



HAL
open science

Courant supraconducteur au travers d'un métal ferromagnétique : étude de la jonction pi

Hermann Sellier

► **To cite this version:**

Hermann Sellier. Courant supraconducteur au travers d'un métal ferromagnétique : étude de la jonction pi. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2002. Français. NNT: . tel-00002089

HAL Id: tel-00002089

<https://theses.hal.science/tel-00002089>

Submitted on 14 Feb 2003

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

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

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

Discipline : Physique

soutenue le 3 décembre 2002 par

Hermann SELLIER

Courant supraconducteur au travers d'un métal ferromagnétique

étude de la jonction π

Composition du jury :

Daniel Estève	Rapporteur
Marco Aprili	Rapporteur
Laurent Lévy	Président
Alexandre Buzdin	Examineur
Bernard Diény	Examineur
Roberto Calemczuk	Directeur de thèse
Claire Baraduc	Co-directeur de thèse

Groupe de Physique Mésoscopique du Laboratoire de Cryophysique
Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité
CEA Grenoble

Remerciements

Ma thèse s’est déroulée dans le Laboratoire de Cryophysique du CEA-Grenoble où j’ai eu le plaisir de travailler durant un peu plus de trois ans. J’adresse mes sincères remerciements à Claire Baraduc pour m’avoir accueilli en thèse sous sa responsabilité et pour avoir choisi ce sujet aux multiples facettes qui m’a permis de côtoyer plusieurs domaines de la matière condensée. Je remercie aussi chaleureusement Roberto Calemczuk d’avoir dirigé ma thèse, de m’avoir initié aux subtilités du SQUID et de s’être investi dans les expériences sur la jonction π .

Je suis très reconnaissant à Bernard Diény à la fois pour sa participation au jury et pour m’avoir accueilli à de nombreuses reprises dans son laboratoire afin d’essayer de transformer ses vanes de spin normales en vanes de spin supraconductrices. Je remercie également Laurent Lévy d’avoir accepté de présider le jury, et j’en profite pour mentionner que j’ai utilisé à de nombreuses reprises son livre “Magnétisme et Supraconductivité” dont le titre aurait pu être celui de ma thèse! Je tiens à remercier sincèrement Daniel Estève et Marco Aprili pour l’attention qu’ils ont portée à la lecture de mon manuscrit et pour les discussions que nous avons eues avant la soutenance me permettant d’approfondir certains résultats. Un grand merci aussi à Sacha Buzdin d’avoir participé au jury, j’ai lu avec beaucoup de respect ses travaux théoriques sur l’effet de proximité S/F et en particulier sur la fameuse la jonction π .

Mes remerciements vont également à tout le personnel du Laboratoire de Cryophysique dont les diverses compétences m’ont permis d’effectuer ma thèse dans de très bonnes conditions. Je suis particulièrement redevable à François Lefloch d’avoir accepté une cible de cuivre-nickel à l’intérieur de son “groupe niobium”, ceci a été déterminant pour la réussite rapide des jonctions π . Je remercie sincèrement Manuel Houzet de m’avoir aidé à éclaircir les questions théoriques que j’ai rencontrées. Merci également à Claude Chapelier, à Marc Sanquer, à Jean-Claude Villégier d’avoir contribué à ma formation par leurs conseils et leur expérience. Merci à Marie-José Blanchard pour l’aspect cryogénique des mesures, et à Jean-Luc Thomassin pour le fonctionnement de la salle blanche et pour sa disponibilité infinie. Merci à Christian, Nicolas, Xavier, Bertrand, Maud, Gael et les tous autres, pour leur sympathie et pour leur bonne humeur qui aura égayé mes longues journées au laboratoire.

Je suis aussi très reconnaissant à Pascale Bayle-Guillemaud qui a analysé la structure des multicouches par microscopie TEM et à Denis Jalabert qui a mesuré la composition des alliages cuivre-nickel par RBS.

Je remercie également toute ma famille pour son soutien et je voudrais leur rappeler une dernière fois que les électrons ne portent pas de “pins” sur leur tee-shirt! Merci à Laurent, à Gilles et à Simone avec qui j’ai skié à travers les Alpes, du Queyras à la Suisse en passant par

le Mont-Blanc. Merci à toute la bande de copains que j'ai connu à Lyon, dont l'amitié perdure au-delà des expatriations en post-doc ou dans des lycées du nord de la France. Et j'adresse enfin mon plus grand merci à Marie, Fabrice et Alexi pour leur gentillesse durant ces quatre années de colocation qui resteront mémorables et pour toutes ces sorties en montagne aussi bien autour de Grenoble que vers Briançon, Annecy et Chamonix. Restez tous sur Grenoble, j'y reviendrai (au moins pour les vacances!)

Table des matières

Introduction	9
1 Description des effets de proximité	13
1.1 Les structures Supraconducteur/Normal	14
1.1.1 Réflexion d'Andreev	14
1.1.2 Corrélations induites par proximité	19
1.1.3 Supercourant dans les jonctions S/N/S	22
1.1.4 Autres systèmes S/N	29
1.1.5 Effet de proximité inverse	31
1.2 Les structures Supraconducteur/Ferromagnétique	32
1.2.1 Ferromagnétisme itinérant	32
1.2.2 Longueur de cohérence ferromagnétique	34
1.2.3 Etat π dans les jonctions S/F/S	36
1.2.4 Cas des bicouches S/F	39
1.2.5 Tricouches $F_1/S/F_2$ type vanes de spin	42
2 Calcul des grandeurs caractéristiques	47
2.1 Formalisme des fonctions de Green semi-classiques	48
2.1.1 Formalisme en énergie	48
2.1.2 Formalisme de Matsubara	49
2.2 Supercourant dans les jonctions S/N/S	52
2.2.1 Solution analytique	52
2.2.2 Densité spectrale de supercourant	54
2.2.3 Supercourant à l'équilibre et hors-équilibre	55
2.3 Supercourant dans les jonctions S/F/S	59
2.3.1 Faible énergie d'échange	59
2.3.2 Grande énergie d'échange	62
2.3.3 Dépendance en température de l'énergie d'échange	64
2.4 Température de transition des multicouches S/F	66
2.4.1 Bicouches S/F	66
2.4.2 Tricouches $F_1/S/F_2$	71
3 Etude des multicouches S/F	75
3.1 Préparation et mesure des échantillons	79
3.1.1 Fabrication des multicouches	79

3.1.2	Aimantation et résistance	81
3.1.3	Caractérisation du niobium	84
3.2	Etude des multicouches NiO/Co/Nb/Co	88
3.2.1	Propriétés magnétiques	88
3.2.2	Température de transition supraconductrice	93
3.2.3	Magnéto-résistance à la transition	94
3.3	Utilisation d'alliages cuivre-nickel	100
3.3.1	Généralités sur les alliages massifs	100
3.3.2	Fabrication des alliages	101
3.3.3	Propriétés magnétiques du $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$	103
3.3.4	Propriétés magnétiques du $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$	105
3.3.5	Transition supraconductrice des vannes de spin	108
3.3.6	Vannes de spin classiques avec du cuivre	110
3.4	Effet de proximité dans le système Nb/ $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$	112
3.4.1	Oscillation de la température de transition	112
3.4.2	Comparaison avec le modèle théorique	113
3.4.3	Discussion sur l'énergie d'échange	113
3.4.4	Dépendance avec l'épaisseur de niobium	114
3.4.5	Saturation de l'épaisseur critique	115
4	Etude des jonctions S/F/S	117
4.1	Fabrication des jonctions	118
4.1.1	Géométrie des échantillons	118
4.1.2	Description du procédé	118
4.1.3	Caractérisation du niobium	122
4.1.4	Caractérisation du cuivre-nickel	122
4.2	Dispositif de mesure des jonctions	127
4.2.1	Connexions dans le cryostat	127
4.2.2	Picovoltmètre à SQUID	127
4.2.3	Mesure du courant critique	130
4.3	Transition $0 - \pi$ en température	132
4.3.1	Caractéristique tension-courant	132
4.3.2	Annulation du courant critique à T^*	132
4.3.3	Figures en champ magnétique	134
4.4	Evolution avec l'épaisseur de cuivre-nickel	136
4.4.1	Jonctions avec une transition $0 - \pi$	136
4.4.2	Jonctions dans l'état 0	139
4.4.3	Jonctions dans l'état π	139
4.5	Etude des figures de diffraction	142
4.5.1	Dépendance en température	142
4.5.2	Distorsion des figures	143
4.5.3	Conséquence sur les courants critiques	145
4.6	Effet Josephson alternatif	147
4.6.1	Description des marches de Shapiro	147

4.6.2	Etude expérimentale des marches de Shapiro	148
4.6.3	Tension Josephson alternative autour de T^*	152
4.7	Comparaison avec le modèle théorique	155
4.7.1	Modèle avec énergie d'échange constante	155
4.7.2	Energie d'échange dépendante de la température	157
4.7.3	Discussion de l'amplitude du courant critique	158
4.7.4	Comparaison avec d'autres jonctions π	162
Conclusions et perspectives		165
Bibliographie		169

Introduction

La supraconductivité a été découverte expérimentalement par Kamerlingh Onnes en 1911 sur un échantillon de mercure dont la résistance électrique disparaît brutalement en-dessous de 4.16 K. Dans le tableau périodique des éléments, on trouve une vingtaine de métaux purs qui sont supraconducteurs, dont le niobium qui a une température de transition de 9.25 K. Cet état de résistance nulle est une manifestation à l'échelle macroscopique de la cohérence de phase de tous les électrons appartenant à la même fonction d'onde. Ce phénomène est la conséquence d'une interaction attractive entre les électrons de conduction au voisinage du niveau de Fermi permettant de former des états liés de deux électrons appelés paires de Cooper. La charge négative d'un électron attire localement les ions positifs du réseau cristallin et cette déformation attire à son tour un deuxième électron situé à proximité. L'interaction attractive qui en résulte l'emporte sur la répulsion Coulombienne entre les deux charges négatives (écrantée par la présence des autres électrons du métal).

Contrairement à la supraconductivité qui nécessite un grand nombre d'électrons dans une bande de conduction métallique, le magnétisme est une propriété qui apparaît dès l'échelle atomique. La répulsion Coulombienne entre les électrons provoque le remplissage des orbitales atomiques avec des spins orientés dans la même direction : c'est la règle de Hund et ce processus est appelé interaction d'échange entre spins. L'atome peut alors porter un moment magnétique responsable d'un comportement paramagnétique en présence d'un champ extérieur. Lorsque les différents moments d'un solide sont couplés par interaction d'échange, il peut apparaître du ferromagnétisme qui se manifeste à l'échelle macroscopique par une aimantation spontanée.

Le magnétisme et la supraconductivité sont les deux principales transitions de phases électroniques qui peuvent se produire dans les solides. Ces deux états de la matière sont caractérisés par des paramètres d'ordre macroscopiques qui révèlent les interactions microscopiques entre les électrons. Le magnétisme nécessite une forte répulsion Coulombienne alors que la supraconductivité requiert au contraire une interaction attractive : ces deux propriétés ne peuvent donc pas être portées par les mêmes électrons. Il existe toutefois des matériaux qui sont supraconducteurs dans un intervalle de température puis ferromagnétiques en-dessous. Ils sont composés de deux sous-réseaux d'atomes, l'un comportant des moments magnétiques localisés couplés entre eux, l'autre des électrons de conduction en interaction attractive. Les deux états macroscopiques ne se produisent pas en même temps car ils sont par nature antagonistes : les électrons sont appariés en paire de spins opposés dans un supraconducteur alors que le champ d'échange favorise un alignement parallèle dans l'état ferromagnétique. La coexistence n'est possible que si ces champs sont nuls en moyenne avec des domaines de directions opposées ou bien dans l'état antiferromagnétique.

Si l'état supraconducteur apparaissait malgré tout en présence d'un champ d'échange uniforme, le paramètre d'ordre serait alors spatialement inhomogène avec un gradient de phase. Cet état est très difficile à mettre en évidence expérimentalement, c'est pourquoi les recherches se sont orientées vers des structures artificielles qui devraient présenter le même genre de phénomène. Dans une multicouche constituée d'un empilement de couches supraconductrices et ferromagnétiques, la supraconductivité pourrait dans certaines conditions s'étendre à l'ensemble du système avec un déphasage de π à chaque traversée d'une couche ferromagnétique. Ce mécanisme a été proposé initialement par Buzdin et al. [20] dans le cas d'une jonction Josephson S/F/S avec une barrière ferromagnétique. La valeur critique du courant supraconducteur doit théoriquement présenter des oscillations en fonction de l'épaisseur et de l'énergie d'échange indiquant que la différence de phase entre les deux électrodes peut être 0 ou π dans l'état fondamental.

L'intérêt d'une jonction π est de faire apparaître spontanément un courant lorsqu'elle est placée dans une boucle supraconductrice ou encore de décaler d'un demi quantum de flux la figure d'interférences d'un SQUID $0-\pi$. Cette propriété des jonctions π avait été discutée auparavant par Bulaevskii et al. [18] dans le cas d'une jonction tunnel avec une barrière isolante contenant des impuretés paramagnétiques. Lorsque l'effet tunnel se fait majoritairement en passant par les impuretés, on devrait obtenir une jonction π . Notons qu'il est également possible de réaliser un SQUID $0-\pi$ en connectant les deux extrémités d'un fil supraconducteur conventionnel de symétrie s aux deux directions cristallographiques d'un supraconducteur non-conventionnel de symétrie d . Cette expérience a été réalisée et a permis de déterminer la symétrie du paramètre d'ordre des supraconducteurs à haute température. En revanche dans le cas des impuretés paramagnétiques l'existence de la jonction π n'a jamais été démontrée expérimentalement, de même qu'elle ne l'avait pas été dans le cas S/F/S avec un métal ferromagnétique avant le début de cette thèse.

Cette démonstration a désormais été faite par Ryazanov et al. [78], et nous présenterons dans le chapitre 4 une étude expérimentale qui met en évidence la réalisation d'une jonction π en utilisant une barrière faiblement ferromagnétique en alliage cuivre-nickel et des électrodes en niobium. Cette jonction π est révélée par la dépendance non-monotone du courant critique, d'une part en fonction de l'épaisseur de la barrière ferromagnétique en utilisant plusieurs jonctions, et d'autre part en fonction de la température pour chaque jonction.

Le chapitre 1 tente d'expliquer de façon intuitive l'origine de la jonction π en analysant les propriétés, et en particulier le *signe*, du courant supraconducteur lorsqu'il traverse un métal ferromagnétique. Pour cela il est nécessaire de montrer de quelle manière le supercourant apparaît afin de comprendre la signification de son *signe* pour une différence de phase donnée entre les électrodes. Nous présenterons ainsi en détail les propriétés des états liés qui se forment dans un métal normal entre deux supraconducteurs dans une jonction S/N/S. Le passage au cas des jonctions S/F/S se fera alors naturellement, en considérant la sensibilité de ces états liés à l'énergie d'échange ferromagnétique.

Le chapitre 2 est destiné à fournir un modèle simple pour calculer le courant critique des jonctions S/F/S en fonction de l'énergie d'échange et de la température. Ce modèle doit pouvoir s'appliquer au cas où l'énergie d'échange est du même ordre de grandeur que le gap du supraconducteur. Dans ces conditions l'obtention d'une solution analytique nécessite de faire certaines approximations qui seront discutées. Contrairement à la plupart des études

antérieures, nous avons privilégié la formulation spectrale du supercourant afin de faire le lien avec les états liés du chapitre 1. Cette approche permet également d'introduire simplement l'énergie d'échange pour passer du cas S/N/S au cas S/F/S. La dépendance non-monotone du courant critique en fonction de la température apparaît de façon intuitive comme la conséquence des excitations thermiques.

Bien que l'accent ait été mis sur l'étude des jonctions π , un autre aspect de ce travail de thèse concerne l'effet de proximité inverse dans les multicouches S/F. Les variations de la température de transition supraconductrice reflètent l'existence des états liés et leur dépendance avec l'énergie d'échange. Elles permettent ainsi de mesurer de façon indirecte la manière dont la supraconductivité pénètre dans la couche ferromagnétique. Dans le chapitre 3 nous présenterons ainsi une étude expérimentale de tricouches $F_1/S/F_2$ dans lesquelles nous avons cherché une influence de l'orientation relative des aimantations sur la température de transition supraconductrice. Nous étudierons également le cas des bicouches S/F dans lesquelles le déplacement des états liés se manifeste par une oscillation de la température de transition en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique. Ces deux effets seront décrits qualitativement dans le chapitre 1, puis quantitativement dans le chapitre 2 en utilisant les théories existantes.

Chapitre 1

Description des effets de proximité

En mettant au contact un supraconducteur et un métal normal, il apparaît de nouveaux états au voisinage de l'interface. Ce sont des associations cohérentes de deux particules qui quittent le condensat de paires de Cooper et se propageant dans le métal normal. Ces états introduits théoriquement par Andreev modifient de façon importante les propriétés électroniques du métal normal au voisinage du niveau de Fermi dans une fenêtre d'énergie égale au gap. En contrepartie l'existence de ces états est responsable d'une réduction de l'amplitude d'appariement en paires de Cooper dans le supraconducteur. Ces deux types de phénomènes faisant intervenir les états d'Andreev sont appelés respectivement *effet de proximité direct* et *effet de proximité inverse*.

L'objectif de la première partie est de montrer comment ces états d'Andreev permettent d'expliquer les effets de cohérence qui apparaissent dans un métal normal en contact avec un supraconducteur. Nous nous intéresserons principalement au cas des jonctions Josephson S/N/S en traitant le cas balistique qui permet d'expliquer de façon simple l'origine du supercourant. Les processus qui décrivent les jonctions serviront également à expliquer ce qui se passe dans d'autres structures S/N comme l'ouverture d'un mini-gap et l'apparition de la réentrance. L'origine de l'effet de proximité inverse sera également discuté en considérant les états d'Andreev.

Dans la seconde partie nous rajouterons les ingrédients nécessaires pour décrire le cas des systèmes où le métal normal est ferromagnétique. La présence d'une énergie d'échange modifie de façon importante l'étendue et les propriétés de la cohérence induite dans le métal ferromagnétique. En particulier la relation courant-phase des jonctions S/F/S peut être modifiée avec un coefficient négatif qui provoque un changement de l'état fondamental de la jonction, avec l'apparition d'une différence de phase égale à π . Nous discuterons ensuite l'origine des oscillations de densité d'états et de température de transition dans les bicouches S/F en fonction de l'épaisseur ferromagnétique. Enfin dans les tricouches $F_1/S/F_2$, l'effet de proximité inverse est sensible à la direction relative des aimantations ferromagnétiques conduisant à des effets de type vanne de spin qui seront décrits à la fin de ce chapitre.

1.1 Les structures Supraconducteur/Normal

1.1.1 Réflexion d'Andreev

La description microscopique de la transmission des particules à une interface S/N a été faite originalement par Andreev [3] en 1964 pour calculer la conductance thermique d'un supraconducteur de type I dans l'état intermédiaire. Le condensat ne transportant pas de chaleur, seuls les états excités d'énergies supérieures au gap interviennent dans ce calcul. En considérant ces énergies là, Andreev a montré que les fonctions d'onde des quasi-particules de type électron et de type trou sont corrélées dans le métal normal car elles doivent satisfaire ensemble à une relation de continuité à l'interface S/N.

L'étude des excitations d'énergies inférieures au gap a également été faite par Andreev [4] en 1966 pour calculer les propriétés thermodynamiques à basse température. L'état intermédiaire ayant une structure périodique, les régions normales sont confinées entre deux régions supraconductrices et les excitations apparaissent sous forme d'états liés. C'est la même situation qui se présente dans le cas des jonctions S/N/S que nous allons étudier.

La structure des états d'Andreev étant directement reliée à celle du condensat, il est utile de commencer par préciser la forme de l'état fondamental du supraconducteur.

Fonction d'onde de l'état fondamental BCS

L'état supraconducteur à température nulle est une redistribution de l'occupation des états au voisinage du niveau de Fermi. Le coût en énergie des électrons de vecteurs d'ondes supérieurs à k_F est compensé par le gain en énergie dû à l'appariement en paires de Cooper. La fonction d'onde de l'état fondamental a été établie par Bardeen, Cooper et Schrieffer [7] :

$$|\Psi_{BCS}(\phi)\rangle = \prod_k [|u(k)| + |v(k)| e^{i\phi} a_{-k\uparrow}^+ a_{k\downarrow}^+] |0\rangle \quad (1.1)$$

(l'opérateur $a_{k\downarrow}^+$ place un électron dans l'état k avec le spin vers le bas et $|0\rangle$ est l'état vide). Les états autour du niveau de Fermi ne sont que partiellement remplis par des électrons sur une fenêtre d'énergie Δ . Chaque état k contient en effet la fraction $v(k)$ d'un électron

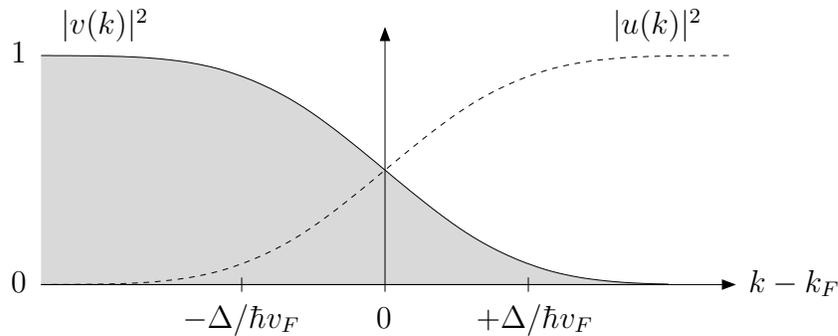


FIG. 1.1 – Amplitude des composantes électron $v(k)$ et trou $u(k)$ dans la fonction d'onde BCS de l'état fondamental d'un supraconducteur.

et la fraction complémentaire $u(k)$ d'un trou, ces deux fonctions étant représentées sur la figure 1.1 et vérifiant $|u(k)|^2 + |v(k)|^2 = 1$. Cette structure particulière provient du fait que le nombre de paires n'est pas fixé dans un supraconducteur de phase ϕ donnée [85]. Sa fonction d'onde est une superposition d'états avec différents nombres de paires, de sorte que chaque état k n'est que partiellement rempli. Cette écriture montre aussi que tous les électrons appartiennent à la même fonction d'onde, ils sont tous cohérents. De plus la phase macroscopique ϕ du supraconducteur apparaît comme la phase relative des composantes électron par rapport aux composantes trou. Cette propriété est essentielle car elle permet d'expliquer l'origine du courant Josephson dans une jonction S/N/S.

Structure des états d'Andreev

Les excitations d'un système balistique constitué d'une région normale et d'une région supraconductrice sont solutions des équations de Bogoliubov et de Gennes [32]. Elles ressemblent à celles établies par Bardeen, Cooper et Schrieffer [7] pour décrire les supraconducteurs homogènes, sauf que les potentiels sont fonction de la position dans le système. Ces équations couplent les fonctions d'onde de type électron $\eta(x, t)$ et de type trou $\chi(x, t)$ par l'intermédiaire du potentiel $\Delta(x)$ qui représente l'énergie de condensation d'une paire de Cooper dans le supraconducteur. Ce potentiel décroît près de l'interface et s'annule dans le métal normal. Les fonctions η et χ vérifient le système suivant :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \mu \right] \eta + \Delta \chi = +i \hbar \partial_t \eta \quad (1.2)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \mu \right] \chi - \Delta \eta = -i \hbar \partial_t \chi \quad (1.3)$$

Considérons le cas unidimensionnel de la figure 1.2 où l'interface parfaite en $x = 0$ sépare le supraconducteur côté $x < 0$ et le métal normal côté $x > 0$. Les solutions pour un état excité d'énergie $0 < \epsilon < \Delta$ (par rapport au niveau de Fermi μ) et de vecteur d'onde $k > 0$ sont de la forme :

$$x > 0, \quad \begin{bmatrix} \eta \\ \chi \end{bmatrix}_N = e^{i(k_e x - \epsilon t / \hbar)} \begin{bmatrix} e^{i\varphi_0} \\ 0 \end{bmatrix} + e^{i(k_h x - \epsilon t / \hbar)} \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (1.4)$$

$$x < 0, \quad \begin{bmatrix} \eta \\ \chi \end{bmatrix}_S = e^{i(k_s x - \epsilon t / \hbar)} \begin{bmatrix} e^{i\varphi_0} \\ 1 \end{bmatrix} \quad (1.5)$$

$$k_e = k_F + \frac{\epsilon}{\hbar v_F} \quad (1.6)$$

$$k_h = k_F - \frac{\epsilon}{\hbar v_F} \quad (1.7)$$

$$k_s = k_F - i \frac{\sqrt{\Delta^2 - \epsilon^2}}{\hbar v_F} \quad (1.8)$$

$$\varphi_0 = \phi - \arccos \left(\frac{\epsilon}{\Delta} \right) \quad (1.9)$$

Dans le supraconducteur, l'état excité d'énergie inférieure au gap est une onde évanescente dont la longueur de pénétration est égale à la longueur de cohérence à énergie nulle et diverge

à l'approche du gap. C'est un état composé d'une partie électron et d'une partie trou avec le même poids pour les deux composantes, mais avec une différence de phase φ_0 . Celle-ci contient la phase macroscopique ϕ du supraconducteur, plus un terme lié au caractère évanescent de l'état excité et qui vaut $-\pi/2$ à énergie nulle.

