HAL
open science

Etude de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans le composé URhGe

Florence Lévy-Bertrand

To cite this version:

Florence Lévy-Bertrand. Etude de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans le composé URhGe. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2003. Français. NNT : . tel-00119605

HAL Id: tel-00119605

https://theses.hal.science/tel-00119605

Submitted on 11 Dec 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.

THÈSE

soutenue publiquement le 27 octobre 2006 par

Florence LÉVY

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourrier

Grenoble I

Discipline : Physique

Etude de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans le composé URhGe

Jury :	J.Tholence	(Président)
	D.Van Der Marel	(Rapporteur)
	S. Hayden	(Rapporteur)
	K. Behnia	(Examinateur)
	A. Huxley	(Responsable de thèse)
	C. Marcenat	(Directeur de thèse)

Thèse préparée

au Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité,

au CEA-Grenoble.

Remerciements

Tout d'abord, je veux remercier Andrew Huxley. C'est grâce à ton encadrement que j'ai pu mener à terme cette thèse riche en résultats originaux. J'ai beaucoup apprécié ta pédagogie et ta patience face à mes nombreuses questions. Ton enthousiasme a su contrer mes doutes et modérer mes déceptions. Merci pour tous tes enseignements : théoriques, expérimentaux et de savoir vivre (même si tu n'as pas su me faire apprécier la bière !).

Merci à M.Van der Marel, M.Hayden et M.Behnia pour avoir accepté d'être les rapporteurs et examinateur (respectivement) de ce travail de thèse. Je vous remercie pour vos lectures attentives : vos remarques et questions ont été très enrichissantes. Merci à M.Tholence qui a accepté le rôle de président du jury.

Je souhaite vivement remercier Béatrice Grenier et Ilya Sheikin. J'ai pris grand plaisir à découvrir de nouvelles techniques expérimentales avec ces deux travailleurs rigoureux et acharnés. Je tiens à remercier Fréderic Hardy pour son passage de flambeau : les résultats obtenus durant ma thèse sont la continuation de son travail thèse. Merci à Christophe Marcenat pour son enseignement de la chaleur spécifique et sa gentillesse. Je remercie également Stéphane Raymond pour mon initiation aux mesures de neutrons inélastiques (cela finira par marcher ! !).

J'ai beaucoup apprécié les lectures volontaires du manuscrit en cours de rédaction de Pierre Rodière et de Jacques Flouquet. Vos remarques ont contribué à rendre la version finale plus claire. C'est avec soulagement que j'ai pu compter sur une équipe de choc pour mes répétitions de soutenance de thèse, merci à Albin De Muer, Ilya Sheikin, Sophie De Brion, Jacques Flouquet, Pierre Rodière, Christophe Marcenat et Gérard Martinez.

Je veux remercier Manuel Houzet et Vladimir Mineev pour l'accueil qu'ils m'ont réservée pour mes premiers pas avec les théoriciens. J'ai beaucoup apprécié votre patience et votre attention.

Je dois beaucoup à Marie-José Blanchard, Jacques Blanchard, Jean-Michel Martinod, Michel Boujard, Jean-Luc Tomassin, et Karine Mony pour leur soutien tant technique que moral.

Je remercie Marielle Perrier pour tout le travail administratif fait avec diligence et aussi pour ses conseils avisés dont le "prends des vacances !" que j'ai suivi.

Je souhaite remercier tous mes collègues de "bureaux" : ceux du C1, laboratoire feu LCP, ceux du D5, le groupe matériaux, et ceux, généralement expatriés à l'Institut Laue Langevin, le groupe des neutroniciens.

Je tiens à remercier ma petite famille, mon compagnon et sa famille. Votre soutien m'a été indispensable pour mener à terme cette thèse : il fait chaud au coeur.

Enfin, je souhaite m'excuser auprès de ceux que j'aurais maladroitement oubliés et dire merci à tous ceux qui par leur sourire m'ont donné le courage de continuer.

Table des matières

Introduction **7**

Tableau des échantillons utilisés **11**

1 URhGe : préambule **13**
1.1 Etat normal d'URhGe 13
1.2 Supraconductivité et ferromagnétisme 17
1.3 Supraconductivité d'URhGe : résultats antérieurs 20

2 Techniques expérimentales **27**
2.1 Elaboration des cristaux 27
2.2 Mesures de résistivité 32
2.3 Mesures de couple 33
2.4 Mesures d'aimantation 34
2.5 Mesure de chaleur spécifique alternative 35
2.6 Mesures de diffusion neutronique 38

3 Supraconductivité bas champs **41**
3.1 Introduction 41
3.2 Mesures du second champ critique 41
3.2.1 Limite orbitale et limite de Pauli 42
3.2.2 Mesures 44
3.2.3 Analyse du second champ critique. 50
3.3 Effet de retournement des domaines 55

4 Transition métamagnétique **61**
4.1 Introduction 61
4.2 Résultats 63
4.2.1 Mesures de diffusion neutronique 63
4.2.2 Mesure d'aimantation 65
4.2.3 Mesures de couple 66
4.2.4 Mesures de chaleur spécifique alternative 70
4.2.5 Mesures de résistance 75
4.3 Bilan 84

5 Transitions et fluctuations : enjeux **85**
5.1 Introduction 85
5.2 Définitions 85

5.3 Importance d'un point critique quantique 86
5.4 URhGe : premier ordre et point critique quantique 92
5.5 Bilan 100

6 Supraconductivité hauts champs 101
6.1 Introduction 101
6.2 Résultats 101
6.2.1 Etude pour un champ selon b 105
6.2.2 Etude dans le plan (b,c) 107
6.2.3 Etude dans le plan (a,b) 110
6.3 Discussion 113
6.3.1 Supraconductivité hauts champs et transition métamagnétique. . . 113
6.3.2 Mécanisme d'appariement des paires de Cooper 113
6.3.3 Lien avec la supraconductivité à bas champs ? 117
6.4 Bilan 122

Conclusion 123

A Fonction d'onde des paires de Cooper 127

B Calculs pour la diffusion neutronique 129

C Facteur de structure magnétique 131

D Compléments sur le modèle d'énergie libre pour URhGe 135

Bibliographie 138

Introduction

Alors qu'il existe aujourd'hui des supraconducteurs ayant des températures critiques supérieures à la température de l'azote liquide, il est probablement légitime de se demander en quoi l'étude du composé URhGe, supraconducteur en dessous de 270 mK et contenant de l'uranium est intéressante.

Une motivation essentielle des études sur la supraconductivité est l'enjeu économique qu'elle représente. Les conducteurs classiques chauffent et dissipent du courant. Les matériaux supraconducteurs permettent de s'affranchir de cette dissipation : il n'y a plus de perte de courant dans les fils. A l'heure des économies d'énergie et de la miniaturisation, la maîtrise de la supraconductivité serait fort utile. Il n'y aurait plus de "gaspillage" de courant dans les lignes. Il serait possible de stocker durablement sans perte un surplus d'énergie. L'échauffement des circuits ne serait plus à craindre. Depuis sa découverte en 1911 à aujourd'hui (2006) de nombreuses recherches ont permis de mieux comprendre la supraconductivité, d'obtenir des matériaux ayant des températures critiques de plus en plus élevées et de développer des applications particulières : Imagerie par Résonance Magnétique (IRM), bobines supraconductrices, tokamaks, train à lévitation magnétique... Mais malgré les enjeux, la supraconductivité n'est pas encore totalement comprise.

L'histoire de la supraconductivité [1] débute en 1911 quand Kammerling Onnes et Gilles Holst découvrent la supraconductivité : la résistance du mercure tombe à zéro en dessous de 4,15 K. En 1933 Meissner et Ochsenfeld constatent que les supraconducteurs expulsent le champ magnétique. En 1950, Ginzburg et Landau élaborent une théorie phénoménologique décri-vant la supraconductivité. A partir de cette théorie Abrikosov montre qu'il existe deux types de supraconducteurs et prédit l'apparition de réseaux de vortex dans les types II. Abrikosov et Ginzburg reçoivent le Prix Nobel de physique en 2003 pour leurs travaux. En 1950, on constate que la température critique de la supraconductivité dépend de la masse isotopique. En 1957, Bardeen, Cooper, et Schrieffer présentent une théorie qui explique la supraconductivité comme étant la formation d'un condensât de paires d'électrons, les paires d'électrons étant formées grâce à l'action des phonons (vibrations du réseau d'ions) : c'est la théorie connue sous le nom de BCS. En 1972, ils obtiennent le Prix Nobel. En 1962, les premiers fils supraconducteurs (un alliage de niobium-titane) sont commercialisés par Westinghouse. La même année, Josephson prévoit théoriquement qu'un courant peut circuler à travers un isolant mince séparant deux supraconducteurs. Josephson reçoit le Prix Nobel en 1973. En 1986, Bednorz et Mueller découvrent dans des matériaux de structure perovskite de cuivre à base de lanthane une supraconductivité ayant une température critique de 35 K (très haut à l'époque). En 1987, le Prix Nobel de physique leur est attribué. Très rapidement en remplaçant le lanthane par de l'yttrium la température critique monte à 92 K dans $YBa_2Cu_3O_7$, dépassant la température de l'azote liquide : 77 K. Cette étape est importante car la production

de l'azote liquide est bien meilleur marché que celle de l'hélium liquide. Cependant les matériaux dit "YBaCuO" sont des céramiques et ne peuvent être travaillés aisément : il est donc délicat de développer des applications utilisant ces supraconducteurs. Aujourd'hui, en 2006, l'origine de la supraconductivité dans ces matériaux n'est toujours pas établie. De nombreuses théories proposent des fluctuations magnétiques comme responsables de l'appariement des électrons en paires de Cooper pour ces matériaux. La compréhension du mécanisme à l'origine de la supraconductivité dans ces matériaux permettrait d'envisager un éventuel renforcement des températures critiques par voie chimique, magnétique ou/et par application de pression.

C'est dans ce contexte que sont découverts respectivement en 2000 et 2001, les composés UGe_2 [2] et URhGe [3] présentant la coexistence d'un ordre ferromagnétique et de la supraconductivité. L'étude de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme, deux propriétés a priori antagonistes, apporte de nouvelles pistes sur des mécanismes possibles expliquant la formation de paires d'électrons. Cette thèse tend à apporter des éléments pour comprendre le mécanisme de couplage à l'origine de la formation de la supraconductivité coexistant avec un ordre ferromagnétique (et peut-être à plus long terme pour une compréhension en générale de la supraconductivité non BCS). Cette thèse est une étude expérimentale du composé ferromagnétique supraconducteur URhGe.

Dans un premier chapitre nous présentons les résultats connus sur URhGe avant cette thèse et nous donnons quelques éléments historiques et physiques concernant l'étude de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme.

Le deuxième chapitre présente les techniques expérimentales utilisées durant cette thèse : élaboration de cristaux, mesure de résistance, de couple, d'aimantation, de chaleur spécifique alternative et de diffraction neutronique.

Le troisième chapitre aborde les résultats obtenus sur l'étude de la supraconductivité à bas champ de URhGe. L'étude antérieure à cette thèse de cette phase supraconductrice suggère fortement que dans URhGe les électrons des paires de Cooper ont des spins parallèles et que leur fonction d'onde spatiale est de type p avec une symétrie particulière. Durant cette thèse nous avons continué cette étude. Nous présentons de nouveaux résultats, légèrement différents des précédents mais toujours en accord avec le paramètre d'ordre supraconducteur proposé initialement.

Le quatrième chapitre expose des résultats entièrement nouveaux. Il traite de l'étude d'une transition magnétique de URhGe induite sous champ découverte juste avant le début de cette thèse. Cette transition magnétique a lieu pour un champ appliqué de 11,7 Tesla le long de l'axe $\vec{b}$ du cristal de URhGe. Sa découverte a apporté un éclairage nouveau sur la phase supraconductrice à bas champs antérieurement connue : les fluctuations magnétiques émergeant de cette transition pourraient être tenues pour responsables de la phase supraconductrice à bas champs. C'est lors de l'étude de cette transition métamagnétique que nous avons découvert que les meilleurs échantillons d'URhGe présentaient une deuxième phase supraconductrice à hauts champs englobant cette transition. La découverte de cette phase supraconductrice hauts champs conforte l'idée que les fluctuations magnétiques jouent un rôle important dans le mécanisme de la supraconductivité dans URhGe. Cette étude a été réalisée à l'aide de différentes techniques : mesure de diffusion neutronique, d'aimantation, de couple, de chaleur spécifique alternative et de résistance.

Le cinquième chapitre s'efforce de mettre en avant l'importance de la transition magnétique induite sous champ dans l'apparition de la supraconductivité pour URhGe. Il y est

montré que le diagramme de phase magnétique d'URhGe contient un point quantique critique. Nous expliquons par une revue expérimentale l'importance des points quantiques critiques et des fluctuations quantiques, qui en émergent, pour comprendre des états nouveaux comme la supraconductivité coexistant avec un ordre magnétique ou des états dits non liquides de Fermi.

Le sixième chapitre présente l'étude de la supraconductivité ré-entrante découverte et étudiée durant cette thèse. Nous présentons une étude de l'anisotropie de cette supraconductivité. Le lien entre la transition métamagnétique et cette deuxième phase supraconductrice apparaît au-delà de toutes coïncidences. Nous discutons brièvement du mécanisme d'appariement possible des paires de Cooper dans URhGe en mettant en avant les points communs avec le composé UGe_2 également ferromagnétique et supraconducteur. Pour finir, avec un modèle qualitatif nous essayons d'établir un lien entre la supraconductivité à bas champs et celle à hauts champs et les fluctuations magnétiques émergeant de la transition métamagnétique.

Tableau des échantillons

réf	nom	RRR	masse(mg)	mesures effectuées	pages
lot	#17			synthèse Czochralski	27
lot	#18			synthèse Czochralski	27
#1	URhGe#12b8_1	50	?	supraconductivité bas champs résistance sous hauts champs supraconductivité ré-entrante	41 75 101
#2	URhGe#12b8_9 N°30	20	17,9	supraconductivité bas champs supraconductivité ré-entrante	41 101
#3	URhGe#10_poly	100	<1	seconds champs critiques	41
#4	URhGe#3/13	∼5	300	diffraction neutron mesure d'aimantation	63 65
#5	URhGe#11/13	∼5	?	mesure de couple	66
#6	URhGe#12b8_5b	∼20	?	mesure de couple	66
#7	URhGe#12b8_1_18T	10	?	supraconductivité ré-entrante	101
#8	URhGe#12b8_9	20	7,4	supraconductivité ré-entrante	101
#9	URhGe#2/17	?	5	chaleur spécifique	70
#10	URhGe#12b8_9	?	4	chaleur spécifique	70

Chapitre 1

URhGe : préambule

1.1 Etat normal d'URhGe

Structure cristallographique Le composé URhGe a une structure cristallographique du type TiNiSi, ce qui correspond au groupe d'espace Pnma (N°62) avec les atomes sur les sites 4c de multiplicité 4, i.e il y a quatre motifs URhGe par maille élémentaire. Les paramètres de maille et les coordonnées des atomes sont présentés dans les tableaux 1.1 et 1.2. Les quatre positions du site 4c sont données dans le tableau 1.3 : si on applique les opérations de symétries du site 4c aux coordonnées donnés dans le tableau 1.2 on va décrire toutes les positions des atomes dans une maille élémentaire (4 atomes de U, de Rh et de Ge par maille) [4].

Il est possible de construire la structure cristallographique de URhGe à partir d'une brique pseudo-hexagonale : deux hexagones déformés d'atomes de rhodium et de germanium alternés entourent un atome d'uranium légèrement décentré comme le montre la figure 1.1. En faisant subir à cette brique les symétries imposées par le groupe d'espace Pnma : un miroir perpendiculaire à $\vec{a}$, un miroir perpendiculaire à $\vec{c}$ et une inversion on génère trois autres briques. Ces quatre briques constituent la cellule élémentaire, ensemble elles permettent de construire la structure du cristal. La figure 1.2 montre l'assemblage de ces briques : les atomes voisins d'uranium forment des chaînes en zigzag dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{c}$) le long de l'axe $\vec{a}$.

a[Å]	b[Å]	c[Å]
6.8292(10)	4.3108(6)	7.4822(9)

TAB. 1.1 – **Les paramètres de maille deURhGe**

atome	x/a	y/b	z/c
U	0.9959(9)	1/4	0.2038(05)
Rh	0.2180(16)	1/4	0.5730(17)
Ge	0.8112(10)	1/4	0.5898(10)

TAB. 1.2 – **Les coordonnées des atomes de URhGe**

position	x	y	z
1	x	1/4	z
2	$\overline{x}$+1/2	3/4	z+1/2
3	$\overline{x}$	3/4	$\overline{z}$
4	x+1/2	1/4	$\overline{z}$+1/2

TAB. 1.3 – **Position du site 4c du groupe d'espace Pnma**

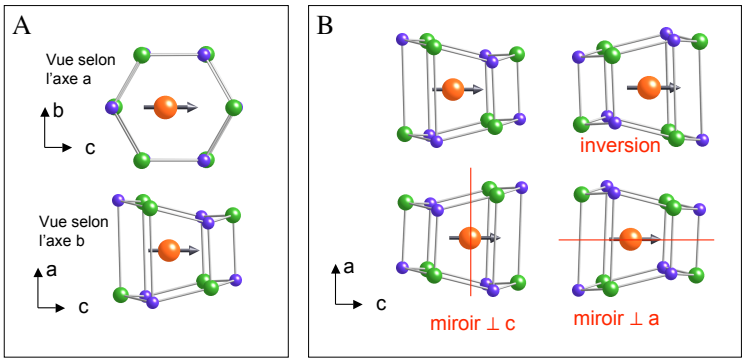

FIG. 1.1 – **Brique pseudo-hexagonale de la structure cristallographique de URhGe et cellule élémentaire.** Les flèches représentent le moment magnétique, uniquement porté par les atomes d'uranium. Panneau A : Brique pseudo-hexagonale de la structure cristallographique de URhGe, deux hexagones déformés d'atomes de rhodium et de germanium alternés entourent un atome d'uranium légèrement décentré. Panneau B : Cellule élémentaire du composé URhGe constituée de quatre briques pseudo-hexagonales images l'une de l'autre par les symétries du cristal : miroir perpendiculaire à $\vec{a}$, miroir perpendiculaire à $\vec{c}$, inversion.

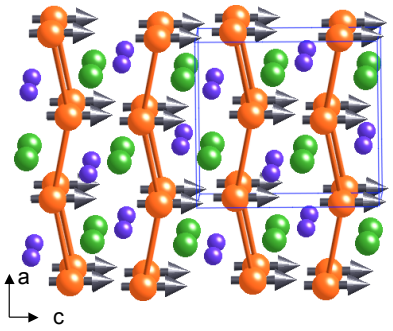

FIG. 1.2 – **Structure cristallographique de URhGe.** Les flèches représentent le moment magnétique, uniquement porté par les atomes d'uranium. Le long de l'axe $\vec{a}$ les atomes voisins d'uranium forment des chaînes en zigzag.

Ferromagnétisme

• Structure magnétique

URhGe devient ferromagnétique en dessous de 9,5 K. Les moments sont portés par les atomes d'uranium et s'alignent selon l'axe $\vec{c}$: m_c=0,4 μ_B/U [3]. La structure est montrée sur la figure 1.2.

• Ferromagnétisme itinérant

Deux descriptions ont été développées pour décrire le magnétisme : le modèle des électrons localisés et le modèle des électrons itinérants. Ces deux modèles sont deux approches schématiques de la réalité. Le modèle des électrons localisés considère que les électrons responsables du magnétisme sont localisés autour du noyau de leur atome d'origine. Les électrons ont dans ce modèle une configuration électronique proche de celle qu'ils ont dans l'atome ou l'ion libre auquel ils sont rattachés. Le modèle des électrons itinérants considère les électrons de conduction, complètement délocalisés, comme responsables du magnétisme. Plusieurs observations expérimentales indiquent que URhGe est un ferromagnétique *itinérant* :

(1). le moment ordonné d'URhGe, m_c=0,4 μ_B, est bien inférieur au moment effectif m_{cw}=1,8 μ_B prévu à partir de l'état paramagnétique par une loi de Curie-Weiss et au moment effectif de l'ion libre U^{3+} calculé à partir des règles de Hund : m_{eff}=3,62μ_B. Pour faire le lien entre la constante de Curie C de la loi de Curie-Weiss : χ^{-1}=(T-θ_p)/C et le moment effectif m_{cw} on considère une substance paramagnétique composée d'atomes/ions libres soumis à un champ moléculaire (action de l'interaction d'échange ferromagnétique) dont la direction des moments est libre de s'orienter. Pour une démonstration détaillée le lecteur peut se reporter à l'ouvrage [5]. Le calcul du moment effectif d'un ion libre à partir des règles de Hund est également détaillé dans cet ouvrage.

(2). à basses températures l'aimantation M suit une loi du type

$$M^2 = M_0^2(1 - (T/T^*)^2) \tag{1.1}$$

avec $T^* \sim T_{Curie}$. Dépendance expliquée par Lonzarich et Taillefer [6] dans le cas de métaux faiblement ou presque ferromagnétiques.

(3). l'entropie magnétique S= $\int_0^{T_{Curie}} C_P/T dT$ est bien inférieure à la valeur prédite pour un composé ferromagnétique localisé doublet simple. Pour un composé ferromagnétique localisé doublet simple on a S_{ferro_loc}=Rln2 en $J.K^{-1}.mol^{-1}$ et pour URhGe S_{ferro}=0,35Rln2 avec les même unités. Nous avons calculé cette entropie magnétique en intégrant la courbe présentée sur la figure 1.3de 0 K à 9,5 K. Nous avons surestimé la valeur de l'entropie magnétique puisque nous prenons en compte l'entropie due aux phonons.

(4). l'aimantation ne parvient pas à saturation malgré un champ appliqué de 35 Tesla [7].

• Anisotropie magnétique

Le composé URhGe a une anisotropie magnétique très forte comme le montrent les mesures d'aimantation faites par A.Huxley présentées figure 1.4. Il faudrait a priori 24 Tesla pour que les courbes d'aimantation de l'axe facile $\vec{c}$ et de l'axe $\vec{b}$ se croisent d'après les mesures présentées. Le pied observé à bas champ pour les axes $\vec{a}$ et $\vec{b}$ est dû à une légère désorientation de l'échantillon. Il semble impossible de tourner les moments magnétiques selon l'axe de difficile aimantation $\vec{a}$.

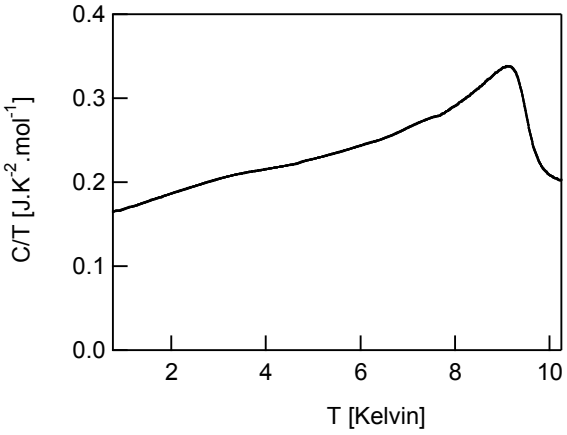

FIG. 1.3 – **Chaleur spécifique pour le calcul de l'entropie magnétique dans URhGe.** Mesures faites par Aoki et collaborateurs [3]. Dépendance en fonction de la température de la chaleur spécifique divisée par la température en dessous de la transition ferromagnétique de URhGe. L'entropie magnétique S= $\int_0^{T_{Curie}} C_P/\mathrm{TdT}$ a été calculée à partir de cette courbe. Nous avons intégré cette courbe de 0 K à 9,5 K. Nous avons surestimé la valeur de l'entropie magnétique car nous avons pris en compte l'entropie due aux phonons.

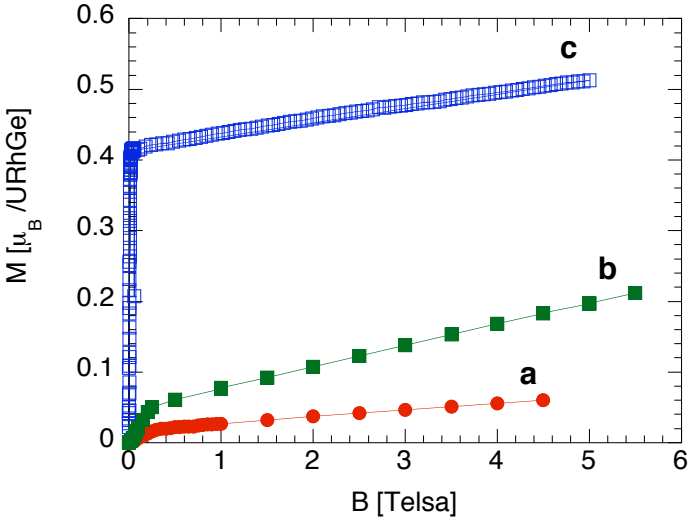

FIG. 1.4 – **Anisotropie de l'aimantation d'URhGe**. Aimantations de URhGe selon les trois axes cristallographiques $\vec{a}$, $\vec{b}$ et $\vec{c}$ en fonction du champ appliqué. Ces mesures ont été faites par A.Huxley, à 2 K pour l'axe $\vec{c}$, à 1,8 K pour les axes $\vec{b}$ et $\vec{c}$. Le pied observé à bas champ pour les axes $\vec{a}$ et $\vec{b}$ est dû à une légère désorientation de l'échantillon. L'axe de facile aimantation est l'axe $\vec{c}$. L'axe de difficile aimantation est l'axe $\vec{a}$.

1.2 Supraconductivité et ferromagnétisme

Caractéristiques de la supraconductivité. Tout d'abord il convient de définir la notion de supraconducteur. Un matériau est dit supraconducteur si sa résistance électrique est nulle et s'il expulse le champ magnétique. Un matériau est supraconducteur dans un domaine qui est fonction de la température, du courant, du champ magnétique et de la pression appliqués. On peut apporter une nuance dans le cas des supraconducteurs de type II. Pour des champs magnétiques appliqués compris entre Hc_1 et Hc_2 les supraconducteurs de type II sont considérés comme étant supraconducteurs alors qu'ils laissent pénétrer le champ magnétique : ils sont dans l'état mixte. Le champ Hc_1 correspond au champ au-dessus duquel le champ commence à pénétrer le matériau. Pour des champs appliqués supérieurs à Hc_2 la supraconductivité est détruite. Dans l'état mixte le champ pénètre sous forme de vortex engendré par des électrons ayant des trajectoires circulaires. Dans ce cas la résistance mesurée n'est pas forcément nulle, il peut y avoir une dissipation due au déplacement des vortex dont le coeur est dans un état normal non supraconducteur. Pour aller plus loin le lecteur pourra consulter les références suivantes [8, 9, 10].

NB : Dans les paragraphes suivants nous utilisons les termes d'état singulet, triplet, fonction d'onde de type s, d, ou p. Pour ne pas alourdir ce chapitre d'introduction nous n'avons pas défini ces termes ici mais dans l'annexe A afin qu'un lecteur non familier de ces notions puisse s'y référer.

Supraconductivité conventionnelle. Pour plus de clarté il faut définir la supraconductivité conventionnelle telle qu'elle est envisagée dans cette thèse. Dans la phase supraconductrice les électrons se couplent en paires de Cooper dont les spins sont opposés : paire **singulet** (plus rigoureusement on définit cet état par le fait que le spin total de la paire est nul). La fonction d'onde spatiale de ces paires est de **type s isotrope ou anisotrope avec uniquement les symétries du réseau cristallin**. Les **phonons** (virtuels), vibrations du réseau d'ions, sont responsables de la formation des paires de Cooper. Les phonons virtuels créent une interaction attractive entre électrons. Grâce à l'action de cette interaction il est énergétiquement favorable pour les électrons de se mettre en paires. On observe un condensât de paires de Cooper (ces paires ont toutes la même énergie) et il apparaît un gap dans le spectre des excitations thermiques. La température supraconductrice correspond grossièrement à l'énergie de ce gap supraconducteur. Pour une température supérieure à cette température supraconductrice critique le condensât n'est plus stable : les excitations thermiques ont cassé toutes les paires de Cooper, la supraconductivité disparaît. Dans la phase supraconductrice il y a cohérence de phase, i.e. les phases des fonctions d'onde décrivant les paires de Cooper sont identiques dans tout le matériau. C'est grâce à cette rigidité que le courant peut alors circuler sans dissipation. A cause de cette cohérence de phase il y a brisure de la symétrie de jauge à la transition supraconductrice : un changement local de jauge n'est plus possible puisqu'il affecterait localement la phase des fonctions d'onde décrivant les paires de Cooper alors qu'elle doit être identique dans tout le matériau. Une introduction plus détaillée au mécanisme de la supraconductivité dite BCS peut être trouvée dans le chapitre 6 de la référence [11].

On désigne cette supraconductivité comme conventionnelle probablement pour deux raisons. La première est historique. On a d'abord mesuré des matériaux présentant une supraconductivité conventionnelle. La deuxième raison est qu'il existe une théorie communément acceptée expliquant la supraconductivité conventionnelle : la théorie Bardeen

Cooper Schrieffer (BCS). Cette théorie, publiée en 1957 [12], a été enrichie et permet d'expliquer parfaitement des cas complexes de supraconductivité conventionnelle. Un des dernier exemple en date est celui du composé MgB_2. Ce composé présente deux bandes supraconductrices, i.e il y a deux types de paires de Cooper dans la phase supraconductrice de ce matériau. Une bande est formée de paires de Cooper avec des électrons ayant des grandes masses effectives. L'autre bande est composée d'électrons plus légers [13].

Supraconductivité non conventionnelle. La supraconductivité est non conventionnelle quand des symétries, en plus de la symétrie de jauge, sont brisées à la transition supraconductrice. Avec la définition donnée dans cette thèse de la supraconductivité conventionnelle, il faut ajouter comme non conventionnelle une supraconductivité dont le mécanisme de formation ne serait pas expliquée par les phonons même si aucune autre symétrie que la symétrie de jauge n'est brisée à la transition supraconductrice (aucun exemple à ma connaissance à ce jour). Le célèbre YBaCuO, supraconducteur à haute température critique, est un exemple de supraconducteur non conventionnelle. Dans son cas il semblerait que la fonction d'onde spatiale des paires de Cooper soit de type d abaissant alors la symétrie du système à la transition supraconductrice. Le mécanisme à l'origine de la formation des paires de Cooper dans ce matériau n'est pas clairement établi. Il se pourrait que les phonons et les fluctuations magnétiques jouent un rôle [14]. Le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de V. P. Mineev et K.Samokhin [15] pour une discussion plus avant de la supraconductivité non conventionnelle.

Les théories essayant d'expliquer la supraconductivité non conventionnelle sont nombreuses mais aucune n'a reçu l'approbation générale. Il est possible qu'il existe plusieurs types de supraconductivité non conventionnelle et qu'il faille différentes théories pour les expliquer. **L'enjeu des études menées sur les matériaux supraconducteurs non conventionnels est donc la compréhension du mécanisme à l'origine de la supraconductivité dans ces matériaux.**

Supraconductivité et ferromagnétisme, le cas de URhGe et UGe_2 La supraconductivité de URhGe et UGe_2 serait non conventionnelle. La particularité des composés URhGe et UGe_2 est qu'ils présentent la coexistence de deux phases a priori antagonistes : supraconductivité et ferromagnétisme. Pour les supraconducteurs conventionnels l'application d'un champ magnétique tend à détruire la supraconductivité. Dans le cas conventionnel l'état supraconducteur correspond à un condensât de paires d'électrons dont les spins sont opposés. L'application d'un champ magnétique a deux effets qui vont limiter la supraconductivité : la limite orbitale et la limite de Pauli. La limite orbitale correspond à l'action d'un champ magnétique sur une particule chargée : la particule se met à tourner. Le rayon de sa trajectoire est d'autant plus petit que le champ magnétique est grand. La limite orbitale correspond grossièrement au moment où ce rayon devient plus petit que la longueur de cohérence des paires de Cooper : la supraconductivité est alors détruite. Cette limite orbitale ne peut être envisagée que dans le cas des supraconducteurs de type II. La limite de Pauli ou limite paramagnétique est la conséquence de l'effet Zeeman : les spins des électrons tendent à s'aligner avec le champ. Quand aligner les deux spins des électrons de la paire de Cooper représente un gain d'énergie plus important que le gap supraconducteur la supraconductivité est détruite.

Dans un premier temps, le problème de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme a été étudié théoriquement par V. Ginzburg en 1957 [16]. En conclusion,

V. Ginzburg estime que cette coexistence est possible à condition que l'induction crée par l'aimantation du composé n'excède pas le champ critique. Au vu des valeurs de champs critiques alors connus et des aimantations spontanées mesurées dans les matériaux ferromagnétiques, observer cette coexistence semble délicat. V. Ginzburg propose d'étudier les couches minces magnétiques (l'aimantation est moins forte) dans l'espoir d'observer cette coexistence. En 1958, B.T. Matthias et collaborateurs [17] montrent que même un très faible pourcentage d'impuretés magnétiques (le gadolinium, terre rare) suffit à détruire la supraconductivité du lanthane. A partir de 1976, on observe la coexistence de la supraconductivité et d'ordres magnétiques dans des composés à base de terres rares (RE=Rare Earth) : $RERh_4B_4$, $REMo_6S_8$ [18] et $REMo_6Se_8$. La plupart de ces composés sont supraconducteurs en dessous d'une température critique entre 2 K et 10 K puis ils subissent une transition magnétique vers 0,5-4 K (liste de quelques composés et références dans [19]) . Dans $ErRh_4B_4$[20] et $HoMo_6S_8$[21] on observe de la supraconductivité et un ordre ferromagnétique mais ces deux phénomènes apparaissent antagonistes : la supraconductivité dans ces deux composés est détruite lors de la transition vers un état ferromagnétique. $ErRh_4B_4$ devient supraconducteur en dessous de 8,7 K. En dessous de 1 K, sa température de Curie, il apparaît une structure ferromagnétique modulée. Une structure ferromagnétique modulée signifie que deux moments magnétiques voisins sont alignés dans la même direction mais que l'amplitude des moments varie sinusoïdalement dans tout le composé. En dessous de 0,8 K, la supraconductivité disparaît et un ordre ferromagnétique non modulé s'établit dans $ErRh_4B_4$ (établi par diffraction neutronique [22]). Dans la phase présentant la coexistence de la supraconductivité et d'un ordre ferromagnétique modulé, la période de modulation est plus petite que la longueur de cohérence des paires de Cooper. Les paires de Cooper ressentent donc un champ nul en moyenne. Le comportement est identique pour le composé $HoMo_6S_8$. Les références [23, 24] expliquent au niveau théorique un tel comportement. Ce n'est que vers le début des années 2000, avec les découvertes des composés URhGe [3], UGe_2 [2] et UIr [25] qu'a été observé la coexistence spatiale sans antagonisme de la supraconductivité et d'un ordre ferromagnétique. Pour une revue plus complète sur la coexistence de la supraconductivité et du magnétisme le lecteur pourra consulter les références [26, 27, 19].

Pour expliquer la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme (sans antagonisme comme dans URhGe et UGe_2) les modèles théoriques envisagent un mécanisme d'appariement des paires de Cooper non conventionnel. Ils désignent les excitations magnétiques comme responsables de l'interaction à l'origine du couplage des électrons en paires de Cooper. Le point de divergence des théories concerne la nature de ces excitations magnétiques et l'orientation des spins des électrons des paires de Cooper.

Certains comme Abrikosov [28] ou Suhl [29] privilégient un modèle où les spins responsables des interactions magnétiques sont localisés, les électrons des paires de Cooper auraient un état singulet de spin (spins antiparallèles) et la fonction d'onde spatiale des paires de Cooper serait de type s. Il n'y aurait donc pas de brisure de symétrie autre que celle de jauge à la transition supraconductrice mais le mécanisme à l'origine du couplage des électrons en paires serait différent de celui des supraconducteurs conventionnels.

D'autres comme Fay et Appel [30] prennent l'hypothèse d'un ferromagnétisme itinérant et de paires de Cooper dont les électrons auraient des spins parallèles. Dans ce cas la fonction d'onde spatiale des paires de Cooper est forcément antisymétrique (car elle décrit des fermions) abaissant donc la symétrie du système à la transition supraconductrice. Cette supraconductivité est appelée supraconductivité triplet. Ce couplage des électrons avec des

spins parallèles expliquerait que le champ magnétique interne dû à l'état ferromagnétique ne casse pas les paires de Cooper et que l'impulsion totale de chaque paire soit nulle. En effet, le champ magnétique interne (créé par l'ordre ferromagnétique) décale différemment les surfaces de Fermi des électrons selon qu'ils portent un spin up ou un spin down. Les partisans d'une supraconductivité singulet supposent que la polarisation des matériaux est faible, décalant très peu les surfaces de Fermi des électrons up ou down.

1.3 Supraconductivité d'URhGe : résultats antérieurs

Par différentes techniques Aoki et al [3] ont montré que URhGe présente une phase supraconductrice en dessous d'environ 250 mK. Cette phase apparaît alors que le composé est déjà ferromagnétique pour des températures inférieures à 9,5 K cf. figure 1.5.

Les différentes mesures de Aoki et collaborateurs mettent en évidence différents aspects de la supraconductivité dans URhGe cf. figure 1.6.

(a). La résistivité tombe à zéro pour une température en dessous d'environ 250 mK.

(b). La mesure de susceptibilité alternative montre l'écrantage partielle du champ à la transition supraconductrice. L'échantillon n'est pas parfaitement diamagnétique car comme le propose Aoki et al [3] le composé est sûrement dans l'état mixte : le ferromagnétisme de l'échantillon agit comme l'application d'un champ magnétique. Les auteurs expliquent la dépendance en température de la susceptibilité alternative en utilisant la longueur de pénétration de Campbell. Cette longueur de pénétration est plus grande que celle de London et rentre en jeu lors de l'application de champ magnétique alternatif. Dans le cas linéaire la partie imaginaire de la susceptibilité alternative est nulle et la longueur de pénétration de Campbell varie comme $B^{1/4}$.

(c). La valeur élevée de la chaleur spécifique divisée par la température juste avant la transition supraconductrice indique la présence d'électrons fortement corrélés, i.e d'électrons dont la masse effective est très élevée : $m^* \sim 100m_o$. Cette masse effective élevée classe le composé URhGe dans la catégorie des fermions lourds. Les électrons fortement corrélés sont des électrons f provenant de l'uranium. Le saut important de chaleur spécifique à la transition supraconductrice par rapport à sa valeur avant la transition indique d'une part que les électrons f fortement corrélés entre en jeu dans le mécanisme de la supraconductivité et d'autre part que la transition est massive ("bulk"). Cette dernière remarque est importante dans la mesure où la supraconductivité mesurée pourrait être due à une phase parasite présente dans l'échantillon et non pas au composé URhGe lui-même. Pour une mesure de résistivité il suffit qu'il y ait percolation de la phase parasite, si cette phase est supraconductrice et que les contacts sont situés de part et d'autre de cette phase alors l'échantillon présentera une transition vers une résistance nulle. Ce cas de figure a été observé dans $ZrZn_2$ [31]. En ce qui concerne le composé URhGe, le travail de Aoki et al [3] et de F.Hardy [32] sur l'homogénéité des échantillons et sur les mesures de chaleur spécifique prouvent l'aspect massif de la supraconductivité à bas champs de ce composé.

(d). La mesure d'aimantation met en évidence deux points. Le premier est que l'aimantation ne change pas radicalement lors de la transition supraconductrice ce qui montre que la supraconductivité coexiste bien avec un ordre ferromagnétique. Le second point est qu'il y a une expulsion partielle du champ magnétique dans la phase

supraconductrice : cette mesure tend à prouver le caractère massif de la supraconductivité (une phase parasite n'expulserait probablement pas autant).

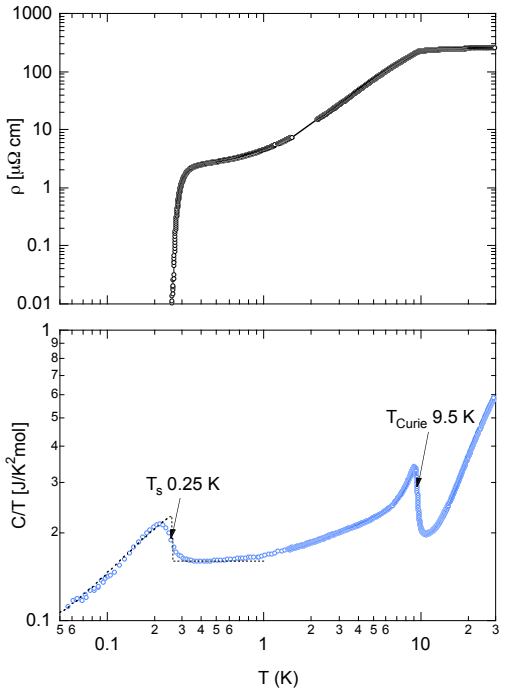

FIG. 1.5 – **Transition supraconductrice mesurée dans des polycristaux de URhGe.** Mesures faites par Aoki et collaborateurs [3]. Dépendance en température de la résistivité et de la chaleur spécifique divisée par la température. En dessous de 9,5 K URhGe est ferromagnétique puis à 250 mK le composé devient aussi supraconducteur.

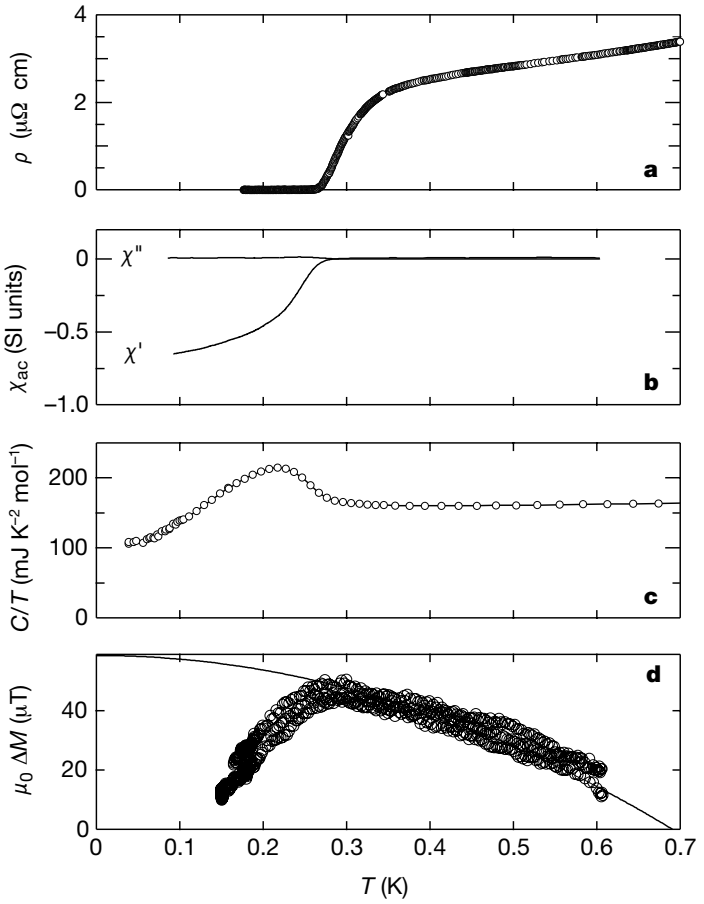

FIG. 1.6 – **Transition supraconductrice mesurée dans des polycristaux de URhGe.** Mesures faites par Aoki et collaborateurs [3]. Dépendance en température sans champ appliqué de la résistance (**a**), de la susceptibilité alternative (**b**), de la chaleur spécifique divisée par la température (**c**). (**d**), changement relatif de l'aimantation statique pour un champ appliqué constant de 0.05 Tesla. (**a**) : la résistance tombe à zéro à la transition supraconductrice. (**b**) : la partie réelle χ' de la susceptibilité montre l'écrantage partiel du champ à la transition supraconductrice, la partie imaginaire χ" est constante : la mesure a été faite dans un régime linéaire, pour une petite variation de champ alternatif. (**c**) : à la transition supraconductrice on observe un saut de chaleur spécifique : la supraconductivité est massive. (**d**) : la ligne modélise l'évolution de l'aimantation attendue sans l'influence de la supraconductivité : $M = M_0\sqrt{1-(T/T_0)^2}$, le changement relatif de l'aimantation à la transition montre d'une part l'expulsion du champ dans la phase supraconductrice et d'autre part la coexistence du ferromagnétisme et de la supraconductivité : la supraconductivité ne modifie pas radicalement le ferromagnétisme.

La coexistence du ferromagnétisme et de la supraconductivité dans URhGe, deux phénomènes a priori antagonistes suggère que **la supraconductivité dans URhGe est non conventionnelle**. Le ferromagnétisme tend à aligner les spins des électrons, mécanisme s'opposant à la supraconductivité conventionnelle dans laquelle les paires de Cooper singulet sont formées d'électrons ayant des spins opposés. Dans URhGe, les paires de Cooper seraient formées d'électrons avec des spins alignés (paires triplet) et le magnétisme pourrait jouer un rôle dans le mécanisme à l'origine du couplage des paires de Cooper. Dans la théorie BCS seuls les phonons sont avancés comme étant responsables de l'appariement des électrons en paires de Cooper. **Les indices expérimentaux du caractère non conventionnelle de la supraconductivité dans URhGe sont :**

(1). la sensibilité de la supraconductivité à la qualité cristallographique des échantillons. La supraconductivité n'apparaît que dans des échantillons ayant une bonne qualité cristallographique comme le montre les caractérisations présentées sur le panel A de la figure 1.7 et décrites dans la thèse de F.Hardy. Cette figure présente des mesures de résistance en fonction de la température pour des échantillons de qualités différentes. La qualité des échantillons est quantifiée par le rapport de résistivité résiduelle (RRR).

Le rapport de résistivité résiduelle (RRR) est défini de la façon suivante. C'est le rapport de la résistance mesurée à 300 K par celle mesurée à très basse température (dans l'état normal non supraconducteur). La résistance à 300 K dépend essentiellement des phonons (la résistivité varie peu d'un cristal à l'autre) tandis que la résistance à basse température est très sensible aux impuretés et inhomogénéités du cristal. Plus petite est la résistance à basse température meilleur est le cristal. Un grand RRR indique un cristal de bonne qualité cristallographique avec un grand libre parcours moyen électronique.

Pour un RRR inférieur à 20 la transition supraconductrice n'apparaît pas dans la résistance ou n'est pas aussi marquée (la transition a lieu en deux temps). Or la supraconductivité conventionnelle (s-wave) est très peu sensible à la présence d'impuretés non magnétiques. Anderson [33] montre que dans le cas des supraconducteurs conventionnels la température critique ne varie que de quelques pour-cents pour des concentrations élevées d'impuretés d'origine structurale ou chimique. Et Larkin [34] a démontré que la température supraconductrice pour un supraconducteur non conventionnel varie fortement avec les taux d'impuretés. Dans ce cas la variation de la température critique suit la loi d'Abrikosov-Gor'Kov [35] établie à l'origine pour expliquer la variation de température critique en fonction du taux d'impuretés magnétiques dans un supraconducteur conventionnel. Le panel B de la figure 1.7 présente la variation de la température supraconductrice des échantillons en fonction de 1/RRR qui correspond grossièrement au taux d'impuretés présentes dans l'échantillon. La ligne continue est un ajustement de la loi d'Abrikosov-Gor'Kov.La ligne pointillée horizontale montre le comportement théorique pour un supraconducteur conventionnel. La sensibilité de la supraconductivité à la qualité des échantillons est donc un argument fort en faveur d'une supraconductivité non conventionnelle dans URhGe.

(2). l'absence possible de limitation paramagnétique pour le champ critique. La limite de Pauli ou limite paramagnétique est la conséquence de l'effet Zeeman : les spins des électrons tendent à s'aligner avec le champ. Quand aligner les deux spins des électrons de la paire de Cooper représente un gain d'énergie plus important que

le gap supraconducteur, la supraconductivité est détruite. F.Hardy et A.Huxley ont montré que le champ critique peut être décrit sans limite paramagnétique [36, 32]. Cette absence de limitation est un argument en faveur d'un couplage triplet de paires de Cooper dans URhGe : les paires de Cooper auraient des spins parallèles et la fonction d'onde spatiale du paramètre serait alors de type impaire (p-wave pur d'après [36]).

