais cela ne devrait pas modifier les conclusions. Du point de vue des fluctuations de paires, il semble donc que la transition supraconductrice dans le régime sous-dopé soit similaire à une transition BCS conventionnelle. Le régime de température sur lequel la contribution des fluctuations est considérablement réduit n'est pas compatible avec le large régime dans lequel le pseudogap est observé. Ces résultats sont donc en contradiction avec l'idée que le pseudogap serait lié à l'existence de paires préformées ; nous privilégierons donc les théories qui mettent en jeu l'existence d'un ordre en compétition.

# Conclusion

Au cours de cette thèse, nous avons mis au point une technique de fabrication de jonctions Josephson planaires présentant à la fois un intérêt technologique et fondamental. Les jonctions sont définies sur des microponts supraconducteurs de largeurs 1 à 5  $\mu\text{m}$  par irradiation ionique à travers une fente de 20 nm ouverte dans une résine lithographique. L'irradiation ionique permet de créer le lien faible Josephson en induisant du désordre de façon contrôlée sous la fente. D'un point de vue fondamental, nous avons montré que l'effet de proximité joue un rôle important dans le couplage Josephson. Les résultats peuvent être expliqués en tenant compte de la géométrie sans discontinuité et de la nature particulière de la barrière (supraconducteur irradié dans lequel le potentiel d'appariement anisotrope est encore présent). Nous sommes parvenus à une description très physique de ce système dans le cadre d'une approche de type quasiclassique basée sur les équations d'Usadel. Du point de vue des applications, ces jonctions offrent une alternative aux techniques existantes pour la fabrication de dispositifs à base de jonctions Josephson, pouvant fonctionner à la température de l'azote liquide ou à des températures facilement accessibles avec un cryo-cooler. Il est notamment possible de régler précisément les caractéristiques des jonctions (température de fonctionnement, courant critique, résistance) simplement avec la dose de l'irradiation ou la taille de la fente. Sur la base de cette technique, nous avons développé la fabrication de SQUIDS dc qui présentent des performances encourageantes. A la suite de ce travail, plusieurs projets devraient voir le jour concernant notamment l'électronique RSFQ, la détection de photons, l'imagerie ou la métrologie du volt.

La seconde partie de cette thèse a été consacrée à l'étude des fluctuations de paires dans le pseudogap par une expérience de type Josephson. Pour cela, nous avons développé une nouvelle technique pour réaliser des jonctions empilées (YBaCuO sous-dopé/ PrBaCuO/ YBaCuO optimalement dopé) en utilisant des irradiations ioniques combinées avec des procédés de microfabrication. Un comportement Josephson a été observé lorsque les deux électrodes sont dans l'état supraconducteur (marchés de Shapiro sous irradiation micro-ondes). Nous avons également mis en évidence des mécanismes de transport particuliers, de type Andreev à travers des états localisés dans la barrière. Dans le régime intermédiaire, lorsque le composé optimalement dopé est dans l'état supraconducteur et le composé sous-dopé dans l'état de pseudogap, nous observons une signature des fluctuations de paires dans un régime de température d'une dizaine de Kelvin au-dessus de la température critique du sous-dopé, ce qui est bien inférieur à la température d'apparition du pseudogap. Ces résultats sont donc en faveur d'un scénario classique où les fluctuations de paires n'existent qu'au voisinage de la transition. Nous avons montré qu'ils peuvent être interprétés de façon qualitative dans le cadre d'un modèle gaussien de fluctuations.



## Annexe A

# Fonctionnement d'un SQUID dc

Les SQUIDs (Superconducting Quantum Interference Devices) mettent en jeu les propriétés de cohérence de la fonction d'onde supraconductrice. Leur principe de fonctionnement repose sur les phénomènes de quantification du flux magnétique à travers une boucle supraconductrice et sur l'effet Josephson. Ce sont des détecteurs de flux magnétique d'un grande sensibilité dont les applications sont nombreuses et variées. Le schéma d'un SQUID dc est représenté sur la figure A.1 a). Il est constitué d'un anneau supraconducteur interrompu par deux jonctions Josephson  $J_1$  et  $J_2$  dont les courants critiques sont  $i_c^1$  et  $i_c^2$ .