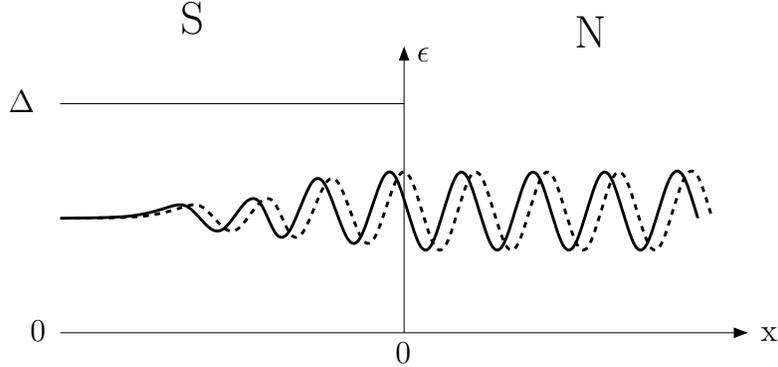


FIG. 1.2 – Représentation d'un état d'Andreev à l'interface entre un supraconducteur et un métal normal : les fonctions d'onde de l'électron (trait continu) et du trou (pointillés) sont étendues du côté N et évanescents du côté S avec un déphasage φ_0 à l'interface.

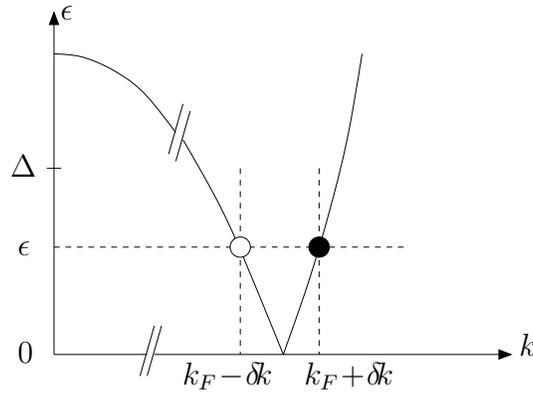


FIG. 1.3 – Relation de dispersion des excitations de type électron et de type trou dans le métal normal. Différence de vecteurs d'onde entre l'électron et le trou d'une paire d'Andreev d'énergie $\epsilon < \Delta$.

L'étude de la situation symétrique avec un vecteur d'onde de sens contraire $k < 0$ conduit à une phase relative $\varphi_0 = \phi + \arccos(\epsilon/\Delta)$, dont le second terme vaut $+\pi/2$ à énergie nulle. Nous verrons dans la suite que ces deux valeurs $\pm\pi/2$ sont à l'origine du mini-gap dans les bicouches S/N et les jonctions S/N/S.

Pour l'étude du cas ferromagnétique qui viendra, il est également important de préciser que l'état excité a des composantes électron et trou de spins opposés : on a par exemple η_\uparrow et χ_\downarrow . Cette propriété est une conséquence de l'appariement en paires de Cooper avec des électrons de spins opposés dans le condensat.

A l'intérieur du métal normal, les composantes de types électron et trou sont séparées car les excitations sont soit purement de type électron, soit purement de type trou. Les deux

particules de cette paire d'Andreev ont des vecteurs d'onde différents à énergie finie ϵ . En effet l'électron est au-dessus du niveau de Fermi ($k_e = k_F + \delta k$) alors que le trou est créé en-dessous avec la même énergie d'excitation ($k_h = k_F - \delta k$) comme le montre la figure 1.3. C'est la relation de continuité avec l'état évanescents dans le supraconducteur qui est à l'origine de leur cohérence en leur imposant une phase relative φ_0 à l'interface S/N.

Occupation des états d'Andreev

Comme nous l'avons vu à partir de l'expression (1.1), l'état fondamental d'un supraconducteur est une redistribution de l'occupation des états autour du niveau de Fermi. Les électrons sont virtuellement excités dans une fenêtre d'énergie égale au gap avec en particulier des vecteurs d'onde $k > k_F$. Lorsqu'un tel électron $k_{e1} = k_F + \delta k$ arrive à l'interface avec le métal normal et que la transparence est parfaite, il veut passer dans le métal normal. Cependant il ne peut pas quitter seul le condensat car ce dernier doit toujours contenir un nombre pair d'électrons. Il faut donc qu'un deuxième électron quitte le condensat et d'après la fonction d'onde de l'état d'Andreev cet électron doit se trouver sous le niveau de Fermi avec un vecteur d'onde opposé $k_{e2} = -(k_F - \delta k)$ de sorte qu'il puisse se recombinaison avec le trou de vecteur d'onde $k_h = k_F - \delta k$. L'électron transféré au-dessus du niveau de Fermi et le trou absorbé en-dessous constituent une paire d'Andreev d'énergie $\epsilon = \hbar v_F \delta k$. Ils ont des vecteurs d'onde de même direction mais des vitesses de groupe opposées, il est donc normal que le trou arrive sur l'interface et que l'électron en reparte. L'existence d'électrons de vecteurs d'onde $k > k_F$ dans l'état fondamental du supraconducteur est à l'origine de la présence d'électrons au-dessus du niveau de Fermi dans le métal normal même à température nulle. Cette fuite des électrons du condensat est par ailleurs responsable d'une réduction de l'amplitude de condensation du supraconducteur au voisinage de l'interface, c'est l'effet de proximité inverse.

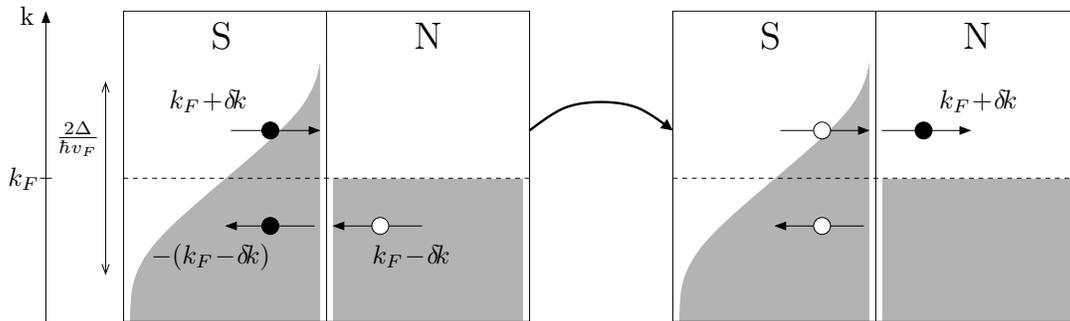


FIG. 1.4 – *Processus de passage de deux électrons du condensat supraconducteur S vers le métal normal N. Le passage est direct pour l'électron au-dessus du niveau de Fermi alors que celui situé en-dessous se recombine avec le trou de l'état d'Andreev. Les zones grisées représentent l'occupation des états en fonction du vecteur d'onde k à température nulle dans le condensat S et dans la mer de Fermi N.*

Il est possible de considérer le processus inverse où l'électron arrive du métal normal au-dessus du niveau de Fermi et pénètre dans le supraconducteur. Le condensat devant intégrer

un nombre pair d'électrons, un second électron est prélevé sous le niveau de Fermi et laisse un trou dans le métal normal. On dit que le trou est "rétro-réfléchi" car son vecteur d'onde est dans la même direction que l'électron incident (une réflexion spéculaire de l'électron sur la barrière de potentiel que représente le gap n'est pas possible car le condensat ne peut pas absorber la différence d'impulsion qui est de l'ordre de $\hbar k_F$). Les deux électrons qui ont franchi l'interface sont ensuite intégrés au condensat, ce mécanisme équivaut donc à transférer une paire de Cooper à partir d'un électron incident et avec réflexion cohérente d'un trou dans le métal normal.

Conductance des états d'Andreev

Dans le cas d'une interface entre deux métaux normaux, le courant est la conséquence d'une dissymétrie entre le nombre de charges qui se déplacent de gauche à droite et de droite à gauche en présence d'une tension. Dans le cas d'une interface entre un métal normal et un supraconducteur, ce courant d'électrons au dessus du niveau de Fermi se double d'un courant de trous sous le niveau de Fermi (figure 1.5). Cette nouvelle possibilité provient de la structure particulière de l'état fondamental du supraconducteur qui est constitué de combinaisons électron-trou. Chaque électron qui pénètre dans le supraconducteur au-dessus du niveau de Fermi produit un trou rétro-réfléchi dans le métal normal sous le niveau de Fermi. Chaque processus fait donc intervenir deux électrons en même temps : le métal normal perd un électron et gagne un trou, pendant que le supraconducteur gagne deux électrons. Ce transport par groupe de deux charges élémentaires a été démontré expérimentalement par Jehl et al. [54] grâce à l'étude du bruit de grenaille d'une jonction Nb/Cu.

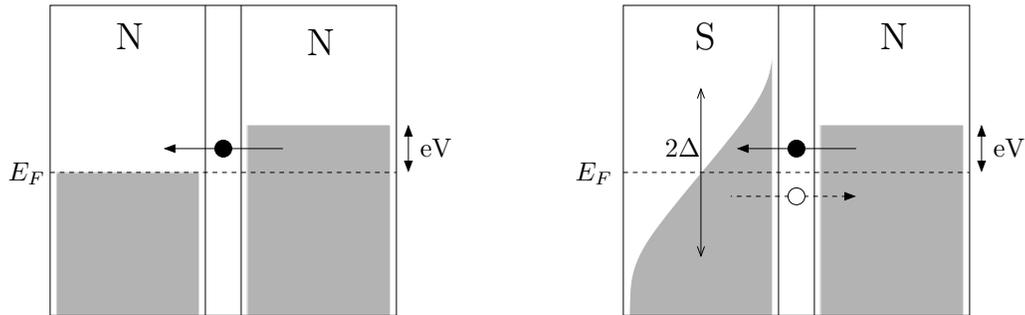


FIG. 1.5 – Schéma d'une interface S/N montrant le doublement de la conductance par rapport au cas N/N grâce aux trous produits par la réflexion d'Andreev.

Pour les énergies $\epsilon > \Delta$, les composantes électron et trou de l'état d'Andreev n'ont plus la même amplitude, l'état excité dans le supraconducteur devient de type majoritairement électron et le processus de réflexion en trou à l'interface disparaît progressivement. Ainsi la conductance différentielle $G_{SN}(eV)$ d'une interface S/N parfaite est le double de sa valeur dans l'état normal G_{NN} pour $eV < \Delta$ et elle tend progressivement vers G_{NN} pour $eV > \Delta$ (le cas général d'une transparence imparfaite de l'interface a été traitée par Blonder, Tinkham et Klapwijk [14]).

1.1.2 Corrélations induites par proximité

Cohérence électron-trou

Les ondes de l'électron et du trou d'une paire d'Andreev sont cohérentes dans le métal normal car l'une est issue de l'autre à la suite du processus de rétro-réflexion à l'interface avec le supraconducteur. Les trajectoires sont superposées car les vecteurs d'onde sont parallèles et de plus les fréquences des ondes sont identiques car les énergies sont les mêmes (ce sont des excitations respectivement au-dessus et en-dessous du niveau de Fermi). Les ondes pourraient donc interférer si elles étaient de même nature, mais ce n'est pas le cas : l'électron est une vraie particule, alors que le trou est l'absence d'un électron dans la mer de Fermi, et en plus elles n'ont pas le même spin. La cohérence ne se manifeste donc pas par des interférences électron-trou et il faut faire intervenir un processus supplémentaire pour faire apparaître des interférences entre deux ondes de même nature. Ce second processus est simplement une deuxième réflexion d'Andreev qui convertit le trou issu de la première réflexion en un nouvel électron qui va pouvoir interférer avec l'électron initial.

Interférences dans le cas balistique

Prenons le cas d'une région normale entre deux interfaces parallèles avec des supraconducteurs de même phase ($\phi_1 = \phi_2$) et une trajectoire balistique donc rectiligne (figure 1.6). Un électron part dans une direction, il est rétro-réfléchi à l'interface N/S en trou de vecteur d'onde légèrement inférieur, de même sens et quasi-parallèle (pas parfaitement car la conservation des composantes tangentielles induit un très léger décalage). La vitesse de groupe du trou étant opposée, il repart dans l'autre direction en suivant la même trajectoire, mais il n'interfère pas avec l'électron. Il subit une réflexion d'Andreev à l'autre interface générant un second électron identique au premier et avec lequel il va pouvoir interférer. L'état d'interférence sera plutôt constructif ou destructif suivant leur différence de phase.

À énergie nulle les vecteurs d'onde de l'électron et du trou sont identiques ($k_e = k_h$) de sorte que la phase accumulée par l'électron au cours d'un trajet est exactement annulée par le trou qui remonte la trajectoire dans l'autre sens. Il n'y a donc pas de différence de phase induite par la propagation : $\Delta\varphi = 0$. Cependant la phase du trou se décale par rapport à celle de l'électron au moment de la première réflexion : $\varphi_h - \varphi_{e_1} = -\pi/2$, puis celle du nouvel électron de la même valeur : $\varphi_{e_2} - \varphi_h = -\pi/2$ à la deuxième réflexion. Au final les deux ondes électroniques sont déphasées de $\varphi_{e_2} - \varphi_{e_1} = -\pi$, elles interfèrent donc destructivement.

À énergie finie inférieure au gap, la petite différence des vecteurs d'onde ($k_e - k_h = 2\epsilon/\hbar v_F = 2\delta k$) ajoute une différence de phase proportionnelle à la longueur \mathcal{L} de la trajectoire : $\Delta\varphi = 2\delta k \mathcal{L}$ (et par ailleurs les décalages φ_0 aux interfaces diminuent). L'état de l'interférence électron-électron issue des deux réflexions d'Andreev est donc fonction de l'énergie d'excitation et de la trajectoire considérée.

Ces interférences augmentent ou diminuent les probabilités d'existence de certains états, elles modifient donc les propriétés du métal normal comme les densités d'états. Mais pour qu'elles puissent avoir lieu, nous avons vu qu'il est nécessaire d'avoir au moins deux réflexions d'Andreev et un aller-retour cohérent de phase sur la même trajectoire. Dans le cas balistique, ce processus est possible dans une cavité S/N/S, mais il ne l'est plus dans un système S/N si

le métal normal est semi-infini car il n'y a pas de deuxième réflexion. On s'attend donc à ce que les propriétés électroniques du métal ne soient modifiées que s'il est de taille finie permettant plusieurs réflexions et des interférences.

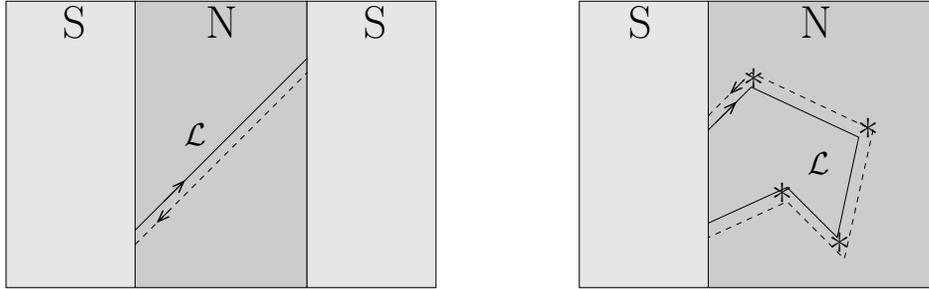


FIG. 1.6 – Cavity balistique (à gauche) entre deux supraconducteurs permettant aux états d'Andreev de produire des interférences. Trajectoires des paires d'Andreev en régime diffusif (à droite). \mathcal{L} est la longueur totale de la trajectoire entre deux réflexions d'Andreev.

Interférences dans le cas diffusif

Dans ce régime il en est autrement à cause de la probabilité non-nulle de retour à l'interface S/N même dans le cas où N est semi-infini. Les collisions élastiques diffusent le vecteur d'onde dans diverses directions et permettent à un électron partant de l'interface d'avoir une trajectoire qui y revienne, ce qui produit un trou rétro-réfléchi qui remonte la trajectoire précédente et une deuxième réflexion produit à nouveau un électron (figure 1.6). Cette trajectoire n'existe qu'à deux conditions : la cohérence ne doit pas être perdue au cours de l'aller-retour et l'interférence doit être constructive.

À énergie nulle $\epsilon = 0$, la phase relative de l'électron et du trou est la même en tout point de la trajectoire, car les deux vecteurs d'ondes sont égaux $k_e = k_h$. Dans ces conditions les trajectoires sont parfaitement superposées et les chocs élastiques diffusent les deux particules dans la même direction, elles peuvent donc rester cohérentes sur des trajectoires très longues. La cohérence n'est brisée que si une diffusion inélastique ou spin-flip modifie l'énergie ou le spin d'une des deux particules. La probabilité d'un tel processus est caractérisé par un temps de cohérence de phase τ_ϕ , correspondant à une distance depuis l'interface $L_\phi = v_F \tau_\phi$ en régime balistique et $L_\phi = \sqrt{D \tau_\phi}$ en régime diffusif.

À énergie finie ϵ , l'électron et le trou d'une paire d'Andreev ayant des vecteurs d'onde légèrement différents $k_e - k_h = 2\epsilon/\hbar v_F$, l'onde du trou se déphase progressivement en remontant la trajectoire. Ce déphasage dépasse 2π pour des chemins de longueur développée $\mathcal{L} > \hbar v_F/\epsilon$, ce qui correspond à des trajectoires semi-classiques qui se sont séparées spatialement de plus d'une longueur d'onde de Fermi. Dans ces conditions, au cours d'un processus de diffusion élastique sur une impureté ou un défaut, la direction la plus probable pour le vecteur d'onde diffusé n'est plus la même pour l'électron initial et pour le trou rétro-réfléchi. Après cette diffusion, la trajectoire du trou est différente, elle ne retourne plus à l'interface S/N au même endroit et il n'y a plus d'interférence. Ces trajectoires trop longues

$\tau = \mathcal{L}/v_F > \hbar/\epsilon$ ne participent donc pas à la cohérence. Les propriétés spectrales du métal normal à l'énergie ϵ ne sont donc modifiées que sur la distance caractéristique :

$$L_\epsilon = \sqrt{\frac{\hbar D}{\epsilon}} \quad (1.10)$$

où D est la constante de diffusion. Cette longueur diverge à basse énergie et permet d'observer des effets de cohérence sur de très grandes distances qui ne sont limitées que par L_ϕ comme l'indique la figure 1.7.

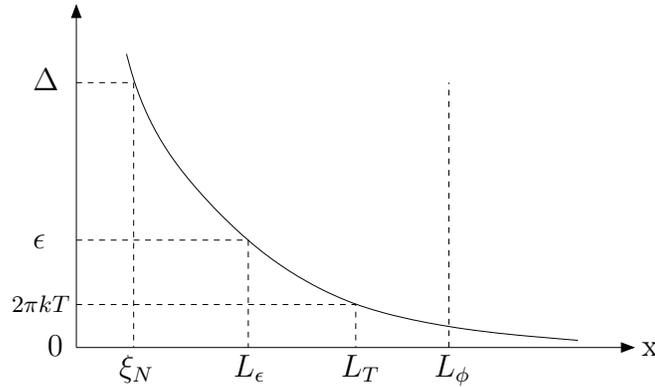


FIG. 1.7 – Longueur de cohérence L_ϵ d'une paire d'Andreev comprise entre ξ_N et L_ϕ . Longueur thermique L_T caractéristique de la pénétration des paires à température finie.

Influence de la température

Le phénomène de la supraconductivité apparaît en présence d'interactions attractives entre les électrons et grâce à l'existence de la surface de Fermi dans les métaux avec des états tous pleins en-dessous et tous vides au-dessus à température nulle. L'élargissement de la surface de Fermi par la température réduit le nombre d'interactions attractives entre les électrons et affaiblit la supraconductivité. La réduction de l'effet de proximité par la température peut de la même manière être vu comme un élargissement de la surface de Fermi qui supprime les paires d'Andreev de basse énergie. Ces excitations thermiques incohérentes remplacent les paires cohérentes injectées par le supraconducteur de sorte que le nombre de paires de faible énergie est fortement réduit. Les énergies possibles pour les paires commencent typiquement au-delà de $k_B T$. La distance caractéristique de l'extension des propriétés de cohérence est donc réduite à la longueur L_ϵ des paires situées au voisinage de $k_B T$ (figure 1.7). On définit ainsi la longueur thermique en régime diffusif par :

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \quad (1.11)$$

Cependant les états en-dessous de $k_B T$ ne sont que partiellement occupés thermiquement, il est donc possible d'observer quand même de la cohérence sur des distances beaucoup plus

grandes que L_T , mais l'amplitude des effets devient très faible. Des oscillations Aharonov-Bohm de période $h/2e$ caractéristique des paires ont ainsi été observées par Courtois et al. [27] dans un fil de cuivre contenant un anneau situé à une distance supérieure à L_T à partir de l'interface avec le supraconducteur. La seule véritable limite est la longueur de cohérence de phase L_ϕ .

1.1.3 Supercourant dans les jonctions S/N/S

Courant normal et courant permanent

Dans un métal chaque électron de la bande de conduction transporte un courant dans la direction de son vecteur d'onde. A l'équilibre tous ces courants individuels se compensent et aucun courant macroscopique ne circule. Pour établir un courant au travers d'une région métallique, il faut induire un déséquilibre entre les courants d'électrons qui vont dans un sens et dans l'autre.

Pour ce faire il est généralement nécessaire de créer une différence de potentiel chimique entre les deux extrémités du métal de façon à augmenter l'énergie des particules qui arrivent par exemple de la gauche par rapport à celles qui viennent de la droite. Dans l'intervalle d'énergie supplémentaire les courants d'électrons ne se compensent plus et un courant macroscopique circule. Si les particules subissent des chocs inélastiques au cours de leur transport, leur énergie baisse progressivement d'une électrode à l'autre, de même que le potentiel chimique. Si par contre les diffusions sont élastiques, la relaxation de l'énergie ne se fait qu'une fois arrivé dans l'autre électrode, c'est le régime mésoscopique. Ces deux situations correspondent à des courants normaux qui vérifient la loi d'Ohm, à savoir qu'il faut appliquer une tension pour voir apparaître un courant. La conductance est finie qu'il y ait ou non dissipation dans le métal.

Cette loi n'est plus valable dans le cas d'un courant supraconducteur qui peut exister en l'absence de tension. Le déséquilibre entre les deux directions de propagation n'est plus créé par une différence de potentiel chimique, mais par une différence de phase entre les deux extrémités. Il est naturel en mécanique quantique d'associer un courant à un gradient de phase de la fonction d'onde, c'est par exemple le cas du courant individuel d'un électron qui est relié à son vecteur d'onde. Dans un supraconducteur, tous les électrons étant dans la même fonction d'onde, un gradient de sa phase génère un courant macroscopique, sans qu'il soit besoin de créer des différences de population.

L'existence de tels courants permanents n'est pas spécifique aux supraconducteurs. Dès lors que les fonctions d'onde des électrons d'un système cohérent doivent vérifier des conditions aux limites, les niveaux d'énergie sont discrets et sensibles aux potentiels électromagnétiques. En particulier les deux états de vecteurs d'ondes opposés réagissent différemment au potentiel vecteur, leur dégénérescence est levée et ils ne transportent plus le même courant. Il en résulte un courant total non nul en l'absence de déséquilibre de population, uniquement à cause de la dissymétrie des états du système. Cette situation peut être réalisée dans un anneau mésoscopique où les conditions aux limites sont périodiques et modifiées par l'application d'un flux magnétique. C'est également le cas dans une jonction Josephson S/N/S où les excitations du métal normal sont confinées entre deux supraconducteurs. Dans ce cas les conditions aux limites peuvent être modifiées par la différence de phase ϕ .

Etats liés d'Andreev

Dans la région normale d'une jonction S/N/S, les paires d'Andreev qui vérifient les conditions aux limites imposées par les deux interfaces supraconductrices sont appelées états liés d'Andreev [59, 8, 42]. Leur dépendance avec la différence de phase $\phi = \phi_2 - \phi_1$ entre les deux électrodes est à l'origine du supercourant. Nous allons considérer dans cette partie le cas d'une jonction *unidimensionnelle* de longueur d en régime *ballistique*, comme celle schématisée sur la figure 1.8. Les états liés ne sont possibles que si la longueur de cohérence de phase est supérieure à la longueur de la jonction, nous considérerons donc le cas $L_\phi > d$.

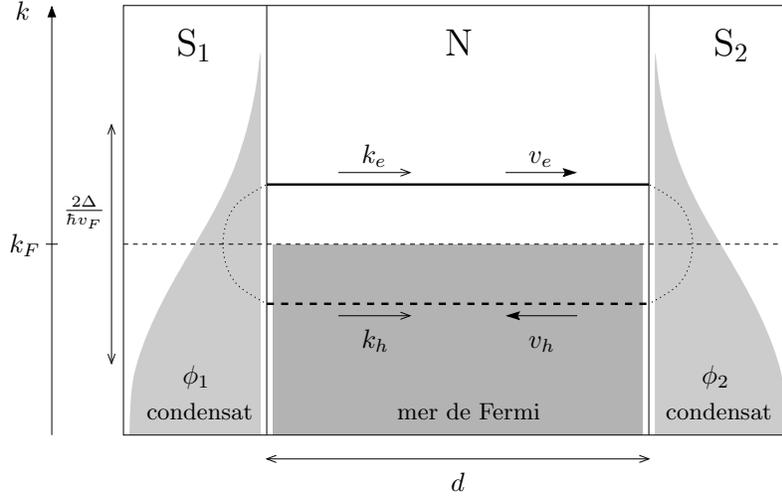


FIG. 1.8 – Jonction S/N/S balistique et unidimensionnelle de longueur d . Etat lié d'Andreev formé par un électron au-dessus du niveau de Fermi et un trou en-dessous. Les vecteurs d'onde k_e et k_h sont dans le même sens, mais les vitesses de groupe v_e et v_h sont opposées.