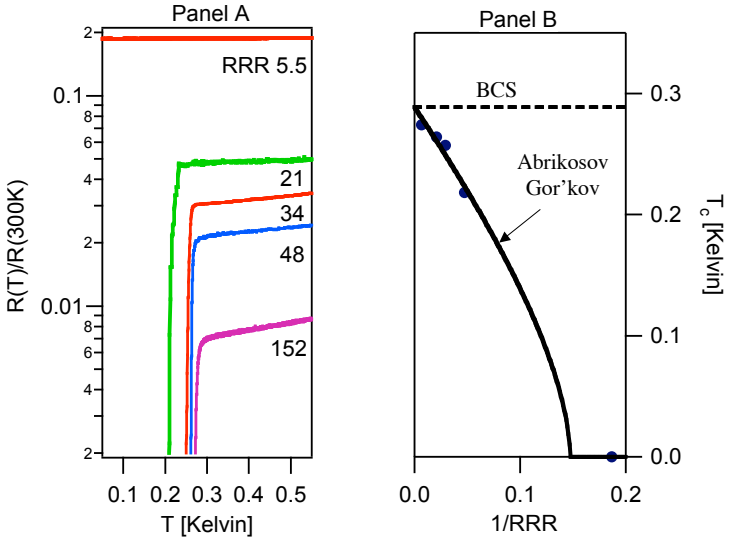

FIG. 1.7 – **Sensibilité de la supraconductivité à la qualité des cristaux.** Mesures faites par F.Hardy [32]. **Panel A** Dépendance en température de la résistance d'échantillons de différentes qualités. La qualité des échantillons est quantifiée par le RRR. Plus grand est le RRR, meilleur est l'échantillon. La température supraconductrice augmente avec la qualité des échantillons. L'échantillon de RRR=5 ne présente pas du tout de supraconductivité. **Panel B** Températures critiques des différents échantillons en fonction de 1/RRR. La ligne continue est un ajustement de la loi d'Abrikosov-Gor'Kov. A l'origine, la loi d'Abrikosov-Gor'Kov [35] a été établie pour expliquer la variation de température critique en fonction du taux d'impuretés magnétiques dans un supraconducteur conventionnel, puis Larkin [34] a démontré que cette loi peut être appliquée pour un supraconducteur non conventionnel en fonction du taux d'impuretés (magnétiques ou non). La ligne pointillée horizontale montre le comportement théorique pour un supraconducteur conventionnel.

Instabilité magnétique et supraconductivité. Nombre de théories proposant d'expliquer la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme suggèrent les fluctuations magnétiques comme responsables du couplage des électrons en paire de Cooper. Dans le cas d'UGe_2 une transition magnétique a lieu quand le composé est mis sous pression et la phase supraconductrice englobe cette transition. La température supraconductrice est même maximum exactement à la transition magnétique comme le montre la figure 1.8. Ceci conforte l'idée que les fluctuations magnétiques, maximum à la transition, jouent un rôle important dans la supraconductivité de ce composé. Dans ce sens, il était logique de chercher une instabilité magnétique dans URhGe. Frédéric Hardy a, dans cette optique, établi le diagramme température pression de URhGe [37] présenté figure 1.9. Cette étude

n'a pas mis en évidence de transition magnétique induite par la pression. A l'inverse elle révèle que URhGe s'éloigne d'une instabilité magnétique alors que la pression augmente. La phase supraconductrice disparaît au dessus de 45 Kbar. En revanche **en appliquant un champ magnétique selon l'axe b des cristaux F.Hardy et A.Huxley ont découvert une transition magnétique. Au cours de cette thèse l'étude de cette transition magnétique induite sous champ a été approfondie (résultats dans le chapitre 4) et une deuxième phase supraconductrice englobant cette transition magnétique a été observée et étudiée (chapitre 6).**

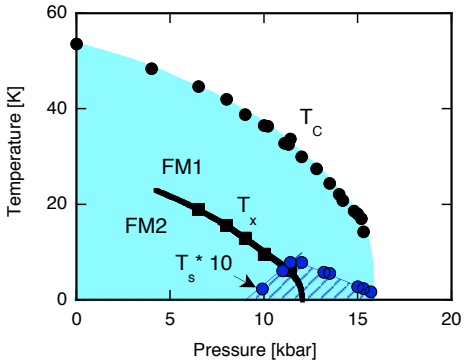

FIG. 1.8 – **Diagramme de phase pression-température du supraconducteur ferromagnétique UGe_2.** Mesures faites par A.Huxley et collaborateurs [38, 39]. En dessous de T_c UGe_2 devient ferromagnétique : domaine bleu sur la figure. UGe_2 a une transition magnétique entre deux phases ferromagnétiques FM1 et FM2. Le moment magnétique reste aligné selon l'axe de facile aimantation $\vec{a}$ mais change d'amplitude : m_{FM1}=1 μ_B/U et m_{FM2}=1,4μ_B/U. A basse pression la transition est un crossover. La transition devient du premier ordre au dessus d'environ 5 Kbar : ligne solide des températures T_x. La phase supraconductrice d'UGe_2 englobe cette transition, zone hachurée, délimitée par la température critique supraconductrice T_s.

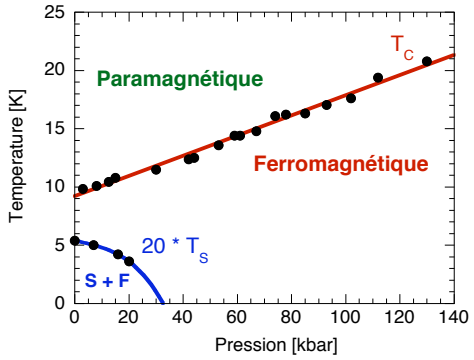

FIG. 1.9 – **Diagramme de phase pression-température de URhGe.** Mesures faites par F.Hardy [32, 37]. En dessous de T_c URhGe devient ferromagnétique. URhGe est supraconducteur et ferromagnétique en dessous de T_s, zone annotée S+F sur la figure.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

2.1 Elaboration des cristaux

Enjeux L'étude de la supraconductivité dans URhGe nécessite des monocristaux de bonne qualité cristallographique. Pour observer la supraconductivité dans URhGe il faut des échantillons qui se situent en limite propre : le libre parcours moyen des électrons doit être supérieur à la longueur de cohérence ξ des paires de Cooper. En effet, la supraconductivité dans URhGe est non conventionnelle : elle est détruite par toutes les impuretés et les inhomogénéités (sur une échelle de longueur inférieure à ξ) présentes dans le cristal. De plus les premières études ont montré que cette supraconductivité est fortement anisotrope d'où l'importance d'avoir des monocristaux. Finalement, les études aux neutrons requièrent des grands monocristaux car le rhodium (Rh) absorbe fortement les neutrons ; pour obtenir un maximum d'intensité il faut que les neutrons traversent une épaisseur de quelques millimètres (la valeur optimale dépend de la longueur d'onde des neutrons) et que la surface perpendiculaire aux parcours des neutrons soit la plus grande possible.

Methode La méthode utilisée au cours de cette thèse est le tirage Czochralski sous argon. Une charge est préparée ; elle est composée d'uranium (U), de rhodium (Rh) et de germanium (Ge). Cette charge est fondue par induction. Un cristal est tiré à partir de la charge liquide.

• **Préparation de la charge** Les éléments de départ sont d'une très grande pureté. L'uranium (en barette) est pur à 99.95%, le rhodium (en poudre) à 99,99%, et le germanium (en petits morceaux) à 99,9999%.

L'uranium est attaqué par voie électrochimique pour supprimer son oxydation de surface. Il est plongé dans un mélange de 10% d'acide perchlorique et de 90% d'acide éthanoïque (aussi appelé acide acétique). Une tension de 12V continue est appliquée entre l'uranium, l'anode, et une cathode en acier inoxydable. Il est ensuite dégazé sous ultravide, puis fondu.

Le rhodium, sous forme de poudre, est mis sous forme de pastille puis fondu. Il est ensuite attaqué par l'eau régale (mélange 4 :1 d'acide chlorhydrique et d'acide nitrique). L'attaque sur le rhodium permet d'enlever sa surface qui peut être moins pure et d'ajuster sa masse.

Le germanium, déjà très pur, n'est pas soumis à une attaque chimique. Sa masse est ajustée par la sélection de petits morceaux.

• **Chauffage par induction** La charge est placée dans un creuset (en cuivre) cf figure 2.1. Les spires (en cuivre) situées autour du creuset créent un champ magnétique alternatif haute fréquence (quelques kHz). Des courants induits apparaissent dans la charge pour écranter ce champ magnétique. Les courants échauffent la charge et créent un moment induit $\vec{M}$. La charge fond et lévite dans le creuset. La lévitation est dûe à la force $\vec{F}$ créée par le gradient du champ appliqué $\vec{H}$: $\vec{F}=(\vec{M}.\vec{\nabla}).\vec{H}$. La lévitation permet d'éviter la pollution par le creuset de la charge chauffée. Les spires et le creuset sont refroidis par une circulation d'eau.

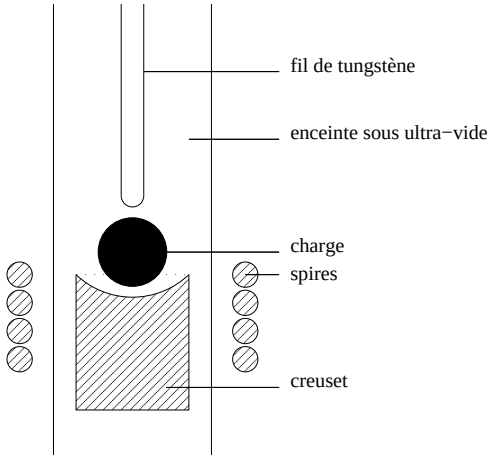

FIG. 2.1 – **Principe du tirage Czoschralski.** La charge liquide, composée des éléments composant le cristal, est en lévitation au centre du creuset (en cuivre). Cette charge a été fondue par induction grâce au champ magnétique créé par les spires (en cuivre). Un cristal est tiré à partir de la charge liquide avec un fil de tungstène en rotation.

• **Elaboration des monocristaux** Un cristal est tiré à partir de la charge liquide avec un fil de tungstène. Au contact du fil de tungstène froid la charge se solidifie : le cristal se forme. Le fil est soumis à un mouvement de rotation de 1 tour toutes les 20 secondes afin d'homogénéiser la charge. Le fil est lentement tiré à 10 millimètre par heure. Le tirage a lieu sous argon pour éviter une évaporation trop importante du germanium dont la tension de vapeur saturante est très élevée , de l'ordre de 5.10^{-3} mbar à 1300°C. Pour comparaison les tensions de vapeur saturante de l'uranium et du rhodium sont inférieures à 10^{-7} mbar à 1300°C. La température de fusion de la charge étant supérieure à 1300°C (probablement vers 2000°C) un tirage sous ultra-vide, de l'ordre de 10^{-9} mbar, n'est pas adapté.

Traitement thermique Les masses d'uranium, de rhodium et de germanium composant la charge sont calculées pour avoir les éléments en proportion stoechiométrique. Les masses utilisées correspondent au calcul à quelques milligrammes près (les balances utilisées ont une précision de 0.1mg).

En utilisant une charge dont les éléments d'uranium (U), de rhodium (Rh) et de germanium (Ge) sont en proportion stoechiométrique on considère le composé URhGe comme étant congruent : il semble utile de nuancer. URhGe a probablement un domaine d'existence assez complexe, semblable à celui proposé par la figure 2.2. Le domaine d'existence

du composé URhGe serait asymétrique : il pourrait exister pour un excès de germanium et pas pour un défaut (il se forme alors le précipité URh). Ceci expliquerait que les polycristaux obtenus par trempe aient un très bon rapport de résistivité résiduelle (RRR), et donc une bonne qualité cristallographique (cf. *définition du RRR* p.23), tandis que les monocristaux, obtenus par un refroidissement plus lent, ont un RRR plus petit. Lors d'un refroidissement rapide il se forme des polycristaux ayant exactement la composition de la charge (U, Rh et Ge en proportion 1 :1 :1). Lors d'un refroidissement lent, à cause du décalage en composition du solide (zone grise sur la figure 2.2) par rapport au liquide (zone blanche sur la figure 2.2) il se forme des monocristaux avec des compositions plus ou moins homogènes : il y a des morceaux présentant exactement la bonne composition, d'autres ayant un excès de germanium et dans cette matrice de URhGe on peut trouver d'autres phases comme des précipités de URh (observés par microanalyse X dans certains échantillons de mauvaise qualité). Ceci expliquerait l'importance du traitement thermique : il permet d'éliminer une partie du germanium en excès. Les échantillons supraconducteurs (de très bonne qualité cristallographique) ont tous subi deux recuits successifs. Un premier recuit d'environ 20h à 1300°C. Ce recuit a lieu sous ultra-vide, un dépôt noirâtre sur le four et une légère diminution de la masse de l'échantillon témoigne de la perte de germanium. Le deuxième recuit dure environ 5 jours à 800°C. Les études concernant les traitements thermiques sont disponibles dans la thèse de F.Hardy [32].

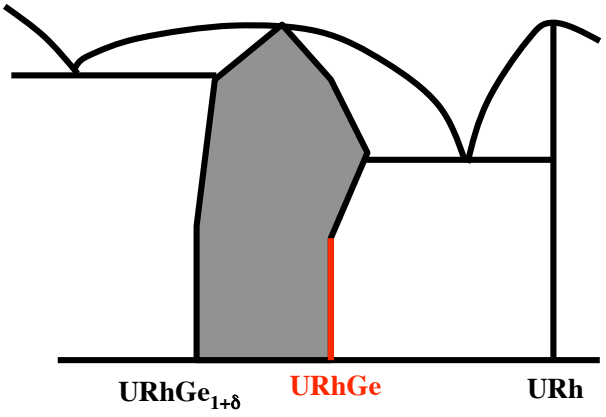

FIG. 2.2 – **Hypothèse sur le domaine d'existence du composé défini URhGe.** Le domaine d'existence du composé URhGe, en gris sur la figure, serait asymétrique : il pourrait exister pour un excès de germanium et pas pour un défaut (il se forme alors le précipité URh). Lors d'un refroidissement rapide il se forme des polycristaux ayant exactement la composition de la charge (U, Rh et Ge en proportion 1 :1 :1). Lors d'un refroidissement lent, il se forme des monocristaux avec des compositions plus ou moins homogène : il y a des morceaux présentant un excès de germanium et d'autres phases.

Résultat Durant cette thèse j'ai réalisé deux nouveaux tirages de URhGe. Seul un s'est révélé intéressant : il présentait des monocristaux et après un traitement thermique au moins un échantillon était supraconducteur, voir mesure présentée figure 2.3. Un monocristal a été testé en diffraction neutronique : les pics de Bragg montrent des épaulements selon les pics étudiés, voir figure 2.4. Le Laue par diffraction neutronique fait sur cet échantillon montre également le désordre de la structure cristallographique : les tâches de

Bragg ne sont pas très bien définies, voir figure 2.5. Les études de diffraction neutronique ont été faite à l'ILL, le Laue sur l'instrument OrientExpress et les courbes en rotations sur le diffractomètre D23. Par manque de temps une étude plus complète de ce lot n'a pu être effectuée.

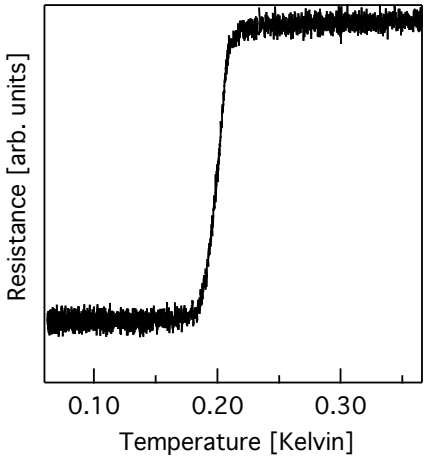

FIG. 2.3 – **Transition supraconductrice en résistance**. Dépendance de la résistance en fonction de la température d'un échantillon synthétisé durant cette thèse. L'échantillon a un Rapport Résiduel de Résistivité (RRR) d'environ 15. Il montre une transition supraconductrice assez raide pour une température critique d'environ 200 mK.

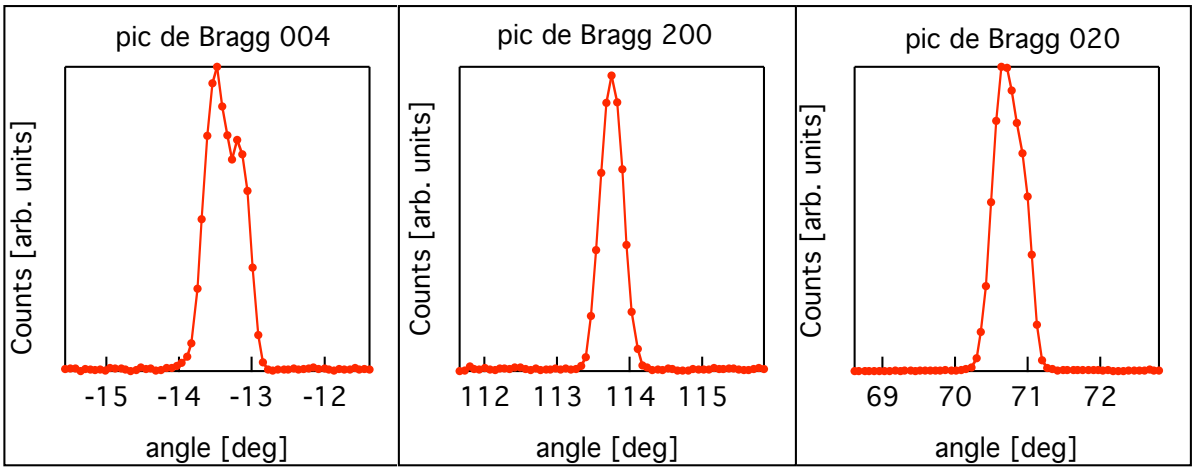

FIG. 2.4 – **Mesures de pics de Bragg par diffraction de neutrons**. Mesure de l'intensité autour de trois pics de Bragg en fonction d'un angle de rotation autour de l'axe vertical du cristal. Les mesures ont été faites sur un cristal synthétisé durant cette thèse. Le pic de Bragg 004 montre un épaulement : il traduit la présence de défauts dans la structure cristallographique du monocristal. Les mesures ont été faites sur le diffractomètre D23 de l'ILL avec B.Grenier.

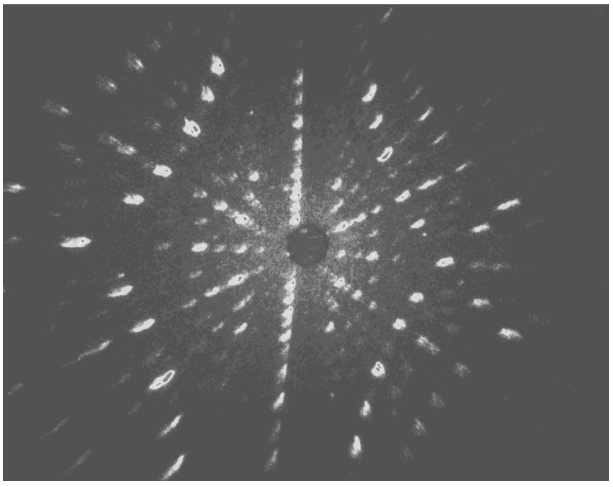

FIG. 2.5 – **Laue par diffraction de neutrons**. Le Laue a été fait sur le même monocristal que celui étudié sur le diffractomètre D23 (figure 2.4). La figure noir et blanc est une image de la transformée de Fourier de la structure cristallographique. Les points blancs indiquent les positions des pics de Bragg. Ces points sont allongés, voir doubles, cela révèle les défauts de la structure cristallographique.

2.2 Mesures de résistivité

La méthode utilisée est la mesure alternative quatre fils. On injecte un courant alternatif I(t)=$I_o$sin(ωt) par deux fils situés aux extrémités de l'échantillon et on mesure la tension V_o avec une détection synchrone à la fréquence ω entre les deux fils intermédiaires (cf figure 2.6). La valeur de la résistance R vaut R=V_o/I_o. La résistivité s'obtient par la relation suivante : ρ=RS/l où S est la section de l'échantillon et l la longueur séparant les fils de mesure de la tension.

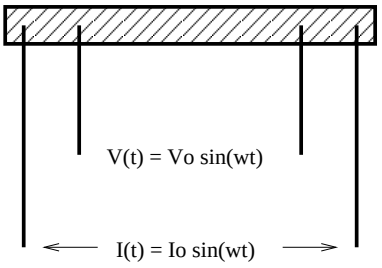

FIG. 2.6 – **Mesure de résistance alternative quatre fils**. On injecte un courant alternatif par les fils extérieurs et on mesure avec une détection synchrone la tension entre les fils intermédiaires.

La méthode quatre fils permet de s'affranchir de la résistance des fils et des contacts. Cet affranchissement est essentiel car la résistance des échantillons est de quelques milliohms contre quelques ohms pour les fils (plus quelques milliohms pour les contacts).

Les fils (en or, Φ=10μm) sont soudés sur l'échantillon par une fine pointe de tungstène qui délivre des pulses de chaleur grâce à une décharge électrique (8V, 12μs). Le courant de mesure employé varie de 20μA à 100μA. Des transformateurs amplifient la tension mesurée sur l'échantillon par 100 , pour les transformateurs à chaud, ou par 1000 pour le transformateur à froid avant l'entrée dans la détection synchrone. La fréquence de travail varie de 10Hz à 30Hz pour les transformateurs à chaud (gamme de fréquences optimales étant donné l'impédance d'entrée du circuit). Le transformateur à froid a uniquement été utilisé à 77Hz, fréquence où le déphasage est minimum. Pour une même mesure plusieurs courants et fréquences ont généralement été essayés. La variation du courant permet de détecter un éventuel échauffement de l'échantillon à cause de l'effet joule (dans ce cas la temperature critique diminue quand le courant augmente). Le changement de fréquence permet de vérifier que la mesure de tension provient exclusivement de la résistance de l'échantillon et non pas d'effet inductif ou capacitif ayant lieu entre les fils de mesure (le signal détecté ne doit pas dépendre de la fréquence de mesure). Un effort particulier a été fourni pour blinder tout le circuit de mesure et rendre la masse du cryostat flottante. Le blindage a pour but de diminuer les bruits dû au rayonnement électromagnétique extérieur. Avoir une masse flottante du cryostat permet de fixer le potentiel de masse à un seul endroit afin de diminuer les bruits inductifs dus aux boucles de masse. Les fils de mesure sont systématiquement torsadés deux par deux pour limiter le bruit (bruit qui peut être important sous champ magnétique à cause du déplacement des fils).

2.3 Mesures de couple

Les mesures de couple ont été effectuées au Laboratoire des Champs Magnétique Intenses à Grenoble (LCMI). Pour réaliser cette mesure on utilise le dispositif présenté figure 2.7. On place l'échantillon sur une plaque de cuivre-béryllium assez fine appelée cantilever. Cette plaque est placée en vis à vis d'une autre plaque de cuivre fixe. Les dimensions du système sont données dans la légende de la figure 2.7. On soumet le dispositif à un champ magnétique. L'aimantation de l'échantillon tend alors à s'aligner avec le champ. Le cantilever est soumis à un couple $\vec{\Gamma}=\vec{M}\mathrm{x}\vec{H}$. En réponse à cette force le cantilever se déforme. On mesure cette déformation par la variation de capacité que forme le cantilever et la plaque de cuivre fixe qui est en vis à vis. On peut finalement remonter à la composante de l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué. Un dispositif permet de tourner in situ (i.e à froid) le cantilever et la plaque en vis à vis par rapport au champ appliqué.

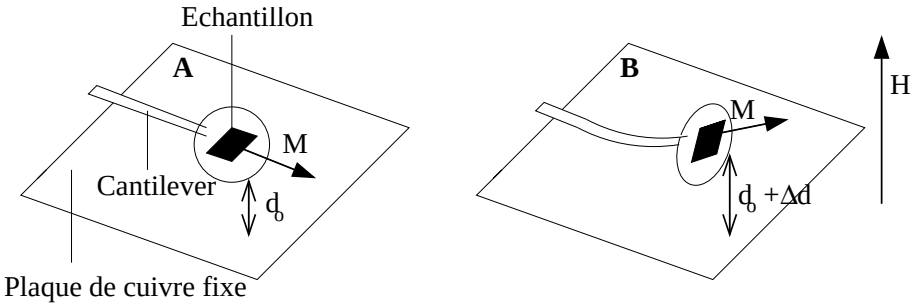

FIG. 2.7 – **Mesure de couple.** Panneau A : le système se compose d'une plaque de cuivre béryllium assez fine : le cantilever, et d'une plaque de cuivre fixe. Le cantilever a une épaisseur de 150 μm, sa surface circulaire a un diamètre de 2,5 mm, la partie rectangulaire fait 1×5 mm^2. La distance initiale entre le cantilever et la plaque de cuivre est de 50 μm. L'échantillon est collé sur le cantilever. Panneau B : l'aimantation $\vec{M}$ de l'échantillon tend à s'aligner avec le champ magnétique $\vec{H}$, le cantilever se déforme car il est soumis au couple $\vec{\Gamma}=\vec{M}\mathrm{x}\vec{H}$. On mesure la variation de capacité que forme le cantilever et la plaque de cuivre fixe qui est en vis à vis. De cette mesure on peut remonter à la composante de l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué.

La démarche suivante est utilisée pour remonter de la mesure de la capacité à la valeur du couple puis à la composante de l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué.

Soit C_o la valeur de la capacité pour un champ nul (panneau A de la figure 2.7). Si A est l'aire du cantilever, ϵ la permitivité du milieu (pour nous de l'helium liquide) et d_o la distance entre le cantilever et la plaque de cuivre fixe alors on peut écrire $C_o=\epsilon A/d_o$. Soit C_1 la valeur de la capacité pour un champ H (panneau B de la figure 2.7). Avec les mêmes notations on a : $C_1=\epsilon A/(d_o+\Delta d)$. D'où $\Delta\ C/C_o=-\Delta\ d/(d_o+\Delta\ d)$. Si on suppose que la variation de distance Δ d est proportionnel au couple Γ, i.e $\Gamma=\beta\Delta d$, alors $\Delta\ C/C_o=-(\Gamma\ /\beta)/(d_o+\Gamma/\beta)$. On obtient $\Gamma=-d_o\beta\Delta C/(C_o+\Delta C)$. En réalité on mesure par une détection synchrone une tension U de déséquilibre entre la capacité C_1 et un pont de capacités, cette tension U est telle que $\Delta U=\alpha\Delta C$, où α est connu. C_o est également connue (mesure et calcul). Finalement on détermine qualitativement la composante de

l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué par :

$$\Gamma = -\Delta U/(\alpha C_o + \Delta U) \quad (2.1)$$
$$\sim M_{perp} H \quad (2.2)$$

Cette technique est parfaitement adaptée à des mesures sous forts champs magnétiques : la mesure de la capacité qui permet de remonter au couple n'est pas faussée par les forts champs et la sensibilité au changement d'aimantation augmente avec le champ appliqué. Au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses cette technique est disponible pour des mesures en dilution et sur un système de rotation à froid avec une très grande sensibilité, de l'ordre de 10^{-8}N.m pour la détermination du couple. Le point négatif de cette technique est que l'on accède uniquement à la composante de l'aimantation perpendiculaire au champ appliquée.

2.4 Mesures d'aimantation

La méthode utilisée est une mesure d'aimantation par extraction. L'échantillon est déplacé à travers des bobines de détection. La variation d'aimantation vue par les bobines induit une variation de tension à leurs bornes. On peut relier l'aimantation de l'échantillon à la variation de tension aux bornes des bobines de la façon exposée ci-contre. Supposons que l'échantillon soit suffisamment petit par rapport à la bobine de détection pour être assimiler à une spire de surface S_1 et de courant I_1, son moment $\mathcal{M}$ s'écrit : $\mathcal{M}$=S_1I_1. Soit Φ_2 le flux crée par l'échantillon dans les bobines de détection de surface S_2. Avec B_{12} le champ rayonné par l'échantillon (1) vers la bobine (2) et M_{12} le coefficient de mutuelle inductance, on exprime Φ_2 par :

$$\Phi_2 = \int B_{12} dS_2 \quad (2.3)$$
$$= M_{12} I_1 \quad (2.4)$$

Avec les mêmes notations on définit Φ_1 le flux vu par la spire échantillon. On définit au cours de ce calcul le facteur de forme géométrique g_{21} par g_{21}=B_{21}/I_2 (il dépend de la forme de la bobine de détection) :

$$\Phi_1 = \int B_{21} dS_1 \quad (2.5)$$
$$= B_{21} S_1 \quad (2.6)$$
$$= M_{21} I_2 \quad (2.7)$$
$$= g_{21} S_1 I_2 \quad (2.8)$$

Or M_{12}=M_{21}=$g_{12}S_1$. D'où

$$\Phi_2 = M_{12} I_1 \quad (2.9)$$
$$= g_{12} S_1 I_1 \quad (2.10)$$
$$= g_{12} \mathcal{M} \quad (2.11)$$

Le facteur géométrique g_{12} peut être calculé ou déterminé expérimentalement avec un échantillon de référence. Finalement quand on déplace l'échantillon à travers les bobines

de détection on mesure une tension V telle que :

$$V(t) = -d\Phi_2/dt \quad (2.12)$$
$$= g_{12}d\mathcal{M}/dt \quad (2.13)$$

On obtient l'aimantation $\mathcal{M}$ (ou plutôt sa composante selon l'axe des bobines) en intégrant la tension V(t) mesurée sur le temps du déplacement.

Au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses cette technique a une sensibilité de l'ordre de 10^{-3} emu et peut être utilisée pour des températures jusqu'à 1,4 Kelvin. On ne mesure que la composante de l'aimantation dans l'axe des bobines.

2.5 Mesure de chaleur spécifique alternative

Principe Le principe de la mesure est le suivant : l'échantillon est soumis à un chauffage alternatif, en suivant les oscillations de sa température il est possible de déterminer sa chaleur spécifique (sous certaines conditions présentées dans le paragraphe Modèle).

Modèle Le modèle utilisé pour extraire la chaleur spécifique consiste à considérer un échantillon de chaleur spécifique C, couplé à un bain thermique de température T_{bain} par une conductance thermique K. Dans ce modèle simple on néglige le temps interne de l'échantillon (c'est-à-dire sa diffusivité) et les différents temps caractéristiques du montage liés aux couplages thermocouple-échantillon et chauffage-échantillon. On soumet l'échantillon à un chauffage P. On appelle T la température de l'échantillon. On a :

$$C\frac{dT}{dt} = P - K(T - T_{bain}) \quad (2.14)$$

La puissance de chauffage est une puissance alternative, on écrit :

$$P(t) = P_o(1 + sin(\omega t)) \quad (2.15)$$

en notation complexe la température de l'échantillon s'écrit :

$$T = T_{bain} + T_{dc} + T_{ac}sin(\omega t). \quad (2.16)$$

où T_{bain} est la température du bain thermique, T_{dc}=P_o/K représente l'échauffement moyen de l'échantillon, T_{ac} est l'amplitude des oscillations en température.
C'est l'amplitude et la phase des oscillations en température qui permet de déterminer la chaleur spécifique de l'échantillon par la relation :

$$\mathbf{T_{ac} = P_o/(K + i\omega C)} \quad (2.17)$$

On distingue le régime basse fréquence et haute fréquence, pour $\omega \gg$ K/C, on a :

$$|T_{ac}| = P_o/(\omega C) \quad (2.18)$$

et pour $\omega \ll$ K/C, on a :

$$|T_{ac}| = P_o/K \quad (2.19)$$

Afin de déteminer la chaleur spécifique de l'échantillon il faut se placer dans la bonne gamme de fréquence telle que $\omega \gg$ K/C (pour ces fréquences on peut considérer que l'échantillon est découplé de son environnement). Dans ce but il faut déterminer la dépendance en fréquence des oscillations en température. On obtient une caractéristique en fréquence telle que celle schématiquement représentée sur la figure 2.8. Pour ω = K/C on a T_{ac}=T_{dc}, et pour $\omega \gg$ K/C, T_{ac} est inversement proportionnel à ω.

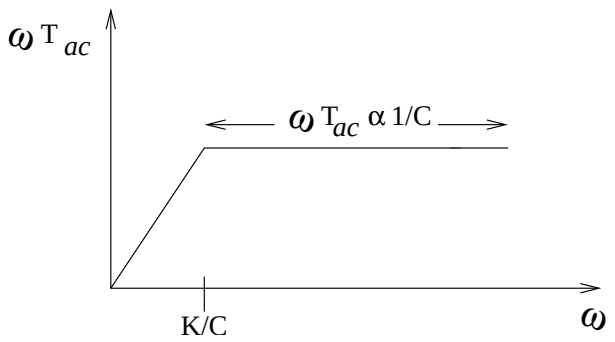

FIG. 2.8 – **Caractéristique en fréquence des mesures de chaleur spécifique alternative**. Pour $\omega \gg$ K/C, l'échantillon est découplé de son environnement alors le produit ωT_{ac} est constant et inversement proportionnel à la chaleur spécifique de l'échantillon.

Mesure Pour réaliser cette mesure il faut une source de chauffage, un thermocouple pour détecter les variations de températures (ou une résistance ultra-sensible), et un très bon contact thermique entre l'échantillon et le thermocouple. Différents essais ont été faits à l'helium liquide et en dilution. Ces essais ont concernés : la source de chauffage, le couplage thermique entre le thermocouple et l'échantillon, et le type de thermocouple. La figure 2.9 présente deux montages réalisés pendant cette thèse. Le panel A montre un montage utilisé à l'helium liquide avec un chauffage par diode laser. Le panel B présente un montage utilisé en dilution avec un chauffage résistif. Plus de détails sont donnés dans la légende de la figure. Dans cette thèse, nous présentons uniquement des mesures faites sous champs magnétiques (jusqu'à 16 Tesla) à l'helium liquide avec un chauffage par diode laser. Elles sont présentées dans le chapitre 4. Les autres mesures ont servi de tests successifs pour mettre en place une mesure de chaleur spécifique de URhGe en dilution et sous champ magnétique afin d'établir le caractère massif de la supraconductivité ayant lieu à 12 Tesla (cf Chapitre Supraconductivité Haut Champ). Au moment de rédiger ces lignes cette mesure en dilution et sous champ magnétique n'a toujours pas été effectuée.

La source de chauffage : deux sources ont été utilisées pour le chauffage alternatif : une résistance collée sur l'échantillon et une diode laser avec une fibre optique. **Pour le chauffage résistif** (i.e pour un chauffage par une résistance) il est utile de noter que si ω est la pulsation du courant parcourant la résistance alors la puissance de chauffage oscille à une pulsation de 2ω (car $P=RI^2/2$). Les avantages d'un chauffage résistif sont qu'il est parfaitement localisé sur l'échantillon et qu'il est possible de doser la puissance envoyée jusqu'à une puissance nulle. De plus ce montage ne nécessite pas d'amener une fibre optique dans une dilution. Cependant le montage expérimental devient alors délicat à réaliser : sur un thermocouple il faut coller ou souder l'échantillon sur lequel il faut coller un chauffage, et, tous les contacts doivent être de bons contacts thermiques. Un exemple de ce montage est montré sur le panel B de la figure 2.9. **Pour un chauffage par diode laser** le montage expérimental est plus simple une fois la fibre optique installée dans la dilution cependant la puissance de chauffage est bien moins localisée et plus délicate à doser : la diode est passante ou non au delà d'un certain seuil de tension : il est impossible de diminuer continûment jusqu'à zéro la puissance de chauffage contrairement au cas résistif. Il est nécessaire de réguler la température de la diode (pour nous à température

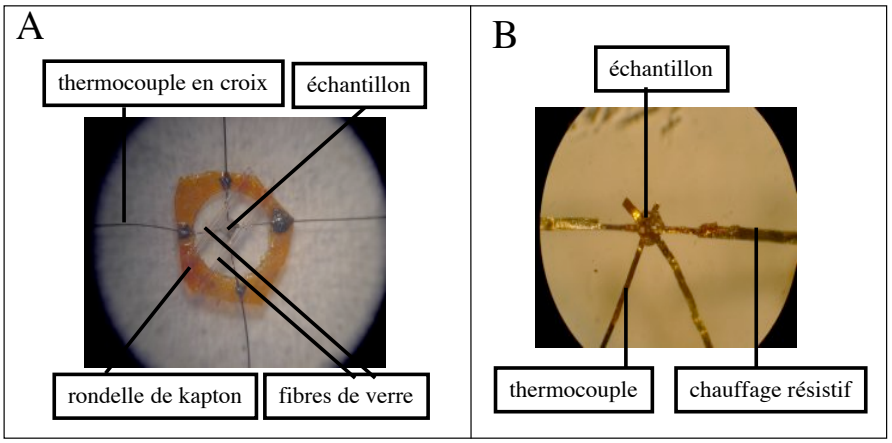

FIG. 2.9 – **Montages pour des mesures de chaleur spécifique alternative**. **Panel A** Montage utilisé pour une mesure à l'helium liquide avec un chauffage par diode laser. Le thermocouple est une croix formée d'un fil de chromel et d'un fil de constantan. Cette croix est fixée sur une rondelle de kapton par quatre points de stycast noire (colle). Au centre de cette croix l'échantillon est collé. Les fibres de verre sont collées au thermocouple et à la rondelle de kapton : elles assurent une rigidité au montage. **Panel B** Montage utilisé pour des mesures en dilution et par chauffage résistif. Le thermocouple est en un V formé d'un fil d'or et d'un fil d'or-fer. L'échantillon a été soudé sur ce thermocouple. Le chauffage résistif est un fil de chromel collé sur l'échantillon. Afin de minimiser sa résistance ce fil est soudé de chaque côté à un fil supraconducteur (nobium dénudé).

ambiante) afin d'avoir une amplitude de puissance constante au cours de la mesure.

Le couplage thermique entre le thermocouple et l'échantillon est un point crucial de ce genre de mesure. L'échantillon doit être correctement couplé au thermocouple sinon il est impossible de mesurer sa chaleur spécifique. Plusieurs techniques ont été essayées : soudure par point de l'échantillon et du thermocouple (contact électrique réalisé en chauffant localement le thermocouple et l'échantillon), collage au vernis General Electric, collage à la laque d'argent et collage à la résine photosensible. Pour juger la qualité du contact thermique la réponse en fréquence du thermocouple a systématiquement été mesurée et comparée au cas idéal présenté figure 2.8. Un autre critère employé a été de regarder l'amplitude relative du saut en chaleur spécifique pour la transition ferromagnétique de URhGe à 9,5 K. Les meilleurs résultats tant au point de vu du couplage thermique qu'au niveau de la reproductibilité ont été obtenus avec la General Electric et la résine photosensible. Nous avons également constaté que la présence de très peu de gaz d'échange pouvait fortement améliorer le couplage thermique. Peut-être est-ce une piste à explorer : concevoir une cellule où il serait possible de contrôler la teneur en gaz d'échange ?

Les thermocouples utilisés sont du type Chromel/Constantan pour les mesures au dessus de 1,2 K et de type Or-Fer/Or pour les mesures en dilution. Ces thermocouples sont réalisés au laboratoire. Les fils de 25 μm de diamètre sont préalablement écrasés sous une presse puis soudés par point. La soudure par point consiste à souder les fils par une fine pointe de tunsgtène qui délivre des pulses de chaleur grâce à une décharge électrique (9 V, 9 μs pour les thermocouples).

Eléments complémentaires. Nous avons utilisé un pré-ampli $\times 100$ et un transformateur $\times 100$ pour amplifier la tension alternative avant détection. Pour de très bons couplage thermique à 4 Kelvin, la gamme de fréquences où le signal alternatif est inversement proportionnel à la chaleur spécifique était de 1 Hz (le transformateur coupe le signal en dessous) à quelques kHz (au dessus le signal n'est plus mesurable).

Analyse Pour déterminer la chaleur spécifique d'un échantillon la démarche suivante a été suivie :

(1). Mesure des tensions alternative V_{ac} et continue V_{dc} aux extrémités du thermocouple, mesure de la température du bain T_{bain}. La mesure alternative doit être faite au dessus de la fréquence de coupure ω_c=K/C.

(2). Correction éventuelle de T_{bain} de la magnétorésistance si nécessaire, on a alors T_{bain}^{corr}.

(3). Conversion de V_{ac} et V_{dc} en températures T_{ac} et T_{dc} en utilisant le pouvoir thermoélectrique du thermocouple qui dépend de la température T et du champ magnétique appliqué H : S(T,H). On a : T_{ac}=V_{ac}/S(T,H).

Il faut déterminer au préalable la dépendance en champ et en température du pouvoir thermoélectrique. Pour la dépendance S(T,H=0) du pouvoir thermoélectrique en fonction de la température sous champ magnétique nul nous avons utilisé les calibrations établies par Lakeshore. Pour déterminer S(Tfixe,H) la dépendance du pouvoir thermoélectrique en fonction du champ magnétique pour une température fixe, nous avons utilisé un échantillon de silicium ultra-pur. A température constante nous avons supposé que la chaleur spécifique du silicium était constante quelque soit le champ magnétique appliqué.

(4). Calcul de la température moyenne T_{ech} de l'échantillon : T_{ech}=T_{bain}^{corr}+T_{dc}.

(5). Calcul qualitatif de la chaleur spécifique de l'échantillon : C $\propto$1/T_{ac}.

Finalement on obtient la dépendance de la chaleur spécifique d'un échantillon soit en fonction de sa température pour des mesures à champ fixe, soit en fonction du champ magnétique appliqué pour des mesures à une température T_{ech} fixe.

2.6 Mesures de diffusion neutronique

Les neutrons sont une sonde puissante : ils permettent de cartographier à la fois la structure nucléaire et magnétique de la matière (par diffraction), ou bien d'étudier sa dynamique nucléaire ou magnétique (diffusion inélastique).

Le neutron. Il est électriquement neutre. C'est une particule de masse m=1,675 10^{-27} kg qui porte un moment magnétique μ_n=1,913 μ_B. Les neutrons ont une profondeur de pénétration beaucoup plus importante que les rayons X ou les électrons, ils sont sensibles au volume de l'échantillon. Pour décrire la diffusion neutronique on considère le neutron comme une onde de vecteur d'onde $\vec{K_i}$.

La diffusion nucléaire et magnétique. Considérons une interaction électron-matière. Soit $\vec{K_i}$ le vecteur d'onde initial du neutron et $\vec{K_f}$ son vecteur d'onde final. On définit le vecteur de diffusion $\vec{Q}$ par : $\vec{Q}$=$\vec{K_i}$-$\vec{K_f}$. Si $|\vec{K_i}|$=$|\vec{K_f}|$ on parle de diffusion élastique ou diffraction, sinon on parle de diffusion inélastique (il y a alors transfert d'énergie entre l'échantillon et le neutron). Les expressions générales des sections efficaces de diffusions nucléaires ou magnétiques ne seront pas présentées ici. Le lecteur peut se reporter à l'ouvrage écrit par Squires [40]. L'ouvrage propose des démonstrations détaillées de ces expressions. Il présente également les démonstrations des intensités de diffraction magnétique et nucléaire données ci-contre.
L'intensité dû à la **diffraction nucléaire** (i.e sans échange d'énergie) dépend du vecteur de diffusion $\vec{Q}$. Elle s'exprime comme suit, avec $\vec{H}$ un vecteur du réseau réciproque et $F_N(\vec{Q})$ le facteur de structure nucléaire de la maille élémentaire :

$$I_N(\vec{Q}) \quad = \quad \sum_{\vec{H}} |F_N(\vec{Q})|^2.\delta(\vec{Q}-\vec{H}) \tag{2.20}$$

Le facteur de structure nucléaire de la maille élémentaire contient l'information sur la structure cristalline. C'est une somme pour chaque atome j de la maille élémentaire, où $\vec{R}j$ est sa position atomique, $< b_j >$ sa longueur de diffusion cohérente, et w_j est le facteur de Debye-Waller : w_j=$(\vec{Q}\vec{u_j})^2/2$ où $\vec{u_j}$ est le déplacement moyen de l'atome j par rapport à sa position d'équilibre.

$$F_N(\vec{Q}) = \sum_j < b_j > e^{i\vec{Q}\vec{R_j}} e^{-w_j} \tag{2.21}$$

Si on se place dans le cadre de l'interaction dipolaire (valable si le vecteur d'onde $\vec{K_i}$ est tel que $|\vec{K_i}|^{-1}$ soit très grand par rapport aux rayons orbitaux des électrons non appariés) l'intensité dû à la **diffraction magnétique** à la même structure que l'intensité nucléaire. Grossièrement (cf Squires[40] pour des nuances selon les cas ferromagnétique, antiferromagnétique, structure modulée...), avec les mêmes notations et p=2.696 fm/μ_B :

$$I_M(\vec{Q}) \quad = \quad p^2|F_M(\vec{Q})|^2 \tag{2.22}$$

De même **le facteur de structure magnétique contient l'information sur la structure magnétique.** C'est aussi la somme pour chaque atome j de la maille élémentaire, où $\vec{R}j$ est sa position atomique, $f_j(\vec{Q})$ son facteur de forme magnétique, et $(m_\perp)_j$ est sa composante du moment magnétique perpendiculaire au vecteur de diffusion (en μ_B) :

$$F_M(\vec{Q}) = |\sum_j (m_\perp)_j f_j(\vec{Q}) e^{i\vec{Q}\vec{R_j}} e^{-w_j}|^2 \tag{2.23}$$

Utilisation d'un diffractomètre (D23, ILL) Durant cette thèse nous avons en particulier utilisé le diffractomètre D23 de l'Institut Laue Langevin. D23 est un diffractomètre à neutrons thermiques destiné à l'étude de monocristaux, avec des neutrons polarisés ou non, dans une gamme de longueur d'onde de 1 à 3 $\mathring{A}$. Il permet d'utiliser un grand panel d'environnements pour l'échantillon comme des cellules de pression allant jusqu'à 30 Kbar, des champs magnétiques jusqu'à 15 Tesla et des réfrigérateurs à dilution. Un diffractomètre deux-axes (comme D23) et son principe de fonctionnement sont schématisés

sur la figure 2.10. Le panel A présente une vue en trois dimensions d'un diffractomètre deux-axes. Deux-axes signifie deux axes de rotation : le détecteur peut bouger dans le plan vertical, angle de rotation ν, et à l'horizontal, angle de rotation γ. L'échantillon est dans un cryostat posé sur une table qui tourne sur elle-même, angle de rotation ω. Le panel B est une vue de dessus du diffractomètre. Le faisceau de neutrons arrive sur le monochromateur avec un angle θ. Le monochromateur est un monocristal de très grande qualité cristallographique taillé selon une direction cristallographique. Le faisceau réfléchi par le monochromateur contient une longueur d'onde λ et ses harmoniques nλ. Cette longueur d'onde λ peut être déterminée au préalable grâce à la loi de Bragg : 2dsin(θ)=nλ, où d est la distance inter-plans du monochromateur (perpendiculairement à la surface). Le faisceau arrive sur l'échantillon par lequel il est diffracté. Le détecteur compte les neutrons diffractés dans sa direction.

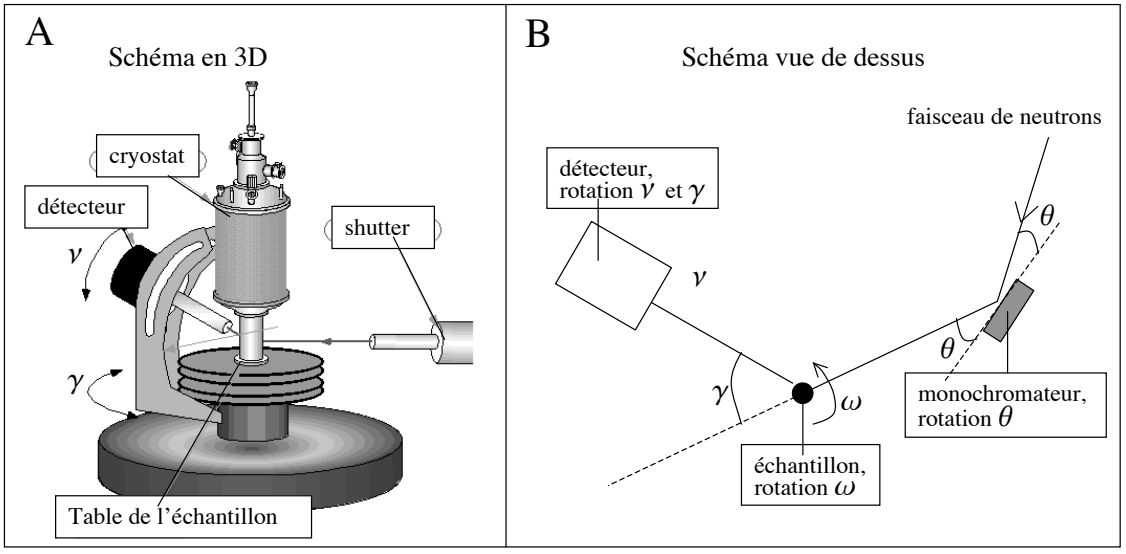

FIG. 2.10 – **Fonctionnement schématique d'un diffractomètre deux-axes.** Deux-axes signifie deux axes de rotation : le détecteur peut bouger dans le plan vertical, angle de rotation ν, et à l'horizontal, angle de rotation γ. L'échantillon peut tourner sur lui-même (axe de rotation vertical), l'angle de rotation pour désigner ce mouvement est ω. **Panel A** Vue en trois dimensions d'un diffractomètre deux-axes, *Document ILL, instrument D9.* **Panel B** Vue de dessus du diffractomètre. Le monochromateur sélectionne une longueur d'onde (et ses harmoniques) pour l'étude. Cette longueur d'onde change en fonction de l'angle θ. Le faisceau arrive sur l'échantillon par lequel il est diffracté. Le détecteur compte les neutrons diffractés dans sa direction.

Nos mesures, présentées dans le chapitre 4, ont été faite sous champ magnétique (jusqu'à 15 Tesla) et dans un cryostat orange à température fixe de 2 Kelvin. La longueur d'onde utilisée est de 1,27 Å. L'échantillon mesuré est référencé #4 dans le tableau des échantillon p. 11. C'est un échantillon cylindrique autour de l'axe $\vec{b}$ de 4,5 mm de hauteur et de 2 mm de diamètre.