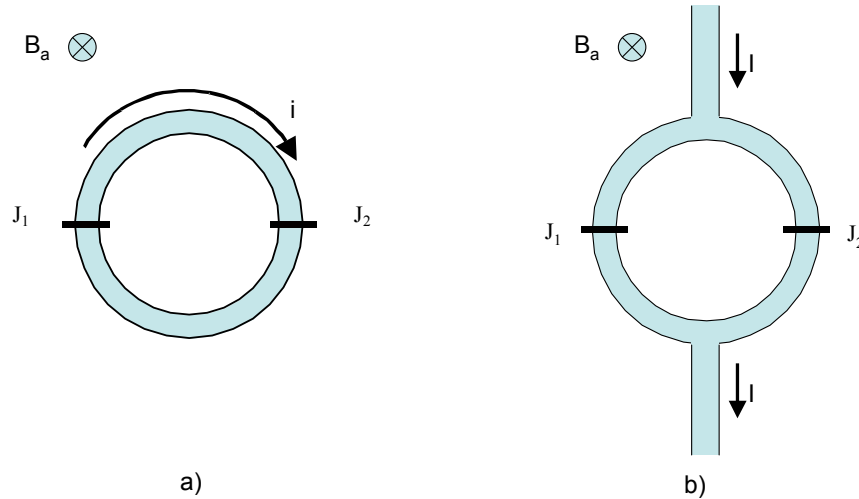


FIG. A.1 – a) Schéma de principe d'un SQUID. b) Schéma de principe d'un SQUID équipé de deux amenées de courant pour les mesures.

En l'absence de champ magnétique, le déphasage dans l'anneau supraconducteur est donné par le premier terme de l'équation précédente  $\delta\phi = \frac{2m}{n_s e \hbar} \int \vec{j} \cdot d\vec{l}$  Le supercourant circulant dans l'anneau étant limité par les valeurs de courants critiques des jonctions, ce déphasage pourra être considéré comme négligeable. En présence d'un champ magnétique, une différence de phase apparaît dans les bras de l'anneau. Considérons que le SQUID a été refroidi sous champ nul jusqu'à atteindre une température inférieure à sa température critique et appliquons ensuite un champ magnétique  $\vec{B}_a$  perpendiculaire à l'anneau. En l'absence de jonctions il circulerait un courant  $i$  dans l'anneau tel que le flux total à l'intérieur de l'anneau soit nul.

$$Li = \Phi_a = SB_a \quad (\text{A.1})$$

où  $S$  est la surface du SQUID et  $L$  l'inductance de l'anneau.

En présence des jonctions, le courant  $i$  est limité par le courant critique  $i_c$  et seuls les champs magnétiques tels que  $i_c L > SB_a$  pourront être écartés à l'intérieur du SQUID. En pratique, les SQUIDS ne sont pas utilisés dans le cadre de cette condition mais dans la limite opposée où le flux du champ magnétique à mesurer est très supérieur à  $i_c L$ . Nous traduirons cette limite par la condition suivante

$$Li_c \ll \Phi_0 = \frac{h}{2e} \quad (\text{A.2})$$

Le courant est donc limité et le flux dans la boucle sera considéré comme identique au flux appliqué.

$$\Phi = \Phi_a = SB_a \quad (\text{A.3})$$

Le déphasage induit par le champ magnétique est donné par l'expression :

$$\Delta\Phi(B_a) = \frac{2e}{h} \iint \vec{B}_a \cdot d\vec{S} \quad (\text{A.4})$$

$$= 2\pi \frac{\Phi_a}{\Phi_0} \quad (\text{A.5})$$

Le déphasage induit par le champ magnétique dans la boucle est donc directement proportionnel au champ appliqué. En général, l'intensité de ce champ ne va pas créer un nombre exact de quantum de flux dans la boucle et le déphasage résultant ne sera pas un multiple exacte de  $2\pi$ . Il va donc circuler un courant  $i$  dans l'anneau qui, bien qu'inférieur à  $i_c$ , induit un déphasage aux jonctions tel que

$$\Delta\Phi(B_a) + \Delta\Phi(i) = 2\pi n \quad (\text{A.6})$$

Pour un champ appliqué  $B_a$  produisant un flux  $\Phi$  à travers la boucle il y a deux courants possibles pour satisfaire la relation précédente, l'un tournant dans un sens de la boucle et l'autre tournant dans le sens opposé. C'est la situation d'énergie la plus basse qui l'emportera. La première équation Josephson permet de calculer la dépendance de  $i$  en fonction du champ appliqué

$$i = i_c \sin(\Delta\Phi) \quad (\text{A.7})$$

soit en tenant compte de la relation A.6

$$i = i_c \sin\left(\pi n - \frac{\Delta\Phi(B)}{2}\right) \quad (\text{A.8})$$

$$= i_c \sin\left(\pi n - \pi \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) \quad (\text{A.9})$$