Commençons par le cas $\phi = 0$ et considérons la paire à énergie nulle $\epsilon = 0$. La phase relative entre l'électron et le trou vaut $\varphi_1 = -\pi/2$ à l'interface 1 pour $k_e > 0$, c'est-à-dire lorsque l'électron quitte l'électrode 1. Elle ne change pas ($\Delta\varphi = 0$) en traversant le métal normal car $k_e = k_h$. Cependant elle doit valoir $\varphi_2 = +\pi/2$ à l'interface 2 car $k_e > 0$ correspond maintenant à un électron entrant dans l'électrode 2. Il y a donc incompatibilité entre les phases imposées à chaque interface, il n'y a donc pas d'état lié d'Andreev à énergie nulle.

Considérons maintenant une paire à énergie finie $0 < \epsilon \ll \Delta$. Le vecteur d'onde de l'électron est plus grand que celui du trou $k_e > k_h$, car l'électron est au-dessus du niveau de Fermi, alors que le trou est créé en-dessous. La phase relative des deux ondes n'est plus constante à l'intérieur du métal normal, elle change de $\Delta\varphi = +2\epsilon d/\hbar v_F$ d'une interface à l'autre. Ainsi la phase de l'électron qui avait un retard $\varphi_1 = -\pi/2$ en quittant l'électrode 1 va pouvoir le rattraper. Si $\Delta\varphi = \pi$, alors la relation de continuité avec l'électrode 2 est vérifiée : $\varphi_2 = +\pi/2$ et il se crée un état lié d'Andreev. Plus généralement, ceci est valable pour tous les multiples impaires de π , ce qui donne des niveaux d'énergie discrets et équidistants :

$$\epsilon_n = (2n + 1) \frac{\pi \hbar v_F}{2d} = (2n + 1) \frac{\pi}{2} E_{Th} \quad , \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (1.12)$$

tant que $\epsilon_n \ll \Delta$ (jonction longue). $E_{Th} = \hbar v_F/d$ est l'énergie de Thouless en régime balistique, qui est supposée ici très inférieure au gap. Chaque état d'Andreev est dégénéré quatre fois : deux fois à cause de la paire de spins opposés et deux fois à cause de la paire de vecteurs d'onde opposés. Un état avec $k_e > 0$ transporte une charge $-2e$ (électron + trou) de gauche à droite, c'est-à-dire un courant négatif, il sera noté $(-)$. L'état avec $k_e < 0$ transporte le même courant mais dans l'autre sens, il sera noté $(+)$. Les deux états étant dégénérés, il n'y a pas de courant résultant en l'absence de différence de phase.

Plus la jonction est courte, plus les niveaux sont espacés, mais lorsque $E_{Th} \sim \Delta$, l'équation (1.12) n'est plus valable. Pour les énergies proches du gap, il faut tenir compte de la dépendance en énergie des phases imposées aux interfaces, qui valent $\varphi_1 = \phi_1 - \arccos(\epsilon/\Delta)$ et $\varphi_2 = \phi_2 + \arccos(\epsilon/\Delta)$ pour $k_e > 0$. Dans une jonction très courte telle que $\Delta\varphi \sim 0$, l'état lié $\epsilon = \Delta$ est possible pour $\phi = 0$ car $\varphi_1 = \varphi_2$, et c'est d'ailleurs le seul état lié.

Si on applique une différence de phase ϕ , les énergies des niveaux d'Andreev sont modifiées et vérifient dans le cas général :

$$\Delta\varphi = 2 \frac{\epsilon_n}{\hbar v_F} d = \pm\phi + 2 \arccos\left(\frac{\epsilon_n}{\Delta}\right) + n 2\pi \quad (1.13)$$

avec un signe positif devant la phase ϕ pour les paires $(-)$ avec $k_e > 0$ et un signe négatif pour les paires $(+)$ avec $k_e < 0$. La différence de phase ϕ lève donc la dégénérescence entre les états ϵ_n^- ($k_e > 0$) et ϵ_n^+ ($k_e < 0$) qui se propagent en sens contraire. L'état ϵ_n^- monte en énergie, alors que l'état ϵ_n^+ descend (voir figure 1.9). Cette sensibilité différente des niveaux d'énergie à la phase est responsable de l'apparition d'un supercourant.

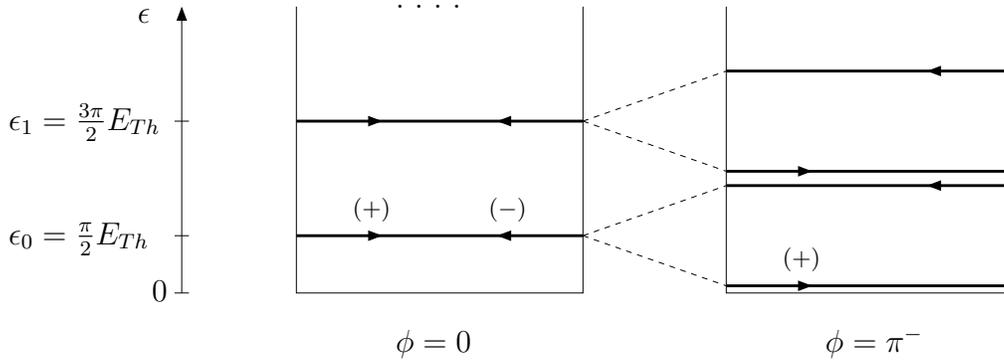


FIG. 1.9 – Spectre discret d'états liés d'Andreev dans une jonction $S/N/S$ balistique et unidimensionnelle avec $E_{Th} \ll \Delta$. Evolution avec la différence de phase ϕ .

Origine du supercourant à température nulle

A température nulle, tous les états liés d'Andreev d'énergie $\epsilon_n > 0$ sont disponibles pour transporter le supercourant. Les condensats des deux supraconducteurs injectent des paires d'Andreev dont le nombre diminue progressivement entre le niveau de Fermi et l'énergie du gap. Pour $\phi = 0$ le courant est nul puisqu'il y a autant de paires dans les deux directions, les niveaux étant dégénérés. Pour $\phi > 0$, la dégénérescence est levée, les courants des états ϵ_n^-

et ϵ_n^+ ne se compensent plus et le courant résultant de la somme sur tous les niveaux devient non-nul. Il est positif car ϵ_0^+ est l'état de plus basse énergie et transporte un courant positif. Le courant total augmente linéairement avec ϕ , jusqu'à ce que $\epsilon_0^+ = 0$, c'est-à-dire lorsque $\phi = \pi^-$ (figure 1.9). Pour $\phi = \pi$, on retrouve alors une dégénérescence des niveaux ϵ_n^- et ϵ_{n+1}^+ et le courant résultant s'annule brusquement. Dès que $\phi = \pi^+$ le courant s'inverse, car c'est maintenant l'état ϵ_{-1}^- de direction opposée qui domine. Puis le courant recommence à augmenter à partir de cette valeur négative et passe par zéro pour $\phi = 2\pi$. La relation courant phase à température nulle est une fonction en dents de scie de période 2π comme le montre la figure 1.10. Le calcul exact de Ishii [53] donne ce résultat en considérant tous les états (même ceux dans le continuum au-dessus du gap). L'intégration sur les états alternativement de directions opposées est équivalente à l'intégration d'un terme $e^{-2\epsilon/E_{Th}}$ qui montre que c'est l'état de plus basse énergie qui domine.

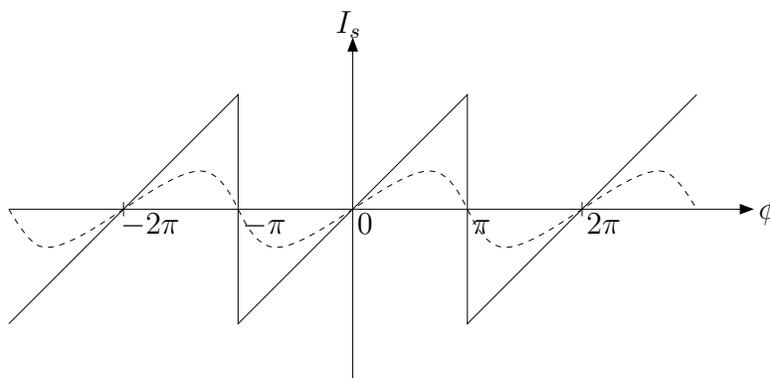


FIG. 1.10 – Relation courant-phase d'une jonction Josephson balistique : en dents de scie à température nulle (trait continu) et proche d'une sinusoïde à une température de l'ordre de l'énergie de Thouless (pointillés).

Il est possible d'établir qualitativement l'expression du supercourant de la façon suivante. Il varie entre zéro et sa valeur maximale pour ϕ entre 0 et π , nous mettrons donc un terme ϕ/π . Le courant porté par le premier état d'Andreev est égale à sa charge $2e$ divisée par le temps mis pour traverser la jonction d/v_F . Dans une surface \mathcal{S} de la jonction, il y a \mathcal{S}/λ_F^2 canaux possibles de vecteurs d'ondes transverses entre 0 et k_F . L'expression du courant Josephson s'écrit donc :

$$I_s(\phi) = \frac{\phi}{\pi} 2e \frac{v_F}{d} \frac{\mathcal{S}}{\lambda_F^2} = 2 \phi \frac{E_{Th}}{e R_n} \quad (1.14)$$

en écrivant l'énergie de Thouless $E_{Th} = \hbar v_F/d$ et la conductance d'un métal balistique $(1/R_n) = (2e^2/h)(\mathcal{S}/\lambda_F^2)$. Cette formule donne un courant critique tel que le produit $R_n I_c$ est de l'ordre de l'énergie de Thouless comme c'est effectivement le cas. Contrairement aux jonctions tunnel dans lesquelles le courant Josephson décroît exponentiellement avec l'épaisseur de la barrière isolante, il décroît ici beaucoup moins vite en $1/d$ car il est transporté dans le métal normal par des états liés étendus.

On peut également réécrire (1.14) d'une autre manière pour obtenir l'expression générale du courant dans un métal [8] :

$$I_s(\phi) = \mathcal{S} \frac{8}{\lambda_F^3} e \frac{\hbar \phi}{2m d} = \mathcal{S} n_v e v_s(\phi) \quad (1.15)$$

où $n_v = 8/\lambda_F^3$ est la densité d'états par unité de volume. Le supercourant correspond ainsi à une vitesse superfluide de paires créée par la différence de phase :

$$v_s(\phi) = \frac{\hbar}{2m} \frac{\phi}{d} \sim \frac{\hbar}{2m} \nabla \phi \quad (1.16)$$

Influence de la température

A température finie, les états d'Andreev d'énergies inférieures à $k_B T$ sont partiellement détruits par des excitations thermiques incohérentes qui ne peuvent pas contribuer au supercourant. Les états liés qui survivent se situent donc essentiellement au-delà de l'énergie $k_B T$. Le supercourant diminue exponentiellement avec la température en e^{-d/L_T} avec $L_T = \hbar v_F / 2\pi k_B T$.

Par ailleurs la relation courant-phase en dents de scie devient progressivement sinusoïdale lorsque la température devient du même ordre que l'énergie de Thouless, c'est-à-dire que l'énergie des niveaux. En effet, à température nulle, l'état ϵ_0^+ peut transporter un supercourant jusqu'à $\phi = \pi$ en descendant jusqu'à l'énergie nulle. Par contre, à température finie, cet état disparaît progressivement en passant en-dessous de $k_B T$. Le supercourant diminue donc avant d'atteindre $\phi = \pi$ et donne une forme sinusoïdale à la relation courant-phase.

Densité d'états dans le cas balistique

Dans le cas unidimensionnel décrit ci-dessus, la densité d'états est formé d'un ensemble discret de niveaux. Dans le cas tridimensionnel, les composantes des vecteurs d'onde $k_{//}$ parallèles aux interfaces donnent un degré de liberté supplémentaire, de sorte que la densité d'états devient un continuum d'états liés d'Andreev. A énergie nulle la densité d'état vaut toujours zéro (pour $\phi = 0$), car il n'y a aucune façon de réaliser $\Delta\varphi = \pi$ sans différence de vecteur d'onde. A énergie finie très inférieure à E_{Th} , il est maintenant possible de vérifier cette condition en prenant un vecteur d'onde quasiment parallèle à l'interface ($\theta \rightarrow \pi/2$) (voir figure 1.11) de sorte que le chemin parcouru par la paire ($\mathcal{L} = d/\cos\theta$) soit suffisamment long pour réaliser $\Delta\varphi = 2(\epsilon/\hbar v_F)\mathcal{L} = \pi$. Il n'y a donc pas de gap, seulement un *pseudo-gap* à énergie nulle. Pour toutes les énergies ϵ_n vérifiant (1.12), la densité d'états présente un pic car un état lié est possible dans la direction normale aux interfaces ($\mathcal{L} = d$) [42].

Densité d'états dans le cas diffusif

L'étude du régime diffusif conduit à un résultat différent. Les conditions aux limites ne s'appliquent plus à des trajectoires rectilignes, mais à des chemins de diffusion. Pour chaque énergie ϵ , il existe généralement un chemin avec le bon déphasage permettant de former un état lié, la densité d'états est donc continue. Cependant certaines énergies sont plus favorables

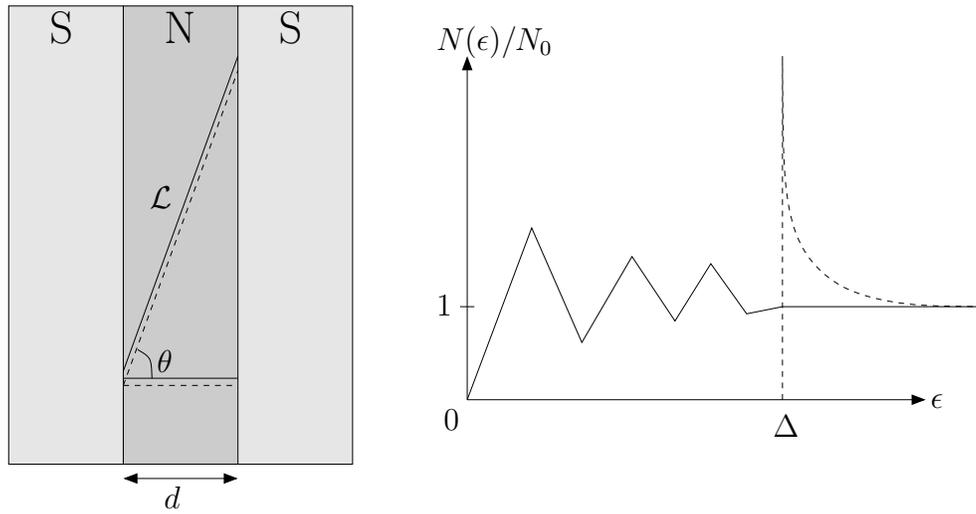


FIG. 1.11 – Trajectoire balistique normale à l'interface et trajectoire faisant un angle θ de longueur $\mathcal{L} = d/\cos\theta$. Allure qualitative de la densité d'états montrant des pics aux énergies des états liés pour $\theta = 0$.

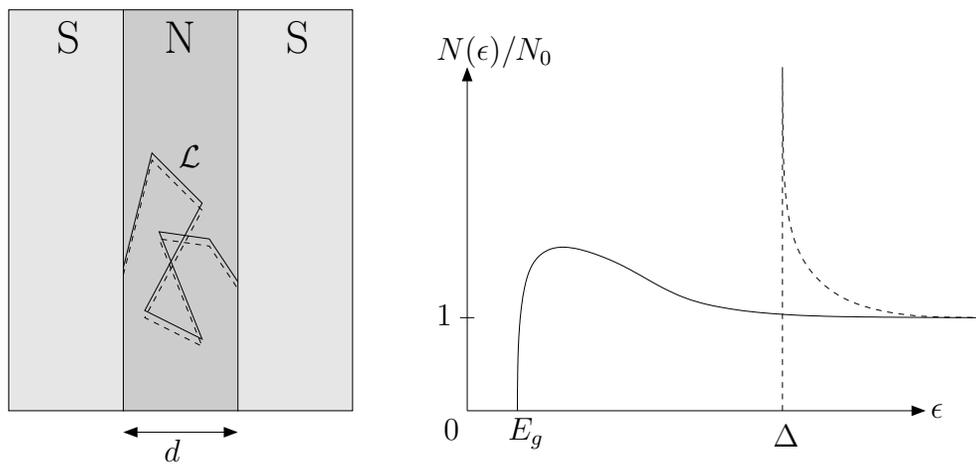


FIG. 1.12 – Trajectoire diffusive dans une jonction S/N/S et minigap dans la densité d'états au milieu de la jonction.

que d'autres et modulent la densité d'états par rapport à sa valeur normale, faisant même apparaître un gap à basse énergie.

En effet, contrairement au cas balistique, un électron de vecteur d'onde quasiment tangent à l'interface ($\theta \rightarrow \pi/2$) finit par être diffusé par une impureté et son vecteur d'onde est dévié dans une direction plus proche de la normale (voir figure 1.12). Ainsi le chemin parcouru par la paire entre les deux réflexions aux interfaces ne peut pas être aussi long que l'on veut et la phase accumulée est limitée à $\Delta\varphi = 2(\epsilon/\hbar v_F)v_F\tau_D$ où $\tau_D = d^2/D$ est le temps de diffusion et D la constante de diffusion. Elle n'atteint la valeur $\Delta\varphi = \pi$ requise par les deux conditions aux limites (pour $\phi = 0$ et $\epsilon \ll \Delta$) que pour une énergie suffisante E_g en dessous de laquelle un gap apparaît dans la densité d'états. Ce gap est appelé *mini-gap* et d'après ce raisonnement qualitatif il doit valoir approximativement $E_g = (\pi/2) E_{Th}$, où $E_{Th} = \hbar D/d^2$ est l'énergie de Thouless en régime diffusif. La valeur exacte du coefficient numérique doit être calculée plus rigoureusement et vaut $E_g = 3.122 E_{Th}$ d'après Zhou et al. [96]. Lorsque la différence de phase ϕ est non nulle, la phase relative $\Delta\varphi$ doit être égale à $\pi - \phi$ (toujours pour $\epsilon \ll \Delta$). En particulier, lorsque $\phi = \pi$, l'énergie minimum requise est nulle et le gap disparaît $E_g = 0$.

Les états qui sont interdits sous le gap se retrouvent juste au-dessus, la densité d'états est maximale pour une énergie de l'ordre de quelques fois E_{Th} correspondant à l'état lié optimal. A plus haute énergie la longueur de cohérence L_ϵ en régime diffusif devient inférieure à d et les états disparaissent. La densité d'états n'est donc modifiée par rapport à l'état normal que sur une gamme d'énergies de quelques fois E_{Th} .

Bref historique des études expérimentales

Les jonctions Josephson S/N/S ont commencé à être étudiées à partir des années 1970 par Clarke [25] dans des échantillons Pb/Cu/Pb en tricouches, où un disque de métal normal d'épaisseur $d \sim 1 \mu m$ est déposé entre deux électrodes supraconductrices en croix. Dans ce type de géométrie, le courant est injecté perpendiculairement aux couches et la grande surface des jonctions implique de très grandes valeurs de courant critique, de sorte que celui-ci n'est mesurable que dans une fenêtre de température limitée. Les études ont porté sur la dépendance exponentielle avec la température, sur les caractéristiques tension-courant en présence d'irradiation haute fréquence et sur les figures de diffraction sous champ magnétique. Une grande partie des travaux théoriques et expérimentaux menés avant 1979 sur les jonctions S/N/S et les autres "liens faibles" sont présentés dans un article de synthèse écrit par Likharev [62].

Le régime des jonctions longues $E_{Th} \ll \Delta$ à basse température n'a pu être étudié expérimentalement que depuis que les progrès technologiques ont permis de fabriquer des jonctions latérales. Elles sont formées d'un film normal fin et étroit entre deux électrodes supraconductrices déposées aux extrémités. La longueur d est toujours de l'ordre du micron, mais la section est environ 10^6 fois plus petite ce qui donne des courants critiques mesurables jusqu'à très basse température. Courtois et al. [28] ont mis en évidence l'importance de l'énergie de Thouless dans le comportement du courant critique qui sature à basse température lorsque $k_B T < E_{Th}$ dans des jonctions Al/Cu/Al. Un très bon accord entre expérience et théorie a été trouvé par Dubos et al. [37] avec des jonctions Nb/Cu/Nb.

1.1.4 Autres systèmes S/N

Dans une jonction S/N/S diffusive, nous avons vu que les conditions aux limites aux deux interfaces sur la phase relative entre l'électron et le trou sont à l'origine d'un gap dans la densité d'états des jonctions S/N/S. Nous allons voir qu'elle a des conséquences similaires sur les bicouches S/N et qu'elle implique un phénomène de réentrance de la conductance dans les systèmes S/N/N'.

Mini-gap dans les bicouches S/N

La densité d'états d'une bicouche S/N dans le métal normal d'épaisseur $d/2$ est très similaire à celle d'une jonction S/N/S d'épaisseur double d et de différence de phase nulle $\phi = 0$. En effet les réflexions spéculaires au niveau de la surface libre de la bicouche renvoient les deux particules de la paire d'Andreev sans ajouter de déphasage supplémentaire, donc le calcul de la phase relative accumulée $\Delta\varphi$ est le même. Quant aux conditions aux limites aux interfaces, c'est le même supraconducteur qui intervient à chaque réflexion d'Andreev ce qui est équivalent à $\phi = 0$. Ainsi la densité d'états présente des pics en régime balistique correspondant à des états liés d'Andreev et présente un mini-gap E_g de l'ordre de l'énergie de Thouless en régime diffusif. Le cas S/N diffusif a été étudié théoriquement par Belzig et al. [12] et le cas intermédiaire où le libre parcours moyen est du même ordre que l'épaisseur a été traité par Pilgram et al. [71] (ce qui permet de visualiser l'ouverture progressive du gap en ajoutant des impuretés).

Si le métal normal d'un système S/N diffusif est semi-infini, l'énergie de Thouless est nulle et le mini-gap disparaît. Cependant la densité d'états reste nulle pour $\epsilon = 0$, on parle alors de *pseudo-gap*. L'énergie à laquelle la densité d'états est maximum est égal au gap des électrodes à proximité de l'interface et se réduit progressivement à l'intérieur du métal normal en suivant l'énergie de Thouless locale $\hbar D/x^2$. En pratique, la cohérence est brisée à partir de la longueur de cohérence de phase L_ϕ , de sorte que la densité d'états n'est pas rigoureusement nulle pour $\epsilon = 0$. Le mini-gap et le pseudo-gap ont été étudiées par microscopie tunnel dans un système Nb/Au par Vinet et al. [89]. La dépendance spatiale du pseudo-gap a également été étudiée dans un système Al/Cu par Guéron et al. [47].

Réentrance dans les systèmes S/N/N'

Considérons une région de métal normal mésoscopique N de taille finie $d < L_\phi$, reliée à un réservoir supraconducteur S à une extrémité et à un réservoir normal N' à l'autre (figure 1.13). Une paire d'Andreev d'énergie ϵ acquiert une phase relative $\Delta\varphi = \pi$ après avoir diffusé dans un volume de taille caractéristique $L_\epsilon = \sqrt{\hbar D/\epsilon}$. La paire peut alors revenir à l'interface S/N subir une nouvelle réflexion, interférer constructivement (car $\Delta\varphi = \pi$ satisfait les conditions aux limites) et modifier les propriétés du métal normal comme la conductance.

Si L_ϵ est plus grand que la taille d du système, ce processus ne peut pas avoir lieu. Le réservoir détruit la cohérence de cette paire car son rôle est de thermaliser les particules par des diffusions inélastiques. Autrement dit les interférences sont destructives pour $\epsilon < \hbar D/d^2 = E_{Th}$, il n'y a pas d'états d'Andreev à ces énergies. Cela provoque un creux dans la densité d'états au voisinage de l'interface S/N, mais sans gap contrairement aux bicouches car

le métal est connecté à un réservoir qui fournit des particules à toutes les énergies. L'absence d'état lié à énergie nulle fait qu'il n'y a aucune corrélation à deux particules et la conductance différentielle à tension nulle est donc égale à sa valeur en l'absence du supraconducteur.

Quand une paire d'Andreev d'énergie $\epsilon \sim E_{Th}$ diffuse dans le volume de taille d et revient vers l'interface S/N, elle a juste la bonne phase pour subir une nouvelle réflexion de façon cohérente. Autrement dit les interférences sont constructives et donnent naissance à un état lié qui s'étend sur tout le volume de taille d . Les états au voisinage de l'énergie de Thouless contribuent ainsi optimalement à une augmentation de la conductance car ils transportent des paires cohérentes. Une paire d'énergie $\epsilon > E_{Th}$ augmente aussi localement la conductance, mais elle ne s'étend que sur une distance $L_\epsilon < d$, donc sa contribution est plus faible.

Ainsi l'augmentation de conductance spectrale est nulle en $\epsilon = 0$ et présente un maximum pour $\epsilon \sim E_{Th}$. La conductance différentielle de ce système augmente lorsqu'on baisse la tension, passe par un maximum pour $eV \sim E_{Th}$, puis retourne à sa valeur à l'état normal à tension nulle : c'est la réentrance (figure 1.13). L'effet de la température étant de détruire les états d'Andreev de basses énergies, la conductance différentielle à tension nulle sonde les états aux énergies $\epsilon \sim k_B T$. Le comportement en température est donc similaire à celui observé en tension.