Chapitre 3

Supraconductivité bas champs

3.1 Introduction

Aoki et collaborateurs [3] ont été les premiers à observer la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans URhGe. URhGe est ferromagnétique en dessous de 9,5 K et devient en plus supraconducteur en dessous de 270 mK. La coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans URhGe suggère fortement un appariement triplet, spins parallèles, des paires de Cooper. L'étude du second champ critique commencée par F.Hardy lors de sa thèse va dans ce sens [32, 36]. Dans ce chapitre de nouvelles mesures de champs critiques sont présentées et comparées aux mesures antérieures. Il ressort de cette comparaison que le second champ critique selon l'axe $\vec{b}$ semble être renforcé à basses températures dans les échantillons ayant les meilleurs qualités cristallographiques. L'analyse tendant à prouver un appariement triplet sera discutée. La section intitulée "effet de retournement des domaines" présente des résultats singuliers obtenus lors de l'étude des seconds champs critiques. La motivation initiale de ces mesures était de tenter d'observer un effet de l'évolution des domaines magnétiques lors de la transition supraconductrice. Fauré et Buzdin ont prédit que l'apparition de la supraconductivité engendrerait un changement important dans la structure des domaines magnétiques[41]. Les domaines deviendraient plus denses dans la phase supraconductrice. De plus l'évolution de la taille des domaines en fonction de la température permettrait de conclure quant à la nature triplet ou singulet de la supraconductivité. Finalement, les résultats singuliers présentés dans cette section sont probablement sans relation avec la supraconductivité.

3.2 Mesures du second champ critique

L'application d'un champ magnétique a deux effets qui vont limiter la supraconductivité : la limite orbitale et la limite de Pauli. Pour un supraconducteur de type II, comme URhGe, au delà du second champ critique la supraconductivité est détruite. Dans cette section nous rappellerons dans un premier temps le mécanisme de la limite orbitale et de la limite de Pauli. **L'enjeu de cette partie est d'expliquer le travail de F.Hardy et A.Huxley [32, 36] qui démontre l'absence de limitation de Pauli pour les seconds champs critiques d'URhGe et impose donc le choix d'un appariement triplet des paires de Cooper pour URhGe.** Ensuite nous présenterons les mesures du second champ critique d'URhGe faites durant cette thèse. Enfin nous discuterons de

l'analyse de ces mesures dans le but de montrer la pertinence d'un appariement triplet des paires de Cooper dans URhGe.

3.2.1 Limite orbitale et limite de Pauli

La limite de Pauli ou limite paramagnétique est la conséquence de l'effet Zeeman : les spins des électrons tendent à s'aligner avec le champ. Quand aligner les deux spins des électrons de la paire de Cooper représente un gain d'énergie plus important que l'énergie de condensation en paires de Cooper, la supraconductivité est détruite. Cette limitation n'affecte que les paires de Cooper composées d'électrons dont les spins sont antiparallèles. L'état singulet est forcément limité par cet effet tandis qu'il faut nuancer pour un état triplet selon la direction relative des spins des électrons et la direction du champ appliqué. Le calcul de la limite de Pauli est donnée dans la référence [42] et vaut à température nulle :

$$H_C^{pauli}(0) = \frac{\sqrt{2}\Delta(0)}{g\mu_B} \tag{3.1}$$

où $\Delta(0)$ est le gap supraconducteur à la température nulle, et g est le facteur de Landé ou facteur gyromagnétique d'un électron des paires de Cooper.

• **Influence du facteur de Landé g.** Pour un électron libre g=2. Pour un électron dans un réseau d'ions le facteur de Landé g peut être différent de 2 et être anisotrope. Dans ce cas il faut considérer trois champs critiques de Pauli selon les axes $\vec{a}$, $\vec{b}$ et $\vec{c}$ du cristal, leur expression est celle donnée par l'équation 3.1 avec g remplacé respectivement par ses trois composantes g_a, g_b et g_c.

• **Influence de la force de couplage.** La théorie BCS originale de 1957 considère une interaction effective électron-électron faiblement attractive, dont les phonons virtuels sont les vecteurs. Dans le cas d'une interaction effective plus forte il faut prendre en compte le couplage électron-phonon qui modifie le spectre en énergie des phonons qui affecte le couplage électron-électron... (pour aller plus loin cf. chapitre 10 de la référence [8]). Or la valeur du gap supraconducteur dépend du couplage effectif électron-électron. Eliashberg a étendu la théorie BCS de 1957 pour prendre en compte un couplage fort. Dans le cadre de cette théorie la force de couplage λ s'exprime de la façon suivante :

$$\lambda = 2\int_0^\infty \frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega}d\omega \tag{3.2}$$

où $F(\omega)$ est la densité d'état des phonons pour l'énergie ω et $\alpha^2(\omega)$ est la force de couplage électron-phonon pour l'énergie ω.

Dans le cas de **la supraconductivité BCS en couplage faible**, le spectre d'interaction est donné par :

pour $\omega < \omega_D$:

$$\frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} = Cte \tag{3.3}$$

pour $\omega > \omega_D$:

$$\frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} = 0 \tag{3.4}$$

et :

$$\lambda \ll 1 \tag{3.5}$$

dans ce cadre le gap supraconducteur a l'expression classique suivante :

$$\mathbf{\Delta(0) = 1,76k_BT_s} \tag{3.6}$$

où K_B est la constante de Bolzmann, T_s la température supraconductrice.
Dans le cas de **la supraconductivité BCS en couplage fort**, le spectre de couplage envisagé peut être différent. Pour un spectre en énergie de la forme du spectre d'Einstein :

$$\alpha^2(\omega)F(\omega) = (\lambda\Omega/2)\delta(\omega - \Omega) \tag{3.7}$$

pour

$$\Omega \ll E_F/\lambda \tag{3.8}$$

et pour

$$\lambda > 4 \tag{3.9}$$

Bulaevskii et collaborateurs [43] ont montré que le gap supraconducteur devient proportionnel à $\sqrt{\lambda}$:

$$\mathbf{\Delta(0)} \propto \sqrt{\lambda} \tag{3.10}$$

En résumé pour exclure rigoureusement l'absence de limitation de Pauli il faut prendre en compte l'influence du facteur de Landé g et de la force de couplage λ.
Dans le cas BCS en couplage faible (H_C en Tesla et T_S en Kelvin) :

$$H_C^{pauli}(0) = 1,85T_S \tag{3.11}$$

un facteur de Landé g inférieur à 2 augmente la limite de Pauli $H_C^{pauli}(0)$ comme suit :

$$H_C^{pauli}(0) = 1,85T_S \times \frac{2}{g} \tag{3.12}$$

dans le cas d'un couplage fort la limite de Pauli est également augmenté. Avec les hypothèses de couplage fort proposées plus haut la limite de Pauli est augmentée proportionnellement à $\sqrt{\lambda}$.

La limite orbitale La limite orbitale correspond à l'action d'un champ magnétique sur une particule chargée de charge q : la particule se met à tourner. Le rayon r_l de sa trajectoire est d'autant plus petit que le champ magnétique H est grand : r_l=mV/(qμ_0H) où m est la masse de la particule et V sa vitesse. Pour des supraconducteurs de type II, quand le champ appliqué est compris entre H_{C1} et H_{C2} le champ pénètre le matériau sous forme de vortex. La limite orbitale correspond grossièrement au moment où le rayon r_l devient plus petit que la longueur de cohérence des paires de Cooper ξ : la supraconductivité est alors détruite. Cette limite orbitale ne peut être envisagée que dans le cas des supraconducteurs de type II. De façon rigoureuse, en minimisant l'expression pour un supraconducteur de l'énergie libre de Ginzburg-Landau, valable près de T_S, on trouve la limite orbitale suivante (détail des calculs pp.83-86 de la référence [11]). :

$$H_{C2}^{orbitale}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2(T)} \tag{3.13}$$

où Φ_0=h/(2e) est le quantum de flux magnétique et ξ la longueur de cohérence des paires de Cooper.

Ces éléments de théorie ont été introduits dans le but d'expliquer **le travail de F.Hardy et de A.Huxley qui montre une absence de limitation de Pauli pour les seconds champs critiques.** Pour URhGe le facteur de Landé et la force de couplage ne sont pas connus. Pour un échantillon de RRR=20 dont la température critique (extrapolée pour une induction nulle) est de 237 mK, les seconds champs critiques suivant ont été mesurés : $H_{c2a}(0)$=2,0 T, $H_{c2b}(0)$=1,3 T et $H_{c2c}(0)$=0,56 T. Si on considère que le champ critique est seulement limité par une limite de Pauli seule, dans le cadre d'un couplage faible, et pour un facteur de Landé de 2, on trouve un champ critique de 0,44 T. Bien que cette valeur soit une surestimation puisqu'elle néglige l'action de la limitation orbitale elle est inférieure à toutes les valeurs de champs critiques mesurées. Un couplage fort de l'ordre de $\lambda_c \sim 2$ est nécessaire pour augmenter suffisamment la limite de Pauli pour être compatible avec un état singulet de spin (il faut des valeurs encore plus grandes pour les autres axes). Cependant, un couplage fort se traduirait par un temps de vie τ des quasi-particules réduit. La dépendance importante observée de la température supraconductrice T_S en fonction de la qualité des échantillons de URhGe indique que la supraconductivité est non conventionnelle. Par conséquent pour observer de la supraconductivité il faut un libre parcours moyen électronique supérieur à la longueur de cohérence des paires de Cooper. En terme de temps de vie cette condition s'exprime par : $1/\tau_{total} < k_b T_s/\hbar$ avec $1/\tau_{total} = 1/\tau + 1/\tau_0$ où τ est le temps de vie entre deux interactions électron-électron et τ_0 est le temps de vie entre deux collisions d'un électron avec une impureté. Or au dessus de la température supraconductrice, dans la phase normale, la résistance de URhGe varie en fonction de la température avec un comportement quadratique caractéristique d'un comportement liquide de Fermi, le coefficient de cette dépendance est petit par rapport à la résistance résiduelle, donc $1/\tau \ll 1/\tau_{total} < k_b T_s/\hbar$. Finalement le couplage ne semble pas suffisant fort pour rendre compatible un état de spin singulet avec les valeurs de seconds champs critiques. Dans l'hypothèse d'un couplage faible, il faudrait avoir des facteurs de Landé $g < 0,2$ selon les trois axes pour que les champs critiques soient compatibles avec une limite paramagnétique. Or il fort peu probable que ce facteur puisse être si petit selon les trois axes. **Finalement, l'absence de limitation de Pauli selon au moins un des axes, exclu un paramètre supraconducteur singulet.** Au delà ce point, F.Hardy et de A.Huxley ont également montré le succès de l'ajustement des champs seconds critiques réalisé avec un paramètre d'ordre p-wave triplet particulier [36]. Nous détaillerons ce point dans la partie analyse des seconds champs critiques. Dans la suite, nous présentons des mesures de seconds champs critiques faites durant cette thèse. Nous montrerons que ces mesures concordent elles aussi avec un tel paramètre bien que présentant un comportement légèrement différent selon l'axe $\vec{b}$. Nous nous efforcerons d'expliquer cette différence. **Dans la suite, nous ne considérons plus la limitation de Pauli pour les seconds champs critiques de URhGe.**

3.2.2 Mesures

Durant cette thèse nous avons mesuré le second champ critique selon les trois axes cristallographiques d'un échantillon de RRR=50 (échantillon #1 dans le tableau des échantillons p.11). Cet échantillon a été longuement étudié à hauts champs pour établir l'anisotropie de la ré-entrance de la supraconductivité à haut champ. Nous avons aussi mesuré le champ critique selon l'axe $\vec{b}$ d'un petit monocristal de RRR=100 extrait d'un polycristal (échantillon #3 dans le tableau des échantillons p.11). Dans ce paragraphe

sont présentés les méthodes de mesures et les résultats obtenus. Nous comparerons ces résultats avec ceux obtenus par F.Hardy durant sa thèse. Il semble que le second champ critique selon l'axe $\vec{b}$ soit renforcé à basses températures dans les échantillons ayant les plus grands RRR.

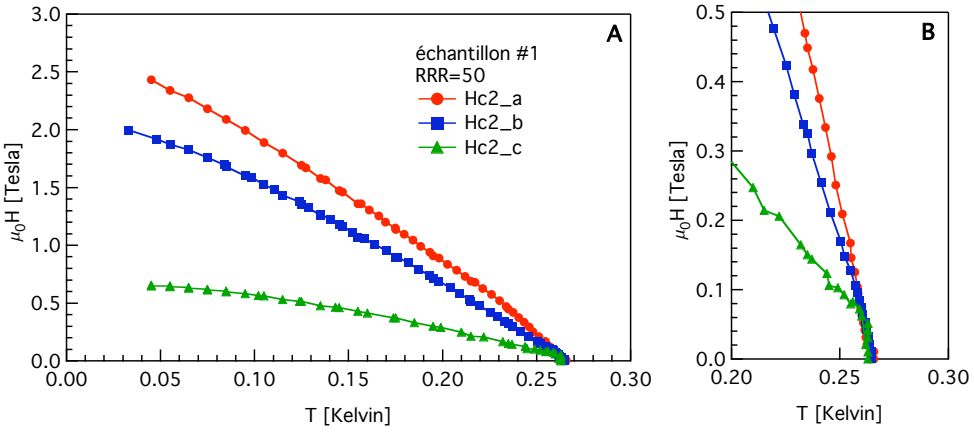

FIG. 3.1 – **Anisotropie du second champ critique.** Dépendance en température du second champ critique selon les trois axes $\vec{a}$,$\vec{b}$ et $\vec{c}$ d'un échantillon de RRR=50 (référencé #1 dans le tableau de échantillon p.11). Les champs critiques ont été obtenus par des mesures de résistivité, ils correspondent aux champs où la résistivité vaut 50% de sa valeur de l'état normal. **Panel A** Anisotropie du second champ critique en fonction de la température, les triangles verts pour l'axe $\vec{c}$, les carrés bleus pour l'axe $\vec{b}$ et les ronds rouges pour l'axe $\vec{a}$. Rappelons que URhGe est ferromagnétique en dessous de 9,5 K, ses moments s'orientent alors selon l'axe $\vec{c}$. L'axe $\vec{a}$ est l'axe de difficile aimantation. **Panel B** Zoom sur l'anisotropie du second champ critique en fonction de la température. Le second champ critique selon l'axe $\vec{c}$ reste à température constante de 0 à 50 mT.

Méthode et résultats. Le second champ critique a été mesuré en résistivité (cf. chapitre techniques expérimentales pour plus de détails). Le courant est injecté selon l'axe $\vec{b}$ du cristal quelque soit l'orientation du champ. L'orientation de l'échantillon par rapport au champ magnétique appliqué a été systématiquement vérifiée par des Laue aux rayons X avant le montage du porte échantillon sur le cryostat. Au final il est probable que la désorientation de l'échantillon par rapport au champ appliqué soit au maximum de 2-3° pour les mesures selon les trois axes cristallographiques. A basses températures le second champ critique est mesuré par un balayage en champ à température fixe, tandis qu'à hautes températures il est mesuré par un balayage en température à champ fixe. Le critère que nous avons retenu est le suivant : le champ (la température) critique est atteint(e) quand la résistivité vaut 50% de sa valeur de l'état normal. L'ensemble des champs critiques et des températures critiques obtenus pour l'échantillon de RRR=50 permet de tracer le diagramme champ température du panel A de la figure 3.1. Le second champ critique est très anisotrope, en extrapolant à température nulle on a $Hc_2^a(0)$=2,59 T, $Hc_2^b(0)$=2,08 T, $Hc_2^c(0)$=0,69 T. Rappelons que URhGe est ferromagnétique en dessous de 9,5 K, ses moments s'orientent alors selon l'axe $\vec{c}$. L'axe $\vec{a}$ est l'axe de difficile aimantation. Le zoom sur l'anisotropie du second champ critique en fonction de la température présenté sur le panel

B de la figure 3.1 montre un comportement particulier du second champ critique selon l'axe $\vec{c}$: la température critique reste constante pour des champs critiques allant de 0 T à 50 mT. Cet effet est expliqué dans la référence [36] et dans la thèse de F.Hardy [32]. Dans un ferromagnétique le champ interne H est la somme du champ appliqué H_0 et du champ démagnétisant H_d=-NM où N est un coefficient qui dépend de la forme de l'échantillon et M est l'aimantation. La susceptibilité χ est définie par χ=M/H. On obtient alors :

$$H = H_0/(1 + N\chi) \tag{3.14}$$

Or un ferromagnétique ayant un champ coercitif très petit a une susceptibilité χ très grande jusqu'à ce que son aimantation sature. Avant la saturation les domaines magnétiques s'organisent pour créer un champ démagnétisant qui s'oppose exactement au champ appliqué : le champ interne est nul. Pour $\chi \rightarrow \infty$ dans l'équation 3.14 on a bien H=0. Avant la saturation les électrons ressentent une induction B constante : B $\sim \mu_0 M_S$ où M_S est l'aimantation à saturation de l'échantillon. La saturation est atteinte quand le champ appliqué vaut NM_S. Pour notre échantillon on a $\mu_0 NM_S$=50 mT avec M_S=0,4 μ_B/U et N $\simeq$0,6.

Comparaison avec les résultats antérieurs. F.Hardy a établi durant sa thèse l'anisotropie du second champ critique d'un autre échantillon de RRR=20 (référencé #2 dans le tableau de échantillon p.11) en procédant de la même façon. Le panel A de la figure 3.2 présente les deux études : celle faite par F.Hardy et celle faite au cours de cette thèse. Les températures et champs critiques de l'échantillon de RRR=20 sont moins élevés que ceux de l'échantillon de RRR=50. Le panel B de la figure 3.2 montre que la dépendance du champ critique en fonction de la température normalisée par la température supraconductrice est pratiquement identique à une constante multiplicative près pour les axes $\vec{a}$ et $\vec{c}$ des deux échantillons. En revanche la situation est très différente pour l'axe $\vec{b}$: ce qui est inattendu.

En effet, si on ne considère que la limite orbitale dans le cas d'un couplage faible en limite propre il est possible de montrer que quelque soit l'échantillon le champ critique H_{C2}(T) suit une loi de scaling telle que :

$$H_{C2}(T) = H_{C2}(0) \times f(T/T_S) \tag{3.15}$$

où $f(x)$ est une fonction universelle et T_S est la température supraconductrice de l'échantillon.

Le calcul a été fait par Helfand et Werthamer [44]. Afin de déterminer la limite orbitale même très loin de la température supraconductrice T_S on ne peut utiliser le développement de Ginzburg-Landau, valable uniquement près de T_S. Il faut utiliser la formulation de la théorie BCS en fonctions de Green donnée par Gor'Kov. On linéarise les équations en utilisant le fait que près de H_{c2}^{orb} le gap supraconducteur est presque nul. On obtient alors une dépendance implicite de H_{c2}^{orb} en fonction de la température. Cette dépendance implicite s'exprime en fonction de variables réduites T/T_S et $H_{c2}^{orb}/[dH_{c2}^{orb}/dt]_{T=T_S}$. Numériquement, on peut trouver la dépendance de H_{c2}^{orb}(T), i.e trouver la fonction universelle f(x). Pour le détail des calculs le lecteur pourra se reporter à la référence [44], ainsi qu'à ses références.

Le changement entre les deux échantillons du comportement du second champ critique selon $\vec{b}$ est donc a priori inattendu. Avant d'aller plus loin précisons un point. La qualité des échantillons est estimée par le Rapport de Résistivité Résiduelle (RRR) : rapport de

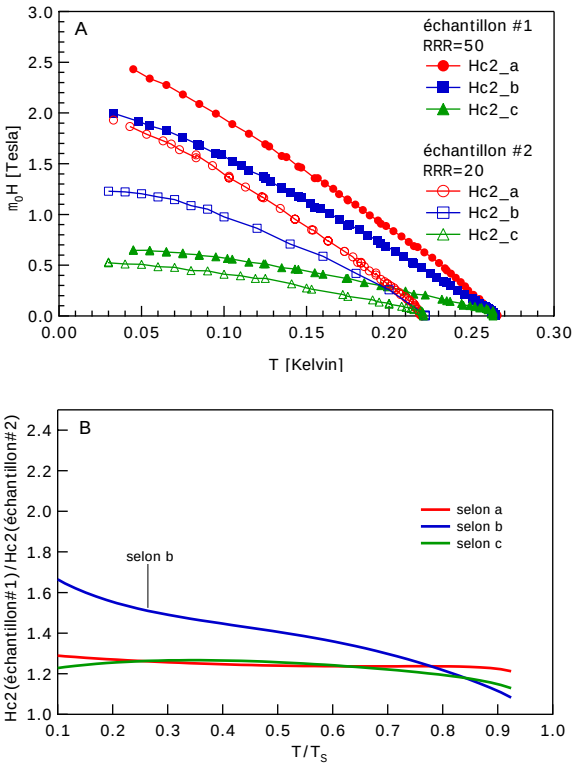

FIG. 3.2 – **Comparaison de l'anisotropie du second champ critique pour des échantillons de qualités différentes.** L'échantillon #1 de RRR=50 est celui étudié durant cette thèse. L'échantillon #2 de RRR=20 a été étudié par F.Hardy. **Panel A** Dépendance en température du second champ critique selon les trois axes $\vec{a}$,$\vec{b}$ et $\vec{c}$ des deux échantillons. Les symboles pleins correspondent au meilleur échantillon de RRR=50. Les symboles vides à l'échantillon de RRR=20. Les triangles verts pour l'axe $\vec{c}$, les carrés bleus pour l'axe $\vec{b}$ et les ronds rouges pour l'axe $\vec{a}$. **Panel B** Rapport des champs critiques des deux échantillons selon les trois axes $\vec{a}$,$\vec{b}$ et $\vec{c}$ en fonction de la température normalisée par la température supraconductrice. Le rapport est presque constant selon les axes $\vec{a}$ et $\vec{c}$. Il y a en revanche une grande différence pour l'axe $\vec{b}$.

la résistance mesurée à 300 K par celle mesurée à très basse température. Plus grand est ce rapport, plus grand est sensé être le libre parcours moyen électronique de l'échantillon. En réalité le RRR ne caractérise que le chemin suivi dans l'échantillon par les électrons lors de la mesure de résistivité. Or il est très probable que nos échantillons ne soient pas totalement homogènes (le travail de F.Hardy [32] sur la caractérisation des échantillons montre dans quelle mesure nous pouvons considérer les échantillons comme homogènes). Le lien entre la qualité des échantillons et le RRR est donc à établir avec précaution. Cependant les contacts utilisés pour faire les mesures de seconds champs critiques sont les mêmes que ceux utilisés pour déterminer le RRR. Dans notre cas le RRR caractérise donc probablement la partie de l'échantillon qui contribue au comportement sous champs de la supraconductivité.

En gardant une retenue par rapport à ce problème la question est de savoir si la différence de comportement du second champ critique selon $\vec{b}$ est due à l'influence de la

qualité des échantillons ou à une orientation imprécise des échantillons. Nous pouvons apporter trois éléments supplémentaires pour tenter de répondre à cette question : deux mesures de champ critique en fonction de la température, une faite selon un axe désorienté de 10° dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) sur l'échantillon de RRR=50, une réalisée sur un petit monocristal de RRR=100 selon l'axe $\vec{b}$ à plus ou moins 5°, et, une mesure de champ critique sur l'échantillon de RRR=50 à température fixe pour un champ appliqué selon différents angles dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). L'ensemble des mesures de champ critique en fonction de la température selon l'axe b (plus ou moins 10°) est présenté sur le figure 3.3. Ces mesures semblent indiquer d'une part qu'une désorientation dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) ne peut pas expliquer le changement de comportement du second champ critique selon $\vec{b}$ à basse température, d'autre part que ce comportement se confirme pour un autre échantillon de bonne qualité cristallographique. Figure 3.4 les mesures de champ critiques dans le plan (ab) montre que la variation de champ critique dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) est continue et est décrite par :

$$H_{C2}(\gamma)) = (sin^2(\gamma)/H_a^2 + cos^2(\gamma)/H_b^2)^{-1/2} \tag{3.16}$$

où γ est l'angle entre le champ et l'axe $\vec{b}$ du cristal, H_a et H_b sont les seconds champs critiques selon les axes $\vec{a}$ et $\vec{b}$ respectivement. Une désorientation de quelques degrés par rapport à l'axe $\vec{b}$ (dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$)) ne permet donc pas d'expliquer le changement de comportement du second champ critique selon $\vec{b}$ entre les différents échantillons.

En conclusion, le second champ critique selon $\vec{b}$ semble être augmenté vers les basses températures dans les échantillons de bonne qualité au delà de ce que prédit la théorie de scaling. L'origine de cette augmentation pourrait être un renforcement de la force de couplage des paires de Cooper lors de l'application d'un champ magnétique selon l'axe $\vec{b}$. Ce renforcement serait dû à l'influence de la transition métamagnétique ayant lieu pour un champ magnétique appliqué de 11,7 T selon l'axe $\vec{b}$. L'étude de la transition métamagnétique est présentée dans le chapitre suivant. Durant cette thèse nous avons observé dans les meilleurs échantillons l'apparition d'une nouvelle phase supraconductrice englobant cette transition métamagnétique. Le chapitre 6 traite des résultats obtenus sur cette supraconductivité à hauts champs. Le renforcement de la force de couplage des paires de Cooper lors de l'application d'un champ magnétique selon l'axe $\vec{b}$ pourrait expliquer la ré-entrance de la supraconductivité sous champ. Ce point sera discuté dans le chapitre 6. Des mesures de dépendance angulaire du second champ critique sur des échantillons de différentes qualités permettraient de déterminer clairement si le second champ critique selon $\vec{b}$ est augmenté dans les échantillons de bonne qualité (et de caractériser ce renforcement en fonction de la qualité des échantillons).

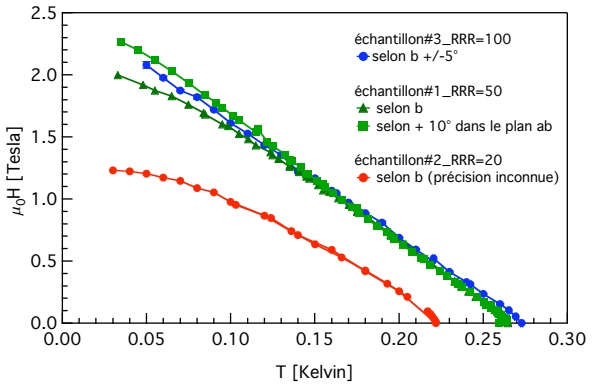

FIG. 3.3 – **Comparaison de l'anisotropie du second champ critique selon $\vec{b}$: étude de l'influence de la qualité des échantillons.** Dépendance du champ critique selon $\vec{b}$ en fonction de la température. L'échantillon #1 de RRR=50 est celui étudié durant cette thèse. L'échantillon #2 de RRR=20 a été étudié par F.Hardy. L'échantillon #3 de RRR=100 est un petit monocristal extrait d'un polycristal. Les deux meilleurs échantillons présentent un champ critique selon l'axe $\vec{b}$ très similaire. La mesure faite sur l'échantillon de RRR=50 pour un écart de 10° par rapport à l'axe $\vec{b}$ dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$ laisse à penser que la différence de comportement à basse température du champ critique selon $\vec{b}$ ne peut être expliqué par la désorientation des échantillons. Le second champ critique selon $\vec{b}$ semble être augmenté dans les échantillons de bonne qualité.

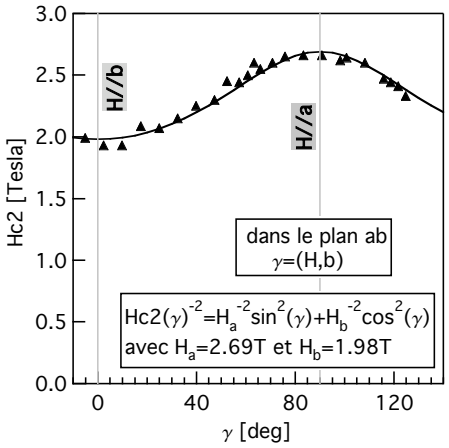

FIG. 3.4 – **Etude de l'anisotropie du second champ critique dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$.** Dépendance angulaire du second champ critique dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$ pour une température fixe de 45 mT. γ est l'angle entre l'axe $\vec{b}$ du cristal et le champ appliqué dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$. Les mesures ont été faites au LCMI sur l'échantillon #1 de RRR=50 (cf. tableau des échantillons p.11). La variation de champ critique dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$ est continue et est parfaitement décrite par l'équation 3.16. L'équation est également donnée sur la figure. Le trait continu représente l'évolution du second champ critique donné par cette équation avec H_a=2,69 T et H_b=1,98 T.

3.2.3 Analyse du second champ critique.

Dans cette partie nous discutons de la détermination du paramètre d'ordre (à bas champs) dans URhGe. Dans un premier temps, nous présentons les paramètres d'ordre compatibles avec un appariement triplet et avec la symétrie magnétique du cristal de URhGe. Ensuite **nous allons justifier le choix d'un potentiel d'appariement particulier qui donne lieu a un paramètre d'ordre état polaire triplet $\mathbf{k}_a|\uparrow\uparrow>$.** A partir de cette hypothèse il est possible de prédire le comportement en température des seconds champs critiques selon les trois axes cristallographiques. A.Huxley et F.Hardy ont montré antérieurement le succès de l'ajustement des seconds champs critiques calculé avec cette hypothèse [32, 36]. Dans cette section nous montrons que les mesures de seconds champs critiques effectuées durant cette thèse sont également compatibles avec ce paramètre d'ordre particulier bien que présentant un comportement différent selon la direction $\vec{b}$. Nous nous efforcerons d'expliquer cette différence de comportement. Finalement, au vu des nouveaux éléments présentés dans les chapitres suivants concernant la découverte d'une transition métamagnétique et d'une phase supraconductrice induite sous champs dans URhGe, nous expliquerons en quoi le paramètre d'ordre choisi est a posteriori le plus adapté dans l'hypothèse d'un état triplet (et d'un couplage spin-orbite fort).

Restrictions imposées sur le paramètre d'ordre par la symétrie magnétique de URhGe. Pour un supraconducteur triplet dont la structure cristallographique est orthorhombique, en supposant un couplage spin-orbite fort, V.P Mineev et T.Champel [45] ont démontré qu'il n'existe que deux types de paramètres d'ordre supraconducteur possibles. Un paramètre d'ordre avec une ligne de zéros perpendiculaire à l'aimantation comme celui du panel A de la figure 3.5. Un paramètre d'ordre avec des zéros isolés aux pôles le long de l'aimantation comme celui du panel B de la figure 3.5.

Choix, conséquence et justification d'un potentiel d'appariement particulier. Le potentiel d'appariement choisi est :

$$V_{\sigma\sigma'}(K, K') \propto -\delta_{\uparrow\sigma}\delta_{\uparrow\sigma'}K_a K'_a \tag{3.17}$$

Ce choix signifie qu'il y a une interaction effective attractive entre deux électrons ayant un état de spin σ et σ' et pour des vecteurs de propagation incidents $\vec{K}$ et $-\vec{K}$ et après interaction $\vec{K'}$ et $-\vec{K'}$. Cette interaction est effective uniquement si les deux électrons ont des spins up ($\uparrow$). L'indice "a" indique que les fluctuations virtuelles, vecteur de l'interaction effective, ne sont efficaces que pour la composante selon l'axe $\vec{a}$ des vecteurs de propagation des électrons. Les fluctuations se propagent selon la direction cristallographique $\vec{a}$. **Cet appariement réalise un paramètre d'ordre du type $\mathbf{k_a}|\uparrow\uparrow>$** comme celui présenté sur le panel C de la figure 3.5. Le maximum du paramètre se situe selon l'axe $\vec{a}$ car une telle interaction est plus forte pour les vecteurs de propagation des électrons qui forment les paires de Cooper selon l'axe $\vec{a}$. Le potentiel d'interaction choisi n'est efficace que pour des électrons ayant des spins up ($\uparrow$), par conséquent le paramètre d'ordre formé est un cas particulier d'un état triplet, la fonction de spin du paramètre est juste formée de l'état $|\uparrow\uparrow>$. Le choix d'un tel potentiel semble justifié a posteriori par le succès de l'ajustement des seconds champs critiques calculé avec ce potentiel. On pourra remarquer que le potentiel d'appariement choisi est un cas particulier de celui de l'^{3}He [11]. Pour

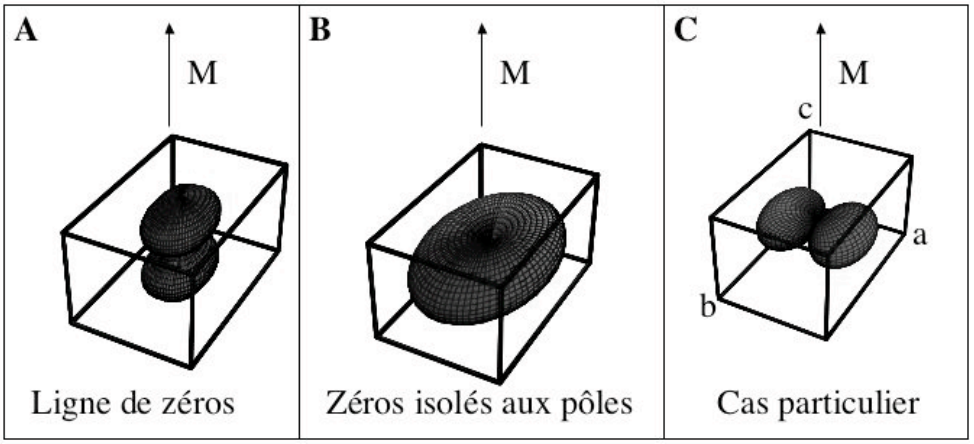

FIG. 3.5 – **Paramètres d'ordres supraconducteurs de type triplet compatibles avec la symétrie de URhGe.** Les moments magnétiques de URhGe sont orientés selon l'axe cristallographique $\vec{c}$. L'orientation des moments est symbolisée par une flèche associée à la lettre M. Pour un paramètre d'ordre triplet deux types de fonctions d'onde spatiales sont possibles. Elles ont présentées sur les panels A et B. **Panel A** Le paramètre d'ordre présente une ligne de zéros dans le plan perpendiculaire à l'aimantation. **Panel B** Le paramètre a des zéros isolés aux pôles le long de la direction de l'aimantation. **Panel C** Le paramètre d'ordre est celui compatible avec l'ajustement des seconds champs critiques mesurés par F.Hardy et A.Huxley. Ce paramètre d'ordre est un cas particulier du paramètre du panel B : il a une ligne de zéros dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) contenant la direction de l'aimantation (selon $\vec{c}$).

l'^{3}He le potentiel d'appariement est du type :

$$V_{\sigma\sigma'}(K, K') \propto KK' \tag{3.18}$$

Il est possible de montrer qu'un tel appariement conduit à la formation d'un paramètre d'ordre p-wave pur dans l'hypothèse d'un couplage faible.

Modèles pour les ajustements des seconds champs critiques. Les ajustements présentés sont de trois types : limite orbitale de type BCS, état polaire de l'^{3}He et état polaire bloqué. Dans les paragraphes suivant nous exposons les hypothèses de chacun de ces modèles. Les trois types d'ajustements sont décrits par des fonctions universelles du type $f(T/T_S)$ calculées par A.Huxley d'après les références citées selon les modèles. De manière générale on a :

$$H_{c2}(T) = H_{c2}(0) \times f(T/T_S) \tag{3.19}$$

Les ajustements montrés dans cette section nécessitent donc deux paramètres : la température supraconductrice à champ nul T_S et la valeur du champ second critique à température nulle $H_{c2}(0)$.

•**La limite orbitale de type BCS.** Le calcul a été fait par Helfand et Werthamer [44]. La démarche du calcul a été décrite dans le paragraphe faisant suite à l'équation 3.15 p.46. **Ce calcul ne considère que la limite orbitale dans le cas d'un supraconducteur avec un paramètre d'ordre s-wave. Il n'est valide que dans le cas d'un couplage faible en limite propre.**

•**Etat polaire de l'^{3}He et état polaire bloqué.** Le calcul a été fait par Scharnberg et Klemm [46, 47]. Le calcul néglige la limitation de Pauli. Il considère le cas d'un couplage faible et d'un supraconducteur en limite propre (le libre parcours moyen électronique est plus grand que la longueur de cohérence des paires de Cooper). La démarche de calcul est la même que pour la limite orbitale de type BCS. Le potentiel d'interaction choisi est du type de celui de l'^{3}He mais avec une direction préférentielle. Ce potentiel conduit à la formation d'un état p-wave pur : soit un état polaire, soit un état uniaxial. Pour un état polaire le paramètre d'ordre s'annule selon une ligne comme le paramètre d'ordre du panel A de la figure 3.5. Pour un état uniaxial le paramètre d'ordre s'annule à des points isolés comme le paramètre d'ordre du panel B de la figure 3.5. Nous ne nous intéressons qu'aux résultats concernant l'état polaire. Le terme polaire fait référence à l'état polaire de l'^{3}He. Or le lecteur pourra relever que pour l'état polaire de l'^{3}He l'état de spin est triplet S_Z=0 alors que l'état de spin envisagé pour URhGe est triplet S_Z=1. Cependant le calcul mené par Scharnberg et Klemm ne fait pas intervenir l'état de spin : il ne considère que la fonction d'onde spatiale du paramètre d'ordre supraconducteur. Dans le cas où le paramètre d'ordre polaire est bloqué il faut considérer la direction du champ appliqué par rapport au paramètre d'ordre. Il faut distinguer deux comportements : quand le champ est appliqué selon la direction du maximum du paramètre d'ordre et quand le champ est appliqué selon une autre direction. **Quand la direction du champ correspond à la direction du maximum du paramètre d'ordre** nous désignons la limite de champ critique calculée par limite de l'**état polaire de l'^{3}He**. Nous utilisons ce terme par référence au cas de l'^{3}He. Pour l'^{3}He le paramètre d'ordre est libre de tourner et s'adapte à la direction du champ appliqué. Le maximum du paramètre d'ordre s'aligne avec le champ. Nous utilisons le terme **état polaire bloqué** quand **le champ est appliqué dans le plan des zéros du paramètre d'ordre** (cette limite de second champ critique dans ce cas est appelée Completely Broken Symmetry dans l'article [47]).

Finalement, **pour le paramètre d'ordre envisagé pour URhGe** : $\mathbf{k_a}|\uparrow\uparrow>$ (cf. panel C de la figure 3.5), du type polaire (pour la fonction d'onde spatiale) avec un maximum selon l'axe $\vec{a}$ et une ligne de zéros dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) les limites attendues sont les suivantes : **comportement du second champ critique du type polaire bloqué selon les directions $\vec{b}$ et $\vec{c}$ et comportement du type état polaire de l'^{3}He selon l'axe $\vec{a}$.**

Ajustements des seconds champs critiques. La figure 3.6 présente les ajustements réalisés sur les mesures de second champs critiques pour trois échantillons différents. L'échantillon de RRR=20 (panel B) est l'échantillon étudié par F.Hardy dont le paramètre d'ordre est compatible avec celui présenté sur le panel C de la figure 3.5. Les champs critiques selon $\vec{b}$ et $\vec{c}$ sont ajustés par un état polaire bloqué. Le second champ critique selon $\vec{a}$ est ajusté par l'état polaire de l'^{3}He. Les échantillons de RRR=50 et RRR=100 n'ont pas le même comportement le long de la direction $\vec{b}$. Pour ces deux échantillons, le second champ critique selon $\vec{b}$ est ajusté par l'état polaire de l'^{3}He. Sinon les champs critiques de l'échantillon de RRR=50 ont le même comportement que celui de RRR=20, état polaire de l'^{3}He selon $\vec{a}$ et état polaire bloqué selon $\vec{c}$. Il est possible d'expliquer le changement de comportement du second champ critique selon $\vec{b}$ de la façon suivante. **Le paramètre d'ordre supraconducteur serait toujours du type proposé par F.Hardy et A.Huxley même si pour les échantillons de meilleures qualités (grands RRR) le champ second critique selon l'axe $\vec{b}$ semble renforcé. En effet**

au vu des résultats présentés dans les chapitres suivants il est probable que la force de couplage responsable de l'appariement des électrons en paire de Cooper soit renforcée lors de l'application d'un champ magnétique selon la direction $\vec{b}$. Seuls les meilleurs échantillons seraient sensibles à cette augmentation (à bas champs) car la supraconductivité de URhGe est non conventionnelle et donc sensible à toutes les impuretés présentes dans l'échantillon.

Le choix du paramètre d'ordre pour cette supraconductivité bas champs de URhGe proposé par F.Hardy et A.Huxley semble conforté par les nouveaux éléments apportés au cours cette thèse. Dans le chapitre suivant nous allons présenter l'étude d'une transition magnétique induite sous champ dans URhGe. Cette transition a lieu lors de l'application d'un champ magnétique selon l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Elle correspond au brusque alignement de l'aimantation de URhGe de l'axe $\vec{c}$ (axe de facile aimantation) vers l'axe $\vec{b}$. Dans les meilleurs échantillons, ceux qui présentent une phase supraconductrice bas champs, nous avons découvert la présence d'une deuxième phase supraconductrice englobant cette transition magnétique. L'étude de cette phase supraconductrice à hauts champs est présentée dans le dernier chapitre de cette thèse. Nous avons montré que cette phase supraconductrice à hauts champs existe pour des moments inclinés dans le plan ($\vec{b}$, $\vec{c}$) de 0° à 55° de l'axe $\vec{b}$. **Le paramètre d'ordre proposé par F.Hardy et A.Huxley est donc également compatible avec la supraconductivité à hauts champs [48]. De plus, il est probable que les fluctuations magnétiques associées à la transition magnétique aient une direction de propagation selon l'axe $\vec{a}$ (nous reviendrons sur ce point).**

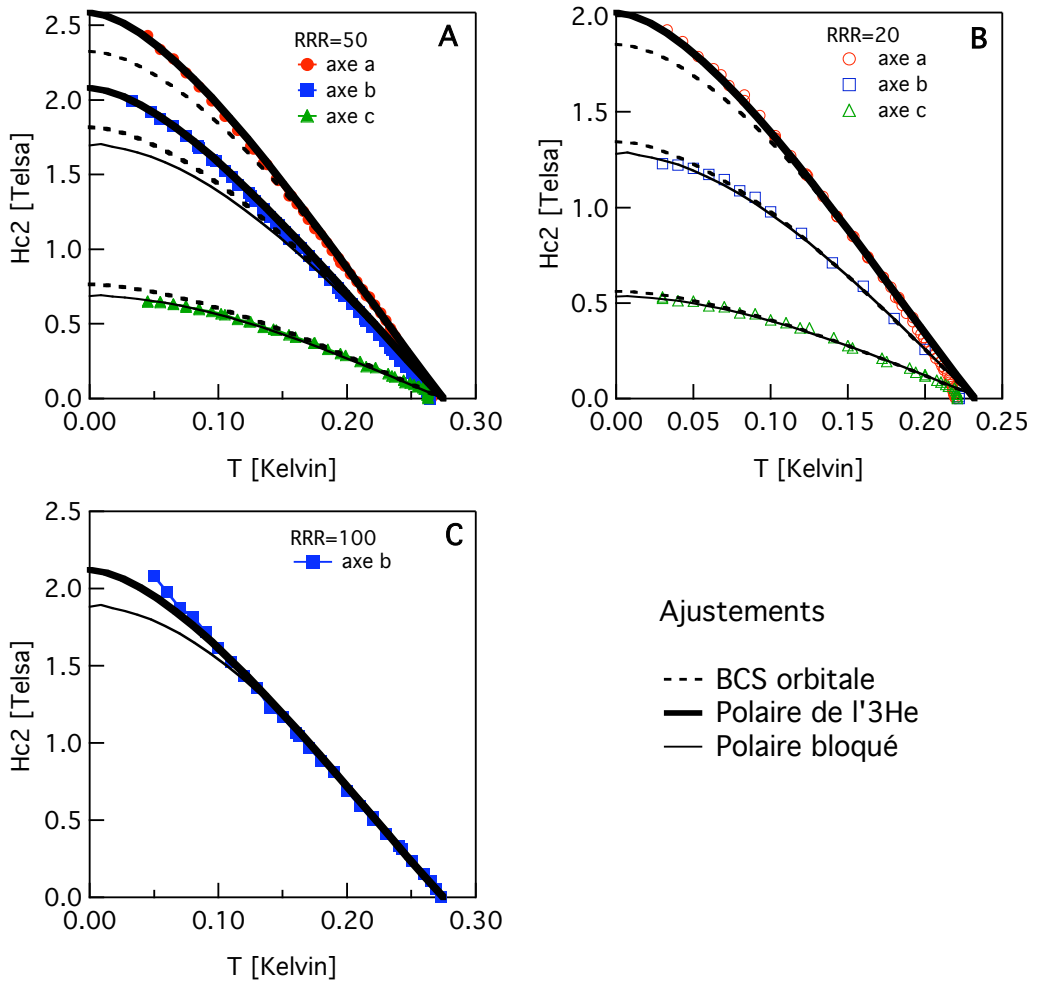

FIG. 3.6 – **Ajustements des seconds champs critiques.** Dépendance en fonction de la température des seconds champs critiques selon différentes directions cristallographiques pour trois échantillons. Les champs critiques mesurés selon l'axe $\vec{a}$ sont en rouge, ceux mesurés selon l'axe $\vec{b}$ en bleu et ceux mesurés selon l'axe $\vec{c}$ en vert. Les traits noirs représentent les ajustements des seconds champs critiques. Le trait épais ajuste un état polaire similaire à celui de l'^{3}He. Le trait fin continu ajuste un état polaire bloqué. Le trait discontinu ajuste la limite orbitale de type BCS. **Panel A** Mesures sur l'échantillon#1 de RRR=50. Les directions $\vec{a}$ et $\vec{b}$ sont ajustées par un état polaire ^{3}He. La direction $\vec{c}$ est ajustée par un état polaire bloqué. **Panel B** Mesures sur l'échantillon# 2 de RRR=20. La direction $\vec{a}$ est ajustée par un état polaire ^{3}He. Les directions $\vec{b}$ et $\vec{c}$ sont ajustées par un état polaire bloqué. **Panel C** Mesures sur l'échantillon#3 de RRR=100. La direction $\vec{b}$ est ajustée par un état polaire ^{3}He.

3.3 Effet de retournement des domaines

Cette section présente et discute des résultats singuliers obtenus lors de l'étude des seconds champs critiques bien que probablement sans relation avec la supraconductivité. Les mesures présentées dans cette partie sont des mesures de résistivité en fonction du champ sur l'échantillon de RRR=50 référencé #1 (cf. chapitre sur les techniques expérimentales pour le mode opératoire). Le courant est injecté selon l'axe $\vec{b}$ du cristal. Le champ est appliqué selon l'axe $\vec{c}$ qui est l'axe de facile aimantation du composé URhGe.

Le panel A de la figure 3.7 révèle aux environs de la transition supraconductrice un comportement inhabituel dans la résistivité. La mesure a été faite à une température fixe de 255 mK, pour un courant de 50 μA, et une vitesse de rampe de champ de 20 mT/mn. Le comportement à la montée et à la descente du champ est différent. A la montée on observe un pic à la transition supraconductrice pour un champ de 50 mT. A la descente la résistance augmente quand le champ diminue pour des champs inférieurs à 50 mT. Le panel B de la figure 3.7 montre une mesure faite dans les mêmes conditions mais à une température de 225 mK. Le comportement de la résistance est redevenue classique : on observe uniquement la transition supraconductrice.

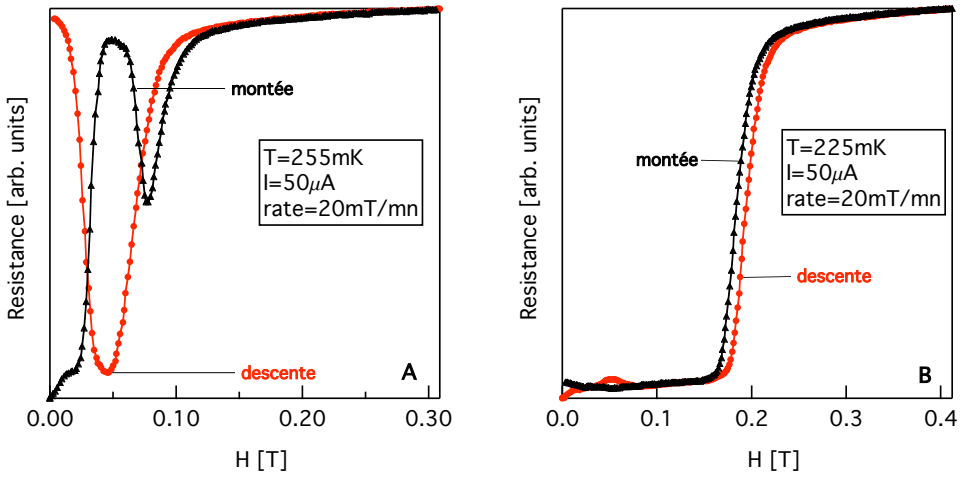

FIG. 3.7 – **Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{c}$.** Les mesures des deux panels ont été faites pour un courant de 50 μA et pour une vitesse de rampe en champ de 20 mT/mn. **Panel A** Mesure faite à 255 mK. La résistance a un comportement inhabituel au environ de la transition supraconductrice. A la montée on observe un pic à la transition supraconductrice pour un champ de 50 mT. A la descente la résistance augmente quand le champ diminue pour des champs inférieurs à 50 mT. **Panel B** Mesure faite à 225 mK. Le comportement de la résistance est redevenue classique : on observe uniquement la transition supraconductrice.