$$(\text{A.10})$$

Le courant dans le SQUID dépend donc périodiquement du flux du champ appliqué à travers la boucle, de période égale au quantum de flux  $\Phi_0$ . Une mesure de  $i$  permettrait de mesurer des champs magnétiques avec une extrême sensibilité, cependant cette quantité n'est pas directement accessible et on doit envisager une géométrie légèrement différente. On rajoute à l'anneau deux amenées supraconductrices qui permettent de faire passer un courant de mesure  $I$  dans le SQUID (fig A.1 b). En l'absence de champ magnétique, il n'existe pas de courant permanent circulant dans l'anneau. Si les jonctions sont identiques, le courant se partage alors également dans les deux bras du SQUID. Une tension continue apparaît aux bornes du SQUID pour un courant supérieur au courant critique  $I_c = 2i_c$ . En présence d'un champ magnétique, le courant  $i$  produit par le déphasage se superpose au courant  $I$  pour limiter le flux magnétique à l'intérieur de l'anneau. Il en résulte un courant  $\frac{I}{2} + i$  dans l'une des branches du SQUID et un courant  $\frac{I}{2} - i$  dans l'autre. Le courant critique pour lequel apparaît une tension continue est alors  $I_c = 2(i_c - i)$ . Soit  $\Phi_1$  et  $\Phi_2$  les déphasages des jonctions 1 et 2 dus au courant les traversant. Ils doivent satisfaire la relation suivante

$$\Delta\Phi_1(i) + \Delta\Phi_2(i) + 2\pi \frac{\Phi_a}{\Phi_0} = 2\pi n \quad (\text{A.11})$$

En l'absence de courant de mesure, le courant  $i$  est le même dans les deux jonctions et les déphasages sont identiques.

$$\Delta\Phi_1 = \Delta\Phi_2 = \pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) \quad (\text{A.12})$$

Lorsqu'un courant de mesure traverse le SQUID les courants dans les jonctions sont différents et  $\Delta\phi_1 \neq \Delta\phi_2$ . Cependant, la somme des déphasages  $\Delta\phi_1 + \Delta\phi_2$  doit rester constante de façon à satisfaire la relation

(A.11; l'augmentation du déphasage dans une jonction doit donc être compensée par une diminution du déphasage dans l'autre jonction. On peut donc écrire :

$$\Delta\Phi_1 = \pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) - \delta \quad (\text{A.13})$$

$$\Delta\Phi_2 = \pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) + \delta \quad (\text{A.14})$$

En tenant compte de la relation Josephson on obtient :

$$i - \frac{I}{2} = i_c \sin\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) - \delta\right] \quad (\text{A.15})$$

$$i + \frac{I}{2} = i_c \sin\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) + \delta\right] \quad (\text{A.16})$$

On peut éliminer  $i$  des deux relations précédentes

$$I = i_c \left[ \sin\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) + \delta\right] - \sin\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right) - \delta\right] \right] \quad (\text{A.17})$$

$$= 2i_c \cos\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right)\right] \sin\delta \quad (\text{A.18})$$

Le membre de droite peut être soit positif soit négatif. Nous avons imposé  $I$  positif dans un sens (fig A.1 b), la situation  $I$  négatif correspond en fait à inverser le dispositif. On peut donc écrire

$$I = 2i_c \left| \cos\left[\pi\left(n - \frac{\Phi_a}{\Phi_0}\right)\right] \sin\delta \right| \quad (\text{A.19})$$

D'après l'expression précédente, on voit que la relation précédente entre les phases ne peut être satisfaite que lorsque le courant de mesure  $I$  est inférieur à un courant critique  $I_c$

$$I_c = 2i_c \left| \cos\frac{\pi\Phi_a}{\Phi_0} \right| \quad (\text{A.20})$$

Le courant critique est donc une fonction périodique du flux appliqué à travers la boucle, de période le quantum de flux magnétique  $\Phi_0 = \frac{h}{2e}$ . Dans le cas où les deux jonctions formant le SQUID ne sont pas identiques  $I_c$  est alors donné par l'expression

$$I_c = \left[ (i_{c1} - i_{c2})^2 + 4i_{c1}i_{c2} \cos^2\frac{\pi\Phi_a}{\Phi_0} \right]^{1/2} \quad (\text{A.21})$$

La période de modulation est inchangée mais l'amplitude des modulations est maintenant comprise entre  $|i_{c1} - i_{c2}|$  et  $|i_{c1} + i_{c2}|$ . La sensibilité d'un SQUID étant liée à l'amplitude de ces modulations, on comprend l'intérêt de fabriquer des jonctions Josephson dont les caractéristiques sont peu dispersées.