Ce phénomène a été observé expérimentalement pour la première fois par Charlat et al. [24] dans un contact Al/Cu. Une analyse approfondie de ces expériences a été faite par Courtois et al. [26, 29]. La réentrance a été étudiée théoriquement par de nombreux groupes [67, 90, 45, 13]. Une interprétation en terme de phase des particules et de condition aux limites à l'interface comme celle présentée ici a été proposée par Beenakker [11].

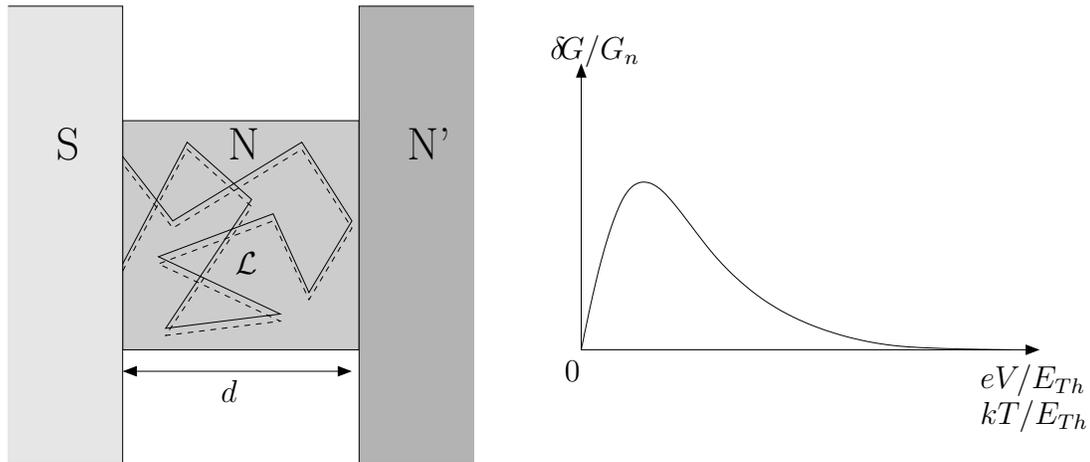


FIG. 1.13 – *Etat lié d'Andreev au voisinage de l'énergie de Thouless dans un système S/N/N' où N' est un réservoir. Cet état contribue de façon optimum à l'augmentation de conductance de la région N. Dépendance de la conductance différentielle avec la tension et la température montrant le phénomène de réentrance $G = G_n$ à $V = 0$ et $T = 0$.*

1.1.5 Effet de proximité inverse

Jusqu'à présent nous n'avons considéré que les propriétés de cohérence induites par la réflexion d'Andreev dans le métal normal, mais cette fuite des paires affecte aussi le supraconducteur. Alors que l'effet de proximité *direct* s'explique facilement en terme d'états d'Andreev, il n'est pas courant de les faire intervenir explicitement pour interpréter l'effet de proximité *inverse*. On peut se représenter ce phénomène en disant que des électrons quittent régulièrement le condensat et viennent occuper des états d'Andreev qui se propagent dans le métal normal. Ce processus de conversion entre paires de Cooper condensées et paires d'Andreev se fait sur une distance ξ_S du côté supraconducteur. Dans cette région, le condensat a moins de paires que s'il était isolé, donc le gap Δ est affaibli (figure 1.14). Le gain d'énergie entre l'état normal et l'état supraconducteur est plus faible dans une bicouche S/N que si le supraconducteur était isolé. L'affaiblissement de la température de transition $T_c < T_{c0}$ est d'autant plus important que l'épaisseur d_S du supraconducteur est faible.

L'importance de l'abaissement du gap à l'interface S/N dépend de la quantité de paires qui peuvent traverser l'interface et de la façon dont leur cohérence est détruite. En effet si cette décohérence est rapide, l'état d'Andreev est vite libéré et une nouvelle paire peut quitter le condensat. Plus la conductivité du métal normal, la transparence de l'interface et le taux de décohérence sont grands, plus le courant de fuite des paires est important et plus le gap est affaibli. L'amplitude de condensation des paires étant maximum au niveau de Fermi, il est favorable pour l'énergie totale qu'il n'y ait pas d'état d'Andreev à énergie nulle car ils provoqueraient une fuite importante. Il est intéressant de remarquer que la présence d'un mini-gap dans le métal normal en-dessous de l'énergie de Thouless permet de réduire le courant de fuite à basse énergie.

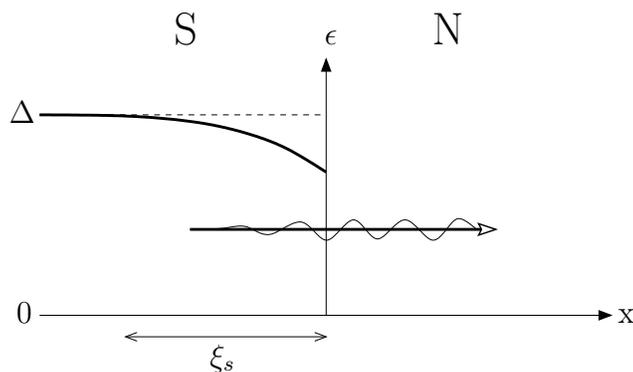


FIG. 1.14 – *Effet de proximité inverse avec affaiblissement du gap à l'interface dû à la fuite de paires de Cooper par les états d'Andreev.*

1.2 Les structures Supraconducteur/Ferromagnétique

Dans la description de l'effet de proximité avec un métal normal, nous n'avons pas eu à utiliser le fait que l'électron et le trou d'un état d'Andreev ont des spins opposés. En effet les deux populations de spins étaient parfaitement symétriques. Ce n'est plus le cas lorsque l'on s'intéresse à un métal ferromagnétique où l'aimantation spontanée fait apparaître une différence de population. Les vecteurs d'ondes et les densités d'états au niveau de Fermi ne sont plus identiques pour les spins majoritaires et minoritaires.

Ces propriétés modifient les effets de proximité de différentes manières. Nous étudierons les conséquences sur la cohérence induite dans le métal ferromagnétique avec en particulier le décalage des états liés d'Andreev dans les jonctions Josephson qui est à l'origine du supercourant négatif et de la jonction π . Nous verrons également les effets inverses que cela produit sur le supraconducteur, dont un abaissement accru du paramètre d'ordre au voisinage de l'interface dû à un courant de fuite plus important.

Nous allons tout d'abord commencer par décrire l'origine du ferromagnétisme des métaux de transition et introduire les grandeurs qui caractérisent les propriétés électroniques des deux populations de spins.

1.2.1 Ferromagnétisme itinérant

Selon le principe d'exclusion de Pauli, deux électrons ne peuvent pas occuper le même état quantique. Ils ne sont donc jamais au même endroit en même temps s'ils ont le même spin. Si leur trajectoire se croise, l'anti-symétrisation de la fonction d'onde du système des deux électrons fait que la probabilité de présence s'annule au point de croisement. Par conséquent leur énergie de répulsion Coulombienne est limitée. En revanche, deux électrons de spins opposés peuvent être très proches l'un de l'autre et leur énergie de répulsion est plus importante. La différence est appelée énergie d'échange et se résume formellement à une interaction dipolaire attractive entre spins de même sens :

$$H_{ij} = -J_{ij} \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j \quad (1.17)$$

Cette énergie d'échange est responsable du ferromagnétisme des électrons de conduction dont l'apparition s'explique simplement avec le modèle de Stoner. On suppose que deux électrons de spins opposés ont entre eux une énergie de répulsion Coulombienne supérieure d'une quantité V_c par rapport à celle de deux électrons de spins identiques. Si N est le nombre d'électrons de chaque population dans l'état paramagnétique, le nombre de combinaisons deux à deux de spins opposés vaut N^2 et l'énergie de répulsion $V_c N^2$. Il est possible d'abaisser cette énergie en brisant la symétrie entre les deux populations avec $N^\uparrow = N + \delta N$ et $N^\downarrow = N - \delta N$. En effet le nombre de combinaisons devient $N^\uparrow N^\downarrow = N^2 - \delta N^2$ et l'énergie de répulsion est réduite de $V_c \delta N^2$. Cependant les δN électrons qui ont changé de spin doivent être placés dans des états d'énergie cinétique supérieure de δE_c car les autres sont déjà occupés (voir figure 1.15). Ces deux grandeurs sont reliées par la densité d'états N_0 par $\delta N = N_0 \delta E_c$. Il en résulte une augmentation de l'énergie cinétique totale d'une valeur $\delta E_c \delta N = \delta N^2 / N_0$. La condition nécessaire pour que ce mécanisme abaisse l'énergie totale du système est que le gain d'énergie sur la répulsion Coulombienne dépasse l'excès d'énergie cinétique. Le critère

de Stoner d'apparition du ferromagnétisme itinérant s'écrit donc :

$$N_0 V_c > 1 \quad (1.18)$$

Il est également possible de voir cette transition en terme d'instabilité de la surface de Fermi vis-à-vis d'un champ magnétique. Le calcul de la susceptibilité de spin de Pauli d'un gaz d'électron en interaction Coulombienne conduit à l'expression :

$$\chi = \frac{\chi_0}{1 - N_0 V_c} \quad (1.19)$$

La susceptibilité diverge lorsque $N_0 V_c$ se rapproche de 1 et au-delà une aimantation de spin apparaît spontanément.

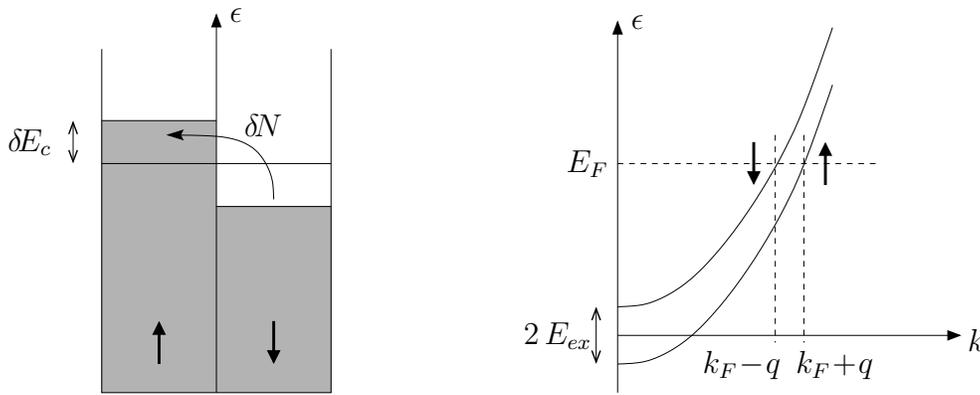


FIG. 1.15 – *A gauche : modèle de Stoner décrivant l'apparition du ferromagnétisme itinérant. A droite : vecteurs d'ondes de Fermi des deux populations de spins dans un métal ferromagnétique.*

Pour la même énergie cinétique, l'énergie totale d'un électron de spin majoritaire est inférieure à celle d'un électron de spin minoritaire car il subit moins de répulsion Coulombienne : $V_c N^\downarrow$ contre $V_c N^\uparrow$. L'équilibre du système se traduisant par l'égalité du potentiel chimique (énergie totale) dans les deux populations, l'énergie cinétique d'un électron majoritaire au niveau de Fermi est plus grande que celle d'un électron minoritaire. L'excès par rapport à la valeur moyenne $\overline{E_F}$ est appelée énergie d'échange et notée E_{ex} . L'énergie cinétique au niveau de Fermi des électrons de spin up et down, respectivement majoritaires et minoritaires, s'écrit donc :

$$E_F^\uparrow = \overline{E_F} + E_{ex} \quad (1.20)$$

$$E_F^\downarrow = \overline{E_F} - E_{ex} \quad (1.21)$$

De même on définit l'écart q des vecteurs d'ondes au niveau de Fermi par rapport à leur valeur moyenne $\overline{k_F}$:

$$k_F^\uparrow = \overline{k_F} + q \quad (1.22)$$

$$k_F^\downarrow = \overline{k_F} - q \quad (1.23)$$

Nous supposerons maintenant que l'énergie d'échange est petite devant l'énergie de Fermi et que la relation de dispersion est parabolique (figure 1.15), ce qui permet de relier simplement q à l'énergie d'échange :

$$q = \frac{E_{ex}}{\hbar v_F} \quad (1.24)$$

1.2.2 Longueur de cohérence ferromagnétique

Le processus de réflexion d'Andreev dans le cas d'une interface entre un métal supraconducteur et un métal ferromagnétique est similaire au cas d'un métal normal. Cependant, les deux bandes de spins étant séparées par $2E_{ex}$, un électron de spin up et le trou réfléchi de spin down ont des vecteurs d'onde différents au niveau de Fermi ($k_e^\uparrow = k_F + q$ et $k_h^\downarrow = k_F - q$). La différence $2q$ produit un déphasage de la paire même à énergie nulle contrairement au cas normal [34].

Dans le cas $E_{ex} \gg \Delta$ il est possible de négliger la différence de vecteur d'onde due à l'énergie $\epsilon \leq \Delta$ devant celle due à l'énergie d'échange E_{ex} . Ainsi toutes les paires d'Andreev se comportent de la même façon. La phase relative de l'électron par rapport au trou évolue selon $\Delta\varphi = \pm 2qx$, les signes \pm correspondant aux paires ($e \uparrow, h \downarrow$) et ($e \downarrow, h \uparrow$). Les fonctions d'onde se déphasent sur une distance caractéristique ξ_F qui s'exprime en régime balistique par $\xi_F = \hbar v_F / E_{ex}$. En régime diffusif ce déphasage est également responsable de la perte de cohérence à cause des diffusions élastiques qui séparent les trajectoires. Ainsi ξ_F est la longueur de cohérence ferromagnétique et s'écrit :

$$\xi_F = \sqrt{\frac{\hbar D}{E_{ex}}} \quad (1.25)$$

Le déphasage rapide des paires réduit beaucoup la longueur de cohérence par rapport au cas normal et rend les études expérimentales délicates.

Dans cette limite $E_{ex} \gg \Delta$, on comprend que les propriétés de cohérence induite vont contenir un terme spatialement oscillant car toutes les paires se déphasent sur la même longueur. Les interférences sont successivement constructives et destructives avec une période identique pour toutes les paires. (Dans le cas normal, les paires ont des périodes de déphasage différentes car la différence de vecteur d'onde $2\delta k$ dépend de l'énergie ϵ qui varie entre 0 et Δ . Les minima d'interférence de chacune des paires se trouvent à des distances différentes de l'interface. L'évolution spatiale des grandeurs moyennées sur l'énergie est donc monotone. Seules les quantités spectrales contiennent les oscillations.)

Dans le cas $E_{ex} < \Delta$, la différence des deux vecteurs d'onde contient le terme $2q = 2E_{ex}/\hbar v_F$ dans toutes les paires mais aussi le terme $2\delta k = 2\epsilon/\hbar v_F$ différent pour chaque paire. Il est maintenant important de distinguer les paires ($\uparrow\downarrow$) avec l'électron de spin up et le trou de spin down et les paires symétriques ($\downarrow\uparrow$) avec l'électron de spin down et le trou de spin up. Elles subissent respectivement des déphasages :

$$\Delta\varphi^{\uparrow\downarrow} = 2(\delta k + q)x \quad (1.26)$$

$$\Delta\varphi^{\downarrow\uparrow} = 2(\delta k - q)x \quad (1.27)$$

L'énergie ϵ permet ainsi d'accroître ou de réduire l'influence de l'énergie d'échange. La paire $(\downarrow\uparrow)$ à l'énergie $\epsilon = +E_{ex}$ voit son déphasage disparaître : la différence d'énergie d'échange entre l'électron et le trou est parfaitement compensée par la différence d'énergie cinétique. La paire $(\uparrow\downarrow)$ aurait formellement cette même compensation à l'énergie $\epsilon = -E_{ex}$, mais les excitations sont ici toujours comptées positivement. La longueur de cohérence d'une paire en régime diffusif est maintenant fonction de l'énergie et du spin (figure 1.16). Cette longueur diverge (limitée par L_ϕ) pour la paire $(\downarrow\uparrow)$ d'énergie $\epsilon = +E_{ex}$ car le déphasage disparaît.

Notons qu'un matériau ferromagnétique présente généralement une différence de densité d'états au niveau de Fermi à cause du décalage des bandes. La réflexion d'Andreev nécessitant deux particules de spins opposés, la conductance d'Andreev est limitée par la population de spin qui a le plus petit nombre de canaux de conduction comme l'ont montré de Jong et Beenakker [33]. La densité d'états des spins majoritaires est généralement la plus petite, mais ceci n'est pas général, et nous supposons dans tout ce qui suit que les densités d'état sont égales.

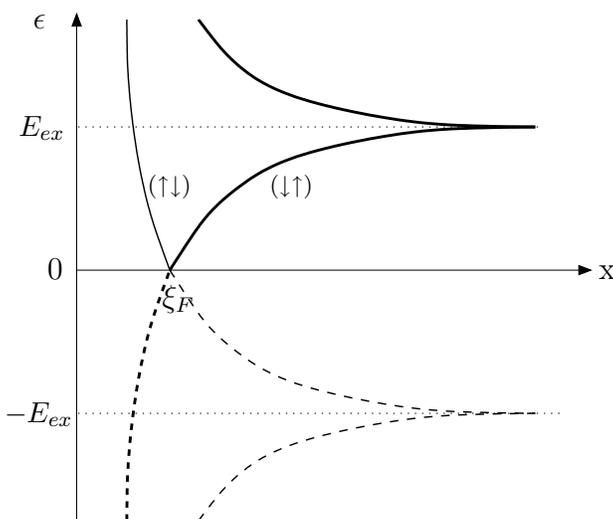


FIG. 1.16 – Longueur de cohérence dans le métal ferromagnétique diffusif (parallèlement à x) en fonction de l'énergie d'excitation $\epsilon > 0$ pour une faible énergie d'échange $E_{ex} < \Delta$. Cette longueur vaut ξ_F à énergie nulle pour les deux types de paires $(e \uparrow, h \downarrow)$ et $(e \downarrow, h \uparrow)$ et diverge à l'énergie d'échange pour les paires $(e \downarrow, h \uparrow)$.

1.2.3 Etat π dans les jonctions S/F/S

Energie des états liés d'Andreev

Lorsque le métal ferromagnétique est entre deux supraconducteurs, des états liés apparaissent de la même façon que dans le cas normal, lorsque la phase relative de l'électron et du trou coïncide avec les valeurs imposées par les supraconducteurs aux deux interfaces. Prenons le cas le plus simple d'une jonction unidimensionnelle balistique comme dans la partie 1.1.3. Dans le cas S/F/S, le déphasage $\Delta\varphi$ contient un terme supplémentaire $\pm 2qd$ et les états discrets ϵ_n sont maintenant donnés par :

$$\Delta\varphi^{\uparrow\downarrow} = 2 \frac{\epsilon_n^{\uparrow\downarrow} + E_{ex}}{\hbar v_F} d = \pm\phi + 2 \arccos\left(\frac{\epsilon_n^{\uparrow\downarrow}}{\Delta}\right) + n 2\pi \quad (1.28)$$

$$\Delta\varphi^{\downarrow\uparrow} = 2 \frac{\epsilon_n^{\downarrow\uparrow} - E_{ex}}{\hbar v_F} d = \pm\phi + 2 \arccos\left(\frac{\epsilon_n^{\downarrow\uparrow}}{\Delta}\right) + n 2\pi \quad (1.29)$$

où les signes plus et moins devant ϕ correspondent aux états de vecteurs d'onde opposés $k > 0$ et $k < 0$ respectivement. Chaque état se divise en deux à cause de l'énergie d'échange : l'état ($\uparrow\downarrow$) baisse en énergie, l'état ($\downarrow\uparrow$) monte (figure 1.17).

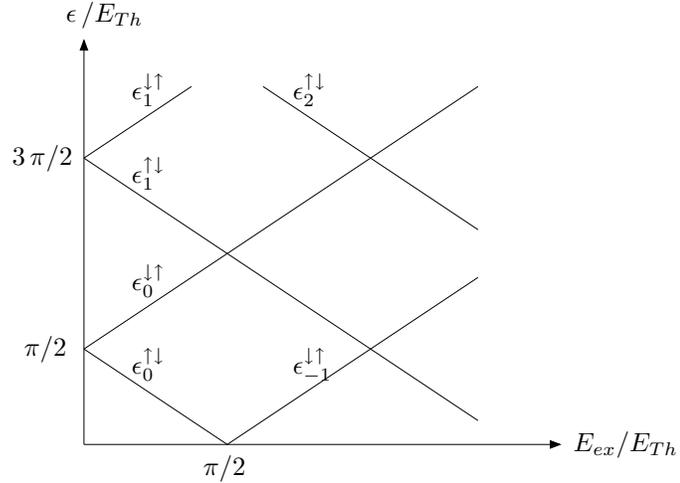


FIG. 1.17 - Déplacement des états liés d'Andreev en fonction de l'énergie d'échange dans une jonction S/F/S dans le cas $\phi = 0$ et $E_{Th} \ll \Delta$.

Origine du supercourant négatif

Considérons le cas d'une énergie d'échange faible $E_{ex} \ll \Delta$ et d'une jonction longue $E_{Th} \ll \Delta$ contenant plusieurs états liés. Examinons le cas particulier où l'énergie d'échange vaut :

$$E_{ex} = \frac{\pi \hbar v_F}{2d} = \frac{\pi}{2} E_{Th} \quad (1.30)$$

Chaque niveau se divise en deux sous-niveaux qui se déplacent de la moitié de l'écart πE_{Th} entre deux niveaux initiaux. Le niveau n ($\downarrow\uparrow$) et le niveau $(n+1)$ ($\uparrow\downarrow$) se retrouvent à la même énergie. Pour $\phi = 0$, le niveau $n = 0$ ($\uparrow\downarrow$) se trouve exactement au niveau de Fermi

car $2qd = \pi$ ce qui permet d'avoir $\varphi = -\pi/2$ et $\varphi = +\pi/2$ à chacune des interfaces. Il y a également un état ($\downarrow\uparrow$) au niveau de Fermi, qui vient formellement du niveau $n = -1$. Tous les états sont donc de nouveau dégénérés en spin mais ils ne sont plus aux mêmes énergies (voir figure 1.17).

Lorsque la différence de phase est légèrement positive, la dégénérescence des niveaux $k > 0$ et $k < 0$ est levée. Les états $k > 0$ transportent un courant de charge $-2e$ donc négatif (c'est-à-dire de l'électrode S_2 vers l'électrode S_1), ils seront notés $(-)$. Ces états $(-)$ montent en énergie et les états $(+)$ baissent. La direction du supercourant total est la même que celle du premier état au-dessus du niveau de Fermi car le nombre de paires injectées par les supraconducteurs va décroissant avec l'énergie. Dans le cas normal, le premier niveau est l'état $(+)$ de courant positif. Dans le cas ferromagnétique vérifiant (1.30), l'état $(+)$ qui se trouvait juste au niveau de Fermi passe en-dessous et ne contribue plus. C'est l'état $(-)$ de courant négatif qui devient le premier niveau et qui est à l'origine du courant critique négatif dans les jonctions S/F/S dont l'énergie de Thouless est voisine de l'énergie d'échange (figure 1.18).

Supposons un instant que l'énergie d'échange soit grande $E_{ex} > \Delta$, la condition (1.30) correspond à une jonction courte $E_{Th} > \Delta$. Dans le cas S/N/S il n'y a qu'un seul état lié, il est situé près du gap Δ pour $\phi = 0$. Dans le cas S/F/S il y a également un seul niveau et il se trouve à énergie nulle. Dès que ϕ est supérieur à 0, l'état $(+)$ passe sous le niveau de Fermi, l'état $(-)$ qui reste donne un supercourant négatif. Ce phénomène peut donc se produire quelle que soit la valeur de l'énergie d'échange.

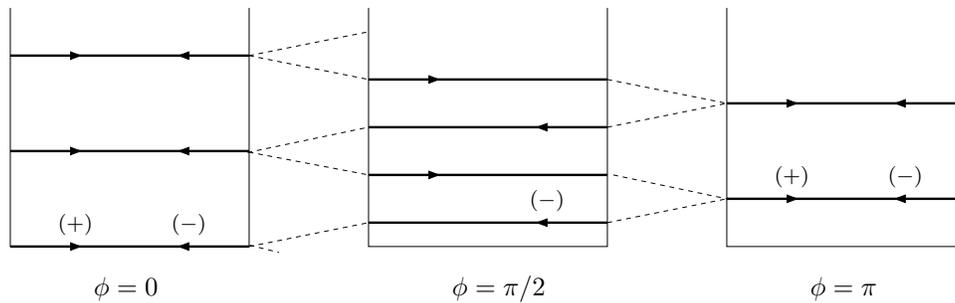


FIG. 1.18 – *Etats liés d'Andreev d'une jonction S/F/S dans le cas où $E_{ex} = (\pi/2)E_{Th}$ et évolution avec la différence de phase ϕ montrant l'origine du supercourant négatif pour $\phi = \pi/2$.*

Etat fondamental : état 0 et état π

Nous avons vu précédemment que la relation courant-phase $I_s(\phi)$ d'une jonction S/N/S balistique est une fonction en dents de scie de période 2π qui vaut 0 en $\phi = 0$. Le maximum de supercourant est obtenu lorsque le premier état est le plus proche du niveau de Fermi, c'est-à-dire pour $\phi = \pi^-$, juste avant qu'il ne passe en-dessous. Dans la jonction S/F/S balistique de la figure 1.18, l'amplitude du supercourant est maximum et de signe négatif pour $\phi = 0^+$, ce qui donne une relation $I_s(\phi)$ toujours en dents de scie de période 2π mais décalée de π comme le montre la figure 1.19.