A température et vitesse de rampe en champ constante nous avons fait varier le courant de mesure utilisé. La figure 3.8 présente les mesures de tension effectuées divisées par le courant : les résistances sont identiques. **Le courant n'est pas responsable de l'effet inhabituel observé**

A température et courant de mesure fixe, nous avons étudié l'influence de la vitesse de rampe en champ. Cette étude est présentée sur la figure 3.9. **Le comportement singulier**

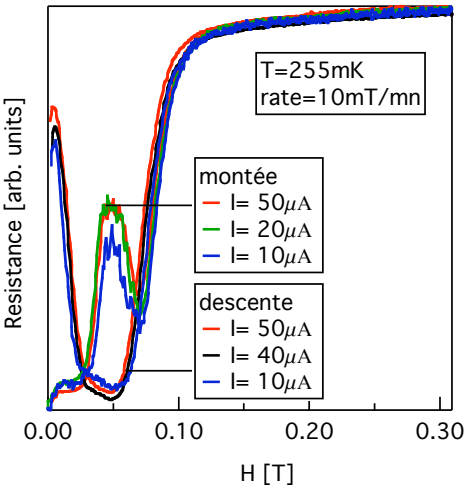

FIG. 3.8 – **Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{c}$ pour différents courants de mesure.** A T=255 mK, pour une vitesse de rampe de 10mT/mn, différents courants de mesures ont été utilisés : $10\mu A$, $20\mu A$, $40\mu A$ et $50\mu A$. Le comportement est identique quelque soit le courant de mesure. Le courant n'est pas responsable de l'effet inhabituel observé.

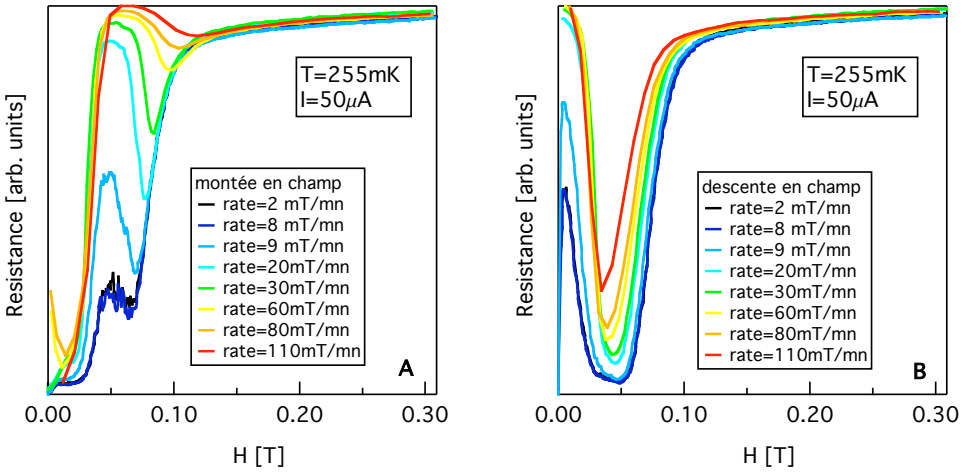

FIG. 3.9 – **Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe c pour différentes vitesses de rampe en champ.** A T=255 mK, pour I=50 μA, nous avons utilisé différentes vitesses de rampe en champ. **Panel A** Montée en champ. **Panel B** Descente en champ. Le comportement singulier de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe c est renforcé pour des vitesses de rampe en champ de plus en plus grandes.

de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{c}$ est renforcé pour des vitesses de rampe en champ de plus en plus grandes.

Pour un courant de mesure et une vitesse de rampe en champ fixés nous avons étudié l'évolution de l'effet en température. La figure 3.10 présente ces mesures. **L'effet étudié est renforcé pour des températures de plus en plus élevées.**

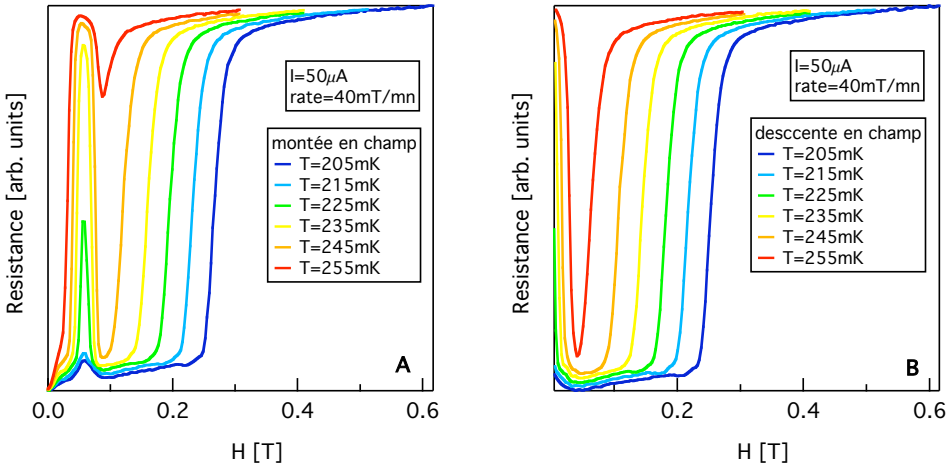

FIG. 3.10 – **Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe c pour différentes températures.** Pour I=50 μA et une vitesse de rampe en champ de 40 mT/mn nous avons mesuré la résistance pour différentes températures. **Panel A** Montée en champ. **Panel B** Descente en champ. Le comportement singulier de la résistance en fonction du champ appliqué selon l'axe c est renforcé pour les températures les plus élevées.

En résumé l'effet étudié est renforcé pour des températures et des vitesses de rampe en champ de plus en plus grandes. Ce comportement est différent pour une rampe croissant ou décroissante en champ. En champ croissant la résistance présente un pic autour de 50 mT. En champ décroissant la résistance commence à augmenter en dessous de 50 mT. **Le phénomène proposé pour expliquer ces effets singuliers est un échauffement dû au retournement des domaines magnétiques. En dessous d'un certain champ les parois des domaines magnétiques s'organisent de façon à s'opposer au champ magnétique appliqué. Ce déplacement est un phénomène irréversible : l'évolution des domaines est différent pour un champ croissant ou décroissant. Cet effet produit une dissipation de chaleur dû aux pertes par hystérésis.** On a observé cet effet dans des échantillons de fer polycristallins [5] : il a été mesuré un échauffement de 0,2 mK par demi-cycle d'hystérésis à 300 K.

Le champ en dessous duquel les domaines sont libres de bouger dépend du champ coercitif H_C du composé, du coefficient démagnétisant N de l'échantillon et de son aimantation à saturation M_S. Par commodité nous appellerons dans ce qui va suivre ce champ H_δ. $H_\delta = H_c + M_S N$. Pour notre composé ce champ est d'environ 50 mT comme le montre les mesures d'hystérésis faites par E.Lhotel (sur un échantillon différent) présentées sur la figure 3.11. Pour un champ compris entre 0 T et 50 mT les parois de domaines bougent et provoquent une dissipation de chaleur. Pour une rampe croissante en champ cette dissipation commence à 0 T et termine à 50 mT : l'échauffement augmente jusqu'à 50 mT, la

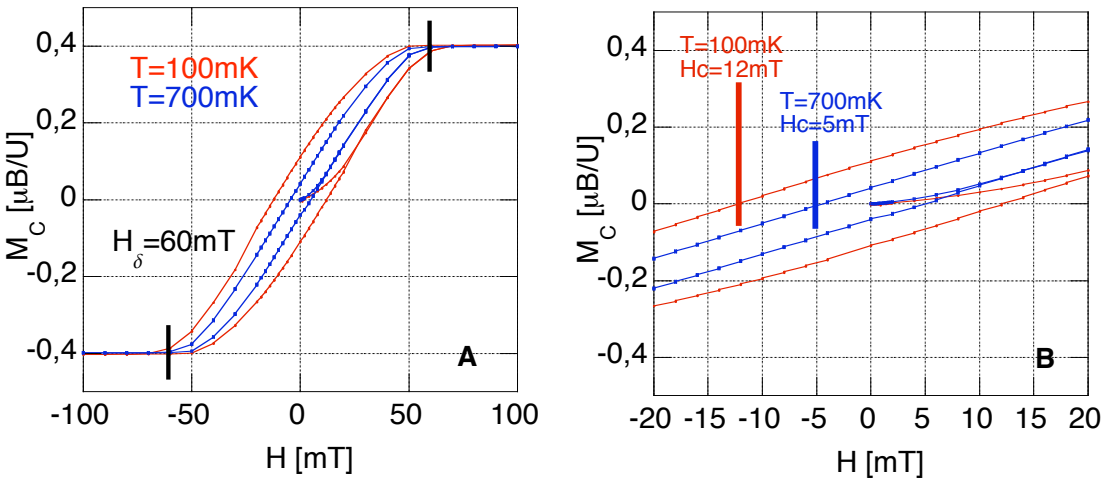

FIG. 3.11 – **Mesure d'hystérésis selon l'axe c.** Ces mesures ont été faites par E.Lhotel au CRTBT à 100 mK et 700 mK. **Panel A** Pour des champs entre -H_δ et +H_δ les domaines magnétiques s'organisent de façon à s'opposer au champ magnétique appliqué. Il y a un cycle d'hystérésis : l'évolution de l'aimantation est différente pour un champ croissant ou décroissant. H_δ est de l'ordre de 60 mT pour l'échantillon mesuré. **Panel B** Zoom sur les mesures présentées sur le panel A. Le champ coercitif H_c change légèrement en température. H_c(100mK)=12 mT et H_c(700mK)=5 mT.

température de l'échantillon augmente aussi car le cryostat ne le refroidit pas assez rapidement. L'échantillon tend à transiter vers son état normal. Au delà de 50 mT l'échauffement dû au déplacement des parois de domaines cesse, l'échantillon est alors refroidi par le cryostat jusqu'à la température de régulation. Ceci explique le pic présent à 50 mT dans les mesures de résistivité pour des rampes croissantes en champ. Pour une rampe décroissante en champ l'apport de chaleur commence à 50 mT et termine à 0 T. Avec les mêmes arguments on explique l'augmentation de la résistance en champ décroissant en dessous de 50 mT. Si on attend quelques temps à champ nul après une rampe décroissante en champ la résistance de l'échantillon redevient nulle. L'influence de la vitesse de rampe en champ s'explique de la façon suivante : plus la vitesse de rampe en champ est grande, plus l'apport de chaleur est rapide et moins le cryostat a le temps de refroidir l'échantillon. L'influence de la température est simple : plus l'échantillon est près de sa température supraconductrice de 270 mK, moins il faut d'apport de chaleur pour le faire basculer dans son état normal.

L'augmentation en température ΔT de l'échantillon peut être évaluée de la façon suivante.

$$C\Delta T = \Delta Q + \Delta W \tag{3.20}$$

où C est la chaleur spécifique de l'échantillon, ΔQ est l'apport de chaleur (ou de froid) à l'échantillon et ΔW est le travail fourni par pertes d'hystérésis à l'échantillon. Si on suppose que le cryostat ne refroidit pas du tout l'échantillon (c'est vrai si le phénomène se passe infiniment vite) alors l'échantillon est isolé et ΔQ=0.
Le travail fourni ΔW est l'énergie nécessaire pour déplacer un domaine d'aimantation M(H) pour un champ H variant de 0 à H_δ (pour plus d'explications le lecteur peut se reporter à la référence [5] p.337). Le travail est égal à l'aire du cycle d'hystérésis dont la

mesure est présentée sur la figure 3.11. H_C étant le champ coercitif et M_S l'aimantation à saturation de l'échantillon l'expression du travail s'écrit :

$$\Delta W = -\int_O^{H_\delta} \mu_0 M(H) dH \quad (3.21)$$

$$= -\mu_0 M_S H_C \quad (3.22)$$

Finalement on a :

$$\Delta T = \mu_0 M_S H_C / C \quad (3.23)$$

Pour notre composé : M_S=0,4μ_B/U, H_C=12 mT à 100 mK et C=160 mJ.mol^{-1}.K^{-1} à basse température en dessous de la transition supraconductrice, on trouve :

$$\Delta T = 170\ mK$$

Nous avons évalué l'échauffement pour différentes rampes en champ ayant des températures de régulations et des vitesses de rampes différentes. La figure 3.12 illustre comment nous avons procédé pour évaluer l'échauffement de l'échantillon. L'échauffement a été évalué à partir de la hauteur du pic sur les mesures de résistances en champ croissant, panel A de la figure, et d'une courbe de résistance en fonction de la température pour un champ fixe de 50 mT, panel B de la figure. L'estimation de l'échauffement se fait comme suit. On relève la résistance du pic sur la courbe du panel A puis on regarde à quelle température cette résistance correspond sur la courbe du panel B. L'échauffement est la différence entre la température trouvée et la température de régulation (indiquée comme Tfixe sur le panel A). On trouve :

Température de régulation (mK)	vitesse de rampe (mT/mn)	ΔT (mK)
225	40	37
255	9	7
245	20	17
235	30	27
215	50	45

Le modèle donnant une valeur d'échauffement constante de 170 mK n'est donc pas correct. En fait, cette valeur est une surestimation de l'échauffement car nous avons négligé l'apport de froid du cryostat. Nous allons tenter de prendre en compte cet apport. Tout d'abord, on suppose que la puissance frigorifique de la dilution est suffisamment grande par rapport à l'apport de chaleur par pertes d'hystéresis. Cette hypothèse semble raisonnable dans la mesure où nous n'avons pas observé d'augmentation de la température de régulation de la dilution. L'absorption de chaleur de l'échantillon par le cryostat est essentiellement assurée et limitée par la conductivité thermique K(T) des contacts des fils de mesure. Finalement, la température de l'échantillon $T_{echantillon}$ est reliée comme suit à la température de la dilution $T_{dilution}$:

$$T_{echantillon} = T_{dilution} + P_{magnetique}/K(T) \quad (3.24)$$

où $P_{magnetique}$ est la puissance d'échauffement dû au retournement des domaines magnétiques. Cette puissance dépend de la vitesse v de rampe en champ :

$$P_{magnetique} = \mu_0 M_S H_C / H_\delta \times v \quad (3.25)$$

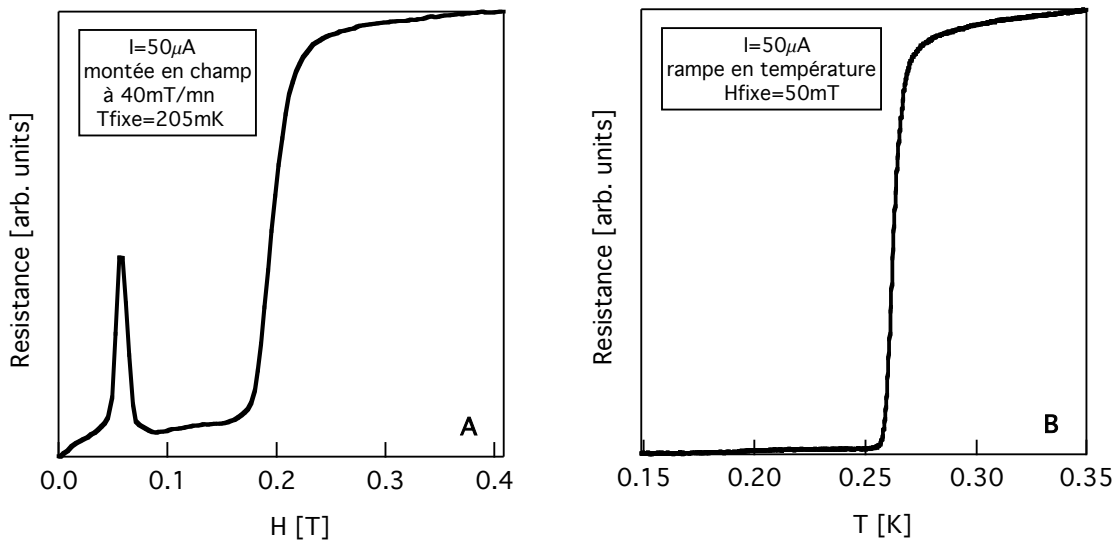

FIG. 3.12 – **Evaluation de l'échauffement.** La figure donne les éléments utilisés pour l'évaluation de l'échauffement. **Panel A** Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué. Mesure faite à température fixe pour des champs appliqués croissants. **Panel B** Dépendance de la résistance en fonction de la température pour un champ appliqué fixe de 50 mT. L'estimation de l'échauffement se fait comme suit. On relève la résistance du pic sur la courbe du panel A puis on regarde à quelle température cette résistance correspond sur la courbe du panel B. L'échauffement est la différence entre la température trouvée et la température de régulation (indiquée comme Tfixe sur le panel A).

pour notre échantillon H_δ=50mT et $\mu_0 M_S H_C$=27,2 mJ.mol^{-1}. La masse de notre échantillon est d'environ 10 mg et la masse molaire vaut 413,54 g.mol^{-1}. Finalement l'échauffement $\Delta T = T_{echantillon} - T_{dilution}$ de l'échantillon s'écrit (les unités de T et de v sont données entre les []) :

$$\Delta T[mK] = 2.10^{-10}/k(T) \times v[mT/mn] \tag{3.26}$$

Si on suppose que la conduction thermique suit une loi de Wiedemann-Franz KR=LT où T est la température, L est le nombre de Lorentz et R la résistance, en Ohms, des contacts on a :

$$R = \frac{\Delta T L T}{2.10^{-10} v[mT/mn]} \tag{3.27}$$

On calcule :

Température de régulation (mK)	vitesse de rampe (mT/mn)	ΔT (mK)	R (mΩ)
225	40	37	25
255	09	07	24
245	20	17	26
235	30	27	26
215	50	45	24

Les résistances de contact seraient de l'ordre de 25 mΩ. Cette valeur semble du bon ordre de grandeur pour de très bons contacts.

Chapitre 4

Transition métamagnétique

Transition métamagnétique, signifie transition magnétique induite sous champ.

4.1 Introduction

Nombre de théories [30, 49, 50, 51] proposant d'expliquer la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme suggèrent les fluctuations magnétiques comme responsables du couplage des électrons en paire de Copper. Dans le cas d'UGe_2 une transition magnétique a lieu quand le composé est mis sous pression et la phase supraconductrice englobe cette transition. La température supraconductrice est même maximum exactement à la transition magnétique. Ceci conforte l'idée que les fluctuations magnétiques, maximum à la transition, jouent un rôle important dans la supraconductivité de ce composé. Dans ce sens, il était logique de chercher une instabilité magnétique dans URhGe. Frédéric Hardy a dans un premier temps établi le diagramme température pression du composé sans mettre en évidence de transition magnétique. Or Prokes et collaborateurs [52] avaient observé une transition magnétique induite sous haut champ : l'aimantation d'URhGe présentait une brusque variation. En appliquant un champ magnétique selon l'axe $\vec{b}$ des cristaux F.Hardy et A.Huxley ont vu cette transition magnétique en mesure de résistivité : les mesures sont présentées sur la figure 4.1.

L'étude de cette transition métamagnétique est présentée dans ce chapitre. Cette étude a mis en oeuvre différentes techniques : diffraction neutronique, mesure de résistivité, mesure d'aimantation, mesure de couple et mesure de chaleur spécifique alternative. Elle a permis d'établir la nature de la transition métamagnétique : pour l'application d'un champ magnétique d'environ 12 Tesla selon l'axe $\vec{b}$ il y a une soudaine rotation des moments magnétiques de l'axe $\vec{c}$ (axe de facile aimantation en dessous de 9,5 K et à champ nul) vers l'axe $\vec{b}$. Les diagrammes de phase de cette transition sont présentés pour des champs appliqués dans le plan $(\vec{b},\vec{c})$ et dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$ du cristal. Dans le plan $(\vec{b},\vec{c})$ la transition serait du premier ordre jusqu'à un angle de 5° entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$, au delà il y aurait un crossover. Dans le plan $(\vec{a},\vec{b})$ cette transition serait toujours du premier ordre.

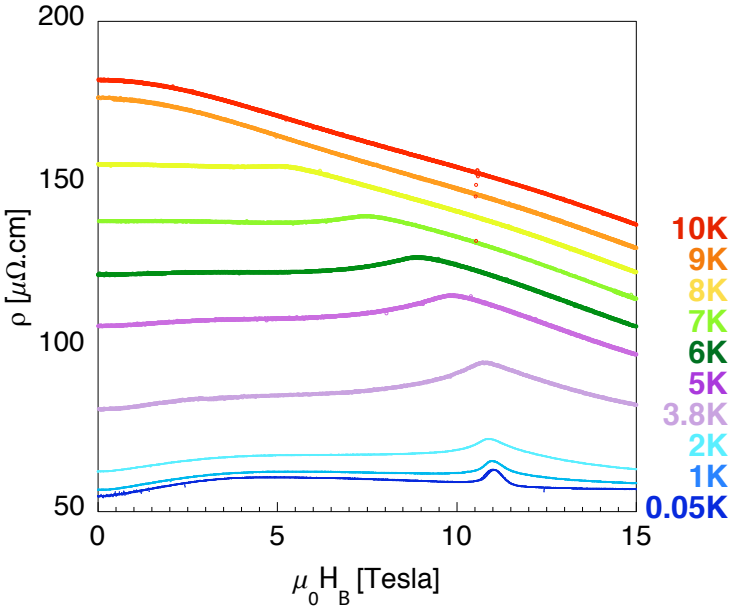

FIG. 4.1 – **Transition métamagnétique mesurée en résistivité**. Mesures faites par F.Hardy (au dessus de 2 K) et par A.Huxley (à 1 K et 50 mK) sur un échantillon de RRR=4. A différentes températures dépendance de la résistivité en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ du cristal. L'anomalie présente dans la résistivité correspond à la transition métamagnétique. Cette anomalie est très prononcée pour les températures les plus basses de 50 mK et 1K. Plus la température de mesure augmente moins l'anomalie est marquée. Au dessus de 3,8 K l'anomalie a lieu pour des champs de plus en plus faible. L'anomalie disparaît complètement au dessus de 9,5K température de Curie du composé URhGe.

4.2 Résultats

4.2.1 Mesures de diffusion neutronique

Les mesures de diffusion neutronique révèlent clairement la nature de la transition car ces mesures permettent d'accéder à toutes les composantes de l'aimantation. Les mesures ont été faites à l'Institut Laue Langevin à Grenoble sur le diffractomètre D23 (cf. chapitre techniques expérimentales) en collaboration avec B.Grenier, F.Hardy, et A.Huxley. L'échantillon utilisé est référencé #4 dans le tableau des échantillons p.11. C'est un échantillon cylindrique autour de l'axe $\vec{b}$ de 2 mm de diamètre et 4,5 mm de hauteur. L'échantillon est issu d'un lot d'échantillons de rapport résiduel de résistivité (RRR) de l'ordre de 5.

Nous avons suivi l'évolution de l'intensité de deux raies de Bragg : la 200 et la 002 en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ du cristal. Les mesures ont été faites à une température de 2 Kelvin et sont des omega-scan (l'échantillon est tourné autour d'un axe vertical autour de la position du pic). La figure 4.2 présente une partie de ces mesures.

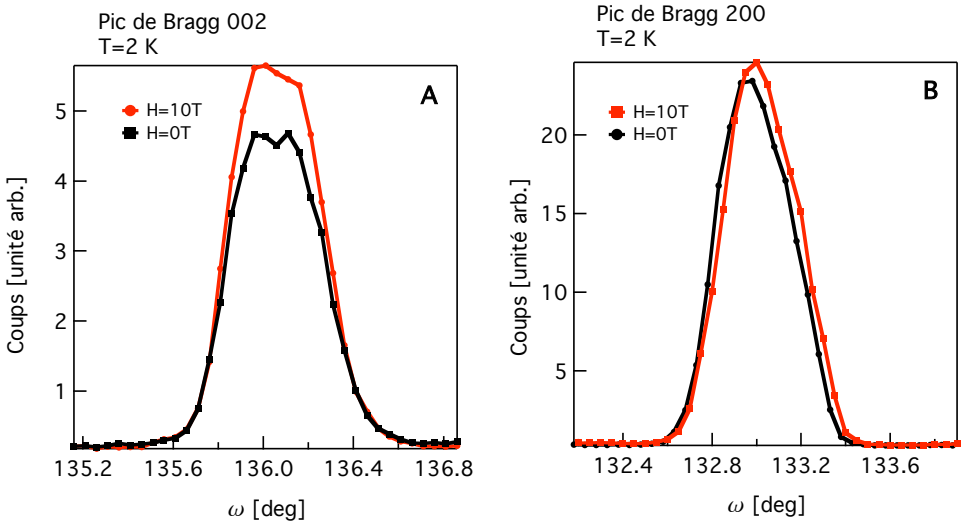

FIG. 4.2 – **Intensités des pics de Bragg 200 et 002 en fonction du champ appliqué selon l'axe b.** Omega-scan (cf. chapitre sur les techniques expérimentales) sur deux pics de Bragg. Les mesures sont faites à 2 K, pour un champ appliqué nul, courbe noire, et pour un champ de 10 Tesla, courbe rouge.

Pour déduire l'évolution des moments magnétiques d'URhGe de ces mesures nous avons estimé que les intensités intégrées des pics mesurés sont liées aux composantes m_c et m_b de l'aimantation de la façon suivante :

$$I_{200} \propto (m_b^2 + m_c^2) \tag{4.1}$$

$$I_{002} \propto m_b^2 \tag{4.2}$$

L'annexe B expose en détails la démarche qui permet de déduire l'évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ à partir des mesures de diffusion neutronique.

La figure 4.3 présente les résultats de diffusion neutronique normalisés. Les flèches situées en haut de la figure illustrent la direction du moment : entre 0 Tesla et 12 Tesla le

moment tourne progressivement de l'axe $\vec{c}$ vers l'axe $\vec{b}$, à 12 Tesla les moments s'alignent brusquement avec l'axe $\vec{b}$, au delà de 12 Tesla les moments sont alignés avec l'axe $\vec{b}$. **La transition métamagnétique correspond à un alignement soudain des moments avec l'axe $\vec{b}$ pour l'application d'un champ magnétique de 12 Tesla selon l'axe $\vec{b}$.**

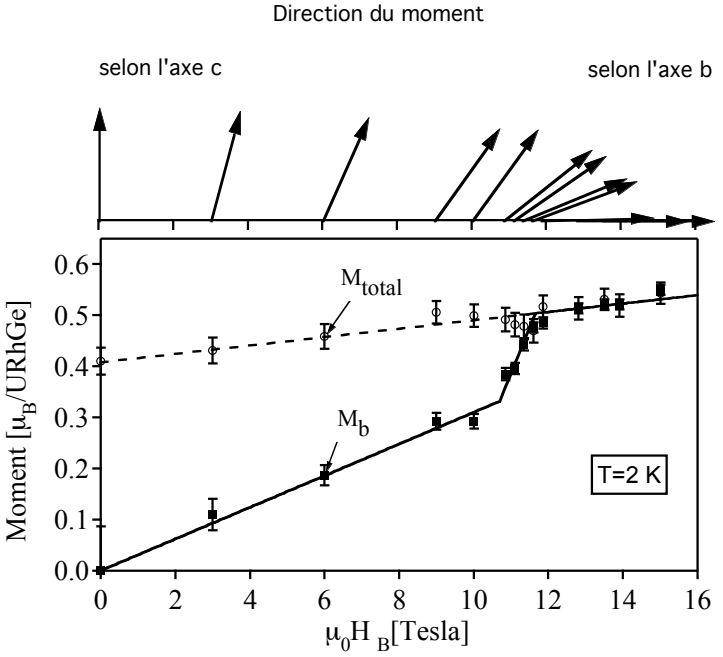

FIG. 4.3 – **Transition métamagnétique mesurée aux neutrons.** En fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$: les ronds blancs montrent l'évolution du moment magnétique total, les ronds noirs correspondent au moment magnétique selon l'axe $\vec{b}$. Les flèches situées en haut de la figure illustrent la direction du moment : entre 0 Tesla et 12 Tesla le moment tourne progressivement de l'axe $\vec{c}$ vers l'axe $\vec{b}$, à 12 Tesla les moments s'alignent brusquement avec l'axe $\vec{b}$, au delà de 12 Tesla les moments sont alignés avec l'axe $\vec{b}$. **La transition métamagnétique correspond à un alignement soudain des moments avec l'axe $\vec{b}$ pour l'application d'un champ magnétique de 12 Tesla selon l'axe $\vec{b}$.**

Il est important de noter la température à laquelle ont eu lieu les mesures de diffusion neutroniques : 2 K. Si on se reporte à la figure 4.1 qui présente des mesures de résistivité en fonction du champ magnétique appliqué selon $\vec{b}$ pour différentes températures il apparaît que la transition métamagnétique est déjà moins marquée pour des températures supérieures à 1 K. Ceci explique probablement pourquoi la transition métamagnétique n'est pas très raide en fonction du champ appliqué pour les mesures de diffusion neutronique et la mesure d'aimantation. Sinon l'analyse des résultats de diffusion neutronique, à savoir les coefficients de proportionnalités trouvés entre les intensités mesurées et les valeurs de moments, est confortée par les mesures de couple et d'aimantation présentées dans les paragraphes qui vont suivre.

4.2.2 Mesure d'aimantation

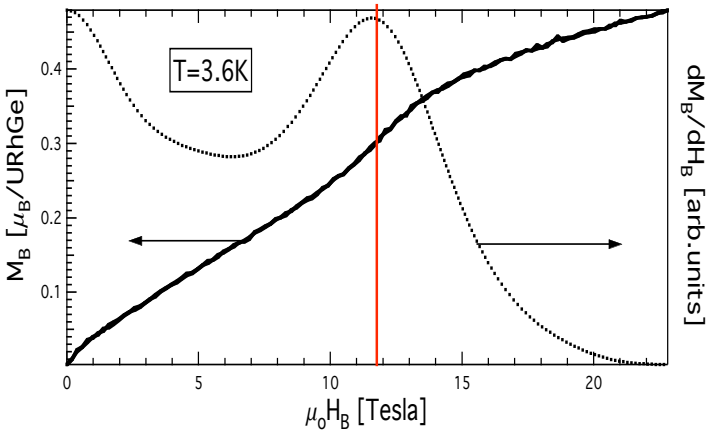

FIG. 4.4 – **Mesure de l'aimantation selon l'axe $\vec{b}$.** En fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$: la courbe en trait plein est la mesure brute de l'aimantation selon l'axe $\vec{b}$ (échelle de gauche), la courbe en pointillée est la dérivée de l'aimantation par rapport au champ magnétique appliqué. L'aimantation augmente avec le champ magnétique appliqué. Aux environs de 12 Tesla il y a un saut dans la valeur de l'aimantation : sa valeur croît brusquement. La dérivée de l'aimantation par rapport au champ appliqué permet de mieux situer ce saut : il correspond au pic à 11,7 Tesla de la dérivée. Ce pic indique la position de la transition magnétique, soulignée par un trait vertical rouge.

La mesure d'aimantation par extraction a été faite par Ilya Sheikin au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses à Grenoble (cf. chapitre techniques expérimentales pour une description du principe expérimental). Cette mesure est sensible à la composante de l'aimantation dirigée selon l'axe des bobines de détection. Elle a été réalisée sur le même échantillon que celui utilisé pour les mesures de diffusion neutronique : l'échantillon référencé #4 dans le tableau des échantillon p.11, un cylindre selon l'axe $\vec{b}$ de 300 mg, de RRR ∼5. La mesure a été réalisée à 3,6 K. La figure 4.4 présente les résultats en fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$: la courbe en trait plein est la mesure brute de l'aimantation selon l'axe $\vec{b}$, l'échelle est donnée par l'axe vertical de gauche, la courbe en pointillée est la dérivée de l'aimantation par rapport au champ magnétique appliqué. L'aimantation selon l'axe $\vec{b}$ augmente avec le champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Aux environs de 12 Tesla il y a un saut dans la valeur de l'aimantation : sa valeur croît brusquement. Ce saut est peu marqué car la mesure a été faite à 3,6 K où selon les mesures effectuées par F.Hardy, cf. figure 4.1, la transition métamagnétique est moins marquée que pour des températures plus basses. La dérivée de l'aimantation par rapport au champ appliqué permet de mieux situer la position de la transition métamagnétique : le maximum d'accroissement de l'aimantation correspond au pic à 11,7 Tesla de la dérivée. La position de la transition est soulignée par un trait vertical rouge sur la figure 4.4.

4.2.3 Mesures de couple

Conditions expérimentales Les mesures de couples ont été faites au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses à Grenoble en collaboration avec I. Sheikin et A.Huxley. Le principe de la mesure est donné dans le chapitre techniques expérimentales. Les mesures ont été effectuées à 100 mK. Grâce à un système de rotation à froid nous avons mesuré le couple pour des champs appliqués dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Dans la suite nous appelons θ l'angle dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal d'URhGe :

$$\theta = (\vec{H}, \vec{b}) \ \in \ (\vec{b}, \vec{c}) \tag{4.3}$$

Le couple mesuré, Γ, est proportionnel au champ magnétique appliqué, H, fois la composante de l'aimantation *perpendiculaire* au champ appliqué, $M_\perp$:

$$\Gamma = \mu_0 H M_\perp . V \tag{4.4}$$

où V est le volume de l'échantillon.

Deux échantillons ont été utilisés pour ces mesures : les échantillons référencés #5 et #6 dans le tableau des échantillons p.11, leurs masses sont de l'ordre de quelques milligrammes. L'échantillon #6 a un RRR $\sim$ 20 (il provient d'un lot de RRR $\sim$ 20) tandis que l'échantillon #5 a un RRR $\sim$5 (il provient d'un lot de RRR $\sim$ 5). Préalablement à la mesure nous avons vérifié l'orientation des deux échantillons par des Laue aux rayons X pour déterminer la désorientation du champ appliqué par rapport au plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) des échantillons. Nous avons mesuré la désorientation de l'axe $\vec{a}$ par rapport à l'axe de rotation du système. Pour l'échantillon de RRR $\sim$20 cette désorientation était de l'ordre de 4° (avant montage sur la canne de mesure). Pour l'échantillon de RRR $\sim$5 cette désorientation était inférieure à 1° (avant montage sur la canne de mesure).

Résultats Les figures 4.6 et 4.5 présentent une partie des mesures de couple en fonction du champ magnétique appliqué réalisées sur ces échantillons. Les mesures de la figure 4.6 ont été faites sur l'échantillon ayant un faible parcours moyen électronique de RRR $\sim$5 mais pour un champ aligné presque parfaitement dans le plan($\vec{b}$,$\vec{c}$) : la transition métamagnétique est très raide pour un champ appliqué au plus près de l'axe $\vec{b}$ (θ=0°). Les mesures sur l'échantillon de RRR $\sim$20, figure 4.5, montrent une transition moins raide à cause de la désorientation importante du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon. Si on compare les deux séries de mesures, la mesure réalisée sur l'échantillon de RRR $\sim$20 à "$\theta = 0°$", i.e *a priori* pour champ appliqué selon $\vec{b}$, semble correspondre à la mesure $\theta = 5°$ réalisée sur l'échantillon de RRR $\sim$5 : les points d'inflexions se situent aux mêmes champs. La transition métamagnétique est très sensible à la précision de l'orientation du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$ et semble moins sensible à la qualité des échantillons. Dans la suite nous présentons des mesures de résistances faites pour un champ appliqué dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) : elles permettent d'évaluer a posteriori la désorientation du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$ grâce à la position du champ critique H_R de la transition magnétique, cf. figure 4.13 p.80. Au delà de ce problème de désorientation, les mesures de couples et de résistance indiquent la même chose : la transition s'estompe et a lieu à plus hauts champs à mesure que le champ appliqué s'éloigne de l'axe $\vec{b}$, i.e pour des angles $\theta = (\vec{H}, \vec{b})$ de plus en plus grands.

Commentons en détail les mesures de la figure 4.6 faites sur l'échantillon de RRR ∼5 très bien orienté. La courbe en trait plein a été mesurée pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ (aux erreurs de positionnement près) : cette mesure est sensible uniquement à la composante selon l'axe $\vec{c}$ de l'aimantation. Pour un champ magnétique croissant appliqué selon l'axe $\vec{b}$, la composante selon l'axe $\vec{c}$ de l'aimantation croît continûment jusqu'à 11,7 Tesla puis s'annule brusquement. En combinaison avec la mesure d'aimantation selon l'axe $\vec{b}$, cette mesure confirme bien les mesures de diffusion neutronique : **il y a une transition métamagnétique pour l'application d'un champ magnétique d'environ 12 Tesla selon l'axe $\vec{b}$. Cette transition correspond à la rotation soudaine des moments de l'axe $\vec{c}$ vers l'axe $\vec{b}$ pour un champ magnétique croissant.** A bas champ, la courbe en trait plein présente une hystérésis. Cette hystérésis est due à la transition du premier ordre suivante : l'alignement de tous les domaines ferromagnétiques selon l'axe $\vec{c}$ du cristal. A champ nul, l'échantillon est constitué de domaines ferromagnétiques dans les directions +/- de l'axe $\vec{c}$ du cristal. Si l'on suppose que l'alignement de l'axe d'application du champ magnétique, a priori selon l'axe $\vec{b}$, est plus proche de la direction $+\vec{c}$ que de la direction -$\vec{c}$ alors, quand on augmente le champ, les domaines vont progressivement s'aligner avec la direction $+\vec{c}$. L'échantillon est monodomaine quand tous les moments sont alignés avec la direction $+\vec{c}$: les mesures en montée et en descente de champ ont alors les mêmes valeurs. Lors de la descente du champ les moments sont tous alignés selon la direction $+\vec{c}$ puis les domaines se reforment dans les deux directions +/-$\vec{c}$. Le champ en dessous duquel il se forme des domaines magnétiques selon +/-$\vec{c}$ dépend du champ coercitif H_C du composé, du coefficient démagnétisant N de l'échantillon et de son aimantation à saturation M_S, ce champ H_δ vaut :

$$H_\delta = H_C + NM_S \tag{4.5}$$

Pour notre composé ce champ est d'environ 50 mT (avec $N \simeq 0,6$ et $M_S = 0,4\ \mu_B$/U) comme le montrent les mesures d'hystérésis faites par E.Lhotel (sur un échantillon différent) présentées sur la figure 3.11 p.58. Pour un champ appliqué incliné de 2,5° de l'axe $\vec{b}$ vers l'axe $\vec{c}$, il suffit d'un champ de moins de 1,15 Tesla pour aligner les moments avec le champ :

$$H_c = H.sin(\theta) \tag{4.6}$$

$$50\ mT \sim 1,15\ T.sin(2,5°) \tag{4.7}$$

Cette valeur estimée par le calcul est parfaitement en accord avec les mesures réalisées. La figure 4.7 présente un zoom sur les mesures de couple à bas champ : au dessus d'environ 1 Tesla le couple mesuré pour un angle θ de 2,5° rejoint les mesures de couples faites pour des angles θ plus grands.

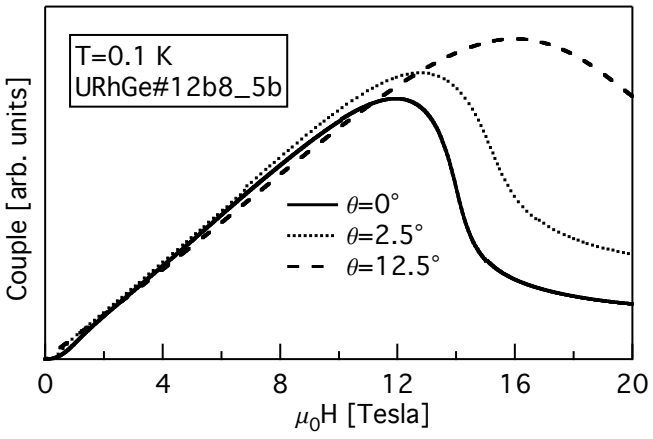

FIG. 4.5 – **Mesure de couple dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) sur l'échantillon #6 de RRR ∼20 mal orienté.** Dépendance du couple agissant sur le monocristal d'URhGe en fonction du champ magnétique appliqué à 100 mK. Les courbes présentées correspondent à des angles θ différents entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Les transitions sont beaucoup moins marquées que celles présentées sur la figure 4.6 car l'échantillon utilisé ici est moins bien orienté.

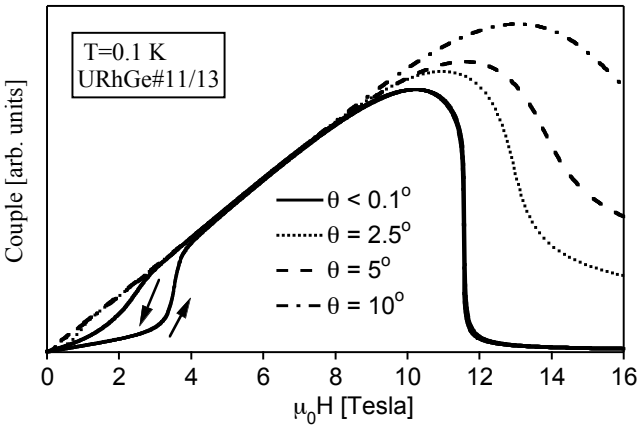

FIG. 4.6 – **Mesure de couple dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) sur l'échantillon #5 de RRR ∼5 très bien orienté.** Dépendance du couple agissant sur un monocristal d'URhGe en fonction du champ magnétique appliqué à 100 mK. Les courbes présentées correspondent à des angles θ différents entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Pour $\theta \leq 0{,}1°$ les flèches indiquent si la mesure a été faite en montant ou en descendant le champ . A champ nul l'aimantation spontanée est parallèle à l'axe $\vec{c}$. Quand θ est proche de zéro, l'hystérésis vue à bas champ est due à la structure en domaines ferromagnétiques (selon l'axe $\vec{c}$). Cette structure en domaines existe pour des faibles champs appliqués selon l'axe $\vec{c}$. Une légère rotation du champ appliqué de l'axe $\vec{b}$ vers l'axe $\vec{c}$ suffit à dépasser le champ coercitif nécessaire pour rendre l'échantillon monodomaine. Pour $\theta \leq 0{,}1°$ i.e pour un champ magnétique appliqué selon $\vec{b}$ la brusque annulation du couple à haut champ correspond à la soudaine annulation de la composante du moment selon l'axe $\vec{c}$ à 11,7 Tesla.

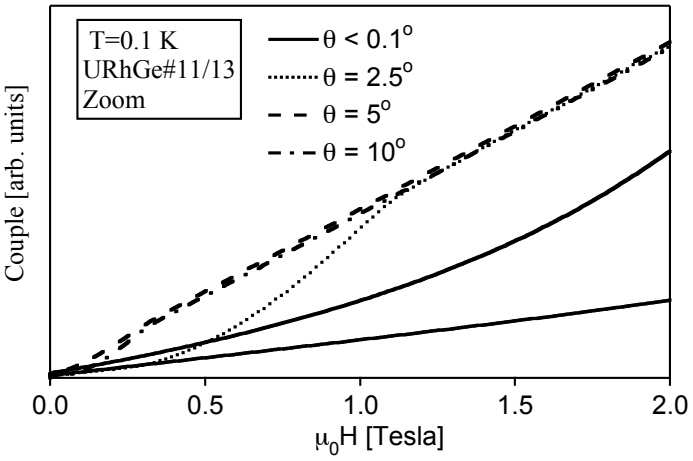

FIG. 4.7 – **Zoom sur les mesures de couple dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) sur l'échantillon #5 de RRR ∼5 très bien orienté.** Dépendance du couple agissant sur un monocristal d'URhGe en fonction du champ magnétique appliqué à 100 mK. Les courbes présentées correspondent à des angles θ différents entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Au dessus d'environ 1 Tesla le couple mesuré pour θ=2,5° rejoint les mesures de couples faites pour des angles θ plus grands.

4.2.4 Mesures de chaleur spécifique alternative

Conditions expérimentales Les mesures de chaleur spécifique alternative ont été faites au CEA Grenoble dans un cryostat à ^{4}He avec une bobine supraconductrice de 18 Tesla. Deux séries de mesures sont présentées, la première a été faite sur l'échantillon référencé #9 et la deuxième sur l'échantillon référencé #10 dans le tableau des échantillons p.11. Les deux échantillons sont des monocristaux d'URhGe de quelques milligrammes ayant une surface plane découpée perpendiculairement à l'axe cristallographique $\vec{b}$. Ils ont été collés au vernis General Electric sur des thermocouples Chromel Constantan. Le chauffage utilisé pour ces mesures est un chauffage par diode laser via une fibre optique. La température de la diode, à température ambiante, a été régulée au millikelvin près pour avoir une puissance de chauffage constante durant une mesure. Pour les mesures en fonction du champ magnétique appliqué la température a été régulée sur une capacité à l'aide d'un pont de capacité. Le champ magnétique a été appliqué selon l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Plus de détails sur le principe et l'analyse des mesures sont donnés dans le chapitre techniques expérimentales.

Analyse quantitative des mesures L'aspect délicat sur les mesures de chaleur spécifique alternative est d'avoir une idée quantitative de l'évolution de cette chaleur spécifique. Dans les bonnes conditions le signal mesuré V_{ac} est inversement proportionnel à la chaleur spécifique C, mais son intensité dépend d'une part de la puissance de chauffage P utilisée et d'autre part de la fréquence ω de mesure (cf. chapitre sur les techniques expérimentales pour plus de détails) :

$$V_{ac} \propto P/(\omega C) \tag{4.8}$$

Nous évaluons la puissance de chauffage comme proportionnelle à la mesure continue V_{dc}, en effet dans notre modèle :

$$V_{dc} \propto P/K \tag{4.9}$$

où K est la conductance thermique de l'échantillon à son environnement.
Pour chaque mesure nous connaissons la fréquence ω et la tension continue V_{dc}. Nous déduisons l'évolution semi-quantitative de la chaleur spécifique d'une mesure à l'autre en divisant chaque V_{ac} par le rapport V_{dc}/ω. Les courbes présentées ont été normalisées de cette façon.

Résultats

• **Première série de mesures** La première série de mesures est présentée sur la figure 4.8. Nous avons fait des mesures en fonction de la température à champ constant et des mesures en fonction du champ à température constante. Le panel A de la figure 4.8 présente l'évolution de la chaleur spécifique en fonction de la température pour différents champs constants. A champ nul on observe à 9,5 K le saut en chaleur spécifique à la transition ferromagnétique de URhGe. Pour des champs croissants ce saut diminue (jusqu'à disparaître). Le panel B présente l'évolution de la chaleur spécifique en fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$ des échantillons à différentes températures constantes. Pour les plus basses températures la chaleur spécifique est croissante de 0 Tesla à environ 13 Tesla puis elle diminue. Pour des températures de plus en plus élevées la pente de 0 Tesla à 13 Tesla devient moins prononcée, cette pente devient même décroissante pour

la mesure faite à 7,5 K. Au delà de 13 Tesla le comportement de la chaleur spécifique semble peu varier avec la température.

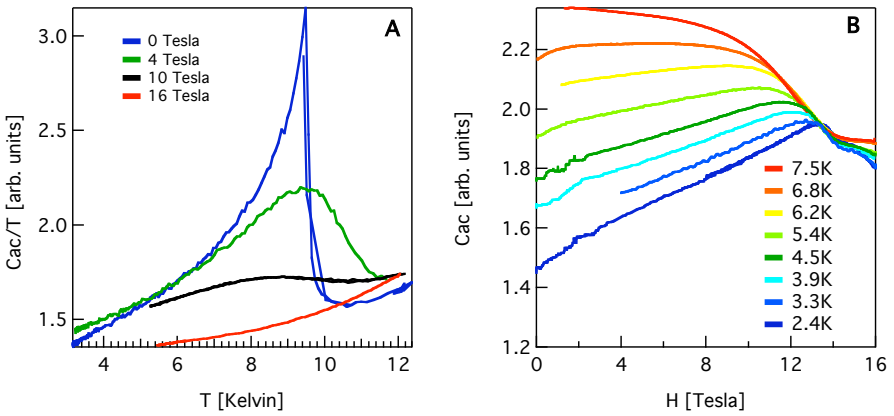

FIG. 4.8 – **Transition métamagnétique mesurée par chaleur spécifique alternative : premières mesures.** Mesure faite sur l'échantillon référencé #9 dans le tableau des échantillons p.11. Le champ est appliqué selon l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon. **Panel A** Dépendance en fonction de la température de la chaleur spécifique divisée par la température pour différents champs appliqués constants. A champ nul, le saut de chaleur spécifique à 9,5 K correspond à la transition ferromagnétique. Ce saut diminue puis disparaît pour des champs appliqués de plus en plus élevés. **Panel B** Dépendance en fonction du champ appliqué de la chaleur spécifique pour différentes températures constantes. A basses températures la chaleur spécifique croît jusqu'à environ 13 Tesla puis diminue. Pour des températures de plus en plus grandes la pente croissante de la chaleur spécifique avant 13 Tesla diminue puis devient décroissante pour la mesure à 7,5 K. Au dessus de 13 Tesla la dépendance de la chaleur spécifique en fonction du champ ne semble pas dépendre de la température.