## Annexe B

# Inductance d'un SQUID

L'inductance d'une boucle carrée est donnée par

$$L = 0.004678 \times S \left[ \log \frac{2 \times S^2}{(S + \sqrt{2}S)(w + t)} \right] + 0.001016 [2\sqrt{2}S - S + 0.447(w + t)] \quad \text{en } \mu H$$

où  $S$  est le côté de la boucle carrée,  $w$  la largeur du bras du SQUID et  $t$  l'épaisseur du film, exprimés en *inch*.



# Bibliographie

- [1] A. A. Abrikosov, Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz. **32** (1957), 1442.
- [2] ———, Soviet Phys.—JETP **5** (1957), 1174.
- [3] A. A. Abrikosov and L. P. Gorkov, Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz. **39** (1960), 1781.
- [4] ———, Soviet Phys.—JETP **10** (1960), 593.
- [5] H. Alloul, T. Ohno, and P. Mendels, Phys. Rev. Lett. **63** (1989), 1700.
- [6] V. Ambegaokar and A. Baratoff, Phys. Rev. Lett. **10** (1963), 486.
- [7] J. T. Anderson and A. M. Goldman, Phys. Rev. Lett. **25** (1970), 743.
- [8] P. W. Anderson, Mater. Res. Bull. **8** (1973), 153.
- [9] ———, Science **235** (1987), 1196.
- [10] P. W. Anderson and J. M. Rowell, Phys. Rev. Lett. **10** (1963), 230.
- [11] A. F. Andreev, Soviet Phys.—JETP **19** (1964), no. 5, 1228.
- [12] ———, Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz. **46** (1964), 1823.
- [13] L. G. Aslamasov and A. I. Larkin, Phys. Lett. **26A** (1968), 238.
- [14] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108** (1957), 1175.
- [15] A. Barone and G. Paterno, *Physics and applications of the josephson effect*, John Wiley and sons, New York, 1982.
- [16] V. Barzykin and D. Pines, Phys. Rev. B **52** (1995), 13585.
- [17] B. Batlogg, H. Takagi, H. L. Kao, and J. Kwo, *Electronic properties of htc superconductors, the normal and superconducting state*, Springer, New-York, 1992.
- [18] J. G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Phys. B **64** (1986), 189.
- [19] W. Belzig, F. K. Wilhelm, C. Bruder, G. Schon, and A. D. Zaikin, cond-mat/9812297v2, year = 1999, volume =.
- [20] N. Bergeal, X. Grison, J. Lesueur, G. Faini, M. Aprilli, and J. P. Contour, Appl. Phys. Lett. **87** (2005), 102502.
- [21] R. J. Creswick C. P. Poole, H. A. Farach, *Superconductivity*, Oxford University Press, San Diego, 1955.
- [22] J C. Campuzano, cond-mat/0209476v1 (2002).
- [23] A. Carrington, A. P. Mackenzie, C. T. Lin, and J. R. Cooper, Phys. Rev. Lett. **69** (1992).
- [24] C. Castellani, C. Di Castro, and M. Grilli, Phys. Rev. Lett. **75** (1995), 4650.
- [25] C. Di Castro, M. Grilli, S. Caprara, and D. Suppa, cond-mat/0408058v1 (2004).
- [26] Q. Chen, I. Kosztin, B. Janko, and K. Levin, Phys. Rev. B **59** (1999), 7083.
- [27] S-W. Cheong, G. Aeppli, T. E. Mason, H. Mook, S. M. Hayden, P. C. Canfield, Z. Fisk, K. N. Clausen, and J. L. Martinez, Phys. Rev. Lett. **67** (1991), 1791.
- [28] M. Cyrot, Rep. Prog. Phys. **36** (1973), 103.
- [29] E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. **66** (1994), 763.
- [30] A. Damascelli and Z-X. Shen Z. Hussain, Rev. Mod. Phys. **75** (2003), 473.
- [31] P. G. de Gennes, Rev. Mod. Phys. **36** (1964), 225.
- [32] P. G. de Gennes and E. Guyon, Phys. Lett. **3** (1963), 168.