La valeur ϕ_{gs} de la phase dans l'état fondamental de la jonction correspond au minimum de la relation énergie-phase $E(\phi)$ qui est reliée à $I_s(\phi)$ par :

$$\frac{dE}{d\phi} = \frac{\Phi_0}{2\pi} I_s(\phi) \quad (1.31)$$

Le minimum vaut $\phi_{gs} = 0$ pour une jonction S/N/S à l'équilibre (sans courant) et $\phi_{gs} = \pi$ pour la jonction S/F/S dont la relation $I_s(\phi)$ est décalée de π (figure 1.19). Cet état fondamental de phase $\phi_{gs} = \pi$ porte le nom d'*état π* et par symétrie nous appellerons *état 0* l'état fondamental de phase $\phi_{gs} = 0$.

Dans l'état π le spectre des états liés est celui correspondant à $\phi = \pi$. Le premier niveau, qui est descendu à $\epsilon = 0$ à cause de l'énergie d'échange pour $\phi = 0$, se retrouve à $(\pi/2)E_{Th}$ dans l'état fondamental $\phi_{gs} = \pi$. Le déphasage $\Delta\varphi = \pi$ induit par l'énergie d'échange est compensé par la différence de phase $\phi_{gs} = \pi$. Le spectre redevient donc identique à celui d'une jonction S/N/S avec en particulier aucun état à énergie nulle.

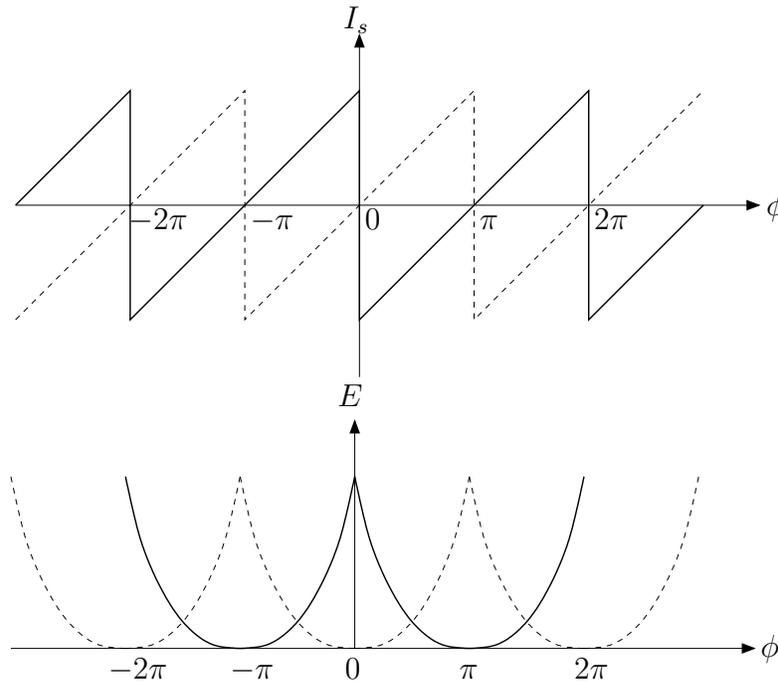


FIG. 1.19 – Relations courant-phase $I_s(\phi)$ et énergie-phase $E(\phi)$ dans le cas d'une jonction balistique S/F/S telle que $E_{ex} = (\pi/2)E_{Th}$ (trait continu) comparées au cas S/N/S (tirets).

Passage de l'état 0 à l'état π

Nous allons maintenant analyser la manière dont la relation courant-phase se modifie lorsqu'on augmente l'énergie d'échange de 0 jusqu'à cette valeur $(\pi/2)E_{Th}$.

- Pour $E_{ex} = 0$, lorsque ϕ augmente, le premier état (+) descend et donne un supercourant positif jusqu'à $\phi = \pi$, l'état fondamental est l'état 0.

- Pour $E_{ex} = (\pi/4)E_{Th}$, cet état (+) ($n=0$) ($\uparrow\downarrow$) ne donne un supercourant positif que jusqu'à $\phi = \pi/2$, car il passe ensuite en-dessous du niveau de Fermi. C'est l'état (-) ($n=-1$) ($\downarrow\uparrow$) qui est ensuite le premier état au-dessus du niveau de Fermi et donne un supercourant négatif jusqu'à $\phi = \pi$. La relation courant-phase est en dents de scie de période π (au lieu de 2π) et la relation énergie-phase a deux minima à la même énergie en $\phi = 0$ et $\phi = \pi$. L'état fondamental est dégénéré, la jonction est soit dans l'état 0 soit dans l'état π (voir figure 1.20).
- Pour $E_{ex} = (\pi/2)E_{Th}$, le courant est tout de suite négatif et le reste jusqu'à $\phi = \pi$. Ce cas correspond à une jonction *optimalement* dans l'état π avec un déphasage $\Delta\varphi = \pi$ à énergie nulle.

Ainsi, le passage de l'état 0 à l'état π se produit pour $E_{ex} = (\pi/4)E_{Th}$ mais se fait sans annulation du courant critique car la relation $I_s(\phi)$ n'est jamais uniformément nulle.

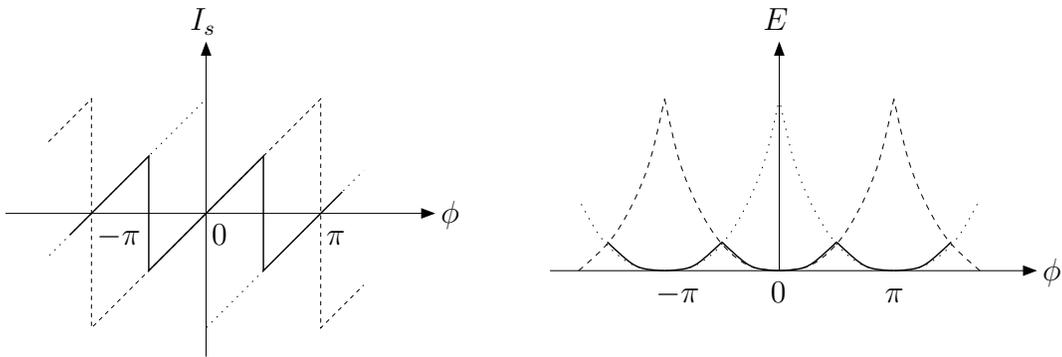


FIG. 1.20 – Relations courant-phase $I_s(\phi)$ et énergie-phase $E(\phi)$ dans le cas d'une jonction baslistique S/F/S telle que $E_{ex} = (\pi/4)E_{Th}$ (trait continu) comparées au cas $E_{ex} = 0$ (tirets) et $E_{ex} = (\pi/2)E_{Th}$ (pointillés).

1.2.4 Cas des bicouches S/F

Densité d'états

Une bicouche S/F correspond à une jonction S/F/S de longueur double mais toujours de différence de phase $\phi = 0$, car la réflexion spéculaire à la surface libre ramène les particules sur le même supraconducteur. Lorsque le déphasage des paires par l'énergie d'échange vaut $\Delta\varphi = \pi$ entre deux réflexions d'Andreev (c'est-à-dire lorsque $E_{ex} \sim E_{Th}$), des états liés apparaissent à énergie nulle. Dans une jonction S/F/S ce n'est pas le cas dans l'état fondamental à cause du basculement dans l'état $\phi_{gs} = \pi$ de sorte que les états liés se retrouvent vers l'énergie de Thouless (comme dans une jonction S/N/S ou une bicouche S/N).

Pour une bicouche S/N fine $E_{Th} > \Delta$, la forme de la densité d'états ressemble à celle d'un supraconducteur avec des pics en $\pm\Delta$ et une valeur minimum ou nulle autour de $\epsilon = 0$. Pour une bicouche S/F telle que $E_{ex} \sim E_{Th}$, la forme est inversée avec des creux en $\pm\Delta$ et un maximum au centre en $\epsilon = 0$ car l'état lié est optimum à énergie nulle. Cette allure inversée de la densité d'états a été observée par Kontos et al. [58] dans des bicouches Nb/PdNi par

spectroscopie au travers d'une barrière tunnel d'alumine (figure 1.21). Pour une épaisseur de PdNi de 50 \AA , la valeur de la densité d'états à énergie nulle est inférieure à sa valeur normale, et pour 75 \AA , elle devient supérieure. Cette valeur correspond à une énergie de Thouless de l'ordre de l'énergie d'échange estimée à 15 meV .

Ces oscillations de densité d'états dans les bicouches S/F ont été étudiées théoriquement par Buzdin [19] dans le cas diffusif en utilisant la théorie des fonctions de Green semi-classiques et par Zareyan et al. [95] dans le cas balistique en considérant la contribution des différentes trajectoires.

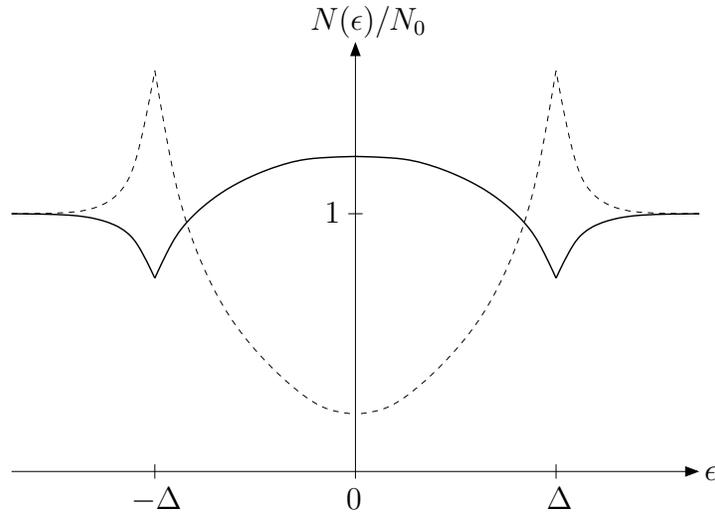


FIG. 1.21 – Densité d'états à la surface d'une bicouche S/F dans la limite courte $E_{Th} > \Delta$ telle que l'ont observée Kontos et al. [58]. Tirets : $E_{ex} < E_{Th}$. Trait continu : $E_{ex} \sim E_{Th}$.

Effet de proximité inverse

Nous avons déjà discuté l'origine de l'affaiblissement du paramètre d'ordre supraconducteur à l'interface dû à un courant de fuite des paires hors du condensat vers le métal normal. Le nombre de paires qui peuvent s'échapper est d'autant plus grand que leur décohérence est rapide, car dès que l'état est libéré après un processus décohérent une nouvelle paire peut l'occuper. Dans le cas d'un métal ferromagnétique, si l'énergie d'échange est grande, alors la décohérence en régime diffusif est rapide puisque la phase relative électron-trou augmente rapidement. Cette courte longueur de cohérence provoque une fuite importante des paires et ainsi un fort affaiblissement du gap à l'interface.

Par ailleurs les états liés réduisent d'autant plus le gap qu'ils sont proches du niveau de Fermi car c'est là où l'amplitude de condensation est la plus grande, donc là où il y a le plus de paires de Cooper. Dans le cas S/N, le premier niveau est repoussé vers l'énergie de Thouless, mais dans le cas S/F il peut se trouver à énergie nulle lorsque $E_{ex} \sim E_{Th}$ et avoir un effet maximum sur l'abaissement de la température de transition. Pour une énergie d'échange plus grande, l'état lié à énergie nulle disparaît en-dessous du niveau de Fermi, un autre le remplace et remonte à l'énergie de Thouless. On s'attend donc à observer des

oscillations de la température de transition en fonction du rapport E_{ex}/E_{Th} avec un minimum lorsqu'on a des états liés en $\epsilon = 0$ (voir figure 1.22). Les oscillations de densité d'états et de température de transition dans les bicouches S/F ont donc la même origine, elles proviennent d'un déplacement du spectre des états liés.

Dans le cas des jonctions S/F/S où les épaisseurs supraconductrices sont faibles, l'effet de proximité inverse donne lieu à un phénomène similaire mais avec une différence importante. Le degré de liberté supplémentaire sur le choix de la différence de phase ϕ permet de remettre le premier niveau à l'énergie de Thouless lorsqu'il devrait être au niveau de Fermi. Ainsi au-delà de la valeur d'énergie d'échange correspondant à la dégénérescence entre les états 0 et π , le système choisit une phase $\phi_{gs} = \pi$ et l'énergie des états liés remonte. On a donc des maxima de température de transition dans les tricouches S/F/S pour toutes les valeurs $\Delta\varphi = n\pi$, alors qu'on a une alternance de maxima et de minima aux mêmes valeurs dans les bicouches S/F (voir figure 1.22). Ce résultat théorique obtenu par Radovic et Buzdin [74] n'a malheureusement jamais été mis clairement en évidence dans les nombreuses expériences qui ont été réalisées [82, 55, 66, 43, 1, 68, 81]. La difficulté vient du fait que les ferromagnétiques utilisés dans ces études ont de grandes énergies d'échange, donc de très courtes longueurs de cohérence ξ_F de seulement quelques Å. Dans les films aussi fins, les propriétés ne sont pas bien contrôlées avec une transition possible entre le paramagnétisme et le ferromagnétisme qui pourrait également donner une oscillation indépendante de l'état π .

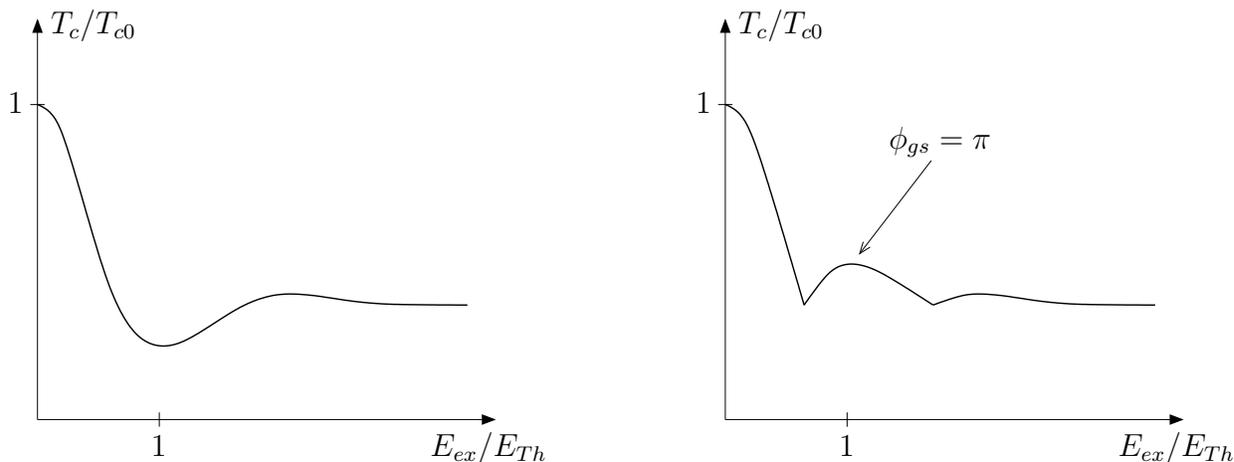


FIG. 1.22 – *Température de transition des bicouches S/F (à gauche) et des jonctions S/F/S (à droite) en fonction de l'énergie d'échange.*

1.2.5 Tricouches $F_1/S/F_2$ type vanes de spin

L'effet de proximité inverse qui agit sur le supraconducteur dans un système $F_1/S/F_2$ n'est pas seulement la somme des effets qui interviennent aux deux interfaces prises séparément. En effet la température de transition doit être légèrement différente entre le cas où les aimantations des deux couches ferromagnétiques sont dans le même sens et le cas où elles sont de sens opposé. Pour pouvoir contrôler la direction relative des aimantations, les deux couches ferromagnétiques doivent avoir les mêmes propriétés que dans les vanes de spin classiques dont nous allons mentionner brièvement le principe de fonctionnement.

L'effet vanne de spin classique

Une vanne de spin classique est un dispositif dont la résistance peut changer jusqu'à 20% lors de l'application d'un faible champ magnétique et qui conserve cet état après disparition du champ. Différentes réalisations pratiques permettent de les utiliser soit pour leur grande magnéto-résistance dans les têtes de lecture, soit pour leur hystérésis dans les mémoires non-volatiles. Ce sont toujours des variantes d'une même structure de base, à savoir une tricouche comprenant un métal normal en sandwich entre deux films ferromagnétiques de champs coercitifs différents. Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué parallèlement aux couches, la direction des deux aimantations se renverse pour des valeurs de champ différentes (figure 1.23). Il existe ainsi des régions où elles sont parallèles et de même sens et des régions où elles sont anti-parallèles. Pour obtenir une grande sensibilité de la magnéto-résistance on utilise un matériau avec un très faible champ coercitif (ex : $Fe_{20}Ni_{80}$). Le champ coercitif de l'autre couche (ex : Co) peut être augmenté par rapport à sa valeur nominale par couplage avec une sous-couche antiferromagnétique (ex : NiO).

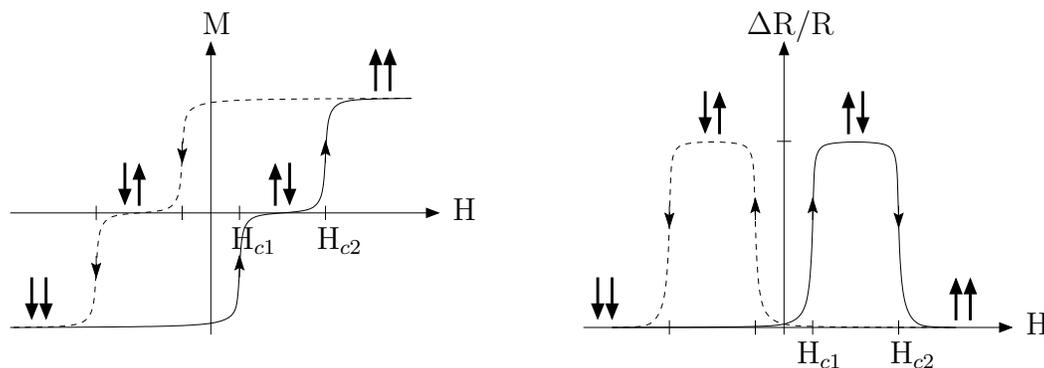


FIG. 1.23 – Cycle d'aimantation et cycle de magnéto-résistance d'une vanne de spin classique.

L'origine de la magnéto-résistance géante de ces systèmes est l'existence de diffusions qui dépendent du spin. Supposons le courant appliqué perpendiculairement aux interfaces dans la géométrie de type jonction. Les électrons traversent les trois couches et subissent des diffusions aux interfaces et sur les défauts des couches ferromagnétiques en conservant leur spin. Dans le cas des métaux de transition $3d$ comme le fer, le cobalt et le nickel, si le spin est parallèle à l'aimantation, la diffusion est faible, alors que dans le cas contraire, elle est

importante (figure 1.24). Ainsi dans le cas d'aimantations de même sens, un type de spin est fortement diffusé dans les deux couches (résistance égale à $2R$) et l'autre ne l'est quasiment pas ($2r$). Si elles sont anti-parallèles, les deux types de spin sont diffusés fortement une seule fois ($R+r$). L'association en parallèle des deux résistances donne respectivement $2Rr/(R+r)$ et $(R+r)/2$, la première étant plus faible que la seconde car $r \ll R$. La résistance augmente donc lorsque les deux couches sont mises dans l'état anti-parallèle par application d'un champ magnétique (figure 1.23). Cet effet de magnéto-résistance décroît avec l'épaisseur du métal normal sur sa longueur de diffusion spin-flip. Il existe une autre configuration possible où le courant est injecté parallèlement aux couches et qui présente également des effets de magnéto-résistance géante. Les électrons se déplaçant essentiellement dans le métal normal et parallèlement aux interfaces, ils ne sont sensibles aux deux couches ferromagnétiques que si l'épaisseur du métal normal est inférieure au libre parcours moyen élastique.

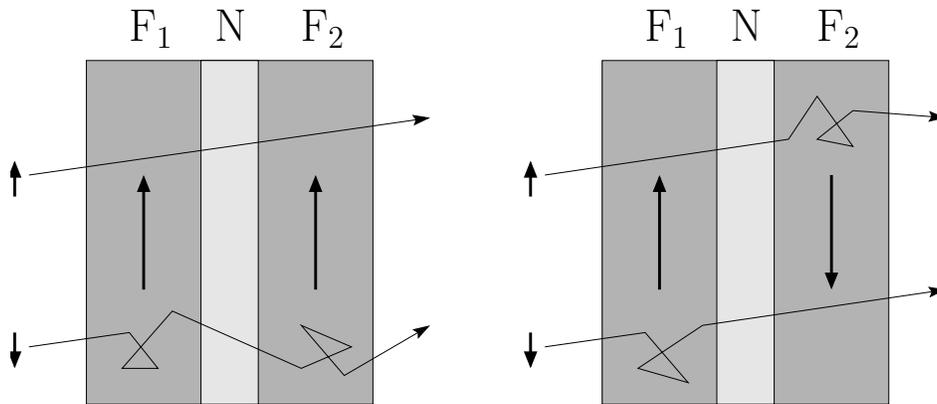


FIG. 1.24 – *Origine de la magnéto-résistance géante dans les vannes de spin classique. Les électrons sont diffusés plus fortement lorsque leur spin est opposé à l'aimantation.*

Le cas supraconducteur : un effet de proximité inverse

Les supraconducteurs ont intrinsèquement une forte magnéto-résistance puisqu'ils transitent de l'état supraconducteur à l'état normal lorsque le champ dépasse le champ critique. Cette transition se fait généralement sous champ assez fort, plus ou moins progressivement suivant la manière dont les vortex sont piégés par des défauts et disparaît après suppression du champ. L'idée du dispositif *vanne de spin* avec un supraconducteur est de provoquer la transition non pas par l'effet direct d'un champ magnétique, mais par le changement des conditions aux limites imposées au condensat. Le système se compose d'un film supraconducteur pris en sandwich entre deux métaux ferromagnétiques dont les aimantations peuvent être parallèles ou anti-parallèles de façon similaire aux vannes de spin classiques. L'effet de proximité inverse abaisse l'énergie de condensation de l'état supraconducteur et réduit la température de transition de manière différente pour les deux configurations. L'origine de la sensibilité de la fonction d'onde supraconductrice à la direction relative des aimantations vient de l'appariement des électrons en paires de spins opposés et requiert une épaisseur de supraconducteur d_S inférieure ou de l'ordre de la longueur de cohérence ξ_S . Cet effet n'est

donc pas un phénomène de transport comme dans le cas de la vanne de spin classique, mais une propriété d'équilibre qui considère l'énergie de l'état fondamental. Suivant la nature des matériaux et des interfaces, la température de transition dans l'état parallèle peut être soit supérieure soit inférieure à celle dans l'état antiparallèle, car différents mécanismes sont mis en jeux.

Ferromagnétiques isolants et supraconducteur balistique

En 1966 de Gennes [31] remarque que l'effet de proximité inverse doit être trop fort dans le cas des métaux ferromagnétiques pour qu'il soit possible de réduire l'épaisseur du supraconducteur en-dessous de sa longueur de cohérence sans détruire la supraconductivité. Il propose donc d'utiliser des matériaux ferromagnétiques isolants, ce qui supprime l'effet de proximité, ainsi qu'un supraconducteur balistique. Lorsqu'un électron de conduction se réfléchit sur une interface avec l'un des ferromagnétiques, sa fonction d'onde acquiert un facteur de phase au cours de la diffusion sur la première couche atomique. Le signe de cette phase dépend de la direction du spin \vec{s} de l'électron par rapport à celle des spins \vec{S} du ferromagnétique, car l'interaction est de la forme $\Gamma \vec{s} \cdot \vec{S}$. En régime balistique, l'électron effectue des aller-retours entre les deux interfaces et les facteurs de phase s'ajoutent dans le cas d'aimantations parallèles (P), ou se compensent dans le cas anti-parallèle (AP). Une paire de Cooper étant composée de deux électrons de spins opposés, leur phase relative se sépare dans le cas (P) ce qui détruit la paire et abaisse la température de transition. Dans le cas (AP) leur phase relative reste constante et la température de transition n'est pas affectée.

Ce système peut se modéliser en disant que le cas (P) correspond à un champ d'échange moyen h_0 appliqué à l'ensemble de la tricouche, alors que dans le cas (AP) les deux effets se compensent et le champ est nul. Plus précisément, la valeur moyenne du champ dépend de l'angle θ entre les deux aimantations : $\bar{h}(\theta) = h_0 |\cos(\theta/2)|$. Ce champ d'échange effectif détruit l'appariement en paires de Cooper et réduit l'amplitude de condensation. Ce mécanisme conduit à des températures de transition :

$$T_c^P < T_c^{AP} \quad (1.32)$$

Ce système a été réalisé expérimentalement par Deutscher et al. [36] avec un film supraconducteur balistique en indium et des films ferromagnétiques en alliage fer-nickel et en nickel. Ces derniers sont volontairement oxydés aux interfaces avec le supraconducteur pour réduire fortement l'effet de proximité et conserver la supraconductivité avec des épaisseurs inférieures à la longueur de cohérence. Ils ont obtenus une température de transition plus faible dans le cas parallèle conformément au modèle de de Gennes : $T_c^P = 2.6 \text{ K} < T_c^{AP} = 2.85 \text{ K}$.

Hauser [49] a également montré cet effet dans des tricouches où le film d'indium est entre deux couches de ferrites Fe_3O_4 qui sont des isolants ferromagnétiques. T_c^{AP} est égale à la valeur de l'indium pur (3.4 K) quelle que soit l'épaisseur d_S du supraconducteur et T_c^P diminue proportionnellement à l'inverse de l'épaisseur d_S (mesurée jusqu'à $T_c^P = 1 \text{ K}$).