• **Deuxième série de mesures** Nous avons effectué une deuxième série de mesures identiques. L'enjeu de ces mesures était de préciser un point délicat mis en avant par des mesures de chaleur spécifique faites par relaxation au PPMS (Physical Property Measurement System, instrument conçu par Quantum Design pouvant mesurer entre autre la chaleur spécifique.). Au PPMS, nous avons mesuré la chaleur spécifique en fonction du champ appliqué *a priori* selon l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon pour différentes températures constantes. Les mesures ont été faites entre 0 à 8 Tesla pour des températures fixes de 2 K à 7 K. Les résultats obtenus sont très différents de ceux obtenus préalablement par mesures de chaleur spécifique alternative : la chaleur spécifique est décroissante de 0 à 8 Tesla et la pente de cette décroissance semble invariante quelque soit la température de régulation. L'origine suspectée d'une telle différence serait le désalignement de l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon par rapport au champ appliqué.

Pour des champs appliqués selon l'axe $\vec{b}$ inférieurs à 11,7 Tesla le montage subit un couple qui tend à aligner le moment spontané de l'échantillon, quelque part dans le plan $(\vec{b},\vec{c})$, et le champ appliqué. Le couple serait de l'ordre de 3.10^{-4} Nm pour ces échantillons (soit 30 g appliqué au bout d'un bras de 1 mm). Conclusion si le système de mesure a une amplitude de rotation, le champ ne sera plus appliqué selon l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon.

Pour lever le doute concernant les mesures faites en chaleur spécifique alternative

nous avons refait les mesures en rigidifiant le système avec des fibres de verres comme le montre la photo du montage figure 4.10. Ces fibres de verres sont collées en quatre points au thermocouple et en quatre autres points à la rondelle de kapton. Une fois le système rigidifié il a fallu recommencer quatre fois le montage pour les mesures. Les trois premières fois l'échantillon s'était décollé et/ou le thermocouple avait cassé durant la montée en champ confirmant bien que l'hypothèse d'une rotation sous champ est plus que plausible. Finalement les collages ont tous été renforcés avec de la stycast noire (colle ultra forte). La deuxième série de mesures de chaleur spécifique alternative donne des résultats similaires à la première série comme le montre la figure 4.9. Les panels A et B de la figure 4.10 permettent de comparer les caractéristiques en fréquence des deux séries de mesures : malgré l'apport d'une nouvelle fuite thermique avec les fibres de verre les caractéristiques en fréquence sont très similaires, dans les deux cas le couplage thermique est bon : la caractéristique présente un grand plateau (pour plus de détails sur la signification de ces caractéristiques en fréquence le lecteur pourra se reporter au chapitre techniques expérimentales). Le panel C présente une mesure de chaque série : la chaleur spécifique divisée par la température en fonction du champ pour les températures constantes les plus basses : le maximum semble être au même champ, aux environs de 13 Tesla.

Conclusion il semble vraisemblable que les mesures de chaleur spécifique par relaxation faites au PPMS soient fausses, c'est-à-dire que le champ appliqué n'ait pas été aligné avec l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon tout au long de la mesure. Pour les mesures au PPMS, l'échantillon est maintenu par de la graisse à vide. Il est possible que ce maintien ne soit pas suffisant pour empêcher l'échantillon de tourner sous champ.

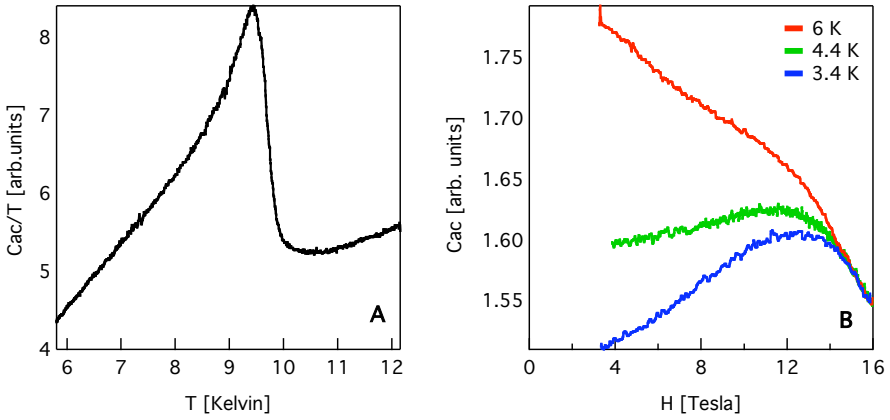

FIG. 4.9 – **Transition métamagnétique mesurée par chaleur spécifique alternative : deuxièmes mesures.** Mesure faite sur l'échantillon référencé #10 dans le tableau des échantillons p.11. Le champ est appliqué selon l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon. **Panel A** Dépendance en fonction de la température de la chaleur spécifique divisée par la température à champ nul. Le saut de chaleur spécifique à 9,5 K correspond à la transition ferromagnétique. **Panel B** Dépendance en fonction du champ appliqué de la chaleur spécifique pour différentes températures constantes. A basses températures la chaleur spécifique croît jusqu'à environ 13 Tesla puis diminue. Pour 6 K la pente de la chaleur spécifique devient décroissante avant 13 Tesla. Au dessus de 13 Tesla la dépendance de la chaleur spécifique en fonction du champ ne semble pas dépendre de la température.

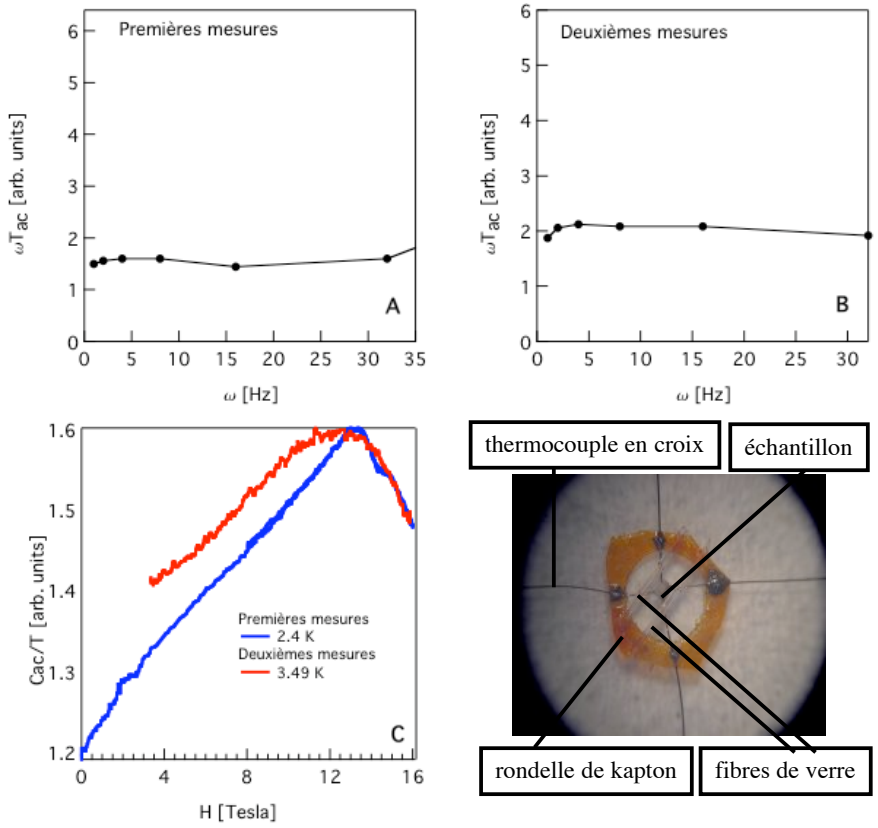

FIG. 4.10 – **Comparaison des première et deuxième séries de mesures de chaleur spécifique alternative. Panels A et B** Caractéristiques en fréquences du montage de l'échantillon. Cette caractéristique permet de tester la qualité du couplage thermique entre l'échantillon et le thermocouple. Le plateau de cette caractéristique indique d'une part que le couplage thermique est bon et d'autre part donne la plage de fréquences avec lesquelles on peut mesurer la chaleur spécifique (pour plus de détails sur la signification de ces caractéristiques en fréquence le lecteur pourra se reporter au chapitre techniques expérimentales). **Panel C** Dépendance de la chaleur spécifique divisée par la température en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Une mesure de chaque série est présentée : ces mesures sont similaires. Le point d'inflexion des courbes est aux environs de 13 Tesla. **Photo** Photo du montage utilisé. Le thermocouple est constitué d'un fil de chromel et d'un fil de constantan. Il est collé sur une rondelle de kapton avec de la stycast noire. L'échantillon est collé au vernis General Electric sur le thermocouple. Pour la deuxième série de mesure des fibres de verre ont été ajoutées pour rigidifier le système. Ces fibres sont collées au thermocouple en quatre points et à la rondelle de kapton en quatre points.

Analyse L'étude de la transition métamagnétique en chaleur spécifique montre que pour des températures inférieures à 5 K la chaleur spécifique présente un maximum aux environs de 13 Tesla appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Le champ critique H_R de la transition métamagnétique pour un champ appliqué exactement selon l'axe $\vec{b}$ est de 11,7 Tesla selon tous les autres types de mesures effectuées et présentées dans ce chapitre. Un champ critique de 13 Tesla correspond à un champ appliqué à environ 3,5° de l'axe $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) de l'échantillon d'après les mesures de résistance et de couple. Il est probable que malgré nos précautions le champ n'ait pas été parfaitement aligné avec l'axe $\vec{b}$ pour ces mesures de chaleur spécifique. **Le fait que la chaleur spécifique divisée par la température soit croissante de 0 à 13 Tesla pour des températures inférieures à 5 K nous permet de conclure que la masse effective des électrons augmente de même.** En effet on peut écrire la chaleur spécifique comme la somme d'une contribution électronique et d'une contribution due aux phonons [53] :

$$C = C_{elec} + C_{phonons} \tag{4.10}$$
$$= 1/3\pi^2 g(E_F) K_B^2 T + (12\pi^4 N_a K_B/5)(T/\Theta)^3 \tag{4.11}$$

où g(E_F) est la densité d'état au niveau de Fermi (par unité d'énergie), K_B est la constante de Boltzmann, N_a le nombre d'Avogadro et Θ la constante de Debye.
on estime (d'après des grandeurs de la référence [53]) :

$$g(E_F) \simeq 2.10^{42} \tag{4.12}$$

et d'après des mesures de phonons faites par S.Raymond et A.Huxley, la vitesse du son V_S vaut 3000 m.s^{-1} d'où avec n le nombre d'atomes par unité de volume :

$$\Theta = (\hbar V_s/K_B).(6\pi^2 n)^{1/3} \tag{4.13}$$
$$\simeq 340\ Kelvin \tag{4.14}$$

On a donc :

$$C \simeq 10^{-3}.T + 10^{-5}.T^3 \tag{4.15}$$

à basses températures c'est la contribution électronique qui domine dans la chaleur spécifique, et pour un gaz d'électrons libres à trois dimensions [53] :

$$g(E_F) \propto m \tag{4.16}$$

où m est la masse de l'électron libre. Dans un métal on considère la masse effective m* des électrons :

$$C_{elec}/T \propto m^* \tag{4.17}$$

D'après les mesures de chaleurs spécifiques alternatives (cf. figure 4.10), à 2,4 K la masse effective augmenterait de 30% de 0 Tesla à la transition magnétique à 13 Tesla . Cependant il semble important de rappeler que pour ces mesures le champ appliqué est probablement éloigné d'environ 3,5° de l'axe $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).

4.2.5 Mesures de résistance

J'ai fait des mesures de résistance à deux endroits : au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses à Grenoble (LCMI) avec I.Sheikin et A.Huxley, et au CEA Grenoble dans une bobine supraconductrice de 18 Tesla. De nombreux échantillons de qualités cristallographiques différentes ont été utilisés. Tous ces échantillons ont montré une transition métamagnétique pour un champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Le champ de cette transition semblait *a priori* varier d'un échantillon à l'autre. Après une analyse attentive des résultats il est apparu que ce changement était dû à l'orientation plus ou moins précise de l'axe $\vec{b}$ du cristal avec le champ appliqué. Les mesures de couples et de résistances, faites suite aux premières mesures de résistances donnent à posteriori une idée de cette désorientation : probablement de +/-5° pour des champs critiques mesurés de 14 Tesla. Ensuite des contrôles systématiques de l'orientation par rayons X (Laue) ont été faits.

Des études complètes de la résistance pour un champ appliqué dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) et dans le ($\vec{a}$,$\vec{b}$) ont été réalisées au LCMI grâce à un système de rotation à froid. C'est ces mesures que nous présentons dans cette section. Dans la suite nous appelons θ l'angle entre le champ appliqué $\vec{H}$ et l'axe $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) et γ l'angle entre le champ appliqué $\vec{H}$ et l'axe $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) :

$$\theta = (\vec{H}, \vec{b}) \ \in \ (\vec{b}, \vec{c}) \tag{4.18}$$

$$\gamma = (\vec{H}, \vec{b}) \ \in \ (\vec{a}, \vec{b}) \tag{4.19}$$

Avant de présenter nos résultats rappelons que : à champ nul en dessous de 9,5 K URhGe devient ferromagnétique et ses moments sont alignés selon l'axe $\vec{c}$. Des mesures d'aimantation (figure 1.4 p.16) montre que l'axe $\vec{a}$ est l'axe de difficile aimantation.

Etude dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) Nous avons effectué deux séries de mesures de résistance dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). La première série de mesures a été faite dans une dilution sur l'échantillon de RRR=50 référencé #1 dans le tableau des échantillons p.11. Pour cet échantillon le courant de mesure été appliqué parallèlement à l'axe $\vec{b}$. La deuxième série de mesures a été réalisée dans un cryostat à ^{3}He sur l'échantillon de RRR=20 référencé #8 dans le tableau des échantillons p.11. Pour cette série de mesures le courant a été appliqué le long de l'axe $\vec{a}$. Préalablement aux mesures nous avons vérifié l'orientation des deux échantillons par des Laue aux rayons X pour déterminer la désorientation du champ appliqué par rapport au plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) des échantillons. Nous avons mesuré la désorientation de l'axe $\vec{a}$ par rapport à l'axe de rotation du système de mesure. Pour les deux échantillons cette désorientation était de moins de 2° (avant montage sur la canne de mesure). La figure 4.12 montre la première série de mesures : elles ont été faites à 500 mK. La figure 4.11 montre la deuxième série de mesures faites à 500 mK (panel A), 1,3 K (panel B) et 1,8 K (panel C). Les deux séries de mesures mettent en avant une brusque augmentation de la résistance pour des champs appliqués selon des directions proches de l'axe $\vec{b}$. Cette brusque augmentation de la résistance correspond à la position de la transition métamagnétique. Nous avons suivi la position de ce pic pour des champs appliqués dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) : c'est le premier point que nous abordons. Pour un champ aligné avec l'axe $\vec{b}$ le pic dans la résistance ressemble à un delta pic. Nous proposerons une explication quand à son origine et donnons l'évolution de son amplitude en fonction de l'inclinaison du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$.

C'est le deuxième point que nous développons dans cette étude de la résistance dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).

• **Evolution de la position du champ critique H_R de la transition métamagnétique dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).** Les deux séries de mesures figures 4.11 et 4.12 montrent un pic en résistance autour d'un champ critique H_R de 11,7 Tesla pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ (i.e pour θ=0°). La position de ce pic est en accord avec les mesures de neutrons, de couple, et d'aimantation : il donne le champ de rotation H_R où a lieu la transition métamagnétique, ce champ ne dépend pas des échantillons, ni du type de mesure. Nous avons pris le champ critique H_R comme étant la position du maximum de résistance. La figure 4.13 présente l'évolution du champ critique H_R en fonction de l'angle θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$. Pour les deux séries de mesures, **l'évolution de H_R en fonction de θ est identique indépendamment de la température (en dessous de 1,8 K) ou de l'échantillon utilisé.**

• **Delta pic en résistance à la transition métamagnétique.** Le pic en résistance est particulièrement marqué à basses températures pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$: il semble être un delta pic. Les mesures de résistivité faites par F.Hardy et A.Huxley (figure 4.1) montrent ce delta pic à 50 mK dans un échantillon de RRR ∼5. Ce delta pic ressortant pour les plus basses températures pourrait correspondre à un terme de résistivité résiduelle. Il serait dû à la présence de parois de domaines magnétiques comme dans le fer [54], le nickel ou le cobalt [55, 56]. La figure 4.14 montre une étude faite sur le fer par Taylor et collaborateurs [54]. L'influence des domaines magnétiques sur les propriétés de transports ont été à l'origine de nombreuses études théoriques et expérimentales. Les effets observés et leurs origines sont encore sujet à discussion. Nous exposons ici deux effets proposés pour expliquer l'augmentation de la résistance en présence de domaines magnétiques : l'effet cyclotron et l'effet pseudo-Larmor. L'effet cyclotron ou anisotropie de la magnétorésistance [57, 5] est un effet expliquant la différence des résistances mesurées avec un courant parallèle et perpendiculaire à l'aimantation. Sous l'action de la force de Lorentz les électrons précessent autour du champ, ce qui allonge leur trajectoire totale relativement à celle parcourue parallèlement au champ électrique. Les électrons subissent alors plus de collisions avec les impuretés ou les phonons. Les électrons sont moins ralentis par cet effet si le champ et le courant sont parallèles. La magnétorésistance est donc généralement plus faible si le champ et le courant sont parallèles. Cet effet n'est probablement pas celui dont il faut tenir compte pour expliquer le delta pic dans URhGe. En effet les deux séries de mesures ont été réalisées avec des courants de mesure selon deux axes différents (les axes $\vec{a}$ et $\vec{b}$) et présentent néanmoins un comportement similaire. L'effet pseudo-Larmor [55, 56] nécessite deux ingrédients pour être expliqué. Le premier ingrédient est que la probabilité de diffusion d'un électron dépend de l'orientation de son spin électronique par rapport à l'aimantation (local). Cette probabilité est minimum quand le spin électronique est aligné avec l'aimantation. Le deuxième ingrédient concerne la vitesse de précession du spin de l'électron ou pseudo fréquence de Larmor. Elle ne serait pas assez élevée pour que les spins des électrons s'alignent avec l'aimantation locale lors de leur passage dans les parois de domaines magnétiques. Pour cet effet l'augmentation de résistance est donnée comme étant inversement proportionnelle à la taille des domaines. Dans le cas d'URhGe nous pouvons envisager qu'à la transition métamagnétique pour un champ exactement aligné selon $\vec{b}$ l'échantillon est divisé en domaines magnétiques : des domaines avec des moments selon l'axe $\vec{b}$ et d'autres avec des moments quelque part dans

le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Le delta pic dans la résistance serait dû au nombre croissant de domaines magnétiques à mesure que l'on s'approche de la transition métamagnétique.

Pour un champ appliqué parfaitement aligné avec l'axe $\vec{b}$, à H_R=11,7 T le composé serait divisé en domaines magnétiques avec des moments selon l'axe $\vec{b}$ et d'autres avec des moments quelque part dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). **La transition métamagnétique ayant lieu à H_R=11,7 T appliqué le long de l'axe $\vec{b}$ serait une transition du premier ordre : il y aurait coexistence sur environ 0,7 T de domaines magnétiques avec des moments selon l'axe $\vec{b}$ et d'autres avec des moments quelque part dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).** A mesure que le champ appliqué s'éloigne de l'axe $\vec{b}$ ce delta pic semble disparaître. Nous avons suivi l'évolution de l'amplitude du delta pic en fonction de l'angle θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$. Pour cela nous avons ajusté le delta pic par :

$$R(H) = A_\delta \frac{e^{\frac{-(H-H_R)^2}{2\sigma^2}}}{\sqrt{(2\pi\sigma^2)}} \tag{4.20}$$

Pour les ajustements nous avons fixé σ à 0.25 pour les mesures faites à 500 mK et σ à 0.3 pour les mesures faites à 1.3 K. Nous n'avons pas réussi à ajuster le delta pic sur les mesures réalisées à 1,8 K : le delta pic est noyé dans la résistance causé par des fluctuations d'origines thermiques. Le champ de rotation H_R est fixé en fonction de la position du maximum de résistance. La figure 4.15 présente les résultats de ces ajustements : la dépendance de l'amplitude du delta-pic en fonction de θ. Au delà de θ=5° le delta pic semble disparaître. **La transition métamagnétique serait du premier ordre jusqu'à θ=5° puis pour des angles supérieurs elle deviendrait alors un crossover.** Dans le chapitre suivant nous essayerons de conforter cette interprétation à l'aide d'un modèle d'énergie libre (et des mesures de couple).

Etude dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). Nous avons étudié l'échantillon#1 de RRR=50 en dilution avec un système de rotation à froid pour tourner l'échantillon par rapport au champ magnétique appliqué. Le champ a été appliqué dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) du cristal. Préalablement aux mesures nous avons vérifié l'orientation de l'échantillon par un Laue aux rayons X pour déterminer la désorientation du champ appliqué par rapport au plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) de l'échantillon. Nous avons mesuré la désorientation de l'axe $\vec{c}$ par rapport à l'axe de rotation du système. Cette désorientation était de 1° (avant montage sur la canne de mesure). La figure 4.16 montre les mesures de résistance en fonction du champ appliqué pour différents angles γ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal, le champ étant toujours dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). Ces mesures ont été faites à 500 mK. Les mesures présentées ne sont pas les mesures brutes (avec beaucoup de bruits) : elles ont subi un lissage et l'ajout d'une constante. Le lissage est une moyenne sur une fenêtre glissante de 10 points soit sur une gamme de champ de 0,022 Tesla. L'ajout de la constante a été fait de façon totalement arbitraire. Cet ajout tend à compenser un effet d'offset très important observé lors de ces mesures (cet offset dépend du champ appliqué, de l'angle de rotation...) : nous avons cherché à mettre les mesures au même niveau. La transition métamagnétique est marquée par un delta-pic dans la résistance. Pour des angles γ croissant le pic reste toujours aussi marqué, il ne s'élargit pas mais se situe à des champs de plus en plus grands. Jusqu'à 28 Tesla, champ maximum dont nous disposions, le delta-pic semble toujours présent alors que l'angle γ=($\vec{H}$,$\vec{b}$) dépasse les 60°. **La transition serait toujours du premier ordre dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$).** Nous n'avons pas fait d'ajustements sur ces mesures. Nous avons relevé le

champ critique H_R correspondant au maximum de résistance en fonction de l'angle γ. A partir de la dépendance du champ critique H_R en fonction de l'angle γ nous avons établi le diagramme de phase magnétique dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) présenté sur la figure 4.17. **Dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) quelque soit le champ appliqué selon l'axe $\vec{a}$ on a toujours un champ critique constant selon l'axe $\vec{b}$: H_R selon $\vec{b}$ vaut 11,7 T.**

Diagrammes de phase dans les plans ($\vec{a}$,$\vec{b}$) et ($\vec{b}$,$\vec{c}$) Les diagrammes de phase figure 4.17 montrent les positions des champs critiques H_R dans les plans ($\vec{b}$,$\vec{c}$) et ($\vec{b}$,$\vec{a}$). Le magnétisme du composé semble non influencé par l'application d'un champ magnétique selon l'axe $\vec{a}$ jusqu'à plus de 25 Tesla : la transition métamagnétique a toujours lieu pour un champ H_R de 11,7 Tesla appliqué selon l'axe $\vec{b}$ et demeure une transition du premier ordre. En revanche, dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) l'application d'un champ magnétique selon l'axe $\vec{c}$ affecte le champ H_R nécessaire selon l'axe $\vec{b}$ pour atteindre la transition métamagnétique. Au delà d'un champ selon l'axe $\vec{c}$ de plus de 1,2 Tesla la transition métamagnétique du premier ordre deviendrait un crossover. Cette analyse a été faite à partir de l'étude de l'amplitude du delta-pic décrite dans le paragraphe étude dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Au delà d'un angle θ=($\vec{H}$,$\vec{b}$) d'environ 5° dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) l'amplitude du delta-pic devient nulle. Ce delta-pic traduirait la diffusion des électrons par les parois de domaines magnétiques : l'échantillon présenterait alors la coexistence de deux phases, une phase avec une aimantation selon l'axe $\vec{b}$ et une phase avec une aimantation quelque part dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Ce delta-pic disparaîtrait quand ces deux phases ne coexistent plus, la transition deviendrait un crossover. Cette analyse est confortée par le modèle d'énergie libre discuté dans le chapitre suivant.

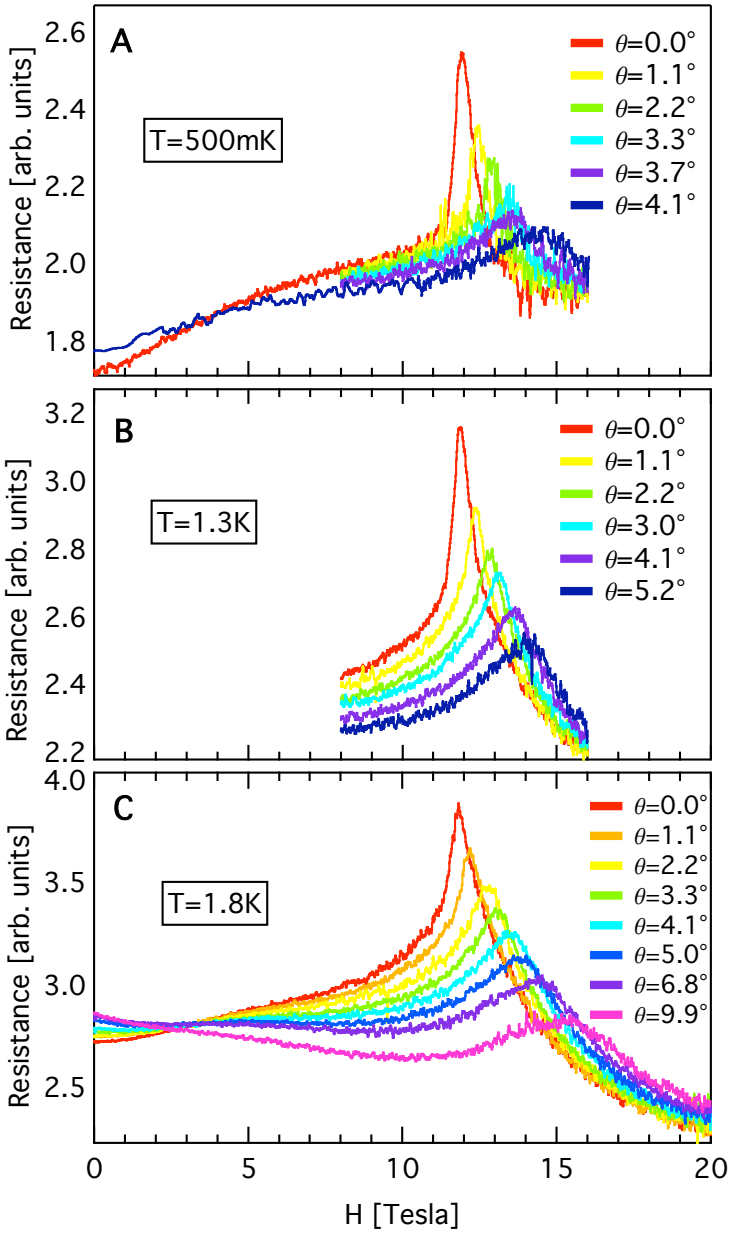

FIG. 4.11 – **Mesure de résistivité dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) sur l'échantillon#2.** Mesures faites sur l'échantillon#2 de RRR=20 dans un cryostat à ^{3}He. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différents angles θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal pour différentes températures constantes. Pour θ=0° il y a un pic très marqué à un champ H_R de 11,7 Tesla. Ce pic devient plus large quand la température augmente. Pour des angles θ croissant le pic est de moins en moins marqué et se situe à des champs de plus en plus grands. **Panel A** Mesures faites à 500 mK. **Panel B** Mesures faites à 1,3 K. **Panel C** Mesures faites à 1,8 K.

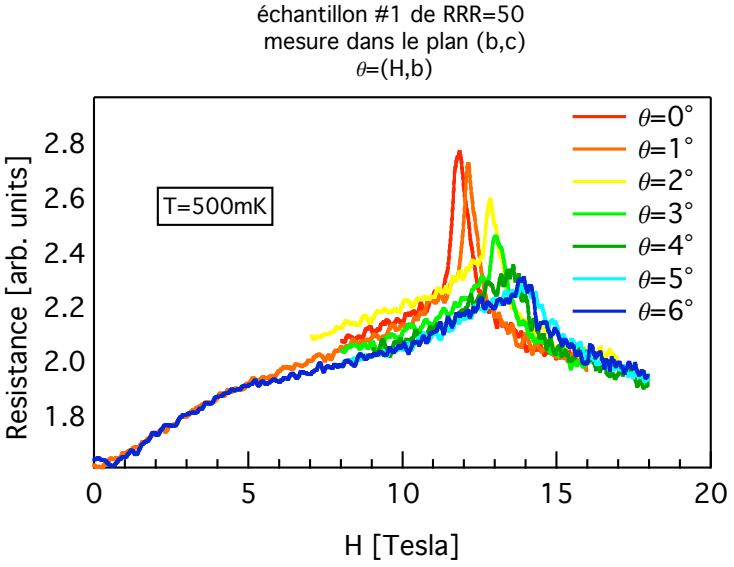

FIG. 4.12 – **Mesure de résistivité dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) sur l'échantillon#1.** Mesures faites sur l'échantillon #1 de RRR=50 à 500 mK. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différents angles θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal. Pour θ=0° il y a un pic très marqué à un champ H_R de 11,7 Tesla. Pour des angles θ croissant le pic est de moins en moins marqué et se situe à des champs de plus en plus grands.

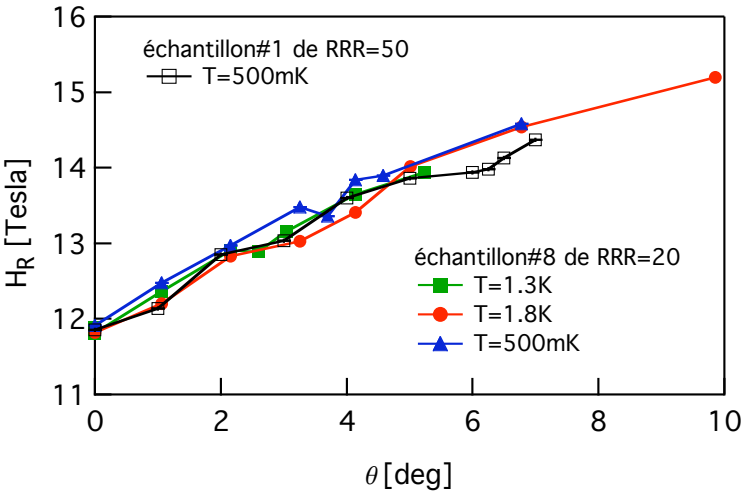

FIG. 4.13 – **Evolution de la position du champ critique H_R de la transition métamagnétique dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).** Dépendance du champ H_R en fonction de l'angle θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Pour les deux séries de mesures, indépendamment de la température et de l'échantillon, l'évolution de H_R en fonction de θ est identique.

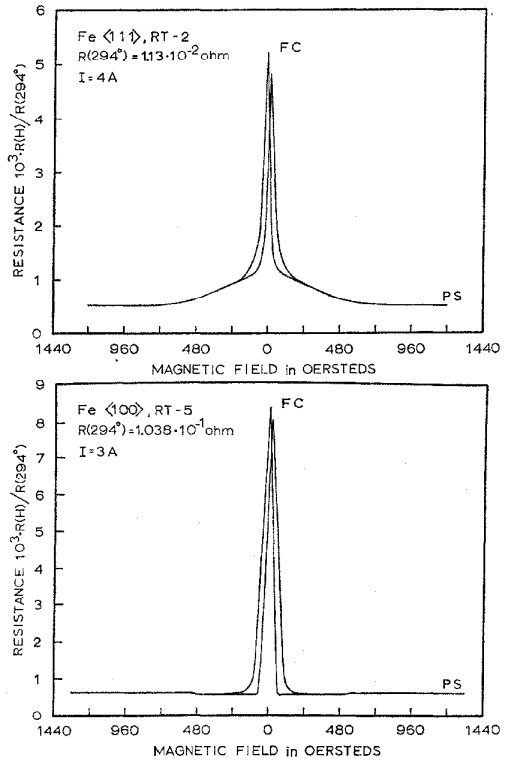

FIG. 2. Magnetoresistance hysteresis curves obtained for ⟨100⟩ and ⟨111⟩ iron whiskers.

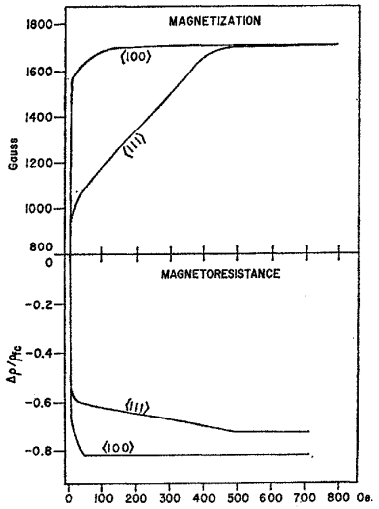

FIG. 1. Field dependence of the longitudinal magnetoresistance of iron whiskers, lower curves. Magnetization curves for bulk single crystals, upper curves.

FIG. 4.14 – **Mesures de magnétorésistance sur des échantillons de fer.** Mesures faites par Taylor et collaborateurs [54]. Le panel de gauche montre des mesures de résistance en fonction du champ appliqué : on observe un delta pic très marqué centré autour d'un champ appliqué nul. Le panel de droite compare des mesures d'aimantation aux mesures de magnétorésistance : la résistance du fer chute en même temps que l'aimantation parvient à saturation.

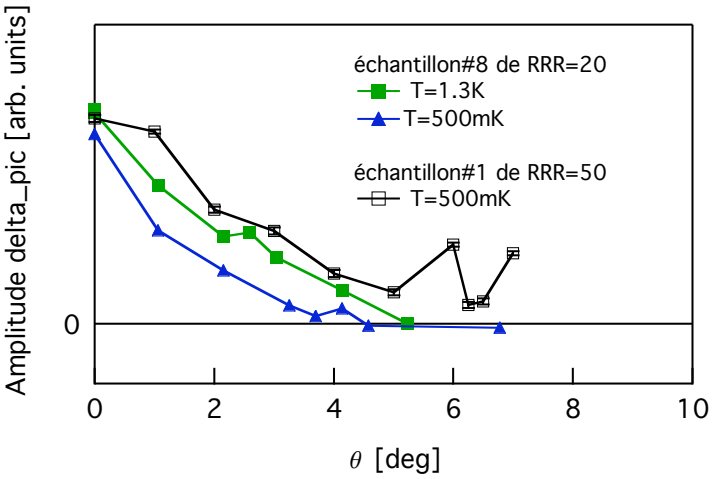

FIG. 4.15 – **Amplitude du delta-pic en fonction de θ.** Dépendance de l'amplitude du delta-pic en fonction de l'angle θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$. Au delà de θ=5° le pic semble disparaître.

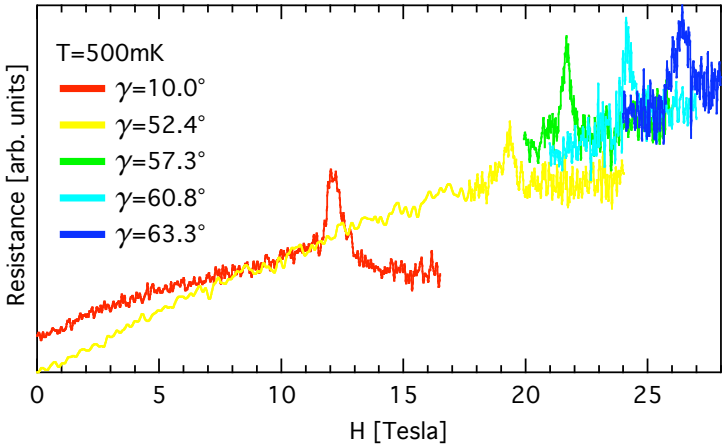

FIG. 4.16 – **Mesure de résistivité dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) à 500mK.** Mesures faites sur l'échantillon#1 de RRR=50 dans une dilution à 500 mK. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différents angles γ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal. La transition métamagnétique est marquée par un delta-pic dans la résistance. Pour des angles γ croissant le pic reste toujours aussi marqué et se situe à des champ de plus en plus grands. Les mesures présentées ne sont pas les mesures brutes : elles ont subi un lissage et l'ajout arbitraire d'une constante.

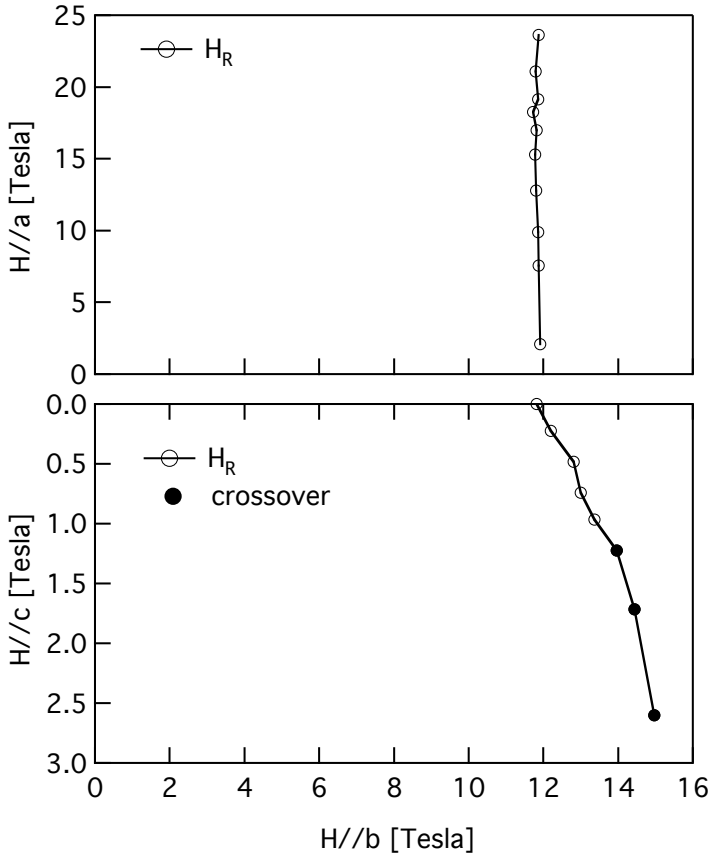

FIG. 4.17 – **Diagramme de phase de la transition métamagnétique dans les plans ($\vec{a}$,$\vec{b}$) et ($\vec{b}$,$\vec{c}$).** Ces diagrammes montrent les positions des champs critiques H_R dans les plans ($\vec{b}$,$\vec{c}$) et ($\vec{b}$,$\vec{a}$). Ces positions ont été déterminées par les mesures de résistance présentées précédemment dans cette section. Chaque position correspond au champ où la résistance est maximum à 500 mK dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{a}$) et à 1.8 K dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) il est fait une différence entre une transition du premier ordre et un crossover. Cette distinction est faite par l'étude de l'amplitude du delta-pic décrite dans le paragraphe étude dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$).

4.3 Bilan

Dans ce chapitre j'ai présenté l'étude d'une transition magnétique induite sous champ dans URhGe. Cette étude a été réalisée sur différents échantillons, à différentes températures et a mis en oeuvre cinq techniques de mesures : diffusion neutronique, aimantation, couple, chaleur spécifique, et résistance. Elle a permis d'établir les résultats résumés dans les paragraphes suivants. A champ nul, en dessous de 9,5 K URhGe devient ferromagnétique et ses moments sont alignés le long de l'axe $\vec{c}$.

Pour un champ croissant appliqué selon l'axe $\vec{b}$ les moments magnétiques s'alignent brusquement avec l'axe $\vec{b}$ pour un champ critique de rotation H_R de 11,7 Tesla. Ce point a été établi par des mesures de diffusion neutronique, sensibles aux composantes selon l'axe $\vec{c}$ et $\vec{b}$ de l'aimantation. Les mesures de couple, uniquement sensibles à la composante $\vec{c}$ des moments, et la mesure d'aimantation, uniquement sensible à la composante selon l'axe $\vec{b}$ des moments, confirment ce point. La présence d'un delta pic dans les mesures de résistance est interprétée comme la diffusion des électrons par des parois de domaines magnétiques : à la transition le système hésiterait entre deux orientations de moments. La transition pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ serait donc du premier ordre. Les mesures de chaleur spécifique alternative tendent à montrer que la masse effective des électrons augmente quand on approche de la transition. Cette augmentation n'est observée que pour les plus basses températures, en dessous d'environ 5 K, et devient de plus en plus marquée quand la température diminue.

Pour un champ appliqué dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$), l'évolution de la transition a été étudiée par couple et résistance. Les deux types de mesures montrent que la transition s'estompe et a lieu à plus haut champ à mesure que le champ appliqué s'éloigne de l'axe $\vec{b}$. La disparition du delta pic de la résistance pour un champ incliné de plus de 5° de l'axe $\vec{b}$ est interprétée comme un changement d'ordre de la transition : de premier ordre cette transition deviendrait un crossover. Ce point sera conforté par un modèle d'énergie libre paramétré avec les mesures de couples et présenté dans le chapitre suivant.

Pour un champ appliqué dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{a}$), la transition a seulement été étudiée par résistance. Quelque soit la composante du champ appliqué selon l'axe $\vec{a}$ la transition a toujours lieu pour un champ H_R de 11,7 Tesla appliqué le long de l'axe $\vec{b}$. Le delta pic observé dans la résistance ne semble pas non plus influencé par la composante du champ appliqué selon l'axe $\vec{a}$: la transition serait toujours du premier ordre dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{a}$).

Chapitre 5

Transitions et fluctuations : enjeux

5.1 Introduction

En appliquant un champ magnétique selon l'axe $\vec{b}$ des cristaux d'URhGe nous avons mis en évidence une transition métamagnétique. Au cours de cette thèse l'étude de cette transition métamagnétique induite sous champ a été approfondie (cf. chapitre précédent) et une deuxième phase supraconductrice englobant cette transition a été observée puis étudiée (cf. chapitre suivant). Cette deuxième phase supraconductrice est liée au-delà de toutes coïncidences à la transition métamagnétique. Dans ce chapitre nous montrerons comment un modèle simple d'énergie libre permet d'expliquer le diagramme de phase de la transition métamagnétique dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Nous insisterons sur l'existence probable d'un point final critique (*critical end point*) devenant un point critique quantique à température nulle dans ce diagramme de phase. Ce point critique quantique et les fluctuations qui lui sont associées pourraient jouer un rôle clé dans la supraconductivité à bas champs et à haut champs de URhGe. Afin de mettre en avant l'importance de ce point critique quantique nous donnerons au préalable quelques définitions puis nous tenterons d'expliquer l'importance d'un point critique quantique par une revue de diagrammes de phases de différents composés. Le modèle d'énergie libre permettant d'expliquer le diagramme de phase métamagnétique d'URhGe est présenté en fin de chapitre.

5.2 Définitions

Dans cette section nous nous efforcerons de définir les notions de transitions de phase du premier et du second ordre, de point critique final et de point critique quantique.

Transitions du premier et du second ordre. Une transition de phase est une transformation du système étudié provoquée par l'action d'un paramètre extérieur (température, champ magnétique, pression...). La transformation est un changement des propriétés physiques du système. Les transitions de phases ont lieu quand l'énergie libre du système n'est pas analytique (non-continue ou non dérivable par exemple) pour certaines variables thermodynamiques du système. Les transitions du premier ordre impliquent une chaleur latente : le système absorbe ou émet une quantité d'énergie fixe à la transition. Comme cette énergie ne peut pas être transférée instantanément du système à son environnement la transition de phase a lieu dans une ou plusieurs régions limitées en taille avant de s'étendre à tout le système. C'est le cas pour la transformation liquide/gaz de l'eau.

Quand on fait bouillir de l'eau, à la transition liquide/gaz, de petites bulles de vapeur d'eau se forment dans le liquide avant que toute l'eau se transforme en vapeur. Les transitions du second ordre sont des transitions dites de "phases continues", elles n'impliquent pas de chaleur latente. A la transition tout le système se transforme d'un seul coup.

Point critique final. Dans le diagramme de phase de l'eau il existe un point pour une pression et une température données telles qu'à ce point la transition liquide/gaz du premier ordre se termine. Ce point est appelé point critique. A ce point l'eau est suffisamment chaude et comprimée pour que l'on ne puisse plus distinguer le gaz du liquide. L'eau a une apparence laiteuse en raison des fluctuations de la densité du milieu, qui perturbe la lumière sur tout le spectre visible. Ce phénomène est appelé opalescence critique. D'une manière générale si une ligne du premier ordre s'arrête au milieu d'un diagramme de phase, le point terminant cette ligne est un point critique final. Autour de ce point il n'est plus possible de distinguer une phase de l'autre. Juste à ce point, la transition devient continue, la chaleur de transition s'annule, (cf. référence [58] chapitres sur le point critique et celui sur les propriétés de la matière au voisinage du point critique). Le point critique final d'une transition de premier ordre marque donc une transition du second ordre. Dans un diagramme de phase température/pression au point critique la compressibilité de la substance et sa chaleur spécifique deviennent infinies. **Les fluctuations de volume (i.e de densité) et les fluctuations de l'entropie deviennent infinies mais les fluctuations de la température et de la pression restent finies.** Au voisinage d'un point critique les corrélations entre différentes positions de la substance restent très fortes même pour des positions éloignées (cf. référence [58] p.437, chapitre sur les fluctuations au point critique).

Point critique quantique. Un point critique quantique est atteint en ajustant certains paramètres extérieurs, tels que le champ magnétique ou la pression, pour amener la température critique d'une transition de phase du second ordre au zéro absolu. Au point critique quantique la transition de phase n'est plus classique mais quantique : le passage d'un état fondamental à un autre a lieu sous l'action d'un paramètre non thermique contrôlant les fluctuations quantiques. Pour une transition de phase classique la transition est causée par l'action de la température (i.e des fluctuations thermiques associées). **Au point critique quantique les fluctuations divergent. Ces fluctuations ne sont pas thermiques et la statistique n'est plus classique car la transition a lieu à température nulle. La dynamique joue un rôle de dimension(s) spatiale(s) supplémentaire(s).** Dans la section suivante nous abordons plus longuement l'importance d'un point critique quantique.

5.3 Importance d'un point critique quantique

Ces dernières années les points critiques quantiques ont attirés à la fois l'intérêt des théoriciens et des expérimentateurs de la matière condensée [59, 60, 61, 62]. Les théories prédisent une divergence des fluctuations au point critique quantique. Expérimentalement on observe l'influence de ces fluctuations par la formation de nouveaux états englobant un point critique quantique et par des comportements non liquide de Fermi à des températures relativement élevées au dessus d'un point critique quantique . Dans cette section nous

proposons une introduction expérimentale à l'importance des points critiques quantiques : nous présentons quelques composés présentant un point critique quantique.

Avant d'aller plus loin, il est nécessaire de spécifier ce que l'on entend par comportement liquide de Fermi des métaux. Ce comportement classique des métaux est celui prédit par le modèle du liquide de Fermi. Dans ce modèle on considère au départ un ensemble d'électrons indépendants situés dans un intervalle d'énergie de largeur K_bT autour de l'énergie du niveau de Fermi. Ces électrons sont ensuite "habillés" des interactions électrons-électrons. Ces électrons habillés, appelés quasi-particules, sont alors considérés comme des électrons indépendants mais avec une masse modifiée : une masse effective m*. La dépendance de la résistivité en fonction de la température s'écrit alors :

$$\rho(T) = \rho_0 + A \times T^2 \tag{5.1}$$

où ρ_0 est la résistivité résiduelle sensible aux défauts du composé et A est proportionnelle au carré de la masse effective : $A \propto m^{*2}$. A basses températures on observe ce comportement dans les métaux "normaux". C'est pourquoi on appelle comportement non liquide de Fermi une dépendance de la résistivité en fonction de la température avec un exposant de la température autre que 2. Un comportement non liquide de Fermi signifierait que l'on ne peut plus décrire les électrons habillés comme un ensemble de particules indépendantes. Les fluctuations quantiques pourraient être à l'origine de corrélation entre électrons rendant ce modèle de liquide de Fermi inadéquate pour la description du système au dessus d'un point critique quantique. Pour une approche plus rigoureuse du modèle du liquide de Fermi le lecteur pourra se reporter aux références [63, 53].

Ceci posé, voici quelques composés ayant probablement un point critique quantique. Cette liste est bien sûr non exhaustive, elle tend uniquement à montrer l'importance des points critiques quantiques par leurs conséquences sur la formation de nouveaux états dans le diagramme de phase des composés présentés.

$CeIn_3$. La figure 5.1 présente le diagramme de phase de $CeIn_3$ établi par N. D. Mathur et collaborateurs [64]. $CeIn_3$ présente une poche supraconductrice englobant un point critique quantique. Ce point critique quantique correspond à une transition paramagnétique/antiferromagnétique du second ordre à température nulle. Au dessus de la poche supraconductrice on observe un comportement Non Liquide de Fermi (une conséquence est que la résistivité en fonction de la température ne suit plus la loi en puissance deux de la température : $\rho_0 + AT^2$). Au dessus du point critique quantique, pour une grande gamme de température, la résistivité varie en $\rho_0 + AT^{1,6}$.