- [33] G. Deutscher, *Nature* **397** (1999), 410.
- [34] G. Deutscher and P. Gilles de Gennes, *Proximity effects*, Superconductivity (R. D. Parks, ed.), vol. II, Marcel Dekker, Inc., New-York, 1969, p. 1005.
- [35] I. A. Devyatov and M. Yu. Kupriyanov, *Soviet Phys.—JETP* **59** (1994), 200.
- [36] ———, *Soviet Phys.—JETP* **85** (1997), 189.
- [37] ———, *Soviet Phys.—JETP* **87** (1998), 375.
- [38] H. Ding, J. C. Campuzano, and M. R. Norman et al, *J. Phys. Chem* **59** (1998), 1888.
- [39] H. Ding, M. R. Norman, J. C. Campuzano, M. Randeria, A. F. Bellman, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Moshiku, and K. Kadowaki, *Phys. Rev. B* **54** (1996), R9678.
- [40] A. L. Efros and B. I. Shlovskii, *J. Phys. C* **8** (1975), L49.
- [41] G. Eilenberger, *Z. Phys.* **214** (1968), 195.
- [42] V. J. Emery and S. A. Kivelson, *Nature* **374** (1995), 434.
- [43] V. J. Emery, S. A. Kivelson, and O. Zachar, *Phys. Rev. B* **56** (1997), 6120.
- [44] D. Esteve, J. M. Martinis, C. Urbina, M. H. Devoret, G. Collin, P. Monod, M. Ribault, and A. Rev-colevschi, *Europhys. Lett.* **3** (1987), 1237.
- [45] A. Lanzara et al, *Nature* **412** (2001), 510.
- [46] B. Fauqué, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailh s, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges, *cond-mat/0509210v2*, **pages =** (2005).
- [47] P. Fazekas and P. W. Anderson, *Philos. Mag* **30** (1974), 432.
- [48] R. Fehrenbacher and T. M. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993), 3471.
- [49] R. A. Ferrel, *J. Low Temp. Phys.* **1** (1969), 423.
- [50] R. P. Feynman, R. B. Leighton, and M. Sands, *The schrödinger equation in a classica context : A seminar on superconductivity*, The Feynman lectures on Physics, vol. III, Addison-Wesley, 1965.
- [51] B. Fisher, J. Genossar, L. Patlagan, G. M. Reisner, and A. Knizhnik, *J. Appl. Phys.* **80** (1996), 898.
- [52] E. Fujimoto, H. Sato, T. Yamada, and H. Akoh, *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002), 3985.
- [53] P. L. Gammel, D. J. Bishop, G. J. Dolan, J. R. Kwo, C. A. Murray, L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Lett.* **59** (1987), 2592.
- [54] I. Giaver, *Phys. Rev. Lett.* **5** (1960), 147.
- [55] A. Gilabert, *Ann. Phys.* **2** (1977), 203.
- [56] V. L. Ginzburg and D. Landau, *Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz.* **20** (1950), 1064.
- [57] L. I. Glazman and K. A. Matveev, *Soviet Phys.—JETP* **67** (1988), 1276.
- [58] ———, *Soviet Phys.—JETP* **49** (1988), 659.
- [59] A. A. Golubov, M. A. J. Verhoeven, I. A. Devyatov, M. Yu. Kupriyanov, G. J. Gerritsma, and H. Rogalla, **235-240** (1994), 3261.
- [60] L. P. Gor'kov, *Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz* **36** (1959), 1918.
- [61] ———, *Soviet Phys.—JETP* **9** (1959), 1364.
- [62] C. E. Gough, M. S. Colelough, E. M. Forgan, R. G. Jordan, M. Keene, C. M. Muirhead, A. I. M. Rae, N. Thomas, J. S. Abell, and S. Sutton, *Nature* **326** (1987), 855.
- [63] C. C. Grimes, *J. Appl. Phys.* **169** (1968), 397.
- [64] X. Grison, PhD thesis, CSNSM, Orsay (2000).
- [65] R. P. Gu ron, PhD thesis, Quantronics Group, Saclay (1996).
- [66] R. P. Gupta and M. Gupta, *Phys. Rev. B* **44** (1991), 2739.
- [67] ———, *Phys. Rev. B* **45** (1992), 9958.
- [68] M. Gurvitch, *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983), 472.
- [69] T. Hanaguri, C. Lupien, Y. Kohsaka, D. H. Lee, M. Azuma, M. Takano, H. Takagi, and J. C. Davis, *Nature* **430** (1904), 1001.
- [70] W. N. Hardy, D. A. Bonn, D. C. Morgan, R. Liang, and K. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993), no. 25, 3999.
- [71] H. Higenkamp and J. Mannhart, *Rev. Mod. Phys.* **74** (2002), 486.