Ferromagnétiques métalliques fortement polarisés

Un autre processus a été proposée récemment par Deutscher et Feinberg [35] dans le cas de métaux ferromagnétiques fortement polarisés. Ce système a ensuite été étudié par Falci et al. [39] et par Mélin [65]. Supposons pour simplifier que les ferromagnétiques soient polarisés à 100% avec un seul type de spin au niveau de Fermi (dioxyde de chrome CrO_2 , manganites LaSrMnO_3 , alliages d'Heusler NiMnSb). Il n'y a pas d'effet de proximité possible pour une bicouche S/F car la réflexion d'Andreev a besoin des deux types de spin. Par contre s'il y a deux interfaces comme dans le cas $F_1/S/F_2$ et si les aimantations sont anti-parallèles, une paire peut quitter le condensat avec l'électron de spin up qui part d'un côté et l'électron de spin down de l'autre. Ce processus ne peut avoir lieu que si l'épaisseur d_S entre les deux ferromagnétiques est inférieure à la longueur de cohérence ξ_S . Cette fuite de paire est responsable d'un effet de proximité inverse qui abaisse la température de transition dans le cas anti-parallèle. Une tricouche vanne de spin $F_1/S/F_2$ où les métaux ferromagnétiques sont polarisés à 100% a donc un comportement opposé à celui du paragraphe précédent avec :

$$T_c^P > T_c^{AP} \quad (1.33)$$

Cette réflexion d'Andreev croisée ne produit pas de cohérence, car l'électron et le trou sont dans des régions différentes, mais elle doit générer des corrélations entre les courants injectés de chaque métal ferromagnétique vers le supraconducteur dans un système à plusieurs électrodes. Par ailleurs, pour une polarisation de 100%, la conductance entre les deux électrodes ferromagnétiques est nulle pour le cas parallèle car aucun transfert d'électron n'est possible sous le gap. Elle devient non-nulle pour le cas anti-parallèle car le processus de réflexion d'Andreev non-locale permet le passage des électrons. Il en résulte donc une très grande magnéto-résistance.

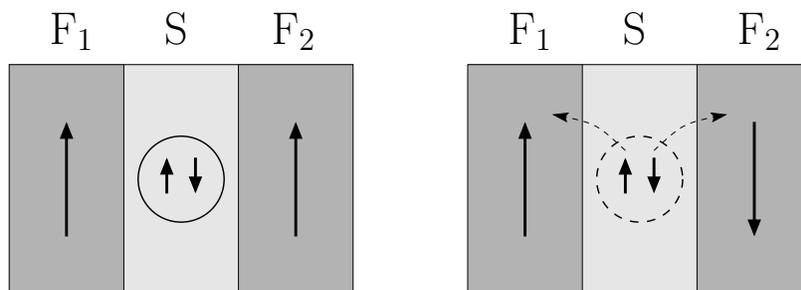


FIG. 1.25 – Tricouche $F_1/S/F_2$ avec des ferromagnétiques fortement polarisés. A gauche : pas d'effet de proximité dans le cas parallèle. A droite : effet de proximité non-local dans le cas anti-parallèle.

Ferromagnétiques métalliques non-polarisés avec énergie d'échange

Proposé indépendamment par Buzdin et al. [22, 6] et par Tagirov [84], le cas auquel nous nous sommes intéressés expérimentalement utilise l'effet de proximité inverse habituel. Contrairement au cas ci-dessus, on suppose que les densités d'états au niveau de Fermi

pour les deux types de spins sont égales et que seule l'énergie d'échange intervient. La résolution des équations d'Usadel dans le formalisme des fonctions de Green permet de calculer la température de transition dans les deux configurations d'aimantations comme nous le verrons dans le prochain chapitre. Buzdin et Tagirov ont montré que la température de transition dans la configuration anti-parallèle est supérieure à celle obtenue dans la configuration parallèle. Cependant nous montrerons dans la partie 2.4.2 que pour certaines valeurs des paramètres, ces équations prédisent un ordre des températures de transition qui peut s'inverser, ce qui n'avait pas été remarqué auparavant.

Les deux valeurs T_c^P et T_c^{AP} sont fortement abaissées par rapport au supraconducteur isolé d'une quantité correspondant à deux bicouches indépendantes F/S+S/F. La dépendance avec les directions d'aimantations dans le cas F₁/S/F₂ est une petite correction à cet effet dû au couplage possible entre les deux interfaces. Pour avoir une différence significative, l'épaisseur du supraconducteur doit être inférieure à la longueur de cohérence. Et dans ce cas l'effet de proximité inverse très fort et peut supprimer la supraconductivité avant même d'avoir atteint ce régime. La réalisation expérimentale d'un tel système nécessite donc l'utilisation de matériaux ferromagnétiques de très faible énergie d'échange pour réduire cet effet de proximité *non-couplé*.

Cet effet est prédit par le formalisme des fonctions de Green, la différence de température de transition venant d'une différence de courant de fuite entre les deux configurations. Cependant ces calculs ne permettent pas de comprendre l'origine physique de l'effet en terme d'états d'Andreev.

Chapitre 2

Calcul des grandeurs caractéristiques

Les équations de Bogoliubov-de Gennes permettent de déterminer les fonctions d'ondes des états d'Andreev dans le régime *ballistique*, mais elles ne sont pas adaptées au calcul des valeurs moyennes des propriétés d'un système *diffusif*. C'est pourquoi nous allons présenter le formalisme semi-classique des *fonctions de Green* afin d'obtenir les grandeurs caractéristiques des différents systèmes de proximité étudiés expérimentalement dans les chapitres 3 et 4. Nous calculerons ainsi le courant critique d'une jonction Josephson S/F/S et la température de transition des multicouches S/F en utilisant des résultats obtenus par différents groupes.

Nous allons en particulier dériver une formule analytique pour la densité spectrale de supercourant dans les jonctions S/N/S en utilisant l'approximation des équations linéaires qui suppose une faible amplitude des corrélations supraconductrices. Cette formule peut être directement étendue sans nouveau calcul au cas des jonctions S/F/S en ajoutant le déphasage dû à l'énergie d'échange, aussi bien dans le cas des jonctions longues que des jonctions courtes. L'origine du supercourant négatif (pour $\phi = \pi/2$) apparaît aussi simplement que dans le cas balistique présenté dans le chapitre précédent. En outre cette formulation spectrale permet d'analyser le rôle de la température qui provoque un changement de signe du supercourant accompagné d'une transition $0-\pi$, comme nous le verrons dans l'étude expérimentale du chapitre 4.

2.1 Formalisme des fonctions de Green semi-classiques

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit comment la fonction d'onde d'un électron du métal normal interfère avec elle-même après deux réflexions d'Andreev sur le supraconducteur et produit des interférences. Dans la vision semi-classique, l'électron se déplace sous la forme d'un paquet d'onde dont l'extension spatiale doit être suffisante pour pouvoir se superposer et interférer avec lui-même après les deux réflexions d'Andreev. La description semi-classique doit donc conserver une partie de l'information quantique sur l'extension et la cohérence des fonctions d'onde pour pouvoir expliquer l'effet de proximité. C'est pour cette raison que le formalisme des fonctions de Green semi-classiques nécessite d'utiliser deux fonctions : la fonction de Green normale $G(\epsilon, r)$ correspond simplement aux états à une particule et la fonction de Green anormale $F(\epsilon, r)$ permet de décrire la propagation de la cohérence à deux particules apportée par le supraconducteur.

2.1.1 Formalisme en énergie

Signification des fonctions de Green

En matière condensée un système contient un très grand nombre de particules et il est impossible de s'intéresser à chacune d'elles. Heureusement ceci n'est pas nécessaire car les propriétés électroniques ne dépendent que des excitations par rapport à l'état fondamental. Ainsi les fonctions de Green ne vont pas contenir toutes les variables de toutes les particules, mais seulement les informations nécessaires pour calculer les quantités qui sont physiquement mesurables.

Les fonctions de Green ont été introduites dans le cadre de la supraconductivité par Gor'kov [46] pour calculer plus facilement les propriétés d'un système supraconducteur. Ces fonctions s'expriment de la manière suivante :

$$\mathcal{G}_{\uparrow\uparrow}(t, r, r') = -i\langle\Psi_0|\psi_{\uparrow}^+(r, t)\psi_{\uparrow}(r', 0)|\Psi_0\rangle \quad (2.1)$$

$$\mathcal{F}_{\uparrow\downarrow}(t, r, r') = -i\langle\Psi_0|\psi_{\uparrow}(r, t)\psi_{\downarrow}(r', 0)|\Psi_0\rangle \quad (2.2)$$

Ce sont des produits d'opérateurs de création ψ^+ et de destruction ψ d'électrons, pris à des positions et à des instants différents ($t > 0$), et moyennés sur l'état fondamental $|\Psi_0\rangle$ du système. En prenant la transformée de Fourier sur le temps à l'énergie ϵ et en prenant $r' = r$, on obtient deux fonctions $G(\epsilon, r)$ et $F(\epsilon, r)$, dont la signification est la suivante.

Dans la définition de $G(\epsilon, r)$, on détruit puis on recrée un électron au même endroit et à la même énergie. Si ce processus est possible, c'est qu'il y a des états disponibles, cette fonction contient donc la structure de la densité d'états $n(\epsilon, r)$.

Dans la définition de $F(\epsilon, r)$, on détruit deux électrons de spins opposés. Ceci serait possible dans un métal normal si ces états sont occupés dans $|\Psi_0\rangle$, mais comme on ne les recrée pas, la projection sur l'état fondamental $\langle\Psi_0|$ serait nul. Par contre ce n'est pas le cas dans un supraconducteur, car les deux électrons de spins opposés qui sont appariés en paires n'occupent que partiellement leur état (avec une fraction v), le complément étant occupé par des trous (avec une fraction u). Cette propriété apparaît explicitement dans l'expression (1.1) de la fonction d'onde BCS de l'état fondamental. Ainsi après avoir détruit les deux

composantes électron, la projection sur les composantes trou est non nulle (et vaut uv pour un supraconducteur). Cette fonction est donc caractéristique de la supraconductivité, elle exprime l'amplitude des corrélations électron-trou, en r et à l'énergie ϵ .

Equation d'Usadel

Les équations qui décrivent l'évolution des fonctions de Green dérivent directement de celles sur les opérateurs de seconde quantification du formalisme de Bardeen, Cooper et Schrieffer [7] ou plutôt de Bogoliubov et de Gennes [32] dans le cas inhomogène. Les équations de Gor'kov ont été reformulées par Eilenberger [38] dans l'approximation semi-classique sous une forme semblable à des équations de transport pour des fonctions de Green locales. Dans le cas d'un système diffusif, ces équations ont été encore simplifiées par Usadel [86] en moyennant les fonctions de Green sur toutes les directions du vecteur d'onde, ne gardant que les deux variables utiles dans ce régime qui sont l'énergie et la coordonnée spatiale. On obtient alors une équation de diffusion pour les fonctions $G(\epsilon, r)$ et $F(\epsilon, r)$ de la forme :

$$- (\hbar D/2) \partial_r (G(\epsilon, r) \partial_r F(\epsilon, r) - F(\epsilon, r) \partial_r G(\epsilon, r)) - i \epsilon F(\epsilon, r) = \Delta(r) G(\epsilon, r) \quad (2.3)$$

Densités spectrales

Cette équation d'Usadel permet par exemple de calculer les densités spectrales $n(\epsilon)$ (densité d'états) et $j(\epsilon)$ (densité de courant) qui sont des quantités importantes dans l'étude de l'effet de proximité entre un supraconducteur et un métal normal. Les grandeurs physiques se calculent en intégrant sur l'énergie ces densités spectrales multipliées par une fonction de distribution $h(\epsilon)$ appropriée. A l'équilibre thermodynamique, celle-ci est donnée par la fonction de Fermi, mais dans une situation hors équilibre, il faut calculer la fonction de distribution locale (les équations supplémentaires nécessaires à ce calcul ont été intégrées dans le formalisme de Keldysh [13] qu'il n'est pas nécessaire d'introduire ici). Dans la suite nous verrons par exemple que la densité spectrale $j_s(\epsilon)$ permet de calculer le courant Josephson d'une jonction S/N/S par la relation :

$$J_s = \frac{\sigma}{2e} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon j_s(\epsilon) h(\epsilon) \quad (2.4)$$

A cause du terme imaginaire $i\epsilon$, l'équation d'Usadel (2.3) est souvent difficile à résoudre et il est préférable d'utiliser la technique de Matsubara qui supprime les oscillations en fonction de l'énergie. Nous verrons comment revenir ensuite aux densités spectrales car elles permettent d'interpréter plus facilement les résultats.

2.1.2 Formalisme de Matsubara

Nouvelles fonctions de Green

Les fonctions *en énergie* $G(\epsilon, r)$ et $F(\epsilon, r)$ ont été obtenues par une transformation de Fourier de $\mathcal{G}(t, r)$ et de $\mathcal{F}(t, r)$ par rapport au temps, où le temps est *réel*. Cependant lorsque le système est à l'équilibre thermodynamique à la température T , il est possible de

dériver des fonctions de Green thermiques $\tilde{\mathcal{G}}(\tau, r)$ et $\tilde{\mathcal{F}}(\tau, r)$. La moyenne est prise en tenant compte des états excités thermiquement et le temps est pris *imaginaire* en posant $t = i\tau$ (la moyenne thermique est équivalente à une évolution temporelle selon l'axe imaginaire). Ces fonctions étant périodiques (de période $\tau = 2\hbar/k_B T$), leur transformée de Fourier se résume aux coefficients de Fourier $\tilde{G}(\omega_n, r)$ et $\tilde{F}(\omega_n, r)$. De plus, dans le cas de fermions, seules les harmoniques impaires interviennent, ce sont les fréquences de Matsubara :

$$\omega_n = (2n + 1)\pi k_B T, \text{ avec } n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (2.5)$$

L'équation d'Usadel (2.3) se réécrit sous la forme suivante, où il suffit de considérer les valeurs $n \geq 0$:

$$- (\hbar D/2) \partial_r (\tilde{G}(\omega_n, r) \partial_r \tilde{F}(\omega_n, r) - \tilde{F}(\omega_n, r) \partial_r \tilde{G}(\omega_n, r)) + \omega_n \tilde{F}(\omega_n, r) = \Delta(r) \tilde{G}(\omega_n, r) \quad (2.6)$$

Le terme imaginaire $-i\epsilon$ est remplacé par un terme réel ω_n , ce qui simplifie beaucoup les calculs. En particulier, lorsqu'il n'y a pas de gradient de phase dans le système, les solutions $\tilde{G}(\omega_n, r)$ et $\tilde{F}(\omega_n, r)$ sont entièrement réelles. Ainsi la résolution de l'équation d'Usadel se fera préférentiellement en formalisme de Matsubara.

Nous allons maintenant présenter d'une autre façon plus intuitive l'origine des fréquences de Matsubara et qui permettra en même temps d'établir la relation qui permet de passer des expressions en $\tilde{G}(\omega_n, r)$ à celles en $G(\epsilon, r)$.

Origine des fréquences de Matsubara

Pour calculer une grandeur à l'équilibre thermique, on utilise la fonction de distribution $h(\epsilon)$ qui est reliée à la fonction de Fermi $f_T(\epsilon)$ par :

$$h(\epsilon) = 1 - 2f_T(\epsilon) = \frac{e^{\epsilon/k_B T} - 1}{e^{\epsilon/k_B T} + 1} = \tanh\left(\frac{\epsilon}{2k_B T}\right) \quad (2.7)$$

où l'énergie ϵ est comptée à partir du niveau de Fermi. Cette fonction est régulière pour ϵ réel, mais présente des pôles dans le plan complexe, c'est-à-dire que son dénominateur s'annule lorsque l'énergie vaut $\epsilon = i\omega_n$ où $\omega_n = (2n + 1)\pi k_B T$. Les fréquences de Matsubara introduites au paragraphe précédent sont donc les pôles de la fonction de distribution sur l'axe imaginaire :

$$h(\epsilon) = \sum_{\omega_n} \frac{2k_B T}{\epsilon - i\omega_n} \quad (2.8)$$

Reprenons l'exemple du courant Josephson qui se calcule selon l'expression (2.4). Intuitivement l'intégrale de $j_s(\epsilon)$ qui donne la moyenne thermique est dominée par les quelques valeurs d'énergie où le facteur $h(\epsilon)$ est grand, c'est-à-dire là où il diverge, au niveau de ses pôles $\epsilon = i\omega_n$. Il n'est donc pas nécessaire de connaître toute la fonction $j_s(\epsilon)$ pour calculer la moyenne thermique, il suffit de connaître les valeurs discrètes $j_s(i\omega_n)$. C'est pourquoi on utilise le formalisme de Matsubara dans laquelle on remplace ϵ par $i\omega_n$.

Cependant l'intégrale (2.4) se fait sur l'axe réel alors que les pôles sont imaginaires. Plus rigoureusement c'est en fait le théorème des résidus qui dit que l'intégrale sur l'axe réel est égale à la somme des résidus au niveau des pôles situés dans l'un des demi-plans complexes. En effet la fonction $j_s(\epsilon)$ tend vers zéro suffisamment vite à l'infini pour pouvoir prolonger l'intégration de l'axe réel par un demi-cercle fermé dans le plan complexe du côté positif et appliquer le théorème des résidus :

$$J_s = \frac{\sigma}{2e} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon j_s(\epsilon) h(\epsilon) = \frac{\sigma}{2e} 2i\pi \sum_{\omega_n > 0} 2k_B T j_s(i\omega_n) \quad (2.9)$$

Cette relation est valable pour toute fonction régulière dans le demi-plan complexe positif. Ainsi toutes les grandeurs thermodynamiques peuvent s'exprimer comme des sommes sur les fréquences de Matsubara.

Correspondance inverse

Dans la pratique la résolution des équations d'Usadel se fait dans le formalisme de Matsubara et donne directement le résultat final de la grandeur thermodynamique sous la forme :

$$J_s = \frac{\sigma}{2e} 4\pi k_B T \sum_{\omega_n > 0} \tilde{j}_s(\omega_n) \quad (2.10)$$

Il peut cependant être utile de revenir aux densités spectrales pour traiter un système hors équilibre, ou bien pour interpréter plus facilement l'origine d'un effet. Dans la suite nous utiliserons par exemple cette correspondance pour analyser l'influence de la température sur les états d'Andreev des jonctions Josephson S/F/S.

Pour obtenir la fonction $j_s(\epsilon)$ à partir de la fonction réelle $\tilde{j}_s(\omega_n)$, il faut prendre quelques précautions. En comparant les expressions (2.9) et (2.10), on obtient tout d'abord la relation $i j_s(i\omega_n) = \tilde{j}_s(\omega_n)$. Pour transformer cette relation en $j_s(\epsilon) = -i \tilde{j}_s(-i\epsilon)$, il faut s'assurer que la fonction obtenue n'ait pas de pôles sur l'axe réel des énergies. Si c'est le cas on résout la difficulté en intégrant sur un axe parallèle à l'axe réel, mais très légèrement décalé dans le demi-plan complexe supérieur pour éviter les pôles réels. Ceci équivaut à remplacer ϵ par $\epsilon + i\gamma$ avec $\gamma \rightarrow 0^+$. De façon plus rigoureuse, cela provient de la nature *retardée* de la fonction de Green $G^R(\epsilon)$ qui intervient dans les grandeurs spectrales [13].

Par ailleurs la fonction de distribution $h(\epsilon)$ étant impaire en énergie, seule la composante impaire de $j_s(\epsilon)$ va rester dans le calcul des grandeurs physiques et on tient compte de cela en prenant volontairement la partie impaire. Le passage de \tilde{j}_s à j_s se fait donc de la manière suivante :

$$j_s(\epsilon) = -i \frac{1}{2} \left(\tilde{j}_s(-i(\epsilon + i\gamma)) - \tilde{j}_s(+i(\epsilon + i\gamma)) \right) \quad (2.11)$$

La partie impaire se transforme en partie imaginaire car $\tilde{j}_s(\omega_n)$ est réelle, et ceci permet d'obtenir une fonction $j_s(\epsilon)$ également réelle :

$$j_s(\epsilon) = \text{Im}[\tilde{j}_s(-i(\epsilon + i\gamma))] \quad (2.12)$$

On utilisera ultérieurement cette relation pour dériver l'expression de la densité spectrale de supercourant à partir de l'expression du supercourant calculé en formalisme de Matsubara.

2.2 Supercourant dans les jonctions S/N/S

2.2.1 Solution analytique

Considérons une jonction S/N/S diffusive d'épaisseur d et de surface \mathcal{S} schématisée sur la figure 2.1. Le métal normal N est situé entre les deux interfaces en $x = \pm d/2$ et les électrodes supraconductrices S sont semi-infinies avec une différence de phase ϕ . En dessous de la température de transition T_c , une amplitude de paire finie apparaît dans le supraconducteur et se propage dans le métal normal. La densité d'états est modifiée et peut transporter un supercourant. Pour le calculer il faut résoudre l'équation d'Usadel (2.6) pour les deux fonctions de Green G et F . Par commodité on choisit le formalisme de Matsubara qui donne les propriétés à l'équilibre thermodynamique, sachant qu'il sera possible ensuite d'obtenir les quantités spectrales (nous supprimerons désormais les \sim sur les fonctions de Green). L'équation est non-linéaire car elle fait intervenir des produits $G(\omega_n, x) \times F(\omega_n, x)$. Dans les régions supraconductrices, elle contient de plus le potentiel attractif $\Delta(x)$ qui doit être calculé de façon autocohérente à partir des fonctions $F(\omega_n, x)$. Il n'est donc pas possible de la résoudre analytiquement dans le cas général, elle nécessite des calculs numériques.

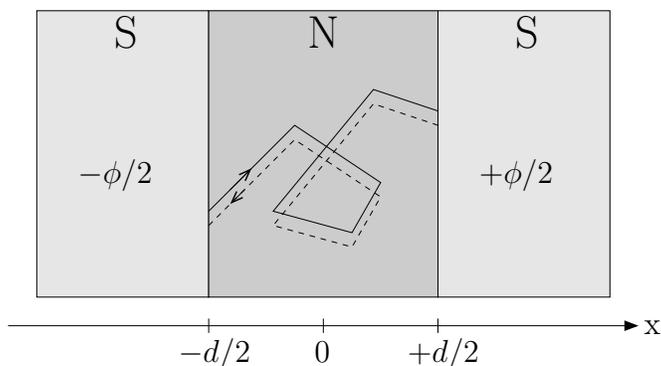


FIG. 2.1 – Schéma de la jonction S/N/S avec une région normale diffusive d'épaisseur d .

Certaines approximations permettent cependant d'obtenir des solutions analytiques dans des cas limites. L'équation peut par exemple être linéarisée dans la région normale lorsque l'amplitude de paires $F(\omega_n, x)$ est très faible. En effet la relation $F^+ F + G^2 = 1$ permet de poser $G(\omega_n, x) = 1$ et il ne reste plus que les termes en $F(\omega_n, x)$:

$$-\frac{\hbar D}{2} \nabla^2 F_N(\omega_n, x) + \omega_n F_N(\omega_n, x) = 0 \quad (2.13)$$

Dans ce cas on perd les informations concernant les modifications de densité d'états comme l'apparition du mini-gap. On conserve cependant l'essentiel de la physique du courant critique car il fait intervenir essentiellement les corrélations supraconductrices. De façon rigoureuse cette hypothèse n'est valable que lorsque la température est proche de T_c ou lorsque la présence d'une barrière de potentiel à l'interface limite fortement l'amplitude des corrélations qui pénètrent dans le métal normal.

Les conditions aux limites à l'interface N/S dans le cas d'une transparence imparfaite ont été calculées par Kupriyanov et Lukichev [60] :

$$\sigma_S \nabla F_S(\omega_n, d/2) = \frac{1}{R_b \mathcal{S}} (F_S(\omega_n, d/2) - F_N(\omega_n, d/2)) = \sigma_N \nabla F_N(\omega_n, d/2) \quad (2.14)$$

Un gradient de $F_S(\omega_n, x)$ à l'interface traduit la fuite des paires vers la région normale où le potentiel attractif est nul et où les paires sont progressivement détruites. La relation (2.14) exprime la continuité de ce courant de fuite en égalant les courants du côté supraconducteur, dans la barrière et du côté normal (correspondants respectivement à chacun des trois termes). Ils font intervenir les conductivités σ_S et σ_N et la résistance R_b de la barrière. Lorsque la transparence est parfaite, $R_b = 0$ et $F_N(\omega_n, d/2) = F_S(\omega_n, d/2)$. On définit un paramètre Γ_b égal au rapport de la résistance de la barrière à la résistance du métal normal. On a alors $1/R_b \mathcal{S} = \sigma_N / \Gamma_b d$ et la résistance totale de la jonction s'écrit $R_n = (1 + 2\Gamma_b)d / \sigma_N \mathcal{S}$.