$CePd_2Si_2$. La figure 5.2 présente le diagramme de phase de $CePd_2Si_2$ également établi par N. D. Mathur et collaborateurs [64]. Le diagramme de $CePd_2Si_2$ est similaire à celui de $CeIn_3$: il présente une poche supraconductrice englobant un point critique quantique. Ce point critique quantique correspond aussi à une transition paramagnétique/antiferromagnétique du second ordre à température nulle. Au dessus du point critique quantique, à 28 Kbar, pour une grande gamme de température, la résistivité varie en $\rho_0 + AT^{1,2}$.

$CeCoIn_5$ [65, 66]. La figure 5.3 est le diagramme de phase de $CeCoIn_5$ présenté par Paglione et collaborateurs dans la référence [65]. Le diagramme de $CeCoIn_5$ présente une poche supraconductrice entre environ 0 et 5 Tesla. La ligne de carrés noires correspond au maximum du terme en T^2 de la résistance. Cette ligne marque un crossover entre un

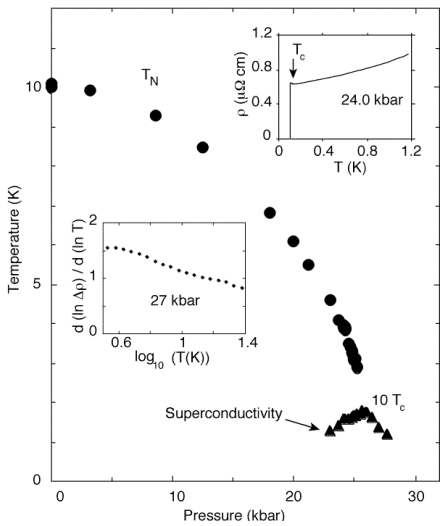

FIG. 5.1 – **Point critique quantique et supraconductivité dans $CeIn_3$.** Résultats obtenus par N. D. Mathur et collaborateurs [64]. La température de Néel diminue continûment vers zéro avec la pression. A température nulle la transition magnétique devient quantique : on atteint un point critique quantique. Une poche de supraconductivité englobe ce point critique quantique. Au dessus du point critique quantique, on observe un comportement Non Liquide de Fermi, la résistivité varie en $\rho_0 + AT^{1,6}$.

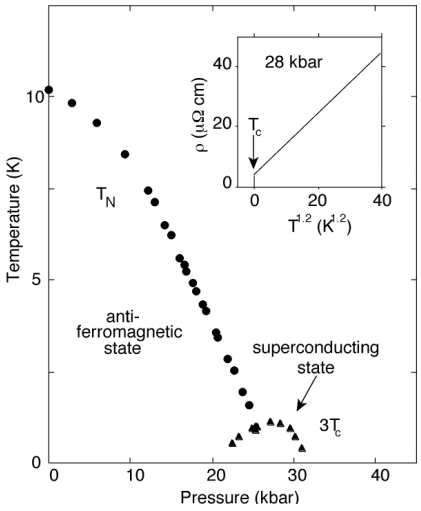

FIG. 5.2 – **Point critique quantique et supraconductivité dans $CePd_2Si_2$.** Résultats de N. D. Mathur et collaborateurs [64]. La température de Néel diminue continûment vers zéro avec la pression. A température nulle la transition magnétique devient quantique : on atteint un point critique quantique. Une poche de supraconductivité englobe ce point critique quantique. Au dessus du point critique quantique, à 28 Kbar, on observe un comportement Non Liquide de Fermi, pour une grande gamme de température, la résistivité varie en $\rho_0 + AT^{1,2}$.

comportement liquide de Fermi (noté FL) et non liquide de Fermi (noté NFL). A 5 Tesla il pourrait y avoir un point critique quantique. La ligne de ronds noirs marque une bosse dans la résistance en fonction du champ. Pour les auteurs de l'article cette ligne marque un crossover et soulignerait la position d'un changement de caractère des fluctuations de spins. Cette ligne pourrait se terminer par un point critique quantique masqué par la poche supraconductrice.

$CeCu_2Ge_2$ et $CeCu_2Si_2$ [67, 68]. La figure 5.4 représente le diagramme de phase schématique de $CeCu_2Ge_2$ et $CeCu_2Si_2$. Ces deux composés ont un comportement similaire (pour une gamme de pressions différentes). Ils ont une poche supraconductrice qui serait l'assemblage de deux poches de supraconductivité. Une poche serait située autour d'un point critique quantique transition paramagnétique/antiferromagnétique à température nulle. Cette poche, autour de la pression P_C, est notée SCI. L'autre poche notée SCII englobe la pression P_V où il y aurait un changement discontinu de valence du Cerium. Le mécanisme de formation de la supraconductivité serait différent pour chacune de ces deux poches (cf. légende de la figure).

$Sr_3Ru_20_7$ [69, 70]. La figure 5.5 présente des résultats obtenus par Grigera et collaborateurs [69]. Ils observent un comportement non liquide de Fermi au dessus d'un point critique quantique.

URu_2Si_2 [71, 72]. Le composé URu_2Si_2 présente un diagramme de phases particulièrement riche et curieux. A champ nul, en dessous de 17,5 Kelvin on observe une transition magnétique vers un ordre antiferromagnétique, avec des moments magnétiques très petits de 0,03 μ_B. La valeur des ces moments semble peu compatible avec le large saut observé en chaleur spécifique à la transition : il y aurait un autre paramètre d'ordre à considérer. On désigne la phase associée à ce paramètre d'ordre caché par *Hidden Order (HO)*. En dessous de 1,2 Kelvin URu_2Si_2 devient en plus supraconducteur. La figure 5.6 présente le diagramme de phase champ-température de URu_2Si_2 pour des champs magnétiques appliqués selon l'axe $\vec{c}$ du composé et supérieurs à 30 Tesla. La phase ordre caché (*Hidden Order (HO)*) disparaît pour un champ d'environ 35 Tesla et ré-apparaît entre environ 36 et 39 Tesla (*Reentrant Hidden Order (RHO)*). La phase ordre caché ré-entrante englobe une transition magnétique ayant lieu au champ B_M. Les auteurs de l'article [71] présentant ce diagramme de phase émettent l'hypothèse que cette phase ordre caché ré-entrante englobe un point critique final quantique (*Quantum Critical End Point (QCEP)*) .

Il existe encore de nombreux exemples établissant avec plus ou moins de certitude l'existence et la position d'un point critique quantique lié à la formation de nouveaux états comme dans $YbRh_2Si_2$ [73, 74], YbAgGe [75, 76], $CeRhIn_5$ [77]...

Cette brève revue de composés présentant un point critique quantique dans leur diagramme de phase tend à montrer l'importance que les fluctuations quantiques liées à ce point dans la formation de nouveaux états (coexistence de la supraconductivité et d'un ordre magnétique, états non liquide de Fermi...).

Dans la section suivante nous nous efforçons de démontrer que URhGe possède également un point critique quantique dans son diagramme de phase magnétique. Dans le dernier chapitre nous tenterons d'expliquer en quoi les fluctuations magnétiques quantiques sont un mécanisme d'appariement des paires de Cooper attrayant pour expliquer la supraconductivité à bas champs et à hauts champs d'URhGe.

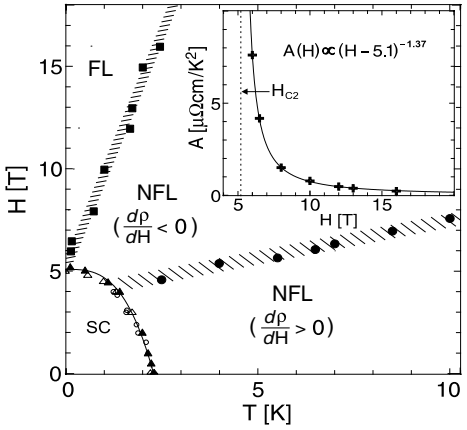

FIG. 3. *H-T* phase diagram of $CeCoIn_5$ determined from resistivity measurements, including the upper bound of T^2 resistivity (■), the position of the MR maximum (●), and H_{c2} determined by resistivity *H* and *T* sweeps (▲), which agrees with specific heat (○) and resistivity (△) measurements from Ref. [2]. The hatched lines indicate the crossover boundaries between FL and NFL (negative and positive MR) regimes, as explained in the text. The inset shows the field dependence of the quadratic coefficient *A* of $\rho(T)$ [the solid line is a fit of the data points (+) to the displayed formula].

FIG. 5.3 – **Point critique quantique et supraconductivité dans $CeCoIn_5$** Résultats obtenus par Paglione et collaborateurs [65].

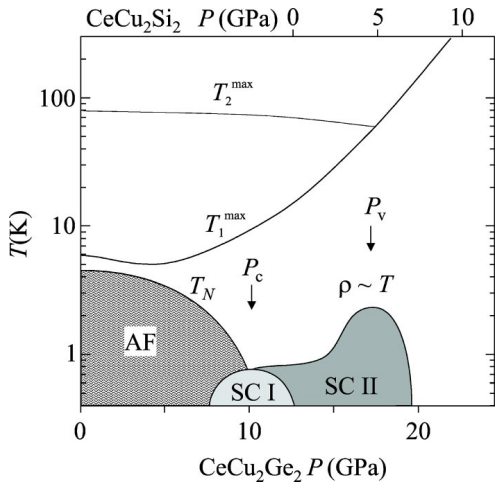

FIG. 7. Schematic $P-T$ phase diagram for $CeCu_2(Si/Ge)_2$ showing the two critical pressures P_c and P_v. At P_c, where the antiferromagnetic ordering temperature $T_N \rightarrow 0$, superconductivity in region SC I is mediated by antiferromagnetic spin fluctuations; around P_v, in region SC II, valence fluctuations provide the pairing mechanism and the resistivity is linear in temperature. The temperatures T_1^{max} and T_1^{max} merge at a pressure coinciding with P_v.

FIG. 5.4 – **Point critique quantique et supraconductivité dans $CeCu_2Ge_2$ et $CeCu_2Si_2$** Résultats obtenus par Holmes et collaborateurs [67].

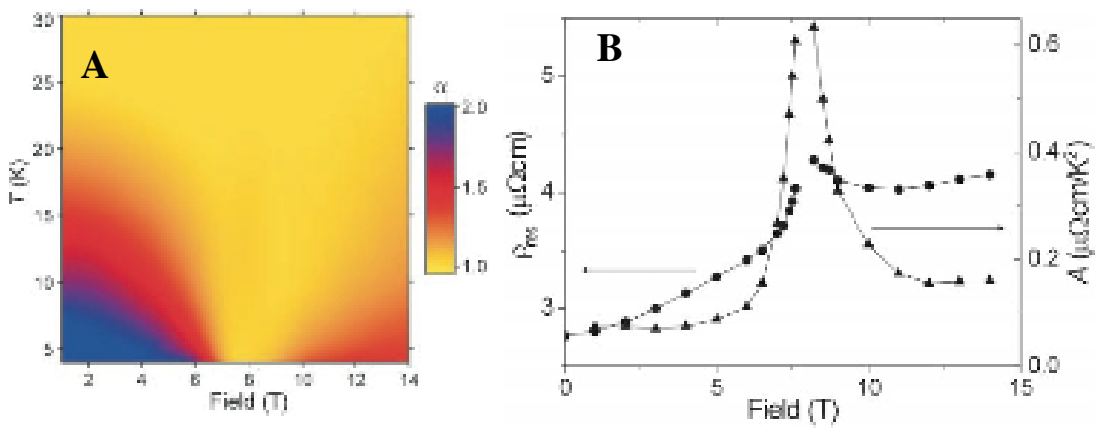

FIG. 5.5 – **Point critique quantique dans $Sr_3Ru_20_7$** Résultats de Grigera et collaborateurs [69]. **Panel A** Dépendance en fonction de la température et du champ appliqué de l'exposant α de l'expression de la résistivité : $\rho = \rho_0 + AT^\alpha$. A bas champ en dessous de 10 K la dépendance de la résistivité en fonction est quadratique comme attendu pour un liquide de Fermi. Près de la transition métamagnétique près de 7,8 Tesla, une puissance d'environ 1 est observé avant d'augmenter de nouveau à plus hauts champs. **Panel B** Dépendance de la résistivité résiduelle et du coefficient A en fonction du champ appliqué.

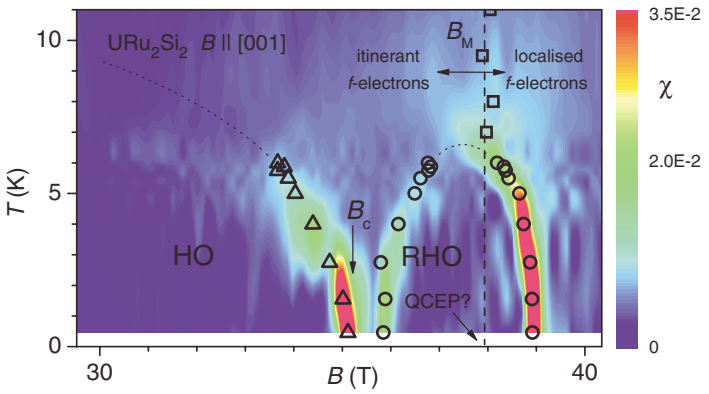

FIG. 1 (color). The $B > 30$ T versus T phase diagram of URu_2Si_2 combined with a color intensity plot of χ measured at many different temperatures. Square, triangle, and circle symbols mark B_M and transitions into and out of the HO and RHO hidden order (RHO) phases, respectively. The curved dotted lines depict the continuation of the phase boundaries revealed by specific heat and transport studies [4].

FIG. 5.6 – **Point critique quantique dans URu2Si2** Résultats obtenus par Harrison et collaborateurs [71].

5.4 URhGe : premier ordre et point critique quantique

Préalablement à cette discussion il faut rappeler que le composé URhGe cristallise dans une structure orthorhombique et qu'en dessous de 9,5 K il devient ferromagnétique avec des moments de 0,4 μ_B/URhGe alignés selon l'axe $\vec{c}$ du cristal et que l'axe $\vec{a}$ est un axe de (très) difficile aimantation.

Cette partie a pour objectif de présenter un modèle simple d'énergie libre de URhGe qui permet d'expliquer le diagramme de phase de la transition métamagnétique dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). **Au cours de cette partie nous verrons que ce diagramme de phase recèle probablement un point critique final (*critical end point*) qui correspond à température nulle à un point critique quantique (*quantum critical point*).** Le modèle présenté ici conforte les observations faites par les mesures de résistance dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) : la transition métamagnétique serait du premier ordre pour un champ appliqué exactement selon l'axe $\vec{b}$ puis elle deviendrait un crossover au delà d'une inclinaison de 5° du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$.

Le modèle : énergie, paramètres et variables. Pour le modèle nous considérons uniquement des champs appliqués dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) du cristal.

Il y a **deux paramètres : a et** ϵ.

Les **variables** dans l'expression de l'énergie libre sont :
$\theta = (\vec{H}, \vec{b})$, l'angle entre le champ appliqué $\vec{H}$ et l'axe $\vec{b}$ du cristal,
$\phi = (\vec{M}, \vec{b})$, l'angle entre le moment magnétique $\vec{M}$ et l'axe $\vec{b}$ du cristal,
H , l'amplitude (en Tesla) du champ magnétique appliqué $\vec{H}$
M(H), l'amplitude du moment, fonction du champ appliqué.

L'expression de l'énergie libre choisie est :

$$F(\phi) = \frac{a}{2}\left[cos(2\phi) + \frac{\epsilon}{2}cos(4\phi)\right] - Hcos(\theta - \phi)M(H) \tag{5.2}$$

Contraintes préalables sur les paramètres. Pour avoir un système dont l'axe de facile aimantation soit l'axe $\vec{c}$ il faut que pour un champ appliqué nul, H=0 T, l'énergie libre pour des moments alignés selon $\vec{c}$, F(ϕ=90°) soit un minimum de F(ϕ) quelque soit ϕ compris entre 0° et 90°. Ceci implique que **a soit positif** et que $\epsilon \leq \mathbf{1/2}$. L'annexe D développe ce point.

Contrainte pour avoir une transition du premier ordre induite sous champ. Il faut $\epsilon < \mathbf{-1/10}$ pour avoir une transition magnétique du premier ordre induite sous champ pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ du cristal. L'annexe D développe ce point.

Application du modèle aux mesures de couple dans le plan bc

• **Lien entre les mesures de couple et les paramètres du modèle.** Le couple agissant sur l'échantillon est donné par $\tau = -\partial f(\phi)/\partial\phi$ avec f(ϕ) définie par :

$$F(\phi, H) = a/2\left[cos(2\phi) + \epsilon/2.cos(4\phi)\right] - HMcos(\phi - \theta) \tag{5.3}$$
$$= f(\phi) - \vec{H}.\vec{M} \tag{5.4}$$

Conclusion **les mesures de couple permettent de déterminer les paramètres du modèle** :

$$\tau(\phi) = a\left[sin(2\phi) + \epsilon.sin(4\phi)\right] \tag{5.5}$$

Soit $\phi = \phi_m$ l'angle pour lequel le couple τ est maximum est vaut τ_m alors

$$\epsilon = -cos(2\phi_m)/\left[2.cos(4\phi_m)\right]$$

$$\tau_m = a\left[sin(2\phi_m) - cos(2\phi_m)tan(4\phi_m)/2\right]$$

• **A propos des mesures de couple.** Les mesures de couple ont été faites à 100 mK au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses à Grenoble. Une partie des mesures réalisées ont déjà été présentées dans la section 4.2.3 page 66. Nous avons mesuré le couple agissant sur un petit échantillon en fonction du champ magnétique appliqué pour différents angles θ entre le champ et l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon (le champ étant toujours dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$)). Avec ϕ l'angle entre l'axe $\vec{b}$ du cristal et le moment $\vec{M}$ de l'échantillon, on rappel que l'expression du couple est :

$$\tau = \vec{H} \times \vec{M} \tag{5.6}$$

$$= HM(H)sin(\phi - \theta) \tag{5.7}$$

Le principe expérimental de la mesure de couple est présenté dans le chapitre techniques expérimentales page 33. Brièvement on rappelle que pour remonter de la mesure de la capacitance à la valeur de torque il faut prendre en compte la non-linéarité de la réponse du dispositif. La formule utilisée est :

$$\Gamma = -\Delta U/(\alpha C_o + \Delta U) \tag{5.8}$$

avec Γ le couple, ΔU la tension de déséquilibre mesurée par une détection synchrone entre la capacité du système et un pont de capacités, α un coefficient de proportionnalité entre la variation de capacité et la tension mesurée, et C_o la capacité à champ nul du système. Pour l'analyse nous avons utilisé α=-6.09e-3 V/pF et C_o=0.94 pF. α a été mesurée directement. C_o a été estimé de deux façons : par un calcul direct à partir des dimensions de la capacité mesurée et par une mesure de la capacité totale puis soustraction des autres contributions estimées par le calcul. Les deux estimations concordent à 0,06 pF près. C_o=0.94 pF est une valeur moyenne. La valeur de C_o a été confirmée par l'allure obtenue du moment selon l'axe $\vec{c}$ en fonction du champ avant la transition pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$: le moment est pratiquement constant jusqu'à la transition métamagnétique. Enfin, nous avons normalisé les mesures de couple en μ_B.Tesla/URhGe. A partir des mesures à différents angles θ entre les champs appliqués et l'axe $\vec{b}$ du cristal nous avons obtenu les courbes présentées figure 5.7.

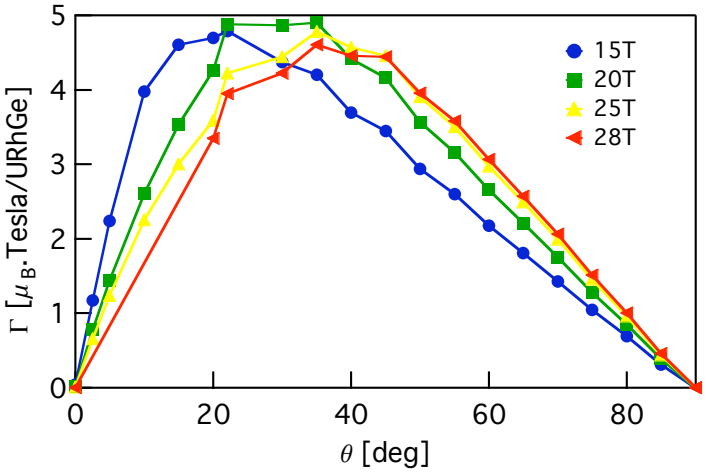

FIG. 5.7 – **Mesure de couple dans le plan bc.** Pour différentes valeurs de champ, dépendance du couple en fonction de l'angle θ, angle entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal.

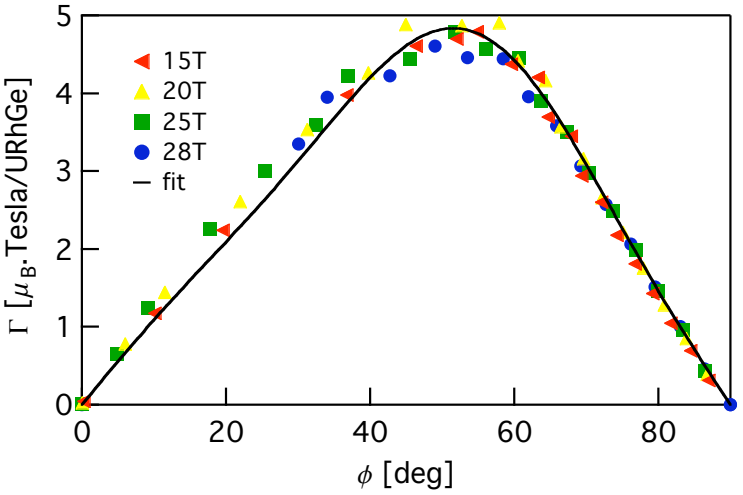

FIG. 5.8 – **Mesure de couple dans le plan bc.** Pour différentes valeurs de champ, dépendance du couple en fonction de l'angle ϕ, angle entre le moment magnétique et l'axe b du cristal. Toutes les données collapsent sur la même courbe avec un maximum à ϕ_m=51,10 deg et τ_m=4,81 μ_B.Tesla/URhGe. Le fit est réalisé à partir du modèle décrit par l'équation 5.9.

• **Détermination de la direction des moments magnétiques en fonction du champ.** Nous extrapolons les valeurs de l'aimantation à hauts champs à partir d'un plot de Arrott de mesures faites à 2,3 K pour un champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{c}$ entre 0 et 12 Tesla (il n'y a pas de transition magnétique pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{c}$). On trouve en μ_B/URhGe, M(15T)=0.59, M(20T)=0.63, M(25T)=0.66 et M(28T)=0.68. Connaissant τ, M, H et θ nous pouvons calculer l'angle $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ grâce à l'équation (5.7). On peut alors tracer le couple en fonction de l'angle ϕ, les résultats sont présentés figure 5.8. Toutes les données collapsent sur une même courbe avec un maximum à ϕ_m=51,10 deg et τ_m=4,81 μ_B.Tesla/URhGe.

• **Détermination des paramètres du modèle.** Nous déterminons les paramètres par l'ajustement de la dépendance du couple en fonction de l'angle ϕ. L'ajustement présenté sur la figure 5.8 est réalisé à partir du modèle décrit par l'équation (5.5) mais comportant des termes supplémentaires en sin(6ϕ) et sin(8ϕ) comme suit :

$$\tau(\phi) = a\left[sin(2\phi) + \epsilon sin(4\phi) + \delta sin(6\phi) + \gamma sin(8\phi)\right] \tag{5.9}$$

Le modèle décrit par l'équation (5.5) modélise moins bien la courbe. Pour l'affinement des paramètres du modèle on force $\epsilon = -0.13$ pour avoir une transition du premier ordre pour un champ aligné selon l'axe $\vec{b}$. L'affinement des paramètres donne en μ_B.Tesla/URhGe a=4.36(3) et sans unité ϵ=-0.13, δ=-0.06(1), γ=0.04(1).

• **Détermination du diagramme magnétique dans le plan bc.** Pour terminer on calcule numériquement le diagramme de phase de la transition métamagnétique à partir du modèle développé et avec les valeurs de paramètres trouvés. Pour différentes valeurs H du champ appliqué et différentes orientations θ=($\vec{H}, \vec{b}$) on calcule l'énergie libre F(ϕ) :

$$F(\phi) = a/2\left[cos(2\phi) + \epsilon/2cos(4\phi) + \delta/3cos(6\phi) + \gamma/4cos(8\phi)\right] - HM(H)cos(\theta - \phi)$$

Pour chaque jeu de variable (θ,H) on relève la position $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ du minimum de F(ϕ). La figure 5.9 présente pour différents angles θ la position ϕ du minimum de F(ϕ) en fonction du champ appliqué H. La position du minimum présente une variation brutale autour de la transition métamagnétique pour des petits angles θ. La variation s'estompe à mesure que θ augmente. En utilisant la dérivée de cette position du minimum par rapport au champ appliqué on détermine le champ $H_R(\theta)$ où la variation de la position du minimum est la plus forte. On obtient alors le diagramme de phase dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) présenté sur la figure 5.10. Sur la figure on montre la cohérence des analyses des mesures de résistivité et de couple : on obtient deux diagrammes de phases compatibles.

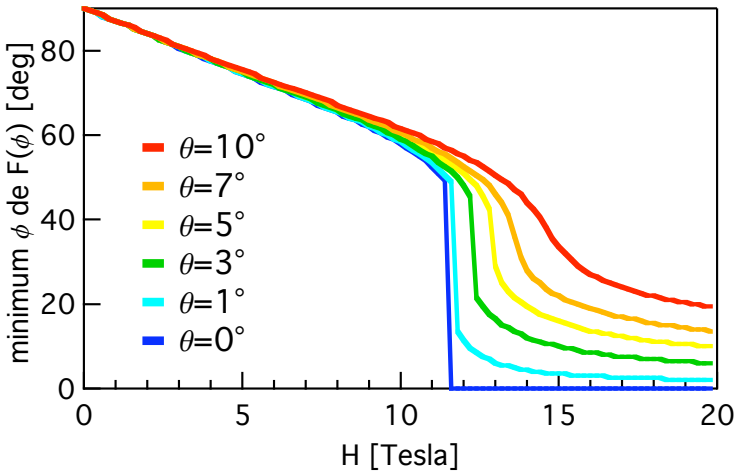

FIG. 5.9 – **Position du minimum $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ de l'énergie libre.** Pour différentes orientation θ=$(\vec{H}, \vec{b})$ du champ appliqué, dépendance de la position du minimum de l'énergie libre en fonction du champ appliqué. La position du minimum présente une variation brutale autour de la transition métamagnétique pour θ=0°. La variation de la position du minimum de l'énergie libre s'estompe à mesure que θ augmente.

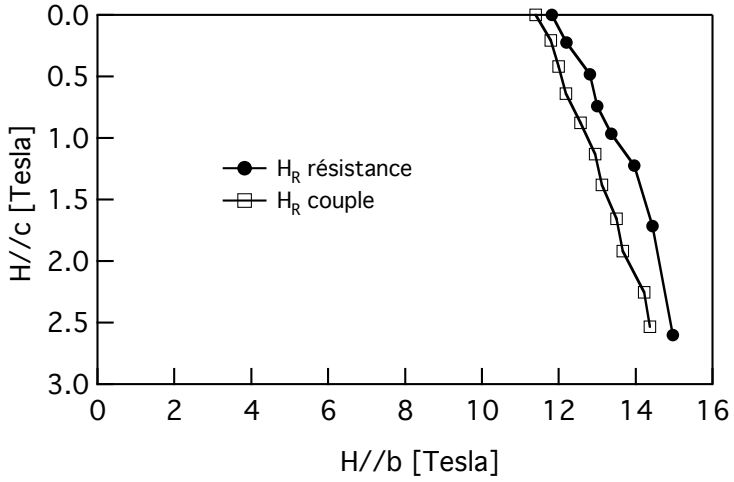

FIG. 5.10 – **Diagramme de phase de la transition métamagnétique dans le plan bc.** Position du champ critique H_R dans le plan bc. Les ronds pleins indiquent les champs critiques obtenus par mesures de résistivité. Ils correspondent pour différentes orientations du champ par rapport à l'axe b du cristal, au champ où le pic de résistance est maximum à 1,8 K. Les carrés vides montrent les champs critiques obtenus par le modèle d'énergie libre développé dans cette section et dont les paramètres ont été ajustés par les mesures de couple.

• **Transition du premier ordre**. Dans ce paragraphe nous cherchons à montrer que la transition magnétique est du premier ordre pour un champ appliqué le long de l'axe $\vec{b}$. A champ nul le minimum d'énergie correspond à des moments magnétiques alignés selon l'axe $\vec{c}$: ϕ=90°. A 15 Tesla les moments sont dirigés selon l'axe $\vec{b}$: minimum à ϕ=0°. La figure 5.11 tend à montrer ce qui se passe entre ces deux champs extrêmes. Elle présente la dépendance de l'énergie libre en fonction de l'angle $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ pour trois champs différents appliqués selon l'axe $\vec{b}$. Pour ces trois champs l'énergie libre présente deux minimums. A 11,4 Tesla il y a un minimum global pour ϕ ∼50° et un minimum local pour $\phi \sim 0°$. A 11,45 Tesla les deux minimums semblent au même niveau d'énergie. A 11,5 Tesla les deux minimums s'inversent : $\phi \sim 0°$ devient un minimum global et ϕ ∼50°devient un minimum secondaire. Il y aurait une transition du premier ordre autour de 11,45 Tesla : l'orientation des moments change brusquement autour de ce champ.

• **Crossover**. Pour un champ appliqué éloigné de l'axe $\vec{b}$ il n'y a plus de transition du premier ordre mais un crossover : la position du minimum d'énergie change continuement.

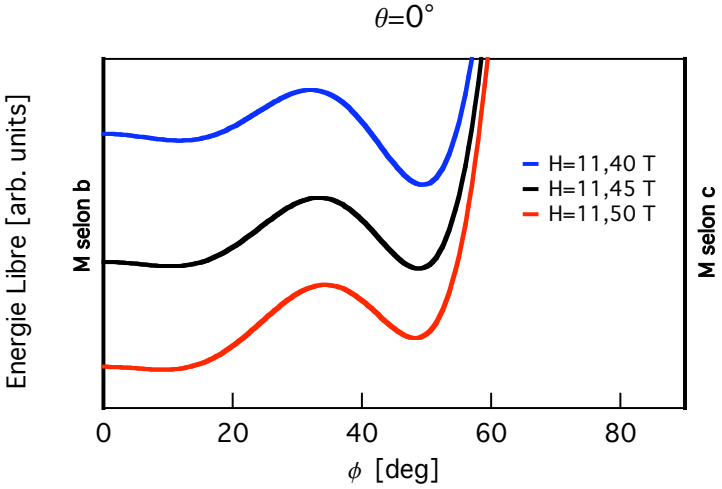

FIG. 5.11 – **Energie libre en fonction de l'orientation des moments.** Dépendance de l'énergie libre en fonction de $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$, angle entre l'axe $\vec{b}$ et la direction des moments magnétiques. Pour trois champs appliqués différents on observe la présence de deux minimums d'énergie. Ces deux minimums s'inversent autour de 11,45 Tesla (pour notre modèle) : le minimum global devient local et reciproquement. Il y aurait une transition du premier ordre autour de 11,45 Tesla.

Point critique final et quantique dans URhGe. Cette analyse tend à démontrer que **la transition métamagnétique serait du premier ordre pour un champ appliqué selon $\vec{b}$.** Cette transition serait faiblement du premier ordre : l'hystéresis serait très faible de par l'absence d'observations expérimentales. Près du champ critique H_R l'orientation du moment hésiterait entre deux directions : selon $\vec{b}$ et à environ 50° de $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Il y aurait coexistence de deux phases correspondant à ces deux orientations de moments. Concrètement cette coexistence se traduirait par la formation de domaines magnétiques qui entraînerait une augmentation importante de la résistance d'URhGe dans l'état normal (non supraconducteur). Cette analyse conforte l'interprétation des mesures de résistances. **Pour un champ appliqué suffisamment éloigné de l'axe $\vec{b}$ la transition deviendrait un crossover**. Le point où se terminerait cette ligne de transition du premier ordre est un **point critique final.** C'est un point particulier où la transition est du second ordre. Le diagramme de phase pression température de l'eau présente un point critique. A ce point les fluctuations de volume divergent au point critique. **Pour URhGe, il y aurait un point critique dans le diagramme magnétique dans le plan($\vec{b}$,$\vec{c}$). A ce point c'est les divergences de la susceptibilité qu'il faudrait considérer.** Enfin, **ce point critique final correspond à un point critique quantique à température nulle : il y aurait bien une transition de phase du second ordre à température nulle.** Nous avons observé en résistance que les positions du champ critique H_R dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) changent peu entre 500 mK et 1,8 K. Pour un champ appliqué exactement selon l'axe $\vec{b}$ il a même été établi par A.Huxley et F.Hardy (figure 4.1 p. 62) que ce champ critique H_R change par moins de 0,2 Tesla jusqu'à 50 mK. Il semble donc probable que la position du point critique quantique corresponde à celle du point critique final mis en avant par nos études.

Sans approfondir nous souhaitons signaler que la référence [78] propose une théorie aboutissant à un diagramme de phase magnétique pour des composés ferromagnétiques itinérants très proche de celui envisagé pour URhGe. Ce diagramme est présenté figure 5.12. Pour URhGe il faudrait seulement remplacer les paramètres champ et pression H et P par respectivement H_c et H_b les composantes du champ appliqué selon les axes $\vec{c}$ et $\vec{b}$.

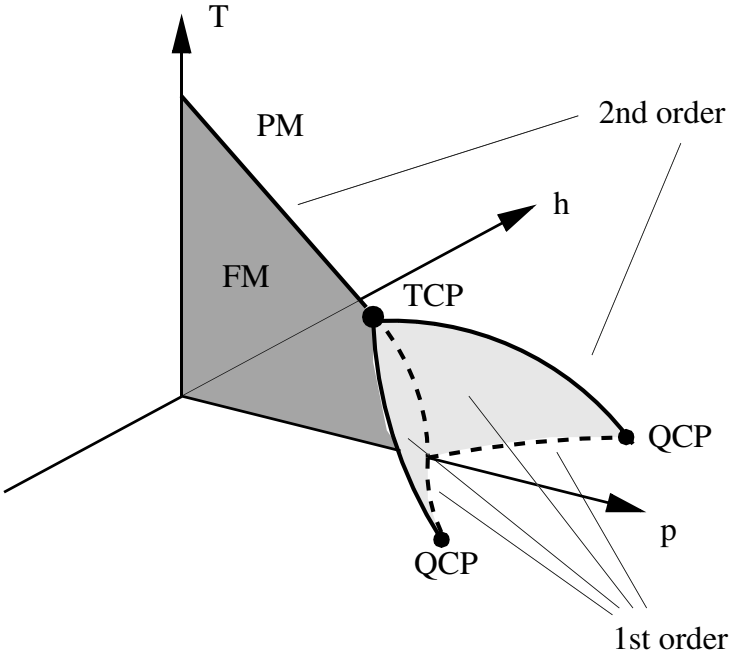

FIG. 1. Schematic phase diagram in the temperature-pressure-magnetic-field ($T - p - h$) space. Shown are the ferromagnetic (FM, dark shaded) and paramagnetic (PM) phases at $h = 0$, the tricritical point (TCP), and the two quantum critical points (QCP). Also shown are various lines of first-order (dashed lines) and second-order (solid lines) phase transitions, and the "wing" surfaces of first-order transitions (light shaded).

FIG. 5.12 – **Diagramme de phase proposé par Belitz et collaborateurs [78] pour des composés ferromagnétiques itinérants.** Ce diagramme serait similaire à celui de URhGe, il faudrait seulement remplacer les paramètres champ et pression H et P par respectivement H_c et H_b les composantes du champ appliqués selon les axes $\vec{c}$ et $\vec{b}$.

5.5 Bilan

En guise de bilan nous proposons sur la figure 5.13 un diagramme schématique de la transition magnétique dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Il a été schématisé à partir des mesures de diffusion neutronique et des mesures de résistance (cf. chapitre 4). L'épaisse ligne rouge marque la transition magnétique du premier ordre. Cette ligne se termine à un point critique final (*critical end point*) qui devient un point critique quantique (*quantum critical point*) pour une température nulle. Les fluctuations quantiques émergeant du point critique quantique pourraient jouer un rôle essentiel dans l'apparition de la supraconductivité dans URhGe. Nous discuterons de ce point plus en avant dans le chapitre suivant.

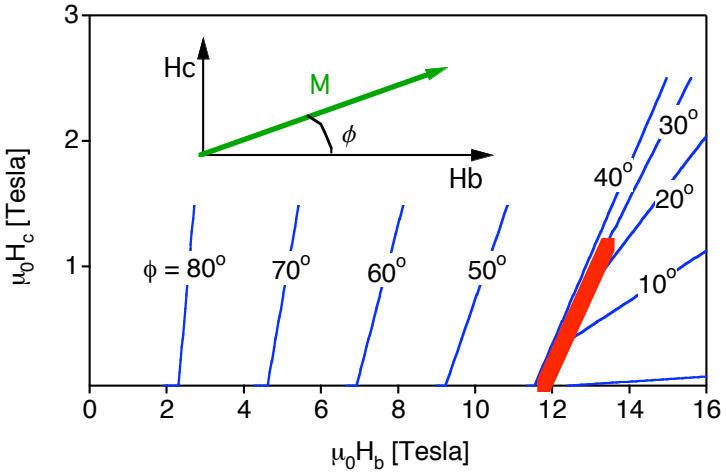

FIG. 5.13 – **Point critique quantique dans le diagramme de phase du plan bc.** Représentation de l'orientation des moments magnétiques de URhGe dans le plan ($\vec{b}, \vec{c}$). $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ est l'angle entre le moment et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Les contours bleus indiquent les valeurs constantes de l'angle ϕ. L'épaisse ligne rouge marque la transition du premier ordre autour de laquelle ϕ change discontinument. La ligne du premier ordre termine à un point critique final (*critical end point*) qui devient un point critique quantique (*quantum critical point*) pour une température nulle.

Chapitre 6

Supraconductivité hauts champs

6.1 Introduction

Dans le chapitre 4 nous avons présenté l'étude d'une transition métamagnétique de URhGe. Cette transition a lieu pour l'application d'un champ magnétique H_R de 11,7 Tesla selon l'axe $\vec{b}$. Elle correspond à la rotation soudaine des moments magnétiques de l'axe $\vec{c}$ vers l'axe $\vec{b}$ pour un champ magnétique croissant. **Au cours de cette thèse une deuxième phase supraconductrice englobant la transition métamagnétique a été découverte puis étudiée [79].** Dans ce chapitre nous présenterons l'étude de cette deuxième phase supraconductrice pour des champs appliqués selon l'axe $\vec{b}$, dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) et dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Nous discuterons du lien entre cette phase supraconductrice et la transition métamagnétique. Nous aborderons la question du mécanisme de couplage des paires de Cooper dans URhGe et tenterons de faire le lien avec le composé UGe_2 également supraconducteur et ferromagnétique. Enfin, nous étudierons la possibilité que les phases supraconductrices à bas champs et à hauts champs soient de même nature.

6.2 Résultats

Le lecteur pourrait relever que l'existence de la supraconductivité à hauts champs dans URhGe a uniquement été mise en évidence par mesure de résistance. Or comme nous l'avons déjà souligné dans le chapitre 1 la supraconductivité mesurée pourrait être due à une phase parasite présente dans l'échantillon et non pas au composé URhGe lui-même. Ce cas de figure a été observé dans $ZrZn_2$ [31]. Une façon de prouver sans contradiction possible l'aspect intrinsèque de la supraconductivité à hauts champs de URhGe serait de réaliser une mesure de chaleur spécifique de l'anomalie à la transition. Malgré l'absence d'un tel argument la supraconductivité à hauts champs de URhGe semble intrinsèque au composé pour plusieurs raisons :

(1). La ré-entrance de la supraconductivité a été observé dans différents échantillons en même temps que la supraconductivité ayant lieu à bas champs magnétiques comme le montre les figures 6.1 et 6.2. Les mesures présentées sur ces figures ont été faites au CEA Grenoble dans une bobine supraconductrice de 18 Tesla : le champ a été, *a priori*, appliqué selon l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Des études réalisées ultérieurement au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses (LCMI) avec un système de rotation in situ des échantillons ont montré à quel point l'observation

de la supraconductivité à hauts champs dépend de l'orientation du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$ (cf. la section 6.2.2 de ce chapitre). Or toutes les mesures des figures 6.1 et 6.2 sauf celle de l'échantillon#2 de RRR=20 ont été réalisées avant les études du LCMI. Pour l'échantillon#2 nous avons mesuré une désorientation entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ de l'ordre de 1,5° par un Laue aux rayons X. Sinon, *a posteriori*, d'après la position du pic en résistance observé pour des températures supérieures à 500 mK et les mesures de résistances faites au LCMI (cf. figure 4.13 p.80), le champ appliqué aurait été désaligné de 3-4° par rapport à l'axe $\vec{b}$ des échantillons. Seuls les échantillons#1 de RRR=50 et #2 de RRR=20 montre une transition complète dans l'état supraconducteur à bas champs et à hauts champs. Pour l'échantillon#1 nous avons réalisé une mesure quatre fils en continu (mesure dc). Ce type de mesure permet de s'affranchir du déphasage du signal observé pour les mesures alternatives de résistances. Le déphasage observé est dû au câblage fixe de la dilution utilisée par différents utilisateurs. La mesure continue montre sans ambiguïté que la résistance vaut zéro dans les deux poches supraconductrices à bas champs et à hauts champs.

(2). L'existence de la phase supraconductrice à hauts champs magnétiques dépend de la qualité de l'échantillon : elle n'existe que dans les échantillons ayant les plus grands RRR. Cette dépendance concorde avec celle de la phase supraconductrice à bas champs. Or le travail de Aoki et al [3] et de F.Hardy [32] sur l'homogénéité des échantillons et sur les mesures de chaleur spécifique ont prouvé l'aspect massif de la supraconductivité à bas champs de URhGe.

(3). Finalement **la réapparition de la supraconductivité à hauts champs semble liée au delà de toutes coïncidences avec la transition métamagnétique du composé.** Ce point sera développé dans ce chapitre.

Tous les autres résultats présentés dans ce chapitre sont des mesures alternatives de résistance faites sur l'échantillon #1 de RRR=50 (cf. tableau des échantillons p.11) au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses à Grenoble en collaboration avec I.Sheikin et A.Hulxey. Nous avons utilisé un système de rotation à froid. L'orientation de l'échantillon à systématiquement été vérifiée aux rayons X par Laue avant les mesures. Le courant de mesure a toujours été injecté selon l'axe $\vec{b}$ du cristal (cf. chapitre techniques expérimentales pour plus de détails sur le mode opératoire).

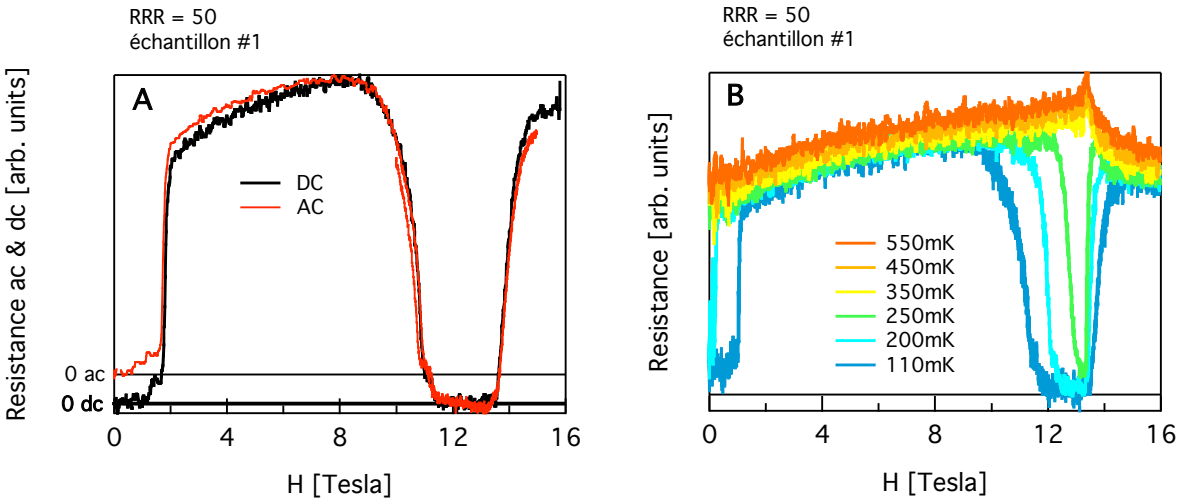

FIG. 6.1 – **Mesure de la supraconductivité ré-entrante de URhGe.** Mesures faites au CEA Grenoble sur l'échantillon#1 de RRR=50 mesuré ultérieurement au LCMI. Le champ magnétique a été appliqué selon l'axe $\vec{b}$ à plus ou moins 3-4°. **Panel A** Dépendance de la résistance en mesure alternative et continue en fonction du champ appliqué. Les zéros de résistances ac et dc sont indiqués par les lignes noires horizontales. La mesure continue, dc, vaut exactement zéro pour les deux poches de supraconductivité d'URhGe, tandis que l'on observe un déphasage du signal ac qui dépend du champ appliqué. **Panel B** Dépendance de la résistance en mesure alternative en fonction du champ appliqué pour différentes températures constantes.

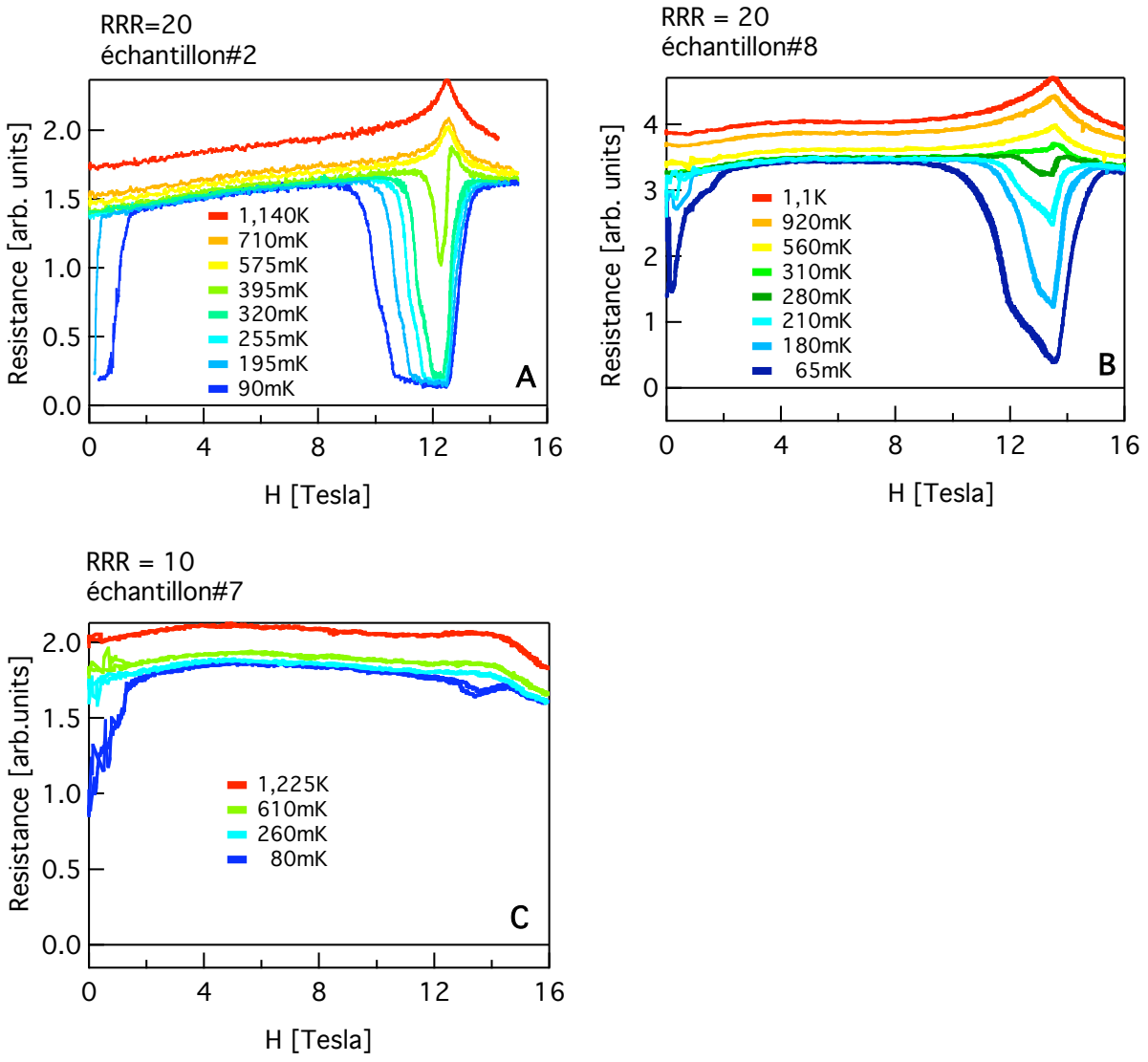

FIG. 6.2 – **Mesure de la supraconductivité ré-entrante de URhGe pour différents échantillons.** Mesures faites au CEA Grenoble. Le champ magnétique a été appliqué selon l'axe $\vec{b}$ à plus ou moins 3-4°. Les mesures de résistances sont des mesures alternatives. La ligne continue noire horizontale correspond au zéro de résistance. **Panel A** Mesure sur l'échantillon#2 de RRR=20. L'orientation du champ appliqué par rapport à l'axe $\vec{b}$ a été déterminée aux rayons X. La désorientation est de l'ordre de 1,5°. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différentes températures fixes. Cet échantillon montre une transition supraconductrice totale à bas champs et à hauts champs. **Panel B** Mesure sur l'échantillon#8 de RRR=20. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différentes températures constantes. L'échantillon ne présente pas de transition supraconductrice complète à bas champs. A hauts champs on observe un onset de supraconductivité. La transition à hauts champs est plus complète que celle à bas champs. **Panel C** Mesure sur l'échantillon#7 de RRR=10. Dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour différentes températures constantes. Le champ appliqué est très mal orienté par rapport à l'axe $\vec{b}$ de l'échantillon car on n'observe pas de pic dans la résistance à 1 K. Pour une température constante de 80 mK l'échantillon transite partiellement à bas champ et à haut champ.