- [72] C. C. Homes, T. Timusk, R. Liang, D. A. Bonn, and W. A. Hardy, *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993), 1645.
- [73] T. Itoh, K. Takenaka, and S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993), 3995.
- [74] B. Janko, I. Kosztin, K. Levin, M. R. Norman, and D. J. Scalapino, *Phys. Rev. Lett.* **25** (1999), 743.
- [75] B. Janko, J. Maly, and K. Levin, *Phys. Rev. B* **56** (1997), R11.
- [76] B. D. Josephson, *Phys. Lett.* **1** (1962), 251.
- [77] ———, *Adv. Phys.* **14** (1965), 419.
- [78] A. M. Kadin and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **25** (1982), 6701.
- [79] F. Kahlmann, A. Engelhardt, and et al, *Appl. Phys. Lett.* **73** (1998), 2354.
- [80] A. Kaminski, J. Mesot, H. Fretwell, J. C. Campuzano, M. R. Norman, M. Randeria, H. Ding, T. Sato, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, and H. Hoechst, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 1788.
- [81] Heike Kammerlingh Onnes, *Leiden Comm.* **120b**, **122b**, **124c** (1911).
- [82] A. S. Katz, A. G. Sun, S. I. Woods, and R. C. Dynes, *Appl. Phys. Lett.* **72** (1998), 2032.
- [83] D. Khomskii, *J. of Supercond.* **6** (1993), 69.
- [84] R. H. Koch, C. P. Umbach, G. J. Clark, P. Chaudhari, and R. B. Laibowitz, *Appl. Phys. Lett.* **51** (1987), 200.
- [85] T. Kontos, PhD thesis, CSNSM, Orsay (2002).
- [86] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, X. Grison, and L. Dumoulin, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004), 137001.
- [87] N. Kopnin, *Theory of nonequilibrium superconductivity*, Oxford Science Publications, Oxford, 2001.
- [88] G. Kotliar and J. Liu, *Phys. Rev. B* **38** (1988), 5142.
- [89] A. I. Larkin and K. A. Matveev, *Soviet Phys.—JETP* **66** (1987), 580.
- [90] A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz.* **53** (1967), 2159.
- [91] ———, *Soviet Phys.—JETP* **26** (1968), 1219.
- [92] A. Legris, F. Rullier-Albenque, E. Radeva, and P. Lejay, *J. Phys. I France* **3** (1993), 1605.
- [93] J. Lesueur, L. Dumoulin, S. Quillet, and J. Radcliffe, *J. Alloys & Compounds* **195** (1993), 527.
- [94] J. Lesueur, P. Nedellec, H. Bernas, J. P. Burger, and L. Dumoulin, *Physica C* **167** (1990), 1.
- [95] T. Löfwander, V. S. Shumeiko, and G. Wendin, *Phys. Rev. B* **62** (2000), R14653.
- [96] F. London and H. London.
- [97] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. R. Cooper, and J. L. Tallon, *Physica C* **282-287** (1997), 1405.
- [98] J. Maly, B. Janko, and K. Levin, *Phys. Rev. B* **59** (1999), 1354.
- [99] H. A. Mook, P. Dai, S. M. Hayden, G. Aeppli, T. G. Perring, and F. Dogan, *Nature* **395** (1998), 580.
- [100] N. F. Mott, *J. Non-Crystal. Solids* **1** (1968), 1.
- [101] ———, *Conduction in non-crystalline materials (2nd edition)*, Oxford Clarendon Press, Oxford, 1993.
- [102] N. Nagaosa and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **45** (1992), 966.
- [103] S. Nakamae, K. Behnia, N. Mangkotong, M. Nohara, H. Takagi, S. J. C. Yates, and N. E. Hussey, *Phys. Rev. B* **68** (2003), 100502.
- [104] Y. Nambu, *Phys. Rev.* **117** (1960), 648.
- [105] M. Norman, H. Ding, M. Randeria, and J. C. Campuzano, *Nature* **392** (1998), 157.
- [106] C. S. Owen and D. J. Scalapino, *Phys. Rev.* **164** (1964), 538.
- [107] W. E. Pickett, *Rev. Mod. Phys.* **433** (1989), 2440.
- [108] D. Pines, *Physica C* **341-348** (2000), 59.
- [109] ———, *cond-mat/0404151* (2004).
- [110] D. Poilblanc and T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **39** (1989), 9749.
- [111] A. V. Puchkov, D. N. Basov, and T. Timusk, *J. Phys. Cond. Matt.* **8** (1996).
- [112] A. V. Puchkov, P. Fournier, D. N. Basov, T. Timusk, A. Kapitulnik, and N. N. Kolesnikov, *Phys. Rev. Lett.* **80** (1996).