Comme nous l'avons indiqué dans le chapitre 1, ce courant de fuite est responsable de l'effet de proximité inverse. Un gradient non-nul dans l'équation (2.14) réduit l'amplitude du gap et les équations d'Usadel doivent être résolues de manière autocohérente du côté supraconducteur. Cependant lorsque l'on ne s'intéresse pas explicitement aux propriétés du supraconducteur, on peut supposer que le gap a une valeur constante $\Delta e^{\pm i\phi/2}$ dans chaque électrode. La fonction de Green côté supraconducteur est solution de (2.6) et s'écrit dans ces conditions :

$$F_S(\omega_n, \pm d/2) = \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + \omega_n^2}} e^{\pm i\phi/2} \quad (2.15)$$

Lorsque la différence de phase ϕ est non-nulle la fonction $F_N(\omega_n, x)$ devient complexe car elle doit vérifier les conditions aux limites avec $F_S(\omega_n, \pm d/2)$. La solution de l'équation (2.13) est de la forme :

$$F_N(\omega_n, x) = A \cosh(\beta_n x) + B \sinh(\beta_n x) \quad (2.16)$$

$$\beta_n = \sqrt{\frac{2\omega_n}{\hbar D}} \quad (2.17)$$

Par symétrie vis-à-vis du choix des phases, la partie imaginaire de $F_N(\omega_n, x)$ et la partie réelle de sa dérivée sont nulles au centre en $x = 0$, donc A est réel et B imaginaire. Après application des conditions aux limites (2.14), on obtient les parties réelles et imaginaires de $F_N(\omega_n, x)$:

$$\text{Re}[F_N(\omega_n, x)] = \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + \omega_n^2}} \frac{\cosh(\beta_n x)}{\cosh(\beta_n d/2) + \Gamma_b d \beta_n \sinh(\beta_n d/2)} \cos(\phi/2) \quad (2.18)$$

$$\text{Im}[F_N(\omega_n, x)] = \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + \omega_n^2}} \frac{\sinh(\beta_n x)}{\sinh(\beta_n d/2) + \Gamma_b d \beta_n \cosh(\beta_n d/2)} \sin(\phi/2) \quad (2.19)$$

Il est maintenant possible de calculer la densité de supercourant par unité de surface en utilisant l'expression [60] :

$$j_s(T) = \frac{\sigma}{2e} 4\pi k_B T \sum_{\omega_n > 0} \text{Im} [F_N^*(\omega_n, x) \nabla_x F_N(\omega_n, x)] \quad (2.20)$$

Le résultat ne doit pas dépendre de x car le courant est uniforme. C'est le cas avec les solutions obtenues, mais dans le cas général il faut ajouter aux équations d'Usadel cette condition de conservation du courant. Remarquons également que l'expression du supercourant fait intervenir le produit de deux fonctions de Green F_N car c'est un processus à deux particules, contrairement à la densité d'états qui ne fait intervenir qu'une fois la fonction de Green G_N . Après quelques calculs, on aboutit à l'expression du supercourant [60] :

$$I_s(T) = \frac{\sigma \mathcal{S}}{2e d} 4\pi k_B T \sum_{\omega_n > 0} \frac{\Delta^2}{\Delta^2 + \omega_n^2} \frac{(\beta_n d)}{(1 + \Gamma_b^2 \beta_n^2 d^2) \sinh(\beta_n d) + (2\Gamma_b \beta_n d) \cosh(\beta_n d)} \sin \phi \quad (2.21)$$

La relation courant-phase est sinusoidale dans l'approximation des équations linéarisées. Le premier terme dans la fraction est caractéristique des jonctions Josephson, il provient seulement des expressions $F_S(\omega_n)$ des électrodes supraconductrices. Si on ne considère que ce terme, on obtient l'expression du courant critique des jonctions tunnel S/I/S :

$$I_c(T) = \frac{\pi \Delta}{2e R_n} \tanh \left(\frac{\Delta}{2k_B T} \right) \quad (2.22)$$

Le second terme est par contre spécifique des jonctions S/N/S. Il fait intervenir le paramètre $(\beta_n d)$ qui peut se réécrire $\sqrt{2\omega_n/E_{Th}} \sim \sqrt{2\pi k_B T/E_{Th}}$ avec l'énergie de Thouless $E_{Th} = \hbar D/d^2$. Pour une jonction courte avec $E_{Th} \gg \Delta$, la température est toujours très inférieure à l'énergie de Thouless, on a donc $(\beta_n d) \ll 1$. On peut simplifier la fraction et on est ramené à l'expression (2.22) des jonctions tunnel. Pour une jonction longue avec $E_{Th} \ll \Delta$, les variations du supercourant sont dominées par le second terme. Il décroît de façon exponentielle avec la température en $e^{-\sqrt{2\pi k_B T/E_{Th}}} = e^{-d/L_T}$ pour les températures supérieures à l'énergie de Thouless.

2.2.2 Densité spectrale de supercourant

En utilisant les expressions (2.20) et (2.21), la quantité $\tilde{j}_s(\omega_n)$ définie par l'équation (2.10) s'écrit dans le cas le plus simple d'une transparence parfaite ($\Gamma_b = 0$) :

$$\begin{aligned} \tilde{j}_s(\omega_n) &= \text{Im}[F_N^*(\omega_n, x) \nabla F_N(\omega_n, x)] \\ \tilde{j}_s(\omega_n) &= \frac{1}{d} \frac{\Delta^2}{\Delta^2 + \omega_n^2} \frac{\sqrt{2\omega_n/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{2\omega_n/E_{Th}}} \sin \phi \end{aligned} \quad (2.23)$$

En utilisant la correspondance (2.12) entre le formalisme de Matsubara et celui en énergie, on peut en déduire la quantité $j_s(\epsilon)$ qui a la dimension d'un gradient. On préfère utiliser une grandeur sans dimension $N_J(\epsilon)$ définie par :

$$N_J(\epsilon) = d j_s(\epsilon) = d \text{Im}[\tilde{j}_s(-i(\epsilon + i\gamma))] \quad (2.24)$$

que l'on appellera désormais *densité spectrale de supercourant*. La transformation de l'équation (2.23) donne l'expression suivante :

$$N_J(\epsilon) = \text{Im} \left[\frac{\Delta^2}{\Delta^2 - (\epsilon + i\gamma)^2} \frac{\sqrt{-2i\epsilon/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{-2i\epsilon/E_{Th}}} \right] \sin \phi \quad (2.25)$$

en mettant $\gamma \rightarrow 0^+$ dans le premier terme car il présente une divergence en $\epsilon = \Delta$.

Dans le cadre des approximations qui ont permis d'obtenir l'expression simple (2.25), la densité spectrale de supercourant est une fonction sinusoïdale de la phase. Pour $\phi = 0$, elle est nulle pour toutes les énergies, ce qui correspond à la dégénérescence des états (+) et (-) (introduits dans la partie 1.1.3) qui transportent le courant dans des directions opposées. La valeur maximale est obtenue pour $\phi = \pi/2$ et correspond au courant critique.

Pour une jonction longue $E_{Th} \ll \Delta$, la fonction $N_J(\epsilon)$ est représentée sur la figure 2.2. Les oscillations correspondent à l'alternance des états (+) et (-) dont la dégénérescence a été levée par la différence de phase ϕ . L'amplitude décroît exponentiellement vers zéro sur l'échelle de quelques fois E_{Th} (régime diffusif) de sorte que seuls les premiers états contribuent de façon significative au supercourant. Le premier terme de l'expression (2.25) contenant le gap n'intervient pas dans ce cas $E_{Th} \ll \Delta$. Le second terme présente des oscillations car le sinus hyperbolique a un argument complexe et peut se réécrire :

$$\text{Im} \left[\frac{(1-i)y}{\sinh(1-i)y} \right] = y \frac{\cosh y \sin y - \sinh y \cos y}{\cosh^2 y \sin^2 y + \sinh^2 y \cos^2 y} \quad (2.26)$$

en posant $y = \sqrt{\epsilon/E_{Th}}$. Le numérateur s'annule pour $y \approx 5\pi/4, 9\pi/4, \dots$, c'est-à-dire pour $\epsilon \approx 15 E_{Th}, 50 E_{Th}, \dots$

Il est important de noter que la résolution des équations non linéarisées aurait fait apparaître un mini-gap à l'énergie $E_g \approx 3E_{Th}$ en-dessous de laquelle la densité spectrale de supercourant est nulle. Cette valeur est petite par rapport à la période des oscillations du supercourant. On peut trouver la résolution numérique des équations non-linéaires dans l'article de Yip [94]. Le même mini-gap intervient dans la densité d'états à une particule et a été étudié théoriquement par Zhou et al. [96] avec en particulier sa dépendance en fonction de la différence de phase ϕ .

2.2.3 Supercourant à l'équilibre et hors-équilibre

Situation à l'équilibre thermique

Cette densité spectrale de supercourant $N_J(\epsilon)$ permet de calculer le supercourant total en l'intégrant avec la fonction de distribution $h(\epsilon)$:

$$I_s(T) = \frac{1}{2eR_n} \int_{-\infty}^{+\infty} N_J(\epsilon) h(\epsilon) d\epsilon \quad (2.27)$$

La fonction impaire $h(\epsilon)$ est reliée à la fonction de distribution classique des électrons notée $f(\epsilon)$ par :

$$h(\epsilon) = 1 - 2f(\epsilon) = (1 - f(\epsilon)) - (1 - f(-\epsilon)) \quad (2.28)$$

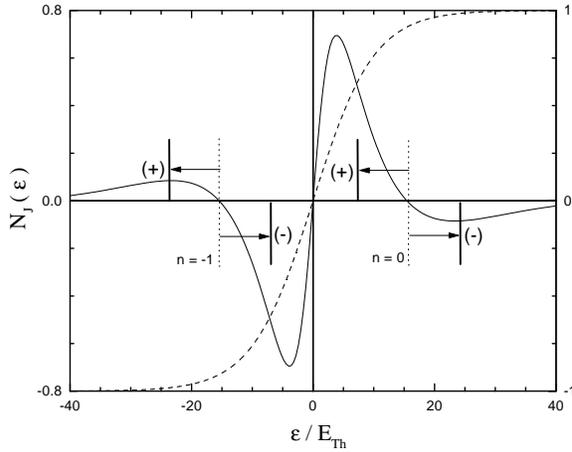


FIG. 2.2 – Densité spectrale de supercourant $N_J(\epsilon)$ pour $\phi = \pi/2$ et $E_{Th} \ll \Delta$ (trait continu). Correspondance qualitative avec les états liés discrets du régime balistique (traits verticaux). Fonction de distribution $h(\epsilon)$ pour $k_B T = 5 E_{Th}$ (tirets).

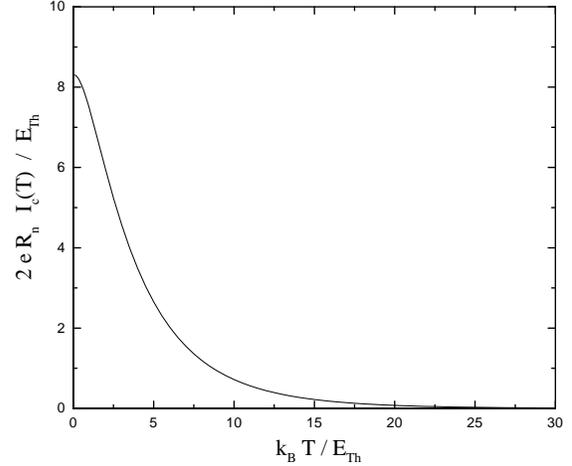


FIG. 2.3 – Dépendance du courant critique avec la température dans le cas d'une jonction longue $E_{Th} \ll \Delta$.

Le terme $1 - f(\epsilon)$ traduit la probabilité que l'état d'énergie ϵ soit disponible pour injecter un électron. La densité de supercourant $N_J(\epsilon)$ étant une fonction impaire, $h(\epsilon)$ ne contient que la partie impaire de la probabilité $1 - f(\epsilon)$.

A l'équilibre thermique, $f(\epsilon)$ est la fonction de Fermi $f_T(\epsilon)$:

$$h(\epsilon) = 1 - 2f_T(\epsilon) = \tanh\left(\frac{\epsilon}{2k_B T}\right) \quad (2.29)$$

A température nulle, tous les états $\epsilon > 0$ sont vides donc disponibles pour injecter des électrons et $h(\epsilon > 0) = +1$. Tous les états $\epsilon < 0$ sont pleins, les électrodes supraconductrices ne peuvent pas y injecter d'électron. C'est le fait d'avoir pris la partie impaire qui conduit à $h(\epsilon < 0) = -1$. Ainsi l'intégrale pour $\epsilon < 0$ est exactement égale à celle pour $\epsilon > 0$. Les états sous le niveau de Fermi sont seulement utilisés pour les trous des paires d'Andreev d'énergie $\epsilon > 0$, trous qui transportent le courant dans la même direction que l'électron, les paires transportant une charge $2e$.

L'intégrale (2.27) avec (2.29) donne exactement le même résultat (figure 2.3) que l'expression en formalisme de Matsubara, mais l'action de la température apparaît beaucoup plus clairement dans ce formalisme en énergie. La fonction $h(\epsilon)$ est représentée sur la figure 2.2 pour $k_B T = 5 E_{Th}$ avec la fonction $N_J(\epsilon)$ dans le cas d'une jonction longue $E_{Th} \ll \Delta$. Les excitations thermiques diminuent l'intégrale de $N_J(\epsilon)$ pour les énergies $\epsilon < k_B T$. Lorsque la température est très supérieure à l'énergie de Thouless, le courant critique devient exponentiellement petit. Notons également que le courant critique sature aux températures inférieures à E_{Th} car $N_J(\epsilon)$ est nul à $\epsilon = 0$ donc on ne gagne plus de supercourant en refroidissant. La valeur de saturation est $2eR_n I_c(0) = 8.3 E_{Th}$ avec notre expression approchée. Le

vrai coefficient est un peu plus grand comme l'a montré l'étude expérimentale et théorique de jonctions longues S/N/S par Dubos et al. [37].

Situation hors-équilibre

Une situation hors-équilibre intéressante consiste à déplacer le potentiel chimique du métal normal par rapport à celui du supraconducteur. Elle a été étudiée théoriquement dans plusieurs articles [90, 91, 94] et réalisée expérimentalement par Baselmans et al. [9]. Si la jonction S/N/S possède deux électrodes supplémentaires, un courant normal peut être injecté perpendiculairement au supercourant en appliquant une tension $2V$ comme le montre la figure 2.4. Si la région normale est mésoscopique, la fonction de distribution n'est pas à l'équilibre thermique, car il n'y a pas de processus de relaxation de l'énergie. Elle présente deux marches aux valeurs des tensions des deux réservoirs normaux $\epsilon = \pm eV$, convoluées par la fonction de Fermi à la température des réservoirs. Au centre, les deux marches sont égales et la fonction de distribution :

$$h(\epsilon) = \frac{1}{2} \left(\tanh \left(\frac{\epsilon + eV}{2k_B T} \right) + \tanh \left(\frac{\epsilon - eV}{2k_B T} \right) \right) \quad (2.30)$$

est représentée sur la figure 2.5. A très basse température $k_B T \ll E_{Th}$, les états d'énergie $\epsilon < eV$ sont occupés avec une probabilité $\frac{1}{2}$. Les supercourants de la jonction S/N/S de part et d'autres du niveau de Fermi se compensent dans cette fenêtre d'énergie, c'est pourquoi $h(\epsilon) = 0$. Seuls les états $\epsilon > eV$ contribuent au supercourant, qui diminue donc avec la tension appliquée comme indiqué sur la figure 2.6. Au-delà d'une tension $eV^* = 8 E_{Th}$, la contribution négative ($\epsilon > 15 E_{Th}$) domine et le courant critique total devient négatif. L'état fondamental passe ainsi d'une différence de phase $\phi_{gs} = 0$ à $\phi_{gs} = \pi$ lorsqu'on augmente la tension.

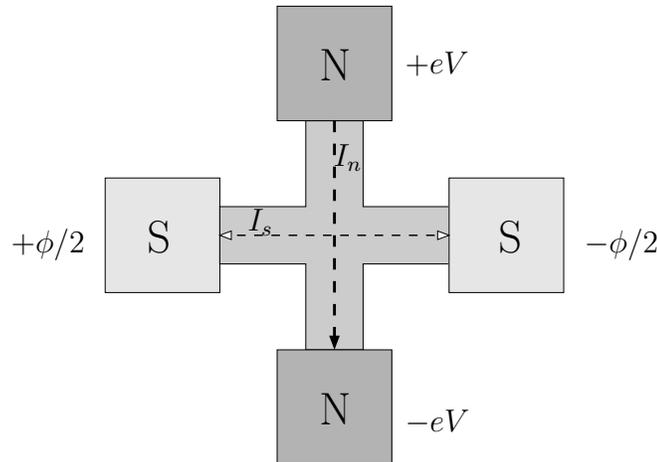


FIG. 2.4 – Schéma d'une jonction S/N/S avec deux électrodes transverses permettant d'appliquer une tension et de modifier la forme de la fonction de distribution $h(\epsilon)$.

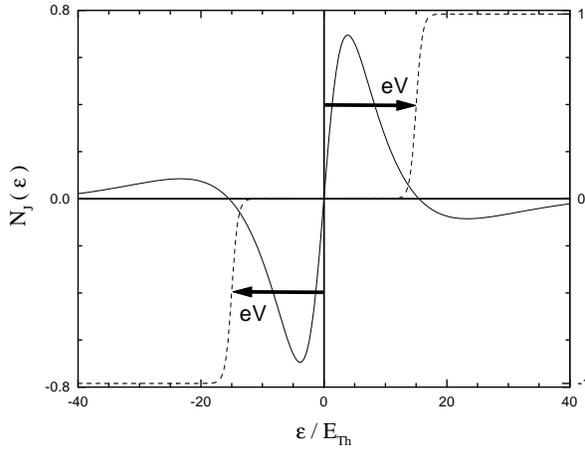


FIG. 2.5 – Situation hors-équilibre induite par une tension transverse appliquée à la jonction (figure 2.4). Densité spectrale de supercourant $N_J(\epsilon)$ pour $\phi = \pi/2$ et $E_{Th} \ll \Delta$ (trait continu). Fonction de distribution $h(\epsilon)$ en forme de double marche à basse température $k_B T = 0.5 E_{Th}$ (pointillés).

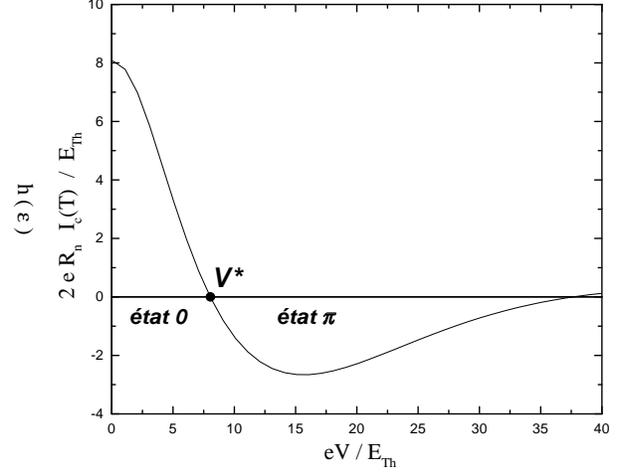


FIG. 2.6 – Dépendance du courant critique avec la tension transverse appliquée à la jonction (figure 2.4). $E_{Th} \ll \Delta$ et $k_B T = 0.5 E_{Th}$.

Baselmans et al. [9] ont montré que l'état fondamental de la jonction était bien un état π en utilisant le phénomène appelé interférométrie d'Andreev [45, 90]. Dans cette géométrie d'échantillon, il est possible de mesurer la résistance entre les réservoirs normaux tout en faisant passer un courant supraconducteur dans la jonction S/N/S. La résistance normale dépend de la différence de phase ϕ selon une expression $R(\phi) = R_0 - \delta R \cos \phi$ à cause de la dépendance en ϕ du spectre des états liés d'Andreev (en particulier le mini-gap disparaît pour $\phi = \pi$). Si la résistance augmente lorsqu'on augmente le supercourant, c'est que $\phi_{gs} = 0$. Si elle diminue, c'est que $\phi_{gs} = \pi$. Ils ont également montré que la figure d'interférence d'un SQUID avec deux jonctions comme celles-ci se décale d'un demi quantum de flux lorsqu'une des deux est mise dans l'état π par application d'une tension [10]. Ceci est dû au supercourant qui apparaît spontanément dans l'anneau pour satisfaire la relation qui lie les différences de phase aux bornes des deux jonctions.

2.3 Supercourant dans les jonctions S/F/S

2.3.1 Faible énergie d'échange

L'expression analytique du courant Josephson dans le cas S/N/S et les considérations du chapitre précédent sur l'influence de l'énergie d'échange permettent de passer facilement au cas S/F/S. Commençons par le cas d'une faible énergie d'échange $E_{ex} \ll \Delta$ et d'une jonction longue $E_{Th} \ll \Delta$.

Nous avons vu que le déphasage supplémentaire $\Delta\varphi = 2qx$ des paires d'Andreev ($\downarrow\uparrow$) est compensé par l'énergie cinétique pour les paires à l'énergie $\epsilon = E_{ex}$. Ceci correspond à la fois à un décalage des états liés et à un déplacement du maximum de la longueur de cohérence L_ϵ qui passe de $\epsilon = 0$ à $\epsilon = E_{ex}$. La densité spectrale de supercourant $N_J^{\downarrow\uparrow}(\epsilon)$ est donc simplement obtenue en décalant la fonction $N_J(\epsilon)$ de $+E_{ex}$, comme sur la figure 2.7.

Il est possible de faire le lien entre les oscillations de densité spectrale de supercourant et la position des états liés. Les états (+) et (-) sont séparés par la différence de phase ϕ qui se traduit en régime diffusif par une simple dépendance en $\sin\phi$ de l'amplitude (nous représenterons ainsi toujours le cas $\phi = \pi/2$ correspondant au maximum de supercourant). A cause du décalage de $+E_{ex}$, les états de type $(n=-1)(-)$ apparaissent au-dessus du niveau de Fermi et transportent un courant négatif. La décroissance exponentielle du régime diffusif étant maintenant centrée sur $\epsilon = E_{ex}$ et non sur $\epsilon = 0$, les états de type $(n=-1)(-)$ et $(n=0)(+)$ se compensent parfaitement lorsque l'énergie d'échange est égale à la valeur du premier zéro soit $15 E_{Th}$. C'est alors les états de type $(n=0)(-)$ qui permettent de dire que le supercourant total négatif conduisant à l'état fondamental π .

Il faut également tenir compte des paires ($\uparrow\downarrow$) dont la fonction $N_J^{\uparrow\downarrow}(\epsilon)$ correspond à un décalage de $-E_{ex}$ et la densité spectrale totale est la somme des deux contributions :

$$N_J(\epsilon) = N_J^{\downarrow\uparrow}(\epsilon) + N_J^{\uparrow\downarrow}(\epsilon) \quad (2.31)$$

Dans le cas $E_{Th} \ll \Delta$, le premier terme de l'expression (2.25) contenant le gap Δ ne contribue pas et la fonction $N_J(\epsilon)_F$ dans le cas S/F/S est obtenue à partir de la fonction $N_J(\epsilon)_N$ du cas S/N/S par :

$$N_J(\epsilon)_F = \frac{1}{2} N_J(\epsilon - E_{ex})_N + \frac{1}{2} N_J(\epsilon + E_{ex})_N \quad (2.32)$$

$$N_J(\epsilon)_F = \text{Im} \left[\frac{1}{2} \frac{\sqrt{-2i(\epsilon - E_{ex})/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{-2i(\epsilon - E_{ex})/E_{Th}}} + \frac{1}{2} \frac{\sqrt{-2i(\epsilon + E_{ex})/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{-2i(\epsilon + E_{ex})/E_{Th}}} \right] \sin \phi \quad (2.33)$$

qui est bien toujours une fonction impaire. La densité de supercourant est représentée sur la figure 2.8 pour $E_{ex} = 13 E_{Th}$, où l'on reconnaît la contribution des deux types de paires ($\downarrow\uparrow$) et ($\uparrow\downarrow$). A température nulle, le supercourant total est donné par l'intégrale de $N_J(\epsilon)$ sur les énergies $\epsilon > 0$:

$$I_s(0) = \frac{2}{2eR_n} \int_0^{+\infty} N_J(\epsilon) d\epsilon \quad (2.34)$$

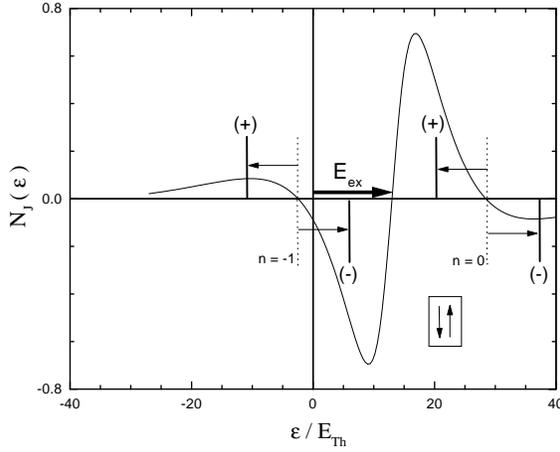


FIG. 2.7 – Densité spectrale de supercourant (pour $\phi = \pi/2$ et $E_{Th} \ll \Delta$) décalée de la valeur de l'énergie d'échange $E_{ex} = 13 E_{Th}$ pour les paires ($\downarrow\uparrow$). Correspondance avec les états liés discrets du régime balistique unidimensionnel (traits verticaux).