6.2.1 Etude pour un champ selon b

Pour cette étude le champ magnétique a été appliqué selon l'axe $\vec{b}$ du cristal. L'axe de rotation du système par rapport à l'axe $\vec{a}$ était désorienté de moins de 2° d'après un Laue aux rayons X. La figure 6.3 montre les résultats de l'étude. Le panel A présente des mesures de résistance en fonction du champ appliqué à différentes températures fixes. Ces mesures correspondent à des coupes horizontales du panel B. Le panel B est le diagramme de phase champ-température pour des champs magnétiques appliqués selon l'axe $\vec{b}$. La couleur représente la résistance : jaune pour les plus hautes résistances, noire pour une résistance nulle. Il y a deux poches de supraconductivité : une à bas champs et une à hauts champs (zones en noires). La température maximum de la transition supraconductrice correspond au champ magnétique, H_R, champ pour lequel la résistance présente un pic étroit à plus haute température. Ce pic situe la position de la transition métamagnétique présentée dans les deux chapitres précédents.

Ces mesures mettent en évidence l'existence d'une seconde phase supraconductrice à hauts champs dans URhGe. Cette phase supraconductrice apparaît entre 8 Tesla et 13 Tesla bien au-delà du champ critique de 2 Tesla qui détruit la supraconductivité à bas champs. Cette seconde poche de supraconductivité englobe la transition métamagnétique qui a lieu pour l'application d'un champ magnétique de H_R=11,7 Tesla selon l'axe $\vec{b}$. La température supraconductrice T_S est maximum exactement à H_R. A H_R, T_S=400 mK, soit près de 50% plus élevée que la température supraconductrice maximale à bas champs où T_S=270 mK. On peut remarquer également que la phase supraconductrice à hauts champs est très asymétrique par rapport à la position de la transition métamagnétique : elle a un domaine d'existence très petit pour des champs supérieurs à H_R=11,7 Tesla.

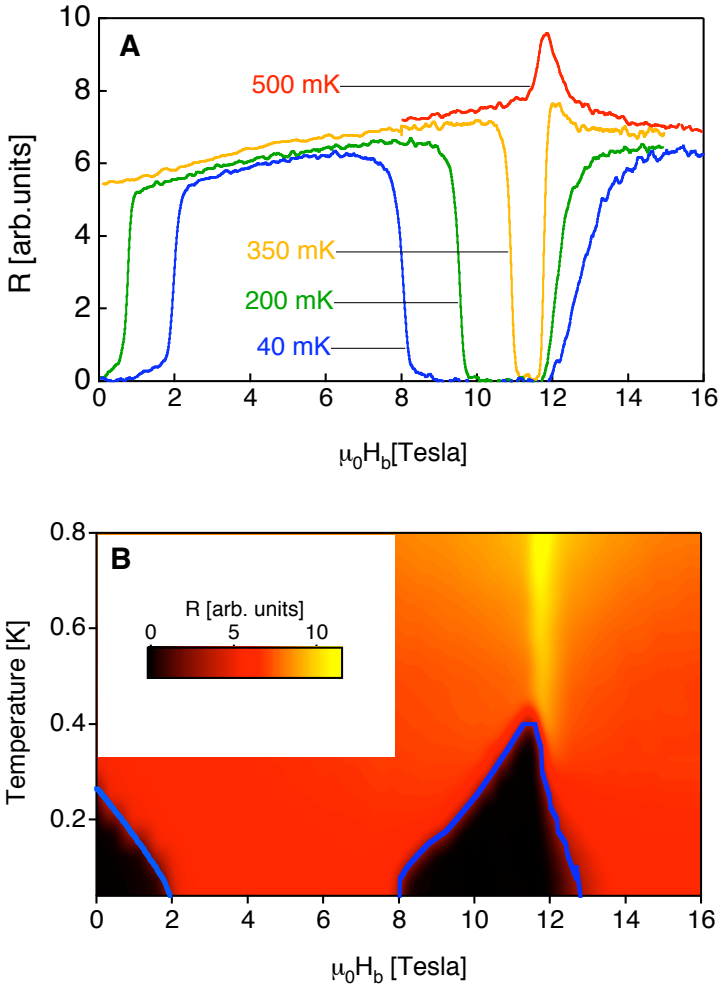

FIG. 6.3 – **Diagramme de phase champ-température pour des champs magnétiques appliqués selon l'axe $\vec{b}$. Panel A** Résistance en fonction du champ pour différentes températures. A basses températures on observe une seconde phase supraconductrice pour des champs compris entre 8 et 13 Tesla bien au delà du champ critique de 2 Tesla qui détruit la supraconductivité à bas champs. A 500 mK on observe un pic dans la résistance pour un champ H_R=11,7 Tesla. La position du pic situe la transition métamagnétique étudiée dans les deux chapitres précédents. Ces mesures correspondent à des coupes horizontales de la figure du panel B. **Panel B** La couleur représente la résistance. La supraconductivité a lieu dans les zones en noires où la résistance vaut zéro. La température maximum de la transition supraconductrice correspond au champ magnétique, H_R, champ pour lequel la résistance présente un pic étroit à plus hautes températures. Les lignes bleues montrent les positions pour lesquelles la résistance vaut la moitié de sa valeur dans l'état normal.

6.2.2 Etude dans le plan (b,c)

Pour cette étude le champ magnétique a été appliqué dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) du cristal pour différents angles θ, angle entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal. L'axe de rotation du système par rapport à l'axe $\vec{a}$ était désorienté de moins de 2° d'après un Laue aux rayons X. Le panel A de la figure 6.4 présente la dépendance de la résistance en fonction du champ pour différents angles θ pour des températures fixes de 40 mK et 500 mK. Ces mesures correspondent à des coupes diagonales du panel B (la pente de cette coupe dépend de l'angle θ) . A 500 mK, la position de la transition métamagnétique est marquée par un pic dans la résistance. Pour des angles θ croissant la transition métamagnétique a lieu pour des champs de plus en plus élevés. A 40 mK, la supraconductivité à hauts champs suit cette évolution. La poche supraconductrice devient plus petite et a lieu pour des champs de plus en plus élevés à mesure que θ croît. Le lien entre la supraconductivité induite sous champ et la transition métamagnétique est frappant sur le diagramme du panel B de cette figure 6.4. Ce diagramme résume les mesures faites à 40 mK et 500 mK en fonction du champ appliqué selon les axes $\vec{b}$ et $\vec{c}$. Le pic de résistance, mesuré à 500 mK et tracé en niveaux de verts, indique la position de la transition métamagnétique. Les endroits où la supraconductivité apparaît à 40 mK, régions en noires sur la figure, correspondent aux maximums du pic de résistance mesurés à 500 mK. La figure 6.5 fait aussi ressortir la corrélation entre la supraconductivité induite sous champ et la transition métamagnétique. Le panel A est une représentation du diagramme du phase magnétique à basses températures. La ligne rouge symbolise la transition magnétique du premier ordre qui se termine sur un point critique final (point critique quantique à température nulle). Les lignes bleues associées à une valeur de l'angle ϕ indiquent l'orientation de l'aimantation par rapport à l'axe $\vec{b}$.

Ces mesures font ressortir que la supraconductivité induite sous champ englobe la ligne de transition de premier ordre du diagramme de phase magnétique. La ligne du premier ordre se termine par un point critique final (*critical end point*) qui devient un point quantique critique (*quantum critical point*) pour une température nulle. La supraconductivité disparaît pour un champ incliné de plus de 7° par rapport à l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$), légèrement au delà du point critique final ayant lieu pour une inclinaison de 5°. On observe une asymétrie de la poche supraconductrice par rapport à la ligne de transition du premier ordre : la supraconductivité induite sous champ semble favorisée dans la partie magnétique bas champ. La supraconductivité induite sous champ a été observée auparavant dans d'autres matériaux comme par exemple dans la phase de Chevrel $Eu_{0.75}Sn_{0.25}Mo_6S_{7.2}Se_{0.8}$ [80] et plus récemment dans des supraconducteurs organiques incluants k-$(BETS)_2$ $FeBr_4$ [81] et k-$(BETS)_2FeCl_4$ [82, 83]. Ces cas peuvent être expliqués par la compensation du champ appliqué par un champ interne produit par la polarisation des ions magnétiques, conduisant à un champ effectif total finalement petit à fort champ appliqué : c'est l'effet Jaccarino-Peter [84]. Dans URhGe, la supraconductivité ré-apparaît alors que le moment est incliné de 0° à 55° par rapport au champ appliqué quand le champ est appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Il est donc peu probable qu'un champ d'échange créé par les moments magnétiques puisse annuler complètement l'effet du champ magnétique pour une telle gamme d'angles.

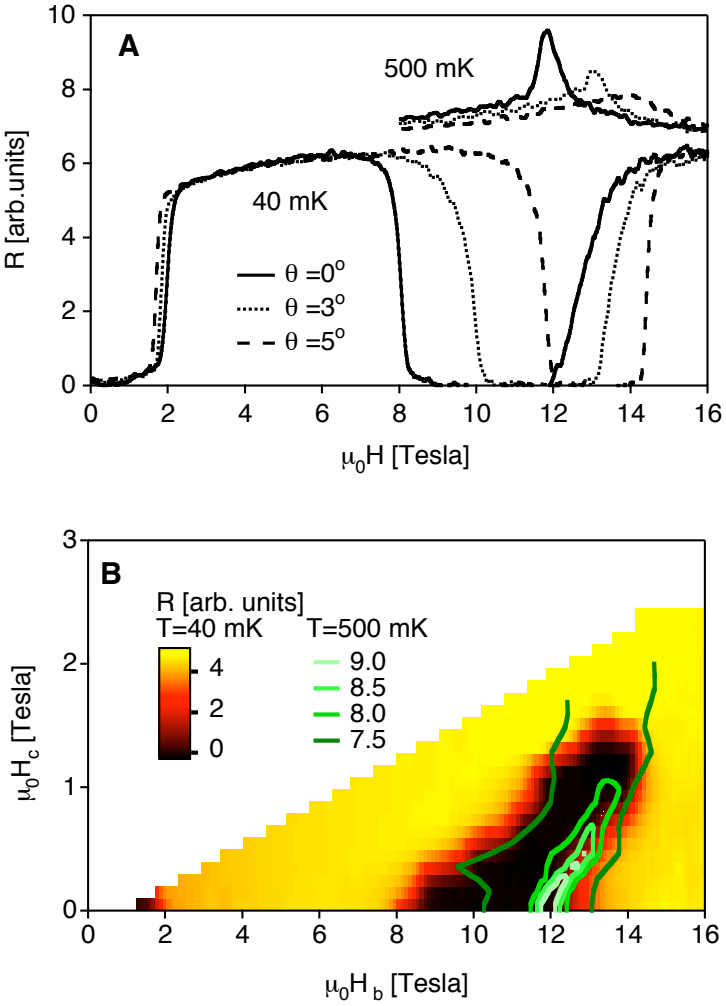

FIG. 6.4 – **Supraconductivité à hauts champs dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Panel A** Pour des températures de 40 mK et 500 mK, dépendance de la résistance en fonction du champ pour différentes angles θ entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal. Ces mesures correspondent à des coupes diagonales (avec une pente fonction de l'angle θ) de la figure du panel B. A 500 mK, la position de la transition métamagnétique est marquée par un pic dans la résistance. Pour des angles θ croissant la transition métamagnétique a lieu pour des champs de plus en plus élevés. A 40 mK, la supraconductivité à hauts champs suit cette évolution. La poche supraconductrice devient plus petite et a lieu pour des champs de plus en plus élevés à mesure que θ croît. **Panel B** Diagramme de phase de la supraconductivité et de la transition métamagnétique pour des champs dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). La résistance mesurée à 40 mK est représentée en niveaux de jaune-rouge-noir. Les régions noires correspondent à une résistance nulle et donc aux poches supraconductrices. Les contours en différents niveaux de verts décrivent la résistance à 500 mK. Le pic de résistance indique la position de la transition métamagnétique. Les endroits où la supraconductivité apparaît à basses températures correspondent aux maxima du pic mesurés à 500 mK.

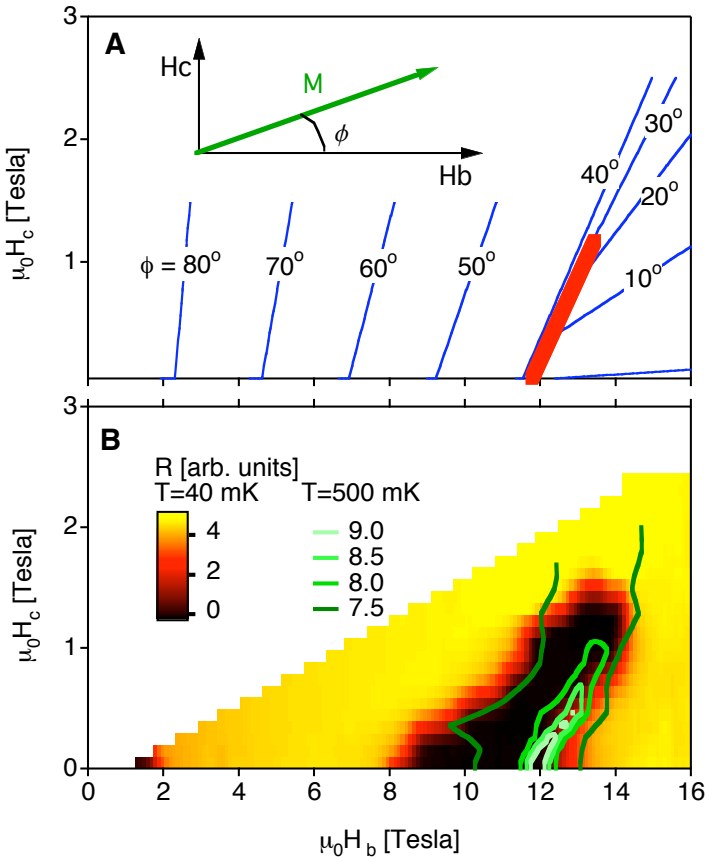

FIG. 6.5 – **Transition métamagnétique et supraconductivité dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Panel A** Représentation du diagramme du phase magnétique à basses températures. ϕ est l'angle entre le moment et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). La figure en haut du panel illustre cette définition. Les contours bleus indiquent les valeurs constantes de l'angle ϕ. L'épaisse ligne rouge marque la transition du premier ordre autour de laquelle ϕ change discontinument. La ligne du premier ordre termine à un point critique final (*critical end point*) qui devient un point quantique critique (*quantum critical point*) pour une température nulle. **Panel B** Diagramme de phase de la supraconductivité et de la transition métamagnétique pour des champs dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). La résistance mesurée à 40 mK est représentée en niveaux de jaune-rouge-noir. Les régions noires correspondent aux poches supraconductrices. Les contours en différents niveaux de verts décrivent la résistance à 500 mK.

6.2.3 Etude dans le plan (a,b)

Pour les mesures présentées figures 6.6, 6.7 et 6.8 le champ appliqué a été incliné dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). L'axe de rotation du système par rapport à l'axe $\vec{c}$ était désorienté de 1° d'après un Laue aux rayons X. L'angle γ est l'angle entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$. Le panel A de la figure 6.6 définit les trois champs critiques h1, h2 et h3 et le champ H_R. Les trois champs critiques sont les champs correspondant aux résistances valant la moitié de la résistance de l'état normal pour les mesures faites à 45 mK. Le champ H_R donne la position du maximum du pic de résistance mesuré à 500 mK. Le panel B de la figure 6.6 montre l'évolution de ces quatre champs en fonction de l'angle γ. Le champ H_R a une dépendance en $1/\cos(\gamma)$. Le champ critique h1 a une évolution continue en fonction de γ. Cette évolution a été ajustée (cf. chapitre supraconductivité à bas champs). Les champs critiques h2 et h3 se referment autour du champ H_R pour un champ appliqué de plus en plus près de l'axe $\vec{a}$. Ces deux champs critiques semblent diverger quand le champ magnétique tend à être aligné avec l'axe $\vec{a}$. **La supraconductivité induite sous champ a été observée pour des champs appliqués allant jusqu'à 28 Tesla, champ maximum de notre dispositif expérimental.** La figure 6.7 montre le diagramme de phase de la transition métamagnétique et de la supraconductivité induite sous champ dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). La transition métamagnétique ne semble pas influencée par l'augmentation du champ appliqué selon l'axe $\vec{a}$. La composante selon l'axe $\vec{b}$ du champ H_R qui marque la position de la transition métamagnétique est constante et vaut 11,7 Tesla. La transition métamagnétique serait du premier ordre dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) pour tous les champs étudiés (car le pic de résistance demeure un delta pic quelque soit le champ appliqué, cf. discussion dans le chapitre 4). **La poche de supraconductivité englobe la transition métamagnétique. Son domaine d'existence en champ diminue à mesure que l'on augmente le champ appliqué. Il se referme autour de la ligne de transition du premier ordre de la transition métamagnétique.** La figure 6.8 présente l'évolution en température de la résistance en fonction du champ appliqué pour un angle γ de 61°. A γ=61° la température critique de la supraconductivité à hauts champs vaut environ 200 mK. **La température supraconductrice ne semble pas beaucoup changer quand on éloigne le champ appliqué de l'axe $\vec{b}$ dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$).**

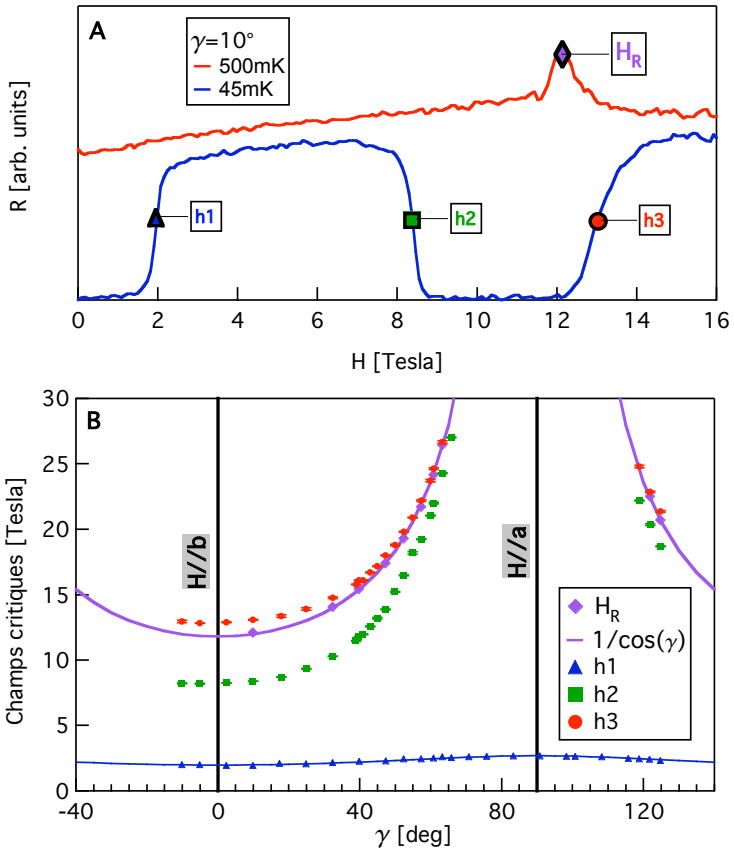

FIG. 6.6 – **Etude de la supraconductivité pour des champs appliqués dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$)** γ est l'angle entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$ du cristal dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$). **Panel A** Pour γ=10°, dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué pour 45 mK et 500 mK. A 500 mK la résistance présente un pic pour un champ appliqué H_R. A 45 mK on observe deux poches supraconductrices : une poche à bas champ et une poche à hauts champs. On définit trois champs critiques h1, h2 et h3 pour les valeurs de résistance à 50% de la résistance de l'état normal. **Panel B** Dépendance des trois champs critiques et du champ H_R en fonctions de γ. La variation de h1 est continue et ajustée (cf. chapitre sur la supraconductivité à bas champs). Le champ H_R de la transition métamagnétique a un comportement en $1/\cos(\gamma)$. Les champs critiques h2 et h3 semblent diverger quand le champ magnétique tend à être aligné avec l'axe $\vec{a}$. La supraconductivité induite sous champ a été observée pour des champs appliqués allant jusqu'à 28 Tesla, champ maximum de notre dispositif expérimental.

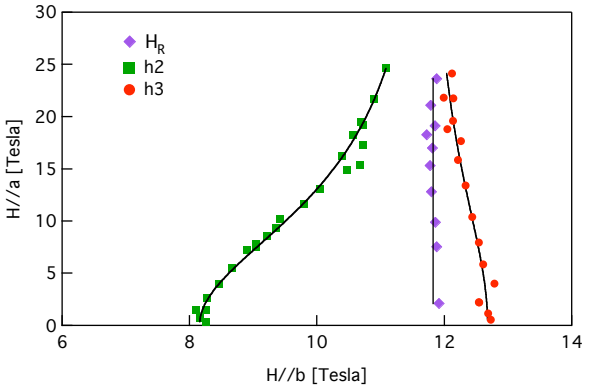

FIG. 6.7 – **Diagramme de phase dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) de la supraconductivité induite sous champ.** La composante selon l'axe $\vec{b}$ du champ H_R qui marque la position de la transition métamagnétique est constante et vaut 11,7 Tesla. La transition métamagnétique de URhGe ne semble pas être modifié par l'application d'un champ selon l'axe $\vec{a}$. Le champ H_R décrit la position d'une transition du premier ordre. La supraconductivité induite sous champ a été observée pour des champs appliqués allant jusqu'à 28 Tesla, champ maximum de notre dispositif expérimental. La poche de supraconductivité englobe la transition métamagnétique. Son domaine d'existence en champ diminue à mesure que l'on augmente le champ appliqué. Il se referme autour de la ligne de transition du premier ordre de la transition métamagnétique.

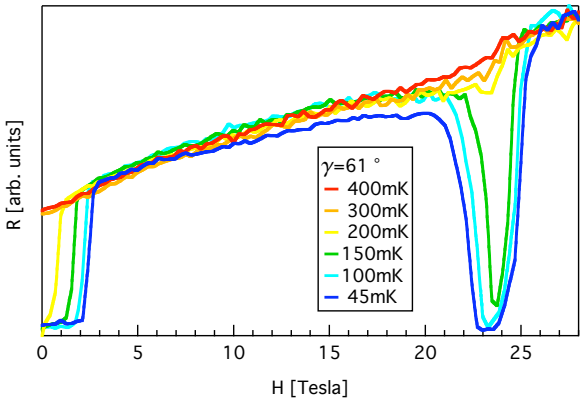

FIG. 6.8 – **Etude de la dépendance en température de la supraconductivité pour γ=61° dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$).** Pour un angle γ=61° entre le champ appliqué et l'axe $\vec{b}$, dépendance de la résistance en fonction du champ appliqué à différentes températures. A 45 mK entre 23 et 24 Tesla on observe la ré-entrance de la supraconductivité. A γ=61° la température critique de la supraconductivité à hauts champs vaut environ 200 mK.

6.3 Discussion

6.3.1 Supraconductivité hauts champs et transition métamagnétique.

Les études expérimentales de la transition métamagnétique et de la supraconductivité induite sous champ présentées dans cette thèse mettent en évidence un lien, au delà de toutes coïncidences, entre la transition métamagnétique et la supraconductivité induite sous champ. La figure 6.9 résume ces études. Elle présente un diagramme de phase schématique de la supraconductivité à hauts champs et de la transition métamagnétique dans les plans ($\vec{a}$,$\vec{b}$) et ($\vec{b}$,$\vec{c}$) du composé URhGe. La ligne rouge symbolise la transition métamagnétique du premier ordre. Cette ligne se termine par un point critique quantique : rond bleu dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) (cf. chapitre précédent). Comme l'augmentation du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{a}$ n'influence pas la position de la transition métamagnétique selon $\vec{b}$, nous pouvons supposer qu'il en est de même pour la position du point critique quantique : il y aurait une ligne de points critiques quantiques, symbolisée par une ligne bleue sur la figure. Le cylindre bleu transparent symbolise les fluctuations magnétiques quantiques émergeant de la ligne de points critiques quantiques. La supraconductivité induite sous champ, région jaune sur la figure, englobe la transition métamagnétique. Dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) la région supraconductrice induite sous champ diminue à mesure que le champ appliqué s'éloigne de l'axe $\vec{b}$. Pour un champ appliqué incliné de plus de 7° de l'axe $\vec{b}$, la supraconductivité disparaît. Dans ce plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) le point critique quantique aurait lieu pour un champ appliqué incliné de 5° par rapport à l'axe $\vec{b}$. Dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{b}$) la région supraconductrice diminue autour de la ligne de premier ordre de la transition métamagnétique à mesure que le champ appliqué selon $\vec{a}$ augmente. Nous n'avons pas observé la disparition de la supraconductivité dans ce plan pour des champs appliqués allant jusqu'à 28 Tesla.

Les fluctuations magnétiques quantiques émergeant de la ligne des points critiques quantiques joueraient les rôles des phonons de la théorie BCS. C'est ce point que nous allons développer dans les sections suivantes.

6.3.2 Mécanisme d'appariement des paires de Cooper

Malgré les enrichissements apportés à la théorie BCS de 1957 certains états supraconducteurs ne peuvent pas être expliqués par un mécanisme de couplage dû uniquement aux phonons. L'interaction électron-électron véhiculée par les phonons serait beaucoup trop isotrope pour expliquer des paramètres d'ordre supraconducteur anisotrope de type d, p [30]. Par analogie avec le mécanisme responsable de la phase superfluide de l^3He [85, 86], nombres de théories proposent une interaction attractive véhiculée par des fluctuations magnétiques [30, 51, 49, 50, 87].

Mécanisme proposé par D.Fay et J.Appel. D.Fay et J.Appel [30] ont dès 1980 envisagé la formation d'un état supraconducteur p-wave spins parallèles dans un ferromagnétique itinérant. Les mêmes électrons seraient responsables de la supraconductivité et de l'ordre ferromagnétique. L'interaction attractive entre électrons serait véhiculée par des fluctuations longitudinales de l'aimantation émergeant de la transition ferromagnétique. Dans leur modèle la force de couplage λ^L diverge quand on approche la transition ferromagnétique. Ils expliquent que cette divergence de λ^L n'implique pas une divergence

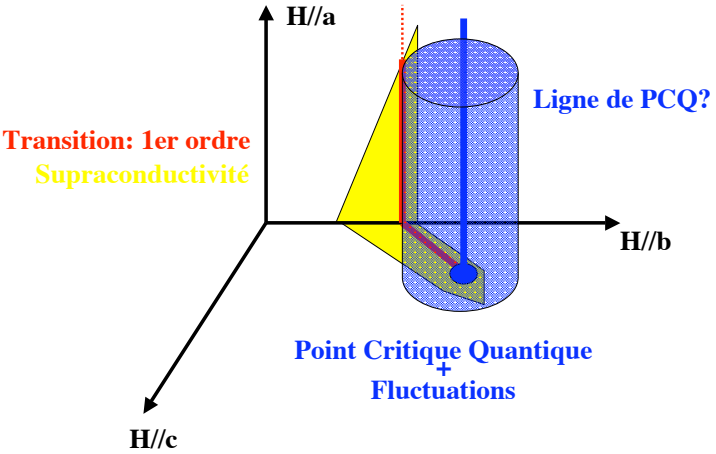

FIG. 6.9 – **Diagramme de phase schématique de la supraconductivité à hauts champs et de la transition métamagnétique.** Comportements schématiques de la supraconductivité à hauts champs et de la transition métamagnétique en fonction des champs appliqués selon les trois directions cristallographiques $\vec{a}$,$\vec{b}$ et $\vec{c}$. La ligne rouge symbolise la transition métamagnétique du premier ordre. Cette ligne se termine par un point critique quantique : rond bleu. Comme l'augmentation du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{a}$ n'influence pas la position de la transition métamagnétique selon $\vec{b}$, nous pouvons supposer qu'il en est de même pour la position du point critique quantique : il y aurait une ligne de points critiques quantiques, symbolisée par une ligne bleue sur la figure. Le cylindre bleu transparent représente les fluctuations quantiques émergeant de ces points critiques quantiques. La supraconductivité induite sous champ, région en jaune sur la figure, englobe la transition du premier ordre.

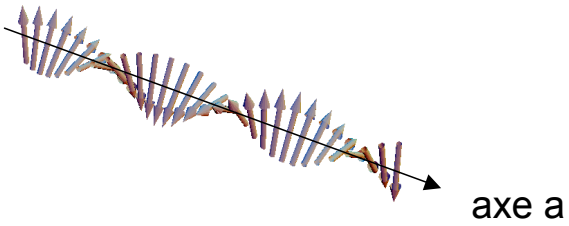

FIG. 6.10 – **Direction de propagation des fluctuations magnétiques dans URhGe.** La flèche indique la direction de l'axe $\vec{a}$. Les moments magnétiques symbolisés par les petites flèches se réorientent en restant dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$). Les moments restent dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) car l'axe $\vec{a}$ est l'axe de difficile aimantation. Les fluctuations magnétiques se propagent selon la direction $\vec{a}$. Le vecteur de propagation de la fluctuation représenté est égal à l'inverse de la distance entre deux moments orientés de la même façon.

de la température critique supraconductrice T_S car il faut alors prendre en compte la rénormalisation de la masse des électrons m^* : la masse effective des électrons diverge également à l'approche de la transition ferromagnétique. Grossièrement :

$$m^*/m_0 = 1 + \lambda^L + \lambda^T + \lambda^{phonons} \tag{6.1}$$

où m_0 est la masse intrinsèque des électrons, les lettres L et T indiquent que les grandeurs sont associées respectivement aux fluctuations longitudinales ou aux fluctuations transverses, de même la notation *phonons* indiquent que la contribution provient des phonons. La température critique s'exprime par :

$$K_b T_S = \Omega e^{-m^*/(m_0.\lambda^L)} \tag{6.2}$$

où Ω est une énergie de coupure du potentiel à une constante multiplicative près. Cette énergie Ω tombe à zéro à la transition ferromagnétique. Il semblerait (dans l'article de D.Fay et J.Appel) que cette expression soit une bonne approximation dans le cas d'un couplage fort.

L'augmentation de la masse effective des électrons est liée à l'augmentation des fluctuations [87]. L'apparition de ces fluctuations augmentent les nombres de canaux disponibles pour les interactions électron-électron, habituellement les seules fluctuations considérées sont les phonons. Ces fluctuations habillent les électrons : leur masse effective augmente. Certaines de ces fluctuations peuvent véhiculer une interaction attractive entre électrons et donc être à l'origine de la formation des paires de Cooper.

Cas de URhGe Dans la théorie développé par D.Fay et J.Appel comme dans celles du même genre développées ultérieurement par R.Roussev et collaborateurs [51] et par T.R.Kirkpatrick et collaborateurs [49, 50] les fluctuations magnétiques envisagées divergent à la transition : la transition est du second ordre. Dans URhGe la transition ferromagnétique semble loin des poches supraconductrices pour que les fluctuations émergeant de cette transition puissent être responsables du mécanisme d'appariement des paires de Cooper. En revanche **les fluctuations magnétiques émergeant du point critique quantique pourraient jouer un rôle clé dans le mécanisme d'appariement des paires de Cooper.**

Par analogie avec les branches de phonons, à l'approche du point critique quantique il apparaît de nombreuses branches de canaux d'interactions. Le nombre de ces canaux disponibles est maximum au point quantique critique. Dans URhGe ces canaux seraient des fluctuations magnétiques. Pour minimiser l'entropie du système il faut former de nouveaux états cohérents comme une phase supraconductrice.

Les fluctuations magnétiques émergeant de la transition métamagnétique se propagent vraisemblablement selon la direction $\vec{a}$ du cristal. En effet, la transition métamagnétique correspond à un changement de direction des moments magnétiques dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) et l'axe $\vec{a}$ est un axe de difficile aimantation dans URhGe (cf. figure 1.4 p.16). Il est donc probable que les moments tournent autour de l'axe $\vec{a}$ pour se réorienter comme le propose la figure 6.10.

Comparaison avec UGe_2. UGe_2 [38, 39] présente aussi la coexistence d'une phase supraconductrice et d'un ordre ferromagnétique. Il cristallise dans une structure similaire à celle d'URhGe : orthorhombique et dont les plus proches voisins d'uranium forment une chaîne en zigzag le long de l'axe $\vec{a}$ dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{c}$). Le panel A de la figure 6.11 rappelle son diagramme de phase. Sous pression UGe_2 subit une transition magnétique : ses moments, alignés selon l'axe $\vec{a}$ changent brutalement d'amplitude. Dans la phase supraconductrice cette transition magnétique est du premier ordre. En dessous de 5 kbar cette transition devient un crossover. Au bout de la ligne de transition du premier ordre se trouve un point critique final. On peut envisager d'amener ce point à température nulle en utilisant un autre paramètre (comme le champ magnétique par exemple) et obtenir un point critique quantique. Tout comme dans URhGe, les fluctuations magnétiques émergeant du point quantique critique joueraient un rôle clé dans le mécanisme d'appariement des paires de Cooper. Il est probable que les fluctuations magnétiques se propagent selon $\vec{a}$. Ces fluctuations seraient longitudinales par rapport à la direction des moments magnétiques. UGe_2 montre aussi une sorte de réentrance de la supraconductivité sous champ comme le montre le panel B de la figure 6.11 : la température supraconductrice semble renforcée aux voisinages de la transition magnétique.

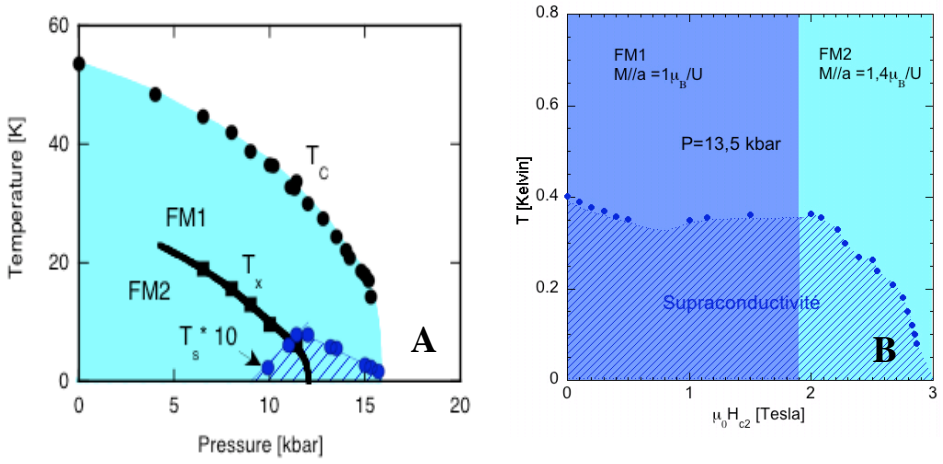

FIG. 6.11 – **Diagramme de phase du supraconducteur ferromagnétique UGe_2.** Mesures faites par A.Huxley et collaborateurs [38, 39]. **Panel A** Diagramme de phase pression-température. En dessous de T_c UGe_2 devient ferromagnétique : domaine bleu sur la figure. UGe_2 a une transition magnétique entre deux phases ferromagnétiques FM1 et FM2. Le moment magnétique reste aligné selon l'axe de facile aimantation $\vec{a}$ mais change d'amplitude : m_{FM1}=1 μ_B/U et m_{FM2}=1,4μ_B/U. A basse pression la transition est un crossover. La transition devient du premier ordre au dessus d'environ 5 kbar : ligne solide des températures T_x. La phase supraconductrice d'UGe_2 englobe cette transition, zone hachurée, délimitée par la température critique supraconductrice T_S. **Panel B** Dépendance de la température supraconductrice en fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{a}$ à 13,5 kbar. La température supraconductrice semble renforcée au voisinage de la transition magnétique.

6.3.3 Lien avec la supraconductivité à bas champs ?

Dans cette section nous discutons du lien entre les poches supraconductrices observées dans URhGe. Nous cherchons à montrer par un modèle très rudimentaire que ces deux poches sont de même nature.

Dans l'esprit des théories du type de D.Fay et J.Appel nous présentons une analyse des mesures de résistance faites pour un champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Dans un premier temps ces mesures permettent d'évaluer le renforcement de la masse effective des électrons en fonction du champ appliqué. Cette masse effective semble maximum à la transition métamagnétique. Dans un deuxième temps la dépendance de cette masse effective en fonction du champ appliqué permet d'estimer l'évolution de la force de couplage. Avec cette force de couplage on estime la température supraconductrice maximum en fonction du champ. Cette température supraconductrice correspond à une température à champ nul : nous n'avons pas pris en compte l'effet de la limitation dû au champ appliqué. Dans un troisième temps on évalue la limite orbitale à la température nulle. Enfin on calcul la dépendance de la température supraconductrice "réelle" en fonction du champ appliqué : on obtient un diagramme de phase température contre champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ similaire à celui mesuré. Les fluctuations magnétiques émergeant du point critique quantique semble être impliqué dans le mécanisme responsable de la supraconductivité à bas champs et à hauts champs de URhGe. Les deux phases supraconductrices seraient de même nature, i.e avec un paramètre d'ordre et un mécanisme à l'origine de la supraconductivité identiques. Le paramètre d'ordre à considérer serait celui décrit dans le chapitre sur la supraconductivité bas champs : $K_a| \uparrow\uparrow>$.

Dépendance de la masse effective en fonction du champ appliqué. Pour trouver cette dépendance nous avons supposé que la résistivité de URhGe en fonction de la température se comporte de la façon suivante :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^n \tag{6.3}$$

où ρ_0 est la résistivité résiduelle, T la température, n un exposant critique (qui vaut 2 dans le cas d'un liquide de Fermi) et A un coefficient qui dépendrait de la masse effective de la façon suivante (comme dans un liquide de Fermi) :

$$A \propto m^{*2} \tag{6.4}$$

Dans le chapitre 4 nous avons présenté des mesures de résistance en fonction du champ magnétique appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Pour remonter au coefficient A de l'expression de la résistivité nous utilisons les mesures faites par A.Huxley sur un échantillon de RRR=5 à 50 mK et 500 mK en procédant de la façon suivante :

$$m* \propto \sqrt{\rho(500mK) - \rho(50mK)} \tag{6.5}$$

La figure 6.12 montre l'évolution estimé de la masse effective en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Pour remonter à la valeur absolue de la masse effective nous avons procédé de la façon suivante. A champ nul on connaît la valeur de la chaleur spécifique divisée par la température quand la température tend vers zéro : γ=160 mJ.mol^{-1}.K^{-2}. Cette valeur permet d'évaluer très grossièrement la masse effective à champ nul par la relation [53] :

$$m^*/m_0 = \gamma^{mes}/\gamma^{libre} \tag{6.6}$$

où m_0 est la masse de l'électron libre et γ^{libre} libre s'exprime en J.mol^{-1}.K^{-2} par :

$$\gamma^{libre} = \pi^2 N_a K_B^2 z/(2E_F) \tag{6.7}$$

où N_a est le nombre d'Avogadro, K_B la constante de Boltzmann, z la valence de l'élément, et E_F l'énergie de Fermi. Pour URhGe on évalue très grossièrement z à 3 ou 4 et E_F/K_B à environ 10^5 Kelvin (ordre de grandeur trouvé dans la référence [53]). On trouve :

$$m^*(H=0)/m_0 \sim 100 \tag{6.8}$$

Cette normalisation n'a pas d'influence sur la suite du modèle. Pour la suite du modèle nous considérerons la masse effective comme étant la courbe noire de la figure 6.12, ajustée à partir des mesures et lissée.

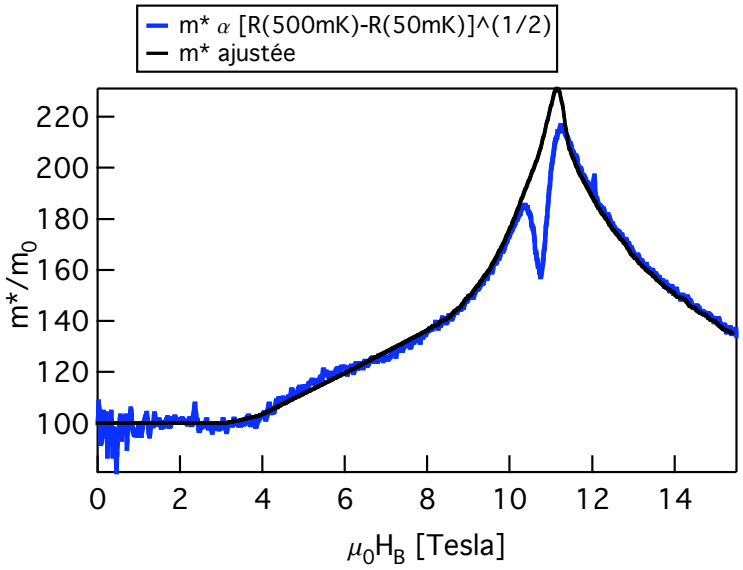

FIG. 6.12 – **Renforcement de la masse effective à l'approche de la transition métamagnétique.** Dépendance de la masse effective en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$.

Force de couplage et température supraconductrice maximum. Dans l'esprit des théories du type de D.Fay et J.Appel [30, 51, 49, 50, 87] la force de couplage λ est proportionnelle au renforcement de la masse effective causée par les fluctuations responsables de l'appariement des paires de Cooper :

$$\lambda(H) = g\Delta m^*(H) \tag{6.9}$$

où g est une constante qui traduit l'efficacité du potentiel d'interaction crée par les fluctuations.

Ici nous considérons que toutes les fluctuations d'origines magnétiques augmentant la masse effective sont à l'origine d'une interaction attractive entre électrons. Nous appelons m_0^* la masse effective non affectée par les fluctuations magnétiques.

$$\Delta m^*(H) \quad = \quad m^*(H) - m_0^* \tag{6.10}$$

Toujours dans l'esprit de la théorie de D.Fay et J.Appel, la température supraconductrice $T_S^0(H)$ "à champ nul" s'écrit :

$$K_b T_S^0(H) = \Omega exp[-\frac{m^*(H)}{g\Delta m^*(H)}] \tag{6.11}$$

$$\tag{6.12}$$

Pour expliquer nos résultats il faut prendre comme masse effective non affectée par les fluctuations magnétiques m_0^* une valeur de $50m_0$, g=1 et $\Omega = 0,15\ meV$. On obtient la dépendance de la température supraconductrice T_S^0 "à champ nul" en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$ donnée par la figure 6.13. Par "à champ nul" nous signifions que nous n'avons pas encore pris en compte l'effet du champ appliqué. Contrairement au modèle de Fay et Appel, l'énergie Ω est prise constante comme proposée dans la référence [51].

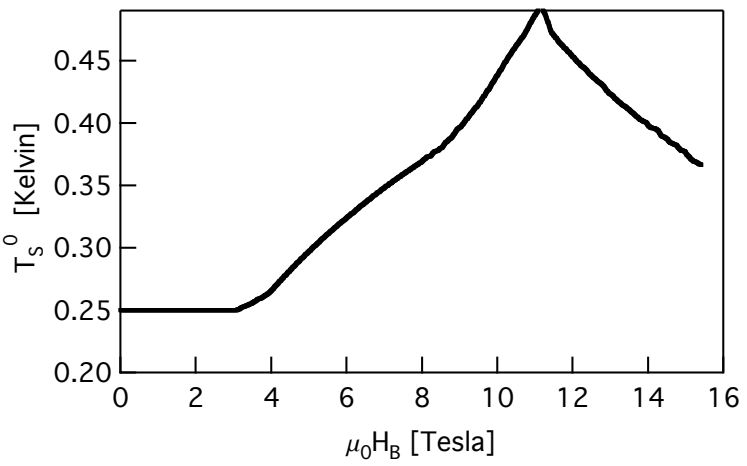

FIG. 6.13 – **Dépendance de la température supraconductrice maximum en fonction du champ appliqué selon l'axe b.** A champ nul on trouve une température critique de 230 mK. Les mesures donnent une température critique de 270 mK.

Limite orbitale. Près de la température supraconductrice, à l'aide d'un développement Ginzburg-Landau on peut montrer que la limite orbitale $H_{c2}(T)$ est telle que :

$$H_{c2}(T) \propto m^{*2} T_s^0 (T_s^0 - T) \tag{6.13}$$

A température nulle on a :

$$H_{c2}(T) \propto m^{*2} T_s^{0\,2} \tag{6.14}$$

Cette expression n'est pas rigoureuse car le développement Ginzburg-Landau n'est pas valable loin de la température supraconductrice. Cependant nous avons calculé numériquement la limite orbitale de type BCS à température nulle d'après une expression analytique [44] pour quelques valeurs (la démarche du calcul est décrite dans chapitre 3 p.46) et les résultats obtenus différent d'une constante multiplicative de 1,38 (ils sont inférieurs).

Nous obtenons la dépendance de la limite orbitale $H_{c2}(T = 0)$ en fonction du champ appliqué présenté sur la figure 6.14. Nous avons normalisé la courbe en un seul point, par rapport aux mesures faites à hauts champs : la supraconductivité est détruite pour un

champ de 8 Tesla appliqué le long de l'axe $\vec{b}$. Nous imposons $H_{c2}(8\ Tesla) = 8\ Tesla$. La ligne droite rouge représente le champ appliqué. Quand la limite orbitale est supérieure au champ appliqué la supraconductivité existe sinon elle est détruite. Nous retrouvons bien les limites déterminées par les mesures : la supraconductivité à bas champs est détruite pour un champ appliqué supérieur à 2 Tesla et la supraconductivité induite sous champ est observée entre 8 et 13 Tesla.

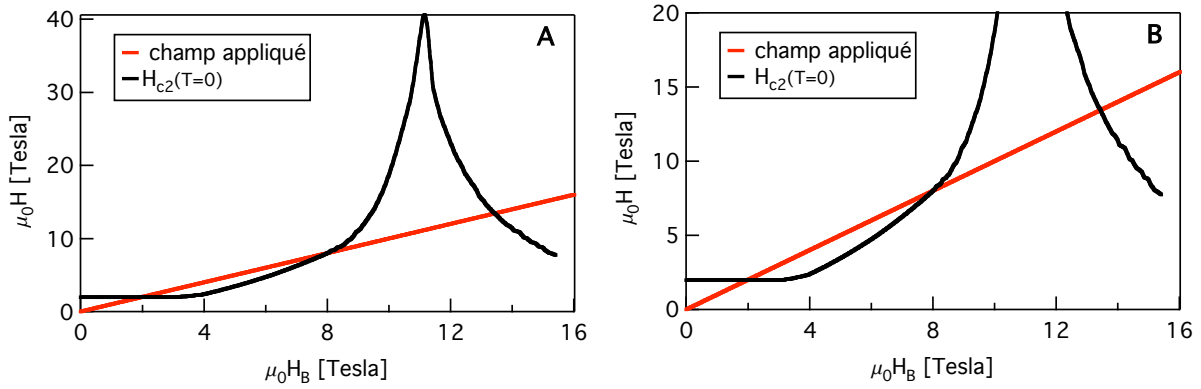

FIG. 6.14 – **Dépendance de la limite orbitale à température nulle en fonction du champ appliqué selon l'axe b.** La courbe noire est la limite orbitale à température nulle, elle a été normalisée par rapport aux mesures faites à hauts champs : la supraconductivité est détruite pour un champ de 8 Tesla appliqué le long de l'axe $\vec{b}$. La ligne droite rouge représente le champ appliqué. Quand la limite orbitale est supérieure au champ appliqué la supraconductivité existe sinon elle est détruite. **Panel A** La limite orbitale maximum serait de l'ordre de 40 Tesla. **Panel B** Zoom sur la dépendance orbitale. Nous retrouvons bien les limites déterminées par les mesures : la supraconductivité à bas champs est détruite pour un champ appliqué supérieur à 2 Tesla et la supraconductivité induite sous champ est observée entre 8 et 13 Tesla. Pour ces gammes de champs la limite orbitale est supérieure au champ appliqué : la supraconductivité peut exister. La seule contrainte que nous avons imposé est $H_{c2}(8\ Tesla) = 8\ Tesla$.