- [113] M Randeria, cond-mat/9710223 (1997).
- [114] M. Randeria, N. Trivedi, A. Moreo, and R. T. Scalettar, Phys. Rev. Lett. (1992).
- [115] Ch. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki, and Ø. Fisher, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 149.
- [116] J. Rossat-Mignot, L. P. Regnault, C. Vettier, P. Bourges, P. Bulet, J. Bossy, J. Y. Henry, and G. Lapertot.
- [117] S. Sachdev, Rev. Mod. Phys. **75** (2003), 913.
- [118] D. J. Scalapino, Phys. Rev. Lett. **24** (1970), 1052.
- [119] D. J. Scalapino, E. Loh, and J. E. Hirsch, Phys. Rev. B **34** (1986), 8190.
- [120] S. Shapiro, Phys. Rev. Lett. **11** (1963), 80.
- [121] M. E. Simon and C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), 247003.
- [122] W. J. Skocpol and M. Tinkham, Rep. Prog. Phys. **38** (1975), 1049.
- [123] H Takagi, B. Batlogg, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski, and W. F Peck, Phys. Rev. Lett. **69** (1992), 2975.
- [124] H. Takayama, Prog. Theor. Phys. **46** (1971), 71.
- [125] K. Takenaka, Y. Imanaka, K. Tamasaku, T. Ito, and S. Uchida, Phys. Rev. B **46** (1992).
- [126] K. Takenaka, K. Mizuhashi, H. Takagi, and S. Uchida, Phys. Rev. B **50** (1994), 6534.
- [127] M. Takigawa, P. C. Hammel, R. H. Heffner, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **39** (1989), 7371.
- [128] M. Takigawa, A. P. Reyes, P. C. Hammel, J. D. Thomson, R. H. Heffner, Z. Fisk, and K. C. Ott, Phys. Rev. B **43** (1991), 247.
- [129] J. L. Tallon, C. Bernhard, H. Shaked, R. L. Hitterman, and J. D. Jorgensen, Phys. Rev. B **51** (1995), R12911.
- [130] J. L. Timusk and B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62** (1999), 61.
- [131] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity*, McGraw-Hill, New-York, 1975.
- [132] J. M. Tranquada, J. D. Axe, N. Ichikawa, A. R. Moodenbaugh, Y. Nakamura, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 338.
- [133] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura, and S. Uchida, Nature **375** (1995), 561.
- [134] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, Rev. Mod. Phys. (1997).
- [135] C. C. Tsuei, John R. Kirtley, C. C. Chi, L. S. Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J. Z. Sun, and M. B. Ketchen, Phys. Rev. Lett. **73** (1994), 593.
- [136] K. D. Usadel, Phys. Rev. Lett. **25** (1970), 507.
- [137] J. M. Valles, A. E. White, K. T. Short, R. C Dynes, J. P. Garno, A. F. J. Levi, M. Anzlowar, and K. Baldwin, Phys. Rev. B **39** (1989), 11599.
- [138] C. Varma, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), 1999.
- [139] C. Varma, P. B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams, and A. E. Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. **63** (1989), 1996.
- [140] M. A. J. Verhoeven, G. J. Gerritsma, H. Rogalla, and A. A. Golubov, Appl. Phys. Lett. **69** (1996), 848.
- [141] M. Vershinin, S. Misra, S. Ono, Y. Abe, Y. Ando, and A. Yasdani, Science **303** (2004), 1995.
- [142] R. E. Walstedt, W. W. Warren, R. F. Bell, R. J. Cava, G. P. Espinosa L. F. Schneemeyer, and J. V. Waszczak, Phys. Rev. B **41** (1990), 9574.
- [143] W. W. Warren, R. E. Walstedt, G. F. Brennert, R. J. Cava, R. Tycko, R. F. Bell, and G. Dabbagh, Phys. Rev. Lett. **62** (1989), 1193.
- [144] N. Werthamer, Phys. Rev. **132** (1963), 2440.
- [145] E. L. Wolf, *Principles of electron tunneling spectroscopy*, Oxford University Press, 1985.
- [146] D.A. Wollman, D. J. Van Harlingen, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, and A. J. Leggett, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 2134.
- [147] K. Yamada, C. H. Lee, K. Kurahashi, J. Wada, S. Wakimoto, S. Ueki, H. Kimura, Y. Endoh, S. Hosoya, G. Shirane, R. J. Birgeneau, M. Greven, M. A. Kastner, and Y. J. Kim, Phys. Rev. B **57** (1998), 6165.
- [148] J. Yoshida and T. Nagano, Phys. Rev. B **55** (1997), 11860.
- [149] J. Yoshida, T. Nagano, and T. Hashimoto, Phys. Rev. B **53** (1996), 8623.
- [150] J. Zaanen and O. Gunnarsson, Phys. Rev. B **40** (1989), 7391.
- [151] J. F. Ziegler and J. P. Biersack, SRIM **IBM** (2004), New York.

### EFFET JOSEPHSON POUR L'ETUDE DES SUPRACONDUCTEURS À HAUTE TEMPÉRATURE CRITIQUE

Au cours de cette thèse, nous avons mis au point une technique de fabrication de nano-jonctions Josephson présentant à la fois un intérêt technologique et fondamental. Les jonctions sont fabriquées à partir d'un simple film mince d' $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  en combinant des procédés standards de microfabrication et des étapes d'irradiation ionique. D'un point de vue fondamental, nous avons montré que l'effet de proximité joue un rôle important dans le couplage Josephson. Les résultats sont interprétés dans le cadre d'une approche de type quasiclassique basée sur les équations d'Usadel. Du point de vue des applications, ces jonctions offrent une nouvelle technologie efficace pour les dispositifs à base de jonctions Josephson, pouvant fonctionner à la température de l'azote liquide. Sur la base de cette technique, nous avons développé la fabrication de SQUIDS dc ayant de très bonnes performances.

La seconde partie de cette thèse a été consacrée à l'étude des fluctuations de paires dans le régime de pseudogap des cuprates sous-dopés par une expérience de type Josephson. Si l'on couple un supraconducteur optimalement dopé avec un supraconducteur sous-dopé au travers d'une barrière isolante, la présence de fluctuations de paires dans le régime du pseudogap peut être révélée en mesurant la caractéristique courant-tension pour des températures comprises entre les deux  $T_c$ . Pour réaliser cette expérience, nous avons développé une nouvelle technique de fabrication de jonctions à géométrie mesa (YBaCuO sous-dopé/PrBaCuO/ YBaCuO optimalement dopé) de taille micrométrique. Un comportement Josephson a été observé à basse température lorsque les deux électrodes sont dans l'état supraconducteur. Dans le régime intermédiaire, lorsque le composé optimalement dopé est dans l'état supraconducteur et le composé sous-dopé dans l'état de pseudogap, nous observons une signature des fluctuations de paires dans un régime de température d'une dizaine de Kelvin au-dessus de la  $T_c$  du composé sous-dopé ce qui est bien inférieur à la température d'apparition du pseudogap ( $\sim 250$ K). Ces résultats sont donc en faveur d'un scénario classique où les fluctuations de paires n'existent qu'au voisinage de la transition.

### JOSEPHSON EFFECT IN HIGH-TEMPERATURE SUPERCONDUCTORS

During this PhD work, we developed an original technique to make planar nano-Josephson junctions, both of fundamental and technological interest. Junctions are made in a  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  film using standard microfabrication and ion irradiation techniques. From a fundamental point of view, we showed that the proximity effect plays an important role in the Josephson coupling. The results are interpreted within the theoretical framework of the quasiclassical Usadel equations. In addition to the fundamental interest of these structures, this technology represents several advantages to develop applications working at liquid nitrogen temperature. On the basis of this technique, we made dc SQUIDS which exhibit very good characteristics.

The second part of this PhD is dedicated to the study of pairing fluctuations in the pseudogap regime of underdoped cuprates by a Josephson-like experiment. The existence of pairing fluctuations is revealed by measuring the current-voltage characteristics of a Josephson junction in which one side of the junction is the underdoped superconductor above its  $T_c$ , while the other side is an optimally doped superconductor well below its own  $T_c$ . To realize this experiment, we developed a new technique to make trilayer micro-junctions (underdoped YBaCuO/PrBaCuO/optimally doped YBaCuO). At low temperature, when both electrodes are in the superconducting state, a Josephson behavior is observed. In the intermediate regime, when one electrode is in the superconducting state and the other one in the pseudogap state, we observed a signature of pairing fluctuations in a temperature range of 15K above the transition temperature, which is much lower than the characteristic temperature of the pseudogap ( $\sim 250$ K). This result is in favor of a classical scenario where the pairing fluctuations are limited to the vicinity of the transition.