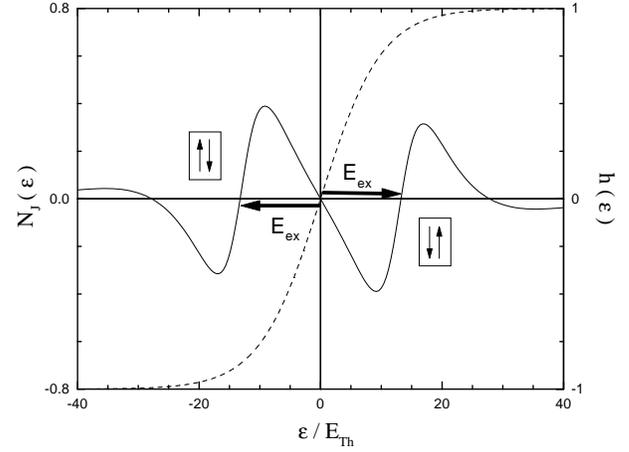


FIG. 2.8 – Densité spectrale de supercourant d'une jonction S/F/S (pour $\phi = \pi/2$ et $E_{Th} \ll \Delta$) modifiée par la présence de l'énergie d'échange $E_{ex} = 13 E_{Th}$ qui agit sur les paires ($\uparrow\downarrow$) et ($\downarrow\uparrow$). Fonction de distribution $h(\epsilon)$ à l'équilibre thermique pour $k_B T = 5 E_{Th}$ (pointillés).

Sa valeur est négative car les contributions des parties négatives excèdent la contribution de la partie positive. Dans cette situation, la jonction a ainsi une relation courant-phase sinusoïdale de supercourant négatif en $\phi = \pi/2$, on parlera de *courant critique négatif*. L'état fondamental devient l'état π avec $\phi_{gs} = \pi$ comme nous l'avons déjà vu dans le cas balistique discuté dans le chapitre précédent. La dépendance du courant critique à température nulle en fonction de l'énergie d'échange est représentée sur la figure 2.9 qui montre le changement de signe pour $E_{ex}^* = 8 E_{Th}$.

Il est naturel d'utiliser le rapport des énergies E_{ex}/E_{Th} pour décrire l'évolution du courant critique car ce paramètre caractérise la position des états d'Andreev, mais on peut aussi l'écrire comme un rapport de longueurs :

$$\frac{d_F}{\xi_F} = \sqrt{\frac{E_{ex}}{E_{Th}}} \quad (2.35)$$

L'interprétation en terme de *longueurs* est la plus couramment utilisée [21, 78] bien qu'elle soit moins directement reliée à l'origine des oscillations dans les systèmes S/F puisque celles-ci proviennent du décalage en *énergie* du spectre des états liés d'Andreev.

Il est intéressant de noter que la figure 2.9 est identique à la figure 2.6 en remplaçant eV/E_{Th} par E_{ex}/E_{Th} . Cependant l'origine du courant critique négatif est différente : dans un cas il s'agit d'un décalage de la fonction de distribution de $\pm eV$, dans l'autre c'est un décalage de la densité spectrale de supercourant de $\pm E_{ex}$. Nous allons maintenant voir qu'il est possible de retrouver un courant critique positif sous l'influence de la température.

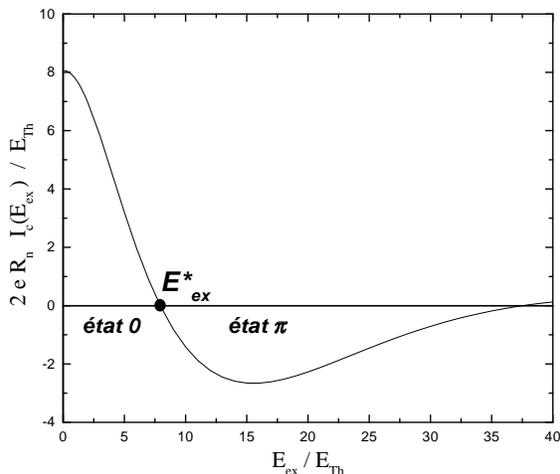


FIG. 2.9 – Dépendance du courant critique à température nulle en fonction de l'énergie d'échange E_{ex} , dans le cas d'une jonction S/F/S longue $E_{Th} \ll \Delta$.

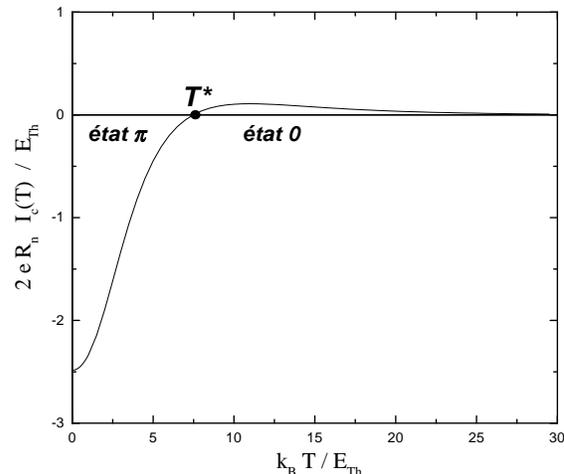


FIG. 2.10 – Dépendance du courant critique avec la température pour une énergie d'échange $E_{ex} = 13 E_{Th}$, dans le cas d'une jonction S/F/S longue $E_{Th} \ll \Delta$.

Changement de signe avec la température

Une température finie produisant des excitations thermiques incohérentes juste au-dessus du niveau de Fermi, les états liés à ces énergies disparaissent. L'échange cohérent de paires d'Andreev entre les deux supraconducteurs se fait par les états liés situés typiquement au-delà de $k_B T$ selon la fonction de distribution $h(\epsilon)$. Pour une température $k_B T \sim E_{ex}$ une bonne partie des premiers états ($-$) ne contribue plus, alors que les états ($+$) ne sont pas affectés et l'emportent dans l'intégrale. Le supercourant passe donc progressivement d'une valeur négative à une valeur positive et l'état fondamental bascule de l'état π à l'état 0 à la température T^* avec annulation du courant critique. Sur la figure 2.10 où $E_{ex} = 13 E_{Th}$, le courant critique s'inverse à $k_B T^* = 7.5 E_{Th}$.

Il est important de noter que dans le cas des jonctions S/N/S à l'équilibre il n'y a jamais de changement de signe du supercourant avec la température. La différence vient du fait que dans le cas S/N/S la longueur L_ϵ est maximum en $\epsilon = 0$ de sorte que les contributions de signes opposés sont très vite décroissantes : la deuxième bosse négative ne peut pas l'emporter sur la première bosse positive (figure 2.2). Dans le cas S/F/S la longueur de cohérence est maximum pour l'énergie $\epsilon = E_{Th}$ de sorte que les deux premières contributions ont la même amplitude : la deuxième bosse qui est positive peut l'emporter sur la première qui est négative (figure 2.8).

Comparaison avec la solution des équations non-linéarisées

Nous avons choisi de faire l'approximation des équations linéarisées afin d'avoir une solution analytique pour le supercourant. Heikkilä et al. [50] et Yip [93] ont traité le cas plus général où l'on ne suppose pas que les corrélations supraconductrices sont faibles. Ils

ont résolu numériquement les équations d'Usadel non-linéaires pour les fonctions $G(\epsilon, x)$ et $F(\epsilon, x)$. Les deux principales différences avec le cas linéarisé sont :

- la présence du mini-gap en dessous d'environ $3 E_{Th}$ car la densité d'états peut être modifiée dans ce cas où $G(\epsilon, x)$ n'est pas supposé constant,
- une relation courant-phase non sinusoïdale et une courbe de densité spectrale de supercourant qui se déforme avec la phase ϕ .

La conséquence importante du second point est qu'à chaque valeur de ϕ correspond une température $T^*(\phi)$ différente qui annule le supercourant. Il n'y a donc pas de température pour laquelle le supercourant s'annule pour toutes les phases, il existe toujours des phases pour lesquelles le supercourant est non-nul. Il existe cependant une température T^* telle que le maximum positif de supercourant dans l'intervalle $[0, \pi]$ est égal au minimum négatif et où les deux états 0 et π sont dégénérés. Lorsque la température passe à T^* , l'état fondamental de la jonction bascule donc de l'état π à l'état 0 , mais sans annulation du courant critique.

Nous verrons que dans les jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb étudiées expérimentalement, le courant critique s'annule complètement de sorte que la solution obtenue avec les équations linéarisées sera valable pour interpréter les résultats expérimentaux.

2.3.2 Grande énergie d'échange

Pour une énergie d'échange $E_{ex} > \Delta$, on ne peut plus considérer le cas des jonctions longues car l'ensemble de la fonction $N_J(\epsilon)$ se décalerait tellement que le courant Josephson disparaîtrait. Il faut donc considérer des jonctions plutôt courtes $E_{Th} > \Delta$. L'énergie de chaque état lié d'Andreev augmente avec E_{Th} et dans la limite des jonctions très courtes, il ne reste qu'un état en $\epsilon = \Delta$. L'énergie caractéristique des oscillations de la densité spectrale de supercourant augmente donc avec E_{Th} et sature en approchant de l'énergie du gap en donnant un grand pic en $\epsilon = \Delta$.

Le passage de la fonction $N_J(\epsilon)_N$ dans le cas S/N/S à la fonction $N_J(\epsilon)_F$ dans le cas S/F/S n'est alors plus un simple décalage. En effet le terme dépendant du gap Δ dans la formule (2.25) lui ne se décale pas, car il correspond à l'amplitude de paires dans les électrodes supraconductrices. Seul le second terme de la formule fait intervenir l'énergie d'échange car il correspond aux états liés dans le métal ferromagnétique. L'expression de la densité de supercourant que nous utiliserons par la suite s'écrit donc :

$$N_J(\epsilon) = \text{Im} \left[\frac{\Delta^2}{\Delta^2 - (\epsilon + i\gamma)^2} \frac{1}{2} \left(\frac{\sqrt{-2i(\epsilon - E_{ex})/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{-2i(\epsilon - E_{ex})/E_{Th}}} + \frac{\sqrt{-2i(\epsilon + E_{ex})/E_{Th}}}{\sinh \sqrt{-2i(\epsilon + E_{ex})/E_{Th}}} \right) \right] \sin \phi \quad (2.36)$$

La figure 2.11 montre l'évolution de cette fonction pour $E_{Th} = \Delta_0$ en fonction de l'énergie d'échange $E_{ex}/E_{Th} = 0, 4, 5, 6, 7, 10$. Le pic positif diminue progressivement, on voit apparaître la contribution négative et le pic devient finalement complètement négatif. L'allure du courant critique à température nulle est représentée sur la figure 2.12, il passe d'une valeur positive à une valeur négative au-delà de $E_{ex}^* = 6.2 \Delta_0$ et l'état fondamental de la jonction passe de l'état 0 à l'état π .

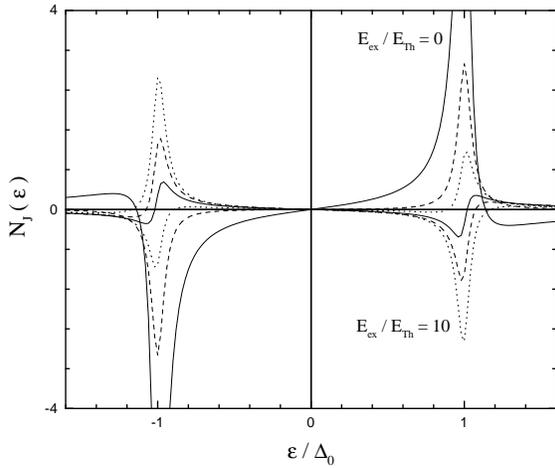


FIG. 2.11 – Densité spectrale de supercourant pour une jonction S/F/S courte $E_{Th} = \Delta_0$ et pour différentes valeurs de l'énergie d'échange $E_{ex}/E_{Th} = 0, 4, 5, 6, 7$ et 10 ($\phi = \pi/2$ et $\gamma = 0.05\Delta_0$).

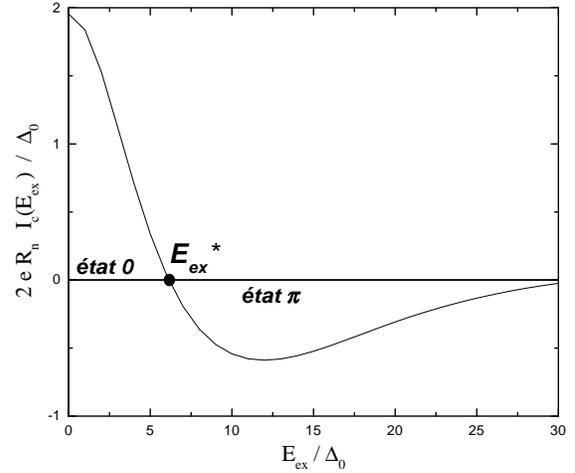


FIG. 2.12 – Dépendance du courant critique à température nulle en fonction de l'énergie d'échange E_{ex} d'une jonction S/F/S courte $E_{Th} = \Delta_0$.

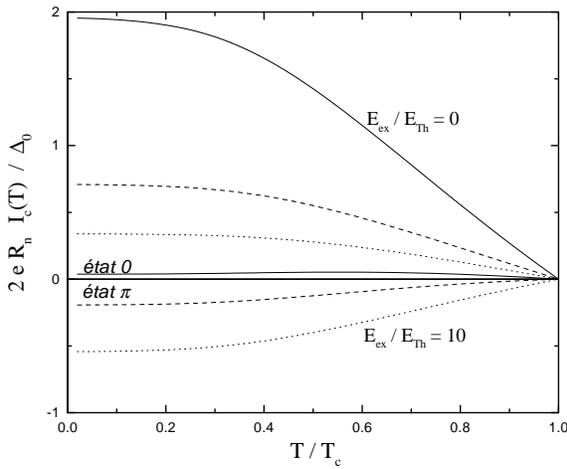


FIG. 2.13 – Dépendance du courant critique avec la température pour une jonction S/F/S courte $E_{Th} = \Delta_0$ et différentes valeurs de l'énergie d'échange $E_{ex}/E_{Th} = 0, 4, 5, 6, 7$ et 10 de haut en bas.

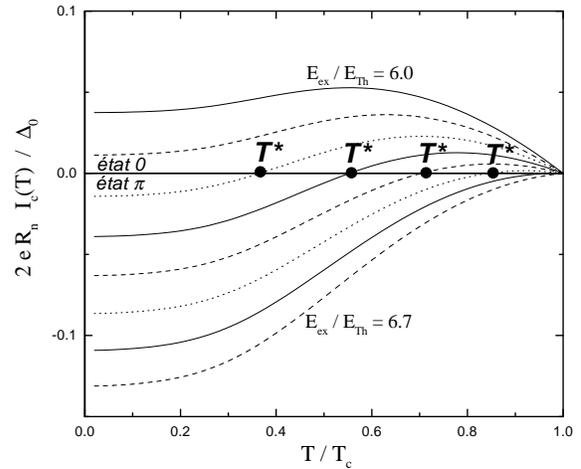


FIG. 2.14 – Dépendance du courant critique avec la température pour une jonction S/F/S courte $E_{Th} = \Delta_0$ et différentes valeurs de l'énergie d'échange $E_{ex}/E_{Th} = 6.0, 6.1, 6.2, 6.3, 6.4, 6.5, 6.6$ et 6.7 de haut en bas.

Influence de la température

Les contributions positives et négatives étant regroupées près de Δ , la température agit pratiquement de la même façon sur les deux, contrairement au cas précédent des jonctions longues : il est donc difficile d'obtenir un changement de signe du supercourant. Pour étudier la dépendance en température du courant critique, il faut inclure celle du gap que nous prendrons pour simplifier sous la forme approximative : $\Delta(T) = \Delta_0[1 - (T/T_c)^2]^{1/2}$ avec la relation BCS $\Delta_0 = 1.76 k_B T_c$. La figure 2.13 montre les courbes de courant critique $I_s(T)$ obtenues pour l'énergie de Thouless $E_{Th} = \Delta_0$ et les énergies d'échange $E_{ex}/E_{Th} = 0, 4, 5, 6, 7, 10$ (comme sur la figure 2.11). Ces dépendances en température ont toutes la même forme qui est caractéristique des jonctions S/N/S courtes (et des jonctions tunnel S/I/S). Les quatre premières sont entièrement positives et l'état fondamental est tout le temps l'état 0. Les deux dernières sont entièrement négatives et l'état fondamental est tout le temps l'état π .

Pour obtenir une transition de l'état π à l'état 0 en changeant la température, il faut que la densité spectrale soit très proche de la compensation des pics positif et négatif, afin que la fonction de distribution thermique puisse inverser le signe du supercourant total. La figure 2.14 montre les courbes de courant critique pour les valeurs $E_{ex}/E_{Th} = 6.0, 6.1, 6.2, 6.3, 6.4, 6.5, 6.6$ et 6.7 . Seules les valeurs de 6.2 à 6.5 donnent des changements de signe, car la température de transition T_c limite les valeurs possibles de T^* .

2.3.3 Dépendance en température de l'énergie d'échange

En pratique l'énergie d'échange n'est pas constante puisqu'elle diminue progressivement pour s'annuler à la température de Curie (T_{Curie}). Dans le modèle de Stoner, l'aimantation spontanée des métaux ferromagnétiques varie comme :

$$M(T) = M(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_{Curie}} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (2.37)$$

Les mesures effectuées sur des alliages cuivre-nickel massifs [2] montrent que cette dépendance évolue vers un comportement de plus en plus linéaire quand on augmente la concentration en cuivre, en même temps que la température de Curie chute. Dans ces alliages, l'énergie d'échange n'est donc pas forcément saturée aux températures supraconductrices et peut modifier la façon dont le supercourant change de signe. En effet si E_{ex} diminue quand on chauffe, le décalage de $N_J(\epsilon)$ responsable du courant négatif diminue lui aussi et le pic peut redevenir positif. La transition $\pi \rightarrow 0$ peut ainsi être provoquée aussi bien par la destruction thermique des états liés d'Andreev que par une décroissance de l'énergie d'échange avec la température. Ce second processus avait été suggéré dans le premier article de Buzdin et al. [20] sur le courant critique des jonctions S/F/S.

Nous allons étudier de quelle manière l'introduction d'une dépendance $E_{ex}(T)$ participe à la transition $\pi \rightarrow 0$ en association avec le précédent processus. Les variations en température sont paramétrées par T_{Curie} et par α qui caractérise la façon dont E_{ex} sature à

basse température :

$$E_{ex}(T) = E_{ex}(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_{Curie}} \right)^{\alpha} \right]^{1/\alpha} \quad (2.38)$$

Reprenons le cas traité précédemment où $E_{Th} = \Delta_0$ et choisissons une valeur $E_{ex}(0) = 6.4 E_{Th}$ pour avoir un changement de signe du supercourant. Fixons $T_{Curie} = 3 T_c$ et considérons les trois situations $\alpha = 100, 2, 1.3$ correspondant à des variations de plus en forte dans la région $[0, T_c]$ comme le montre la figure 2.15. Les trois courbes $I_s(T)$ correspondantes sont représentées sur la figure 2.16. La courbe pour $\alpha = 100$ est la même que sur la figure 2.14 car les variations sont nulles. Plus α est petit, plus les températures T^* sont basses, car les variations $E_{ex}(T)$ favorisent la transition $\pi \rightarrow 0$ en faisant réapparaître le pic positif dans la densité spectrale de supercourant.

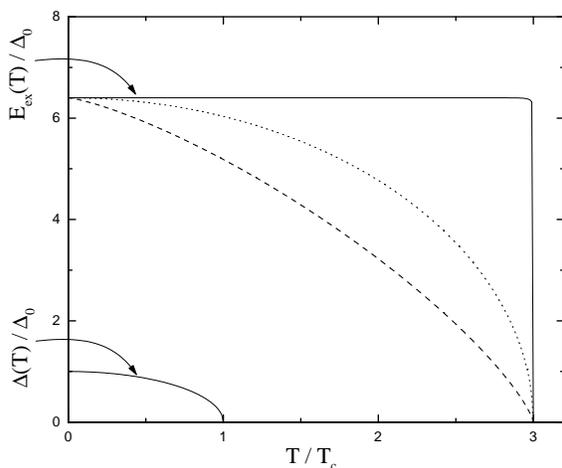


FIG. 2.15 – Dépendance en température de l'énergie d'échange $E_{ex}(T)$ pour une température de Curie $T_{Curie} = 3 T_c$ et des paramètres $\alpha = 100$ (trait continu), $\alpha = 2$ (pointillés) et $\alpha = 1.3$ (tirets).

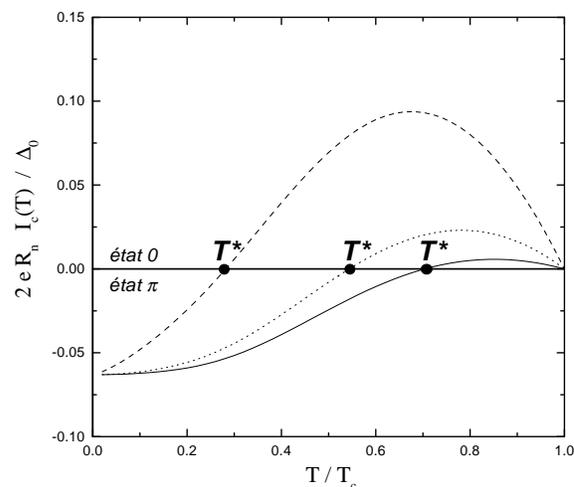


FIG. 2.16 – Changement de signe du courant critique avec la température pour $E_{Th} = \Delta_0$ et les trois types de variations de l'énergie d'échange : $\alpha = 100$ (trait continu), $\alpha = 2$ (pointillés) et $\alpha = 1.3$ (tirets).

2.4 Température de transition des multicouches S/F

Dans cette partie nous allons expliciter le calcul de la température de transition d'une bicouche S/F et d'une tricouche $F_1/S/F_2$ de type vanne de spin. Nous analyserons les solutions obtenues qui présentent des oscillations en fonction de l'épaisseur ferromagnétique et qui sont sensibles à la direction de l'aimantation. L'effet de proximité inverse dans les multicouches S/F a été traité originalement par Radović et Buzdin [72, 74] et le cas particulier $F_1/S/F_2$ continue d'être étudié par Buzdin et Baladié [22, 6]. Les calculs présentés ici suivent plutôt la formulation utilisée par Tagirov [83, 84] qui est équivalente mais mieux adaptée à notre situation expérimentale dans laquelle l'épaisseur du supraconducteur est supérieure à sa longueur de cohérence.

2.4.1 Bicouches S/F

Les équations

Le courant de fuite des paires au travers de l'interface S/F est responsable de l'affaiblissement du paramètre d'ordre supraconducteur et par conséquent de l'énergie de condensation. Contrairement au calcul du courant Josephson qui peut se faire en première approximation sans tenir compte de l'effet de proximité inverse, celui-ci doit obligatoirement être considéré pour le calcul de la température de transition. Il s'agit alors de calculer non seulement les variations spatiales des fonctions de Green $G(\omega_n, x)$ et $F(\omega_n, x)$ mais aussi celles du gap $\Delta(x)$ qui intervient dans les équations d'Usadel. Celui-ci doit être déterminé de manière auto-cohérente par une autre relation qui le relie aux fonctions de Green $F(\omega_n, x)$. Pour le calcul de la température de transition, il est toujours justifié de linéariser les équations, car on s'intéresse à l'apparition de la supraconductivité, lorsque $|F(\omega_n, x)| \ll 1$. On utilise les équations d'Usadel en formalisme de Matsubara avec les fréquences $\omega_n = (2n + 1)\pi k_B T$, car on cherche à calculer une grandeur thermodynamique. Ces équations s'écrivent :

$$-\frac{\hbar D_S}{2} \nabla^2 F_S(\omega_n, x) + \omega_n F_S(\omega_n, x) = \Delta(x) \quad (2.39)$$

$$-\frac{\hbar D_F}{2} \nabla^2 F_F(\omega_n, x) + (\omega_n + i E_{ex}) F_F(\omega_n, x) = 0 \quad (2.40)$$

$$\Delta(x) \ln \left(\frac{T_{c0}}{T} \right) = 2\pi k_B T \sum_{\omega_n > 0} \left(\frac{\Delta(x)}{\omega_n} - F_S(\omega_n, x) \right) \quad (2.41)$$

pour les fonctions $F_S^{\uparrow\downarrow}$ dans le supraconducteur et $F_F^{\uparrow\downarrow}$ dans le métal ferromagnétique. L'équation d'autocohérence (2.41) provient de la définition du gap $\Delta(x)$ à la température T , c'est-à-dire le potentiel de champ moyen correspondant à l'interaction attractive entre les électrons qui est limitée en énergie par la fréquence de Debye ω_D des phonons.

Dans l'équation du côté ferromagnétique, le terme $+i E_{ex}$ a été ajouté à ω_n pour tenir compte du déphasage des paires d'Andreev en présence de l'énergie d'échange. En effet nous avons vu dans la section 1.2.2 que les propriétés spectrales des paires ($\uparrow\downarrow$) sont décalées vers les énergies positives donnant un terme $\epsilon - E_{ex}$. De plus, lors du passage du formalisme en

énergie à celui de Matsubara, ϵ est remplacé par $i\omega_n$ dans (2.13), d'où la transformation :

$$-i(\epsilon - E_{ex}) = \omega_n + iE_{ex} \quad (2.42)$$

On voit ainsi apparaître la différence essentielle entre les systèmes S/N et S/F pour le calcul des propriétés à l'équilibre thermique. Les solutions S/F contiennent des exponentielles complexes ce qui produit des termes oscillants, alors qu'elles sont réelles dans le cas S/N donnant des dépendances monotones. De la même façon les paires symétriques ($\uparrow\downarrow$) sont décalées de E_{ex} vers les énergies négatives, elles vérifient donc l'équation conjuguée contenant $\omega_n - iE_{ex}$. Les solutions $F_F^{\downarrow\uparrow}$ et $F_F^{\uparrow\downarrow