Température supraconductrice. Un modèle phénoménologique approximatif lie le champ critique H_C(T) pour une température finie T , au champ critique à température nulle H_C^0 de la façon suivante [88] :

$$H_C(T) = H_C^0[1 - (T/T_S^0)^2] \tag{6.15}$$

où T_S^0 est la température supraconductrice à champ nul.

Nous cherchons la température critique T correspondant au champ appliqué H_C dans l'expression ci-dessus.

Finalement on estime la température supraconductrice $T_S(H)$ comme suit :

$$T_S(H) = T_S^0(H)\sqrt{1 - H/H_c^0(H)} \tag{6.16}$$

où H est le champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$, $T_S^0(H)$ est la température supraconductrice estimée à champ appliqué nul et $H_c^0(H)$ est la limite orbitale à température nulle.

La figure 6.15 présente les résultats obtenus, courbe bleue, en comparaison avec les mesures réalisées, courbe noire. **Ce petit modèle approximatif tend à montrer que les fluctuations magnétiques émergeant de la transition métamagnétique sont à l'origine de la supraconductivité bas champs et hauts champs de URhGe. Les deux phases supraconductrices seraient donc de même nature : même origine et même paramètre d'ordre.**

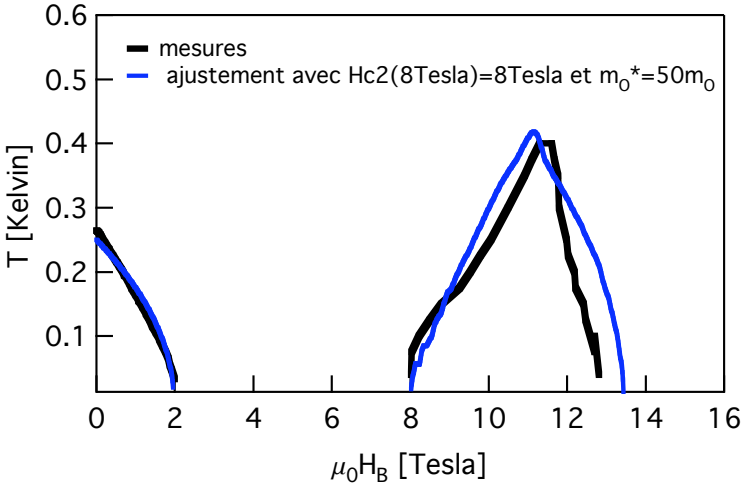

FIG. 6.15 – **Diagramme de phase de la supraconductivité d'URhGe pour un champ appliqué selon l'axe b.** Dépendance de la température critique en fonction du champ appliqué selon l'axe $\vec{b}$. Le diagramme de phase établi expérimentalement, courbe noire, est comparé aux ajustements réalisés avec le modèle du type Fay et Appel présenté dans cette section.

6.4 Bilan

Dans ce chapitre nous avons présenté des résultats entièrement nouveaux concernant l'étude d'une phase supraconductrice induite sous champs dans URhGe. Une partie des résultats présentés dans cette thèse ont été publiés dans la référence [79]. Nous avons cherché à discuter la nature du mécanisme à l'origine de la supraconductivité dans URhGe. Les indices expérimentaux mettent en avant un lien très fort entre la transition magnétique induite sous champ et la poche supraconductrice à haut champs. Il semblerait que les fluctuations magnétiques quantiques émergeant d'un point critique quantique du diagramme de phase magnétique de URhGe soient à l'origine de la poche supraconductrice induite sous champ. Par le modèle approximatif discuté à la fin de ce chapitre nous avons cherché à montrer que les deux poches supraconductrices observées dans URhGe sont de même nature (même mécanisme et même paramètre d'ordre). Des mesures inélastiques de neutrons permettraient de déterminer la direction de propagation des fluctuations et de suivre l'évolution de leur intensité en fonction du champ appliqué, confortant ou non, la nature identique des deux poches supraconductrices, du mécanisme responsable de la formation des paires de Cooper et de la pertinence du paramètre d'ordre proposé initialement par F.Hardy et A.Huxley [36].

Conclusion

Cette thèse porte sur l'étude du composé ferromagnétique supraconducteur URhGe. Au cours de cette étude j'ai été amenée à utiliser un grand nombre de techniques expérimentales, de la synthèse de monocristaux à l'utilisation de grands instruments comme les bobines résistives au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses ou le diffractomètre D23 à l'Institut Laue Langevin.

Au début de ce travail, il était connu que URhGe devenait ferromagnétique en dessous de 9,5 Kelvin puis en même temps supraconducteur en dessous d'environ 300 mK pour des champs appliqués inférieurs à 2 Tesla. A partir de l'étude de l'anisotropie des seconds champs critiques, A.Huxley et F.Hardy ont suggéré un paramètre d'ordre supraconducteur triplet spins parallèles (pour les électrons des paires de Cooper), avec un paramètre d'ordre de type p ayant une symétrie particulière. Leur modèle suppose que les interactions responsables de la formation des paires de Cooper ont un vecteur de propagation selon la direction $\vec{a}$ du composé. Les résultats obtenus durant cette thèse sur l'étude de cette supraconductivité confortent la vraisemblance d'un tel paramètre d'ordre.

Les éléments nouveaux apportés par cette thèse sont l'étude d'une transition magnétique induite sous champ puis la découverte et l'étude d'une deuxième phase supraconductrice à hauts champs magnétiques englobant cette transition magnétique. En dessous de 9,5 K et à champ nul les moments magnétiques d'URhGe sont orientés selon l'axe $\vec{c}$ des cristaux. Lors de l'application d'un champ magnétique croissant selon l'axe $\vec{b}$ il se produit une transition magnétique à 11,7 Tesla : les moments s'alignent alors brusquement avec l'axe $\vec{b}$. Nous avons établi le diagramme de phase magnétique de cette transition pour des champs appliqués dans les plans $(\vec{b},\vec{c})$ et $(\vec{b},\vec{a})$ des cristaux. Ce diagramme de phase révèle un point quantique critique dans le plan $(\vec{b},\vec{c})$. Nous avons cherché à montrer que les fluctuations magnétiques quantiques associées à ce point pourraient être responsables de la supraconductivité à bas champs et à hauts champs dans URhGe.

L'étude, également dans les plans $(\vec{b},\vec{c})$ et $(\vec{b},\vec{a})$, de la supraconductivité induite sous champ montre au delà de toutes coïncidences un lien fort entre la transition magnétique et cette deuxième phase supraconductrice. Cette deuxième phase supraconductrice apparaît pour des champs appliqués selon l'axe $\vec{b}$ entre 8 et 13 Tesla et sa température est maximum exactement à la transition magnétique. Cette ré-entrance de la supraconductivité ne peut être expliquée par un effet de compensation du champ appliqué par un champ créé par le réseau d'ions : cette supraconductivité a été observée pour des moments magnétiques inclinés à plus de 40° du champ appliqué. Elle demeure pour des champs magnétiques appliqués allant jusqu'à 28 Tesla, champ maximum à notre disposition. Une telle gamme d'existence sous champ magnétique plaide fortement pour une supraconductivité de type triplet où les électrons des paires de Cooper auraient des spins parallèles.

La nature de la transition magnétique : rotation des moments dans le plan $(\vec{b},\vec{c})$ est compatible avec, et, rend même préférable, des fluctuations magnétiques se propageant

selon l'axe $\vec{a}$. Le paramètre d'ordre proposé pour expliquer les mesures de seconds champs critiques dans la phase supraconductrice bas champs conforte l'idée que les fluctuations magnétiques (quantiques) émergeant de la transition magnétique à hauts champs jouent un rôle dans l'appariement des paires de Cooper à bas champ. Il est vraisemblable que la supraconductivité à bas champs et à hauts champs soient de même nature.

Les perspectives pour l'étude d'URhGe sont nombreuses car la découverte de la supraconductivité à hauts champs est très récente. Au delà de l'étude du composé en lui-même, l'objectif est de comprendre le mécanisme à l'origine de la supraconductivité coexistant avec un ordre ferromagnétique, et, peut-être dans un avenir plus lointain d'établir le(s) mécanisme(s) expliquant la supraconductivité non BCS. Nous exposons dans ce paragraphe quelques perspectives paraissant réalisables et prometteuses :

- Il serait satisfaisant d'établir le caractère massif de la supraconductivité à hauts champs par une mesure de chaleur spécifique en dilution et sous champ magnétique.
- L'étude des fluctuations magnétiques par diffusion inélastique de neutrons sous champ pourrait permettre de déterminer leur direction de propagation et l'évolution de leur intensité en fonction du champ appliqué. Une direction de propagation selon l'axe $\vec{a}$ conforterait l'idée que ces fluctuations jouent un rôle dans l'appariement des paires de Cooper pour la supraconductivité à bas champs de URhGe. Le suivi de l'intensité en fonction du champ pourrait éventuellement établir que la supraconductivité à bas champs et à haut champs sont de même nature, causées par les mêmes fluctuations. La phase supraconductrice hauts champs est fortement asymétrique par rapport à la transition métamagnétique : elle a un domaine d'existence très réduit pour les champs supérieurs au champ critique de la transition. Il serait intéressant de voir si l'intensité des fluctuations magnétiques reflète cette asymétrie et chute brusquement pour des champs supérieurs au champ critique.
- Des mesures de Haas Van Alphen permettraient d'établir une cartographie de la surface de Fermi... à hauts champs. Il est probable que la surface de Fermi change singulièrement à la transition métamagnétique, aussi il faudra prendre garde de distinguer la surface de Fermi avant et après cette transition. Il existe d'autres techniques qui permettent de mesurer les surfaces de Fermi à champ nul comme l'étude par positrons (envoi de positrons, détection de photons, sensible au volume) ou l'étude par ARPES (par photons, sonde la surface). Le point délicat reste la qualité des cristaux : il faut des échantillons de très bonne qualité cristallographique et monocristallins pour réaliser ces mesures.
- Des mesures de la dépendance en température de la supraconductivité ré-entante dans le plan (b,c) et (a,c) pourraient être intéressantes. Cette dépendance peut être établie par des mesures de résistance sous champ comme nous en avons déjà réalisées. Cette dépendance permettrait de sonder l'anisotropie du gap supraconducteur et de la force de couplage.
- Des mesures dans l'état normal de la résistance en fonction de la température pour différents champs appliqués plus ou moins proches du point quantique critique permettraient peut être de mettre en avant un comportement non liquide de Fermi et d'étudier cet état (son étendue et la puissance de la dépendance en température).

Annexes

Annexe A

Fonction d'onde des paires de Cooper

L'objectif de cette annexe est de définir les notions de paire singulet, paire triplet, paramètre d'ordre supraconducteur s-wave, d-wave, et p-wave.

Dans la phase supraconductrice les électrons se mettent par paires : ils forment des paires de Cooper. Un élément essentiel de l'état supraconducteur est que ces paires forment un condensât où il y a cohérence de phase : toutes les paires se situent à un même niveau d'énergie et sont décrites par une fonction d'onde dont la phase tend à être identique dans tout le supraconducteur.

La fonction d'onde décrivant une paire de Cooper $\Phi(1,2)$, composée des électrons 1 et 2, est le produit d'une fonction d'onde décrivant l'état de spin χ_{12} et d'une fonction d'onde dite spatiale $\phi(1,2)$ décrivant la probabilité de présence dans l'espace. A cause du principe d'exclusion de Pauli la fonction d'onde décrivant la paire de Cooper $\Phi(1,2)$ doit être impaire pour la permutation des deux électrons :

$$\Phi(2,1) = -\Phi(1,2) \tag{A.1}$$

La conséquence de ce principe est que **si la fonction d'onde de spin est paire alors la fonction d'onde spatiale doit être impaire et réciproquement.**

La fonction d'onde de spin. La paire de Cooper est formée par des électrons portant chacun un spin magnétique 1/2. **Le spin de la fonction d'onde de la paire peut être caractérisé par un spin total S=0 on parle d'un état singulet ou par un spin total S=1 on parle d'un état triplet.**
Il existe **un état singulet** et on écrit usuellement pour cet état :

$$\chi_{12} = 1/\sqrt{2}(|\uparrow\downarrow> - |\downarrow\uparrow>) \tag{A.2}$$

Cette fonction est impaire. Les $\uparrow$ et $\downarrow$ symbolisent l'orientation (relative) des spins des électrons formant la paire. Ici les électrons de la paire de Cooper ont des spins antiparallèles.
Il existe **trois états triplet**, on distingue ces états par la projection du spin sur l'axe z S_z et on écrit usuellement pour cet état :

$$S_z = 1, \chi_{12} = |\uparrow\uparrow> \tag{A.3}$$

$$S_z = 0, \chi_{12} = 1/\sqrt{2}(|\uparrow\downarrow> + |\downarrow\uparrow>) \tag{A.4}$$

$$S_z = -1, \chi_{12} = |\downarrow\downarrow> \tag{A.5}$$

Ces fonctions sont paires.

La fonction d'onde spatiale, aussi appelée paramètre d'ordre supraconducteur. Ici il convient de préciser un point les électrons composant une paire de Cooper ont des impulsions égales en amplitude mais opposées en direction. L'impulsion totale de la paire est nulle. On définit l'impulsion d'un électron de cette paire par le vecteur d'onde $\vec{K}$ (l'autre électron est associé au vecteur $-\vec{K}$). On écrit la fonction d'onde spatiale comme une somme sur les harmoniques sphériques Y_{lm} :

$$\phi(\vec{K}) = \sum_{m=-l}^{l} a_{lm} Y_{lm}(\vec{K}/K_F) \tag{A.6}$$

où a_{lm} sont les poids respectifs des harmoniques sphériques et K_F est le vecteur d'onde correspondant au niveau de Fermi. **Quand l=0 on a un état dit s-wave ou de type s, quand l=1 on a un état dit p-wave ou de type p , quand l=2 on a un état dit d-wave...** par référence à la physique atomique. Les états de types s et d sont paires tandis que l'état de type p est impaire.

Annexe B

Calculs pour la diffusion neutronique

Cette annexe présente en détails la démarche suivie pour déduire les composantes des moments magnétiques selon les axes $\vec{b}$ et $\vec{c}$ d'URhGe à partir des mesures des intensités des pics de Bragg 200 et 002 en diffusion neutronique.

Lien entre l'intensité et les moments magnétiques. Dans ce paragraphe nous justifions que les intensités d'origine magnétique, notée I_M, des pics de Bragg 200 et 002 sont telles que :

$$I_M^{200} \propto (m_b^2 + m_c^2) \tag{B.1}$$
$$I_M^{002} \propto m_b^2 \tag{B.2}$$

Les intensités mesurées I sont la somme d'une intensité d'origine nucléaire I_N et d'une intensité d'origine magnétique I_M (car les neutrons sont non polarisés) :

$$I = I_N + I_M \tag{B.3}$$
$$= |F_N|^2 + |F_M|^2 \tag{B.4}$$

où F_N et F_M sont respectivement les facteurs de structure nucléaire et magnétique.

L'équation B.5 ci-dessous donne l'expression du facteur de structure magnétique. C'est une somme sur chaque atome j de la maille élémentaire, où $\vec{R}j$ est sa position atomique, $f_j(\vec{Q})$ son facteur de forme magnétique, $(\mathrm{m}_\perp)_j$ sa composante du moment magnétique perpendiculaire au vecteur de diffusion (en μ_B) et e^{-w_j} est le terme de Debye-Waller.

$$|F_M(\vec{Q})|^2 = |\sum_j (m_\perp)_j f_j(\vec{Q}) e^{i\vec{Q}\vec{R}_j} e^{-w_j}|^2 \tag{B.5}$$

De l'expression du facteur magnétique F_M de l'équation B.5 il vient que l'intensité provenant du magnétisme de la raie de Bragg 200 est proportionnelle à la somme des carrés des aimantations selon $\vec{b}$ et selon $\vec{c}$ si on suppose le facteur de forme f_j identique pour les directions $\vec{b}$ et $\vec{c}$. De même l'intensité provenant du magnétisme de la raie de Bragg 002 est quant à elle proportionnelle à la somme des carrés des aimantations selon $\vec{a}$ et selon $\vec{b}$ si l'on fait la même hypothèse sur les facteurs de formes respectifs des directions $\vec{a}$ et $\vec{b}$.

A champ nul pour des températures inférieures à 9,5 K le composé URhGe devient ferromagnétique, ses moments de 0,4 μ_B par atome d'uranium sont alignés selon l'axe $\vec{c}$. Cette structure magnétique a été déterminée par Aoki et collaborateurs [3] : le vecteur de propagation magnétique est nul (i.e les raies magnétiques correspondent à des pics de Bragg) et les moments magnétiques sont dirigés selon la direction $\vec{c}$ du cristal en champ nul. Dans le cas d'un vecteur de propagation magnétique nul la structure cristallographique autorise des structures magnétiques exclusivement dans le plan ($\vec{a}$,$\vec{c}$) ou exclusivement selon l'axe $\vec{b}$. Comme aucun pic satellite n'a été mesuré autour des pics de Bragg alors qu'un champ était appliqué selon l'axe $\vec{b}$, nous avons supposé que la structure magnétique reste ferromagnétique et que donc le moment selon l'axe $\vec{a}$ reste nul : $m_a = 0$. Finalement on a justifié les équations (B.1) et (B.2).

Soustraction des contributions non magnétiques. Il suffit de mesurer les intensités des pics de Bragg à champ appliqué nul et au dessus de la température de Curie pour déterminer l'intensité d'origine nucléaire. Par soustraction de cette contribution on obtient l'intensité d'origine magnétique.

Coefficients de proportionnalité entre les intensités magnétiques et les moments.

• **Pour le pic Bragg 200**. A champ nul et à 2 K on sait que URhGe est ferromagnétique et que ses moments de 0,4 μ_B sont alignés selon l'axe $\vec{c}$. On normalise l'intensité magnétique mesurée en conséquence.

• **Pour le pic de Bragg 002.** On a :

$$m_b = Cte \times \sqrt{4.C^{002}/C^{200}} \times \sqrt{I_M^{002}} \tag{B.6}$$

où les constantes C^{200} et C^{002} se déterminent à partir du facteur de structure magnétique. Plus de détails sur le calcul de ces constantes sont donnés dans l'annexe C.

et où la constante Cte est telle que :

$$m_{total}(H = 0T) = 0,4\ \mu_B \tag{B.7}$$

$$= Cte \times \sqrt{I_M^{200}(H = 0T)} \tag{B.8}$$

Finalement nous avons déterminé le lien entre les intensités mesurées en diffusion neutronique et les composantes du moment magnétique d'URhGe.

Annexe C

Facteur de structure magnétique

Cette annexe a pour objectif d'expliquer le calcul du facteur de structure magnétique utilisé en diffraction de neutrons pour URhGe.

Expression du facteur de structure magnétique. Le facteur de structure magnétique dont l'expression est une somme sur chaque atome j de la maille élémentaire, où $\vec{R}j$ est sa position atomique, $f_j(\vec{Q})$ son facteur de forme magnétique, $(\mathrm{m}_\perp)_j$ sa composante du moment magnétique perpendiculaire au vecteur de diffusion (en μ_B) et e^{-w_j} est le terme de Debye-Waller. Il s'exprime comme suit :

$$|F_M(\vec{Q})|^2 = |\sum_j (m_\perp)_j f_j(\vec{Q}) e^{i\vec{Q}\vec{R}_j} e^{-w_j}|^2 \tag{C.1}$$

Calcul du facteur de structure magnétique pour les pics de Bragg 002 et 200. Pour le calcul de ce facteur de forme magnétique on néglige le terme de Debye-Waller qui prend en compte l'agitation thermique de l'atome j (étant à basse température on estime que l'écart à l'équilibre de la position des atomes est très petite).

Pour un vecteur de diffusion selon la direction 200, $Q^{\vec{200}}$ il faut prendre en compte les moments perpendiculaires à $\vec{Q}$: m_b et m_c. On prend m_b=m_c=m. Si on suppose que le facteur de forme magnétique f est isotrope on obtient :

$$\begin{aligned} I_M^{200} &= |F_M(Q^{\vec{200}})|^2 && \text{(C.2)} \\ &= |\sum_j f_j(Q^{\vec{200}}) e^{iQ^{\vec{200}}\vec{R}_j}|^2 \times 4m^2 && \text{(C.3)} \\ &= C^{200} \times 4m^2 && \text{(C.4)} \end{aligned}$$

De même pour la direction 002 on a :

$$\begin{aligned} I_M^{002} &= |F_M(Q^{\vec{002}})|^2 && \text{(C.5)} \\ &= |\sum_j f_j(Q^{\vec{002}}) e^{iQ^{\vec{002}}\vec{R}_j}|^2 \times 4m^2 && \text{(C.6)} \\ &= C^{002} \times m^2 && \text{(C.7)} \end{aligned}$$

Calcul des coefficients C^{200} et C^{002}. Les coefficients C^{200} et C^{002} se calculent sachant que nous avons quatre atomes magnétiques par maille : les quatre atomes d'uranium. Leurs positions sont données dans les tableaux 1.1, 1.2 et 1.3 p.14. L'expression du facteur de forme magnétique,f, est donnée ci-dessous avec s=Q/2, Q étant le module du vecteur de diffusion. Les coefficients du facteur de forme magnétique utilisés sont ceux de l'ion d'uranium 4+ [89, 90] (ces coefficients sont représentés par A_0, a_0,..etc dans l'expression donnée ci-dessous) . Ces coefficients diffèrent très peu de ceux de l'ion 3+.

$$f_j(\vec{Q}) = j0(\vec{Q}) + 1.5 \times j2(\vec{Q}) \tag{C.8}$$

où

$$j0(2s) = A_0.e^{(-a_0.s^2)} + B_0.e^{(-b_0.s^2)} + C_0.e^{(-c_0.s^2)} + D_0 \tag{C.9}$$

et

$$j2(2s) = s^2(A_2e^{(-a_2.s^2)} + B_2.e^{(-b_2.s^2)} + C_2.e^{(-c_2.s^2)} + D_2) \tag{C.10}$$

Remarque sur l'expression du facteur de forme magnétique. Ce paragraphe justifie la forme du facteur de forme magnétique donnée par les équations (C.8), (C.9) et (C.10).

Le facteur de forme magnétique f($\vec{q}$) est obtenu à partir de la transformé de Fourrier de la distribution magnétique d'un atome/ion magnétique. Si on suppose que l'atome/ion a un moment global $\vec{M}$ on a :

$$\vec{M} \int m(\vec{r})e^{i\vec{q}\vec{r}} = \vec{M}f(\vec{q}) \tag{C.11}$$

où $m(\vec{r})$ est une fonction normalisée qui décrit comment est distribuée l'intensité magnétique sur tout le volume de l'atome/ion.

On ne considère que l'aimantation générée par les électrons célibataires de l'ion (on néglige l'aimantation provenant du noyau de l'atome/ion qui est perçue comme ponctuelle par le neutron). Dans cette hypothèse il vient que la distribution de l'intensité magnétique est reliée à la densité d'occupation de ces électrons célibataires. La densité radiale électronique R(r) est telle que :

$$< j_l(q) >= \int R(r)j_l(qr)4\pi r^2 dr \tag{C.12}$$

où les j_l sont les fonctions de Bessel sphériques.

Finalement, le facteur de forme magnétique est la somme d'une contribution de spin et d'une contribution orbitale :

$$f(q) = f_s(q) + f_o(q) \tag{C.13}$$

Dans le cadre de l'approximation dipolaire, approximation valable si le vecteur d'onde incident $\vec{K}$ est tel que $|\vec{K}|^{-1}$ est très grand devant le rayon orbital des électrons non appariés de l'atome/ion, on a :

$$\begin{aligned} f(q) &= g_S/g < j_0(q) > +g_L/g(< j_0(q) > + < j_2(q) >) && \text{(C.14)} \\ &= (g_s + g_l)/g < j_0(q) > +g_L/g < j_2(q) > && \text{(C.15)} \\ &= < j_0(q) > +g_L/g < j_2(q) > && \text{(C.16)} \end{aligned}$$

où g=g_S+g_L est le facteur gyromagnétique de l'atome/ion, on exprime g_S et g_L en fonction des nombres quantiques L, S et J :

$$g_S = 1 + \frac{S(S+1) - L(L+1)}{J(J+1)} \tag{C.17}$$

$$g_L = 1/2 + \frac{L(L+1) - S(S+1)}{2J(J+1)} \tag{C.18}$$

Pour un ion U^{4+}, on a deux électrons f : S=1, L=5 et J=4. Il vient que g_L/g=1,5 (on trouve 1,76 pour un ion U^{3+}).

On peut faire une approximation analytique de $< j_0(q) >$ et de $< j_2(q) >$ avec s=q/2 par :

$$< j_0(2s) >= A_0.e^{(-a_0.s^2)} + B_0.e^{(-b_0.s^2)} + C_0.e^{(-c_0.s^2)} + D_0 \tag{C.19}$$

$$< j_2(2s) >= s^2(A_2 e^{(-a_2.s^2)} + B_2.e^{(-b_2.s^2)} + C_2.e^{(-c_2.s^2)} + D_2) \tag{C.20}$$

Annexe D

Compléments sur le modèle d'énergie libre pour URhGe

Cette annexe est un complément sur le modèle d'énergie libre pour URhGe présenté dans le chapitre 5. Nous présentons les calculs justifiant le choix des contraintes sur les paramètres du modèle.

Nous rappelons que le composé URhGe cristallise dans une structure orthorhombique et qu'en dessous de 9,5 K il devient ferromagnétique avec des moments de 0,4 μ_B/URhGe alignés selon l'axe $\vec{c}$ du cristal et que l'axe $\vec{a}$ est un axe de (très) difficile aimantation.

Le modèle : énergie, paramètres et variables. Pour le modèle nous considérons uniquement des champs appliqués dans le plan ($\vec{b}$,$\vec{c}$) du cristal.

Il y a **deux paramètres : a et** ϵ.

Les **variables** dans l'expression de l'énergie libre sont :
$\theta = (\vec{H}, \vec{b})$, l'angle entre le champ appliqué $\vec{H}$ et l'axe $\vec{b}$ du cristal,
$\phi = (\vec{M}, \vec{b})$, l'angle entre le moment magnétique $\vec{M}$ et l'axe $\vec{b}$ du cristal,
H , l'amplitude (en Tesla) du champ magnétique appliqué $\vec{H}$
M(H), l'amplitude du moment, fonction du champ appliqué.

L'expression de l'énergie libre choisie est :

$$F(\phi) = \frac{a}{2}\left[cos(2\phi) + \frac{\epsilon}{2}cos(4\phi)\right] - Hcos(\theta - \phi)M(H) \tag{D.1}$$

Contraintes préalables sur les paramètres. Pour avoir un système dont l'axe de facile aimantation soit l'axe $\vec{c}$ il faut que pour un champ appliqué nul, H=0 T, l'énergie libre pour des moments alignés selon $\vec{c}$, F(ϕ=90°) soit un minimum de F(ϕ) quelque soit ϕ compris entre 0° et 90°. Ceci implique que :

(1). pour un champ appliqué nul, H=0 T, l'énergie libre pour des moments alignés selon $\vec{c}$, F(ϕ=90°) soit plus petite que l'énergie libre pour des moments alignés selon $\vec{b}$, F(ϕ=0°).

$$F(\phi = 90°) = \frac{a}{2}\left[-1 + \frac{\epsilon}{2}\right] \leq F(\phi = 0°) = \frac{a}{2}\left[1 + \frac{\epsilon}{2}\right] \tag{D.2}$$

$$-a \leq a \tag{D.3}$$

d'où **il faut a positif**.

(2). pour un champ appliqué nul, H=0 T, il faut que F(ϕ=90°) soit le minimum absolu de l'énergie libre. Nous allons étudier les variations de F(ϕ) pour 0° < ϕ <90° pour déterminer les contraintes du paramètre ϵ.

On pose c=cos(ϕ). Etudier les variations de F(ϕ) pour 0° < ϕ <90° revient à étudier les variations de F(c) pour 0 < c <1 car cos(ϕ) est une fonction monotone sur [0°-90°]. Pour un champ appliqué nul, H=0 T, on a :

$$F(c) = \frac{-a}{2} + \frac{a\epsilon}{4} + a(1-2\epsilon)c^2 + 2a\epsilon c^4 \tag{D.4}$$

$$\partial F(c)/\partial c = 2ac\left[(1-2\epsilon) + 4\epsilon c^2\right] \tag{D.5}$$

$$\partial^2 F(c)/\partial c^2 = 2a\left[(1-2\epsilon) + 12\epsilon c^2\right] \tag{D.6}$$

Les valeurs c_m telles que pour $0 \leq c_m \leq 1$ on ait $\partial F(c_m)/\partial c = 0$ sont des minimums potentiels de l'énergie libre. Cherchons ces valeurs c_m :

$$\partial F(c_m)/\partial c = 0 \Longleftrightarrow c_m^2 = (2\epsilon - 1)/(4\epsilon) \tag{D.7}$$

La solution c_m est réelle si $\epsilon \geq 1/2$ ou $\epsilon \leq 0$. Cette solution est comprise entre 0 et 1 si $|\epsilon| \geq 1/2$. Dans le cas où cette solution c_m existe et appartient à l'intervalle [0,1] c'est un minimum de l'énergie libre si $\partial^2 F(c_m)/\partial c^2 \geq 0$. $F(c_m)$ est un minimum de l'énergie libre si :

$$|\epsilon| \geq 1/2 \; et \; \partial^2 F(c_m)/\partial c^2 \geq 0 \Longleftrightarrow \epsilon \geq 1/2 \tag{D.8}$$

Regardons alors si l'énergie libre de cette solution $F(c_m)$ peut être inférieure à l'énergie libre pour des moments alignés selon l'axe $\vec{c}$, F(c=0). On a :

$$F(c_m) - F(c=0) = -\frac{a}{8\epsilon}(2\epsilon - 1)^2 \tag{D.9}$$

Pour $\epsilon \geq 1/2$ on a toujours $F(c_m) \leq F(c=0)$. Par conséquent pour qu'à champ nul F($\phi = 90°$) soit le minimum d'énergie libre **il faut que $\epsilon \leq 1/2$**.

Contrainte pour avoir une transition du premier ordre induite sous champ. On a une transition du premier ordre quand pour une valeur de champ donnée l'énergie libre présente deux minimums, un minimum global et un minimum local séparés par un maximum local comme le montre la figure D.1 et qu'en augmentant ou en diminuant le champ les deux minimums s'inversent : le minimum local devient global et le minimum global devient local. Au cours de cette transition induite sous champ les moments hésitent entre deux directions correspondant aux deux minimums. La transition est du premier ordre : il y a coexistence de deux phases correspondant aux deux orientations des moments. L'hystéresis de cette transition est d'autant plus grande que le maximum séparant les deux minimums est élevé. Le cas de figure limite d'une transition du premier ordre arrive quand le minimum secondaire correspond au maximum local. Dans ce cas la dérivée seconde de l'énergie libre ne s'annule qu'une seule fois.

Dans le cas où le champ est appliqué selon l'axe $\vec{b}$ du cristal (i.e $\theta = 0$) nous cherchons à déterminer la contrainte limite sur les paramètres a et ϵ pour que cette transition du

premier ordre ait lieu. Dans ce cas la dérivée seconde est identique à celle calculée pour H=0 T donnée par l'équation (D.6). On note F" cette dérivée seconde par rapport à c.

$F"(c = 0) = 2a(1 - 2\epsilon)$

$F"(c = 1) = 2a(1 + 10\epsilon)$

On cherche la condition limite pour que la transition soit du premier ordre. Avec $a \geq 0$ on distingue deux cas :

$0 \leq \epsilon \leq 1/2$, F" est strictement croissante de c=0 à c=1 or $F"(0) \geq 0$. Il n'y a pas de transition du premier ordre possible.

$\epsilon \leq 0$, F" est strictement décroissante de c=0 à c=1 et $F"(0) \geq 0$. Pour qu'il y ait une transition du premier ordre il faut que $F"(1) \leq 0$, c'est-à-dire que $\epsilon \leq -1/10$.

Il faut donc ϵ <-1/10 pour avoir une transition magnétique du premier ordre induite sous champ pour un champ appliqué selon l'axe b du cristal.

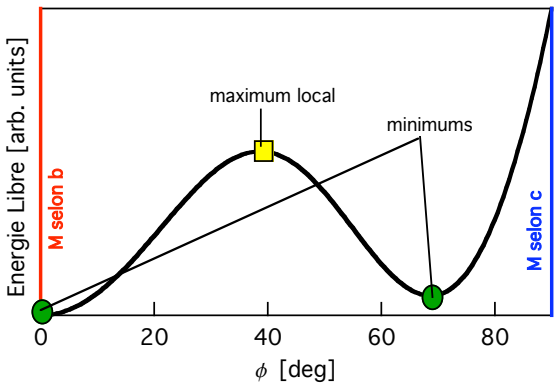

FIG. D.1 – **Energie libre du modèle donné par l'équation D.1 .** Dépendance de l'énergie libre du modèle en fonction de l'angle $\phi = (\vec{M}, \vec{b})$ pour une orientation et une valeur données de champ appliqué. L'énergie présente deux minimums : un global et un local. Le système décrit par ce modèle présente une transition du premier ordre. Les moments hésitent entre deux positions. L'hystéresis d'une transition du premier ordre est d'autant plus grande que le maximum séparant les deux minimums est élevé.

Bibliographie

[1] J. Matricon et G. Waysand : *La guerre du froid*, Seuil, 1999

[2] S. Saxena et al : Superconductivity at the border of itinerant electron ferromagnetism in UGe2, *Nature*, **406** (2000), 587–592

[3] D. Aoki et al. : Coexistence of Superconductivity and Ferromagnetism in URhGe, *Nature*, **413** (2001), 613–16

[4] V. Tran et al : Magnetic ordering in URhSi and URhGe, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, (1998), 81–86

[5] E. du Trémolet de Lacheisserie et al : *Magnétisme, I-Fondements*, EDP Sciences, 2000

[6] G. Lonzarich et al : Effect of spin fluctuations on the magnetic equation of state of ferromagnetic or nearly ferromagnetic metals, *J. Phys. C : Solid Stata Phys.*, **18** (1985), 4339–4371

[7] F. De Boer et al : UTX compounds in high magnetic fields, *Physica B*, **163** (1990), 175–178

[8] Parks : *Superconductivity*, Dekker, 1969

[9] M. Crisan : *Theory of Superconductivity*, World Scientific, 1989

[10] M. Tinkham : *Introduction to Superconductivity (second edition)*, McGraw-Hill Internatinal Editions, 1996

[11] J. F.Annett : *Superconductivity, Superfluids and Condensates*, Oxford University Press, 2004

[12] J. Bardeen et al : Theory of Superconductivity, *Phys. Rev.*, **108(5)** (1957), 1175

[13] A. Rydh et al : Two-band effects in the angular dependence of Hc2 of MgB2 single crystals, *Phys. Rev. B*, **70** (2004), 132503

[14] X. Grison, T. Kontos, M. Apriti, et J. Lesueur : De l'ordre dans les supraconducteurs, *La recherche*, **330** (2001), 44

[15] V. Mineev et K. Samokhin : *Introduction to Unconventional Superconductivity*, Gordon and Breach Science Publishers, 1999

[16] V. Ginzburg : Ferromagnetic superconductors, *Soviet Physics JETP*, **4(2)** (1957), 153

[17] B. Matthias et al : Spin Exchange in Superconductors, *Phys. Rev. Lett.*, **1** (1958), 92–94

[18] O. Fisher et al : Superconductivity in the $RE_xMo_6S_8$, *Solid State Communications*, **17** (1975), 721

[19] A. Fuzdin et J. Flouquet : Magnetic Superconductors, *to be published*, (2006)

[20] W. Fertig et al : Destruction of Superconductivity at the Onset of Long-Range Magnetic Order in the Compound $ErRh_4B_4$, *Phys. Rev. Lett.*, **38(17)** (1977), 987

[21] M. Ishikawa et al : Destruction of Superconductivity by Magnetic Ordering in $Ho_{1.2}Mo_6S_8$, *Solid Sate Communications.*, **23** (1977), 37

[22] D. Monston : Neutron scattering observations on the magnetic phases of rare-earth ternary superconductors, *J. Appl. Phys.*, **50(3)** (1979), 1880

[23] E. Blount et al : Electromagnetic Effects near the Superconductor-to-Ferromagnet Transition, *Phys. Rev. Lett.*, **42(16)** (1979), 1079

[24] P. Anderson et al : Spin Alignement in the Superconducting State, *Phys. Rev.*, **116(4)** (1959), 898

[25] T. Akazawa et al : Pressure-induced superconductivity in UIr without inversion symmetry, *Physica B*, **359-361** (2005), 1138

[26] J. Flouquet et al : Ferromagnetic superconductors, *Physics World*, (2002), 41–46

[27] S. Buzdin et al : Superconductivity and magnetism, *C.R. Physique*, **7** (2006)

[28] A. Abrikosov : Superconductivity due to ferromagnetically ordered localized spins, *Journal-of-Physics : Condensed Matter*, **13** (2001), 943–947

[29] H. Suhl : Simultaneous Onset of Ferromagnetism and Superconductivity, *Physical Review Letters*, **87(16)** (2001), 167007–1/167007–3

[30] D. Fay et al : Coexistence of p-state superconductivity and itinerant ferromagnetism, *Physical Review B*, **22(7)** (1980), 3173–3182

[31] E. A. Yelland et al : Superconductivity induced by spark erosion in ZrZn2, *Phys. Rev. B*, **72** (2005), 214523

[32] F. Hardy : *Etude du composé ferromagnétique supraconducteur URhGe*, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, déc. 2004

[33] P. Anderson : Theory of Dirty Superconductors, *J.Phys. Chem. Solids*, **11** (1959), 26

[34] A. Larkin : Vector pairing in superconductors of small dimensions, *JETP Letters*, **2** (1965), 130

[35] A. Abrikosov et al. : Contribution to the theory of superconducting alloys with paramagnetic impurities, *Sov. Phys. JETP*, **12(6)** (1961), 1243

[36] F. Hardy et al. : p-Wave Superconductivity in the Ferromagnet Superconductor URhGe, *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005), 247006

[37] F. Hardy et al. : (P,T) phase diagram of the ferromagnetic superconductor URhGe, *Physica-B*, **30** (2005), 359–361 : 1111–13

[38] A. Huxley et al : Metamagnetic behavior near the quantum critical point in UGe2, *Physica B*, **July** (2000), 284–288 : 1277–8

[39] C. Pfleiderer et al : Pressure Dependence of the Magnetization in the Ferromagnetic Superconductor UGe2, *Physical Review Letters*, **89(14)** (2002), 147005–1/147005–4

[40] Squires : *Introduction to the THERMAL NEUTRON SCATTERING*, Cambridge University Press, 1978

[41] M. Fauré et al : Domain structure in a Superconducting Ferromagnet, *Physical Review Letters*, **94** (2005), 187202

[42] A. Clogston et al : Upper Limit for the Critical Field in Hard Superconductors, *Physical Review Letters*, **9(6)** (1962), 266–267

[43] L. Bulaevskii et al : Properties of strong-coupled superconductors, *Physical Review B*, **38(16)** (1988), 11 290

[44] E. Helfland et N. R. Werthamer : Temperature and Purity Dependence of Superconducting Crystal Field H_{c2}. II, *Physical Review*, **147(1)** (1966), 288

[45] V. Mineev et T. Champel : Theory of superconductivity in ferromagnetic superconductors with triplet pairing, *Physical Review B*, **69** (2004), 144521

[46] K. Scharnberg et R. A. Klemm : p-wave superconductors in magnetic fields, *Physical Review B*, **22(11)** (1980), 5233

[47] K. Scharnberg et R. A. Klemm : Upper Critical Field in p-Wave Superconductors with Broken Symmetry, *Physical Review Letters*, **54(22)** (1985), 2445

[48] V. P. Mineev : Interplay between magnetism and superconductivity in URhGe, *C.R. Physique*, **7** (2006), 35

[49] T. R. Kirkpatrick et D. Belitz : Signatures of Pairing Mechanisms and Order Parameters in Ferromagnetic Superconductors, *Physical Review Letters*, **92** (2004), 037001

[50] T. R. Kirkpatrick, D. Belitz, T. Vojta, et R. Narayanan : Strong Enhancement of Superconducting T_c in Ferromagnetic Phases, *Phys. Rev. Lett.*, **87** (2001), 127003

[51] R. Roussev et A. J. Millis : Quantum critical effects on transition temperature of magnetically mediated p-wave superconductivity, *Phys. Rev. B*, **63** (2001), 140504

[52] K. Prokes : Découverte d'une transition métamagnétique mais décrite pour des champs appliqués selon un axe cristallographique différent de l'axe b , rapport non publié

[53] C. Kittel : *Introduction à la physique de l'état solide*, dunod, 1972

[54] G. R. Taylor, A. Isin, et R. V. Coleman : Resistivity of Iron as a Function of Temperature and Magnetization, *Phys. Rev.*, **165** (1968), 621–631

[55] J. F. Gregg et al : Giant Magnetoresistive Effects in a Single Element Magnetic Thin Film, *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996), 1580–1583

[56] M. Viret et al : Spin scattering in ferromagnetic thin films, *Phys. Rev. B*, **53** (1996), 8464–8468

[57] L. Berger : Low-Field Magnetosresistance and domain drag ferromagnets, *J. Appl. Phys.*, **49(3)** (1978), 2156

[58] L. Landau et al : *Physique Statistique*, Editions MIR, 1967

[59] P. Coleman et S. A.J. : Quantum criticality, *Nature*, **433** (2005), 226–229

[60] G. G. Lonzarich : Magnetic quantum liquid enigma, *Nature Physics*, **1** (2005), 11

[61] A. Mackenzie et G. S.A. : A Quantum Critical Route to Field-Induced Superconductivity, *Science*, **309** (2005), 1330

[62] M. Buchanan : Stirring up a quantum cockail, *New Scientist*, **issue 2536** (2006)

[63] N. Ashcroft et N. Mermin : *Physique des solides*, EDP Sciences, 2003

[64] N. D. Mathur et al : Magnetically mediated superconductivity in heavy fermion compounds, *Nature*, **394** (1998), 39–43

[65] J. Paglione et al : Field-Induced Quantum Critical Point in $CeCoIn_5$, *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003), 246405

[66] A. Bianchi et al : Avoided Antiferromagnetic Order and Quantum Critical Point in $CeCoIn_5$, *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003), 257001

[67] A. Holmes et al : Signatures of valence fluctuations in $CeCu_2Si_2$ under high pressure, *Phys. Rev. B*, **69** (2004), 024508

[68] D. Jaccard et A. Holmes : Spin and valence-fluctuation mediated superconductivity in pressurised Fe and $CeCu_2(Si/Ge)_2$, *Physica B*, **359-361** (2005), 333

[69] S. Grigera et al : Magnetic Field-Tuned Quantum Criticality in the Metallic Ruthenate $Sr_3Ru_2O_7$, *Science*, **294** (2001), 329

[70] R. Perry et al : Multiple First-Order Metamagnetic Transitions and Quantum Oscillations in Ultrapure $Sr_3Ru_2O_7$, *Phys. Rev. Lett.*, **92 (16)** (2004), 166602

[71] N. Harrison, M. Jaime, et J. A. Mydosh : Reentrant Hidden Order at a Metamagnetic Quantum Critical End Point, *Phys. Rev. Lett.*, **90** (2003), 096402

[72] F. Bourdarot et al : Hidden order in URu_2Si_2, *Physica B*, **359-361** (2005), 986

[73] J. Clusters et al. : The break-up of heavy electrons at a quantum critical point, *Nature*, **424** (2003), 524

[74] P. Gegenwart et al : Magnetic-Field Induced Quantum Critical Point in $YbRh_2Si_2$, *Phys. Rev. Lett.*, **89** (2002), 056402

[75] P. G. Niklowitz et al : Field-induced non-Fermi-liquid resistivity of stoichiometric YbAgGe single crystals, *Phys. Rev. B*, **73** (2006), 125101

[76] Y. Tokiwa et al : Low-temperature thermodynamic properties of the heavy-fermion compound YbAgGe close to the field-induced quantum critical point, *Phys. Rev. B*, **73** (2006), 094435

[77] T. Park et al. : Hidden magnetism and quantum criticality in the heavy fermion superconductor $CeRhIn_5$, *Nature*, **440** (2006), 65

[78] D. Belitz, T. R. Kirkpatrick, et J. Rollbuhler : Tricritical Behavior in Itinerant Quantum Ferromagnets, *Physical Review Letters*, **94** (2005), 247205

[79] F. Lévy et al. : Magnetic Field Induced Superconductivity in the Ferromagnet URhGe, *Science*, **309** (2005), 1343–1346

[80] H. W. Meul et al : Observation of Magnetic-Field-Induced Superconductivity, *Phys. Rev. Lett.*, **53** (1984), 497–500

[81] T. Konoike et al : Magnetic-field-induced superconductivity in the antiferromagnetic organic superconductor κ-$(BETS)_2FeBr_4$, *Phys. Rev. B*, **70** (2004), 094514

[82] S. Uji et al : Superconductivity and vortex phases in the two-dimensional organic conductor λ-$(BETS)_2Fe_xGa_{1-x}Cl_4$ (x = 0.45), *Phys. Rev. B*, **71** (2005), 104525

[83] S. Uji et al : Magnetic-field-induced superconductivity in a two-dimensional organic conductor, *Nature*, **410** (2001), 908

[84] V. Jaccarino et M. Peter : Ultra-High-Field Superconductivity, *Phys. Rev. Lett.*, **9** (1962), 290–292

[85] D. Vollhardt et P. Wolfle : *The superfluid phases of helium 3*, Taylor&Francis, 1990

[86] A. Leggett : *Theory of superfluidity in liquid ^{3}He in Quantum Liquid, by J.Rulvalds and T.Regge*, North-Holland Publishing Compagny, 1978

[87] G. Lonzarich : *Electron : A Centary Volume by M.Springford, ch.6*, Cambridge Univ. Press, 1997

[88] P. De Gennes : *Superconductivity of Metals and Alloys*, Perseus bookks, 1999

[89] A. J. Freeman et al : Dirac-Fock studies of some electronic properties of actinide ions, *J. Magn. Mag. Mater*, **8** (1978), 119–129

[90] Source ILL, *http ://www.ill.fr/dif/ccsl/ffacts*, expression du facteur de forme magnétique et coefficients pour les actinides, les terres rares et autres éléments

Abstract

As ferromagnetism and superconductivity are usually considered to be antagonistic, the discovery of their coexistence in UGe_2 and URhGe has attracted a lot of interest. The mechanism to explain such a state has, however, not yet been fully elucidated. In these compounds superconductivity may be unconventional : Cooper pairs could be formed by electrons with parallel spins and magnetic fluctuations might be involved in the pairing mechanism.

This thesis deals with the study of the ferromagnet superconductor URhGe. URhGe becomes ferromagnetic below a Curie temperature of 9.5 K, with a spontaneous moment aligned to the c-axis of its orthorhombic crystal structure. For temperatures below 260 mK and fields lower than 2 Tesla, superconductivity was first observed in 2001. The thesis reports the discovery of a second pocket of superconductivity. This new pocket of superconductivity appears in single crystals at higher fields applied close to the b-axis, enveloping a sudden magnetic moment rotation transition at H_R=12 Tesla. Detailed studies of the field induced metamagnetic transition and superconductivity are presented. This work suggests that there is a quantum critical point in the magnetic phase diagram. The role of the magnetic fluctuations emerging from this quantum critical point to the pairing mechanism giving superconductivity is discussed.

Key Words

URhGe, UGe_2	unconventional superconductivity
ferromagnet superconductor	spin triplet
metamagnetic transition	field induced superconductivity
quantum critical point	

Résumé

Ferromagnétisme et supraconductivité sont habituellement considérés comme deux ordres antagonistes, aussi la découverte de leur coexistence dans URhGe et UGe_2 a généré beaucoup d'intérêt. Le mécanisme expliquant un tel état n'a cependant pas encore était totalement élucidé. La supraconductivité dans ces composés serait non conventionnelle : les fluctuations magnétiques pourraient être responsables de l'appariement des électrons en paires de Cooper avec des spins parallèles.

Cette thèse porte sur l'étude du composé ferromagnétique supraconducteur URhGe. URhGe devient ferromagnétique en dessous d'une température de Curie de 9,5 Kelvin, avec des moments spontanés alignés selon l'axe $\vec{c}$ de sa structure orthorhombique. Pour des températures inférieures à 260 mK et des champs plus petits que 2 Tesla, une phase supraconductrice a été observée dès 2001. Au cours de cette thèse une deuxième phase supraconductrice induite sous champ a été mise en évidence dans des monocristaux pour des hauts champs magnétiques appliqués selon l'axe $\vec{b}$ des cristaux. Cette deuxième poche de supraconductivité enveloppe une transition métamagnétique ayant lieu pour un champ de 12 Tesla. Nous présentons dans ce manuscrit une étude détaillée de cette supraconductivité et de sa relation avec la transition métamagnétique. Nous discutons de l'existence d'un point critique quantique dans le diagramme de phase magnétique et du rôle des fluctuations magnétiques émergeant de ce point critique quantique dans le mécanisme d'appariement des électrons.

Mots Clés

URhGe, UGe_2
supraconducteurs ferromagnétiques
transition métamagnétique
point quantique critique
supraconductivité non conventionnelle
spin triplet
supraconductivité induite sous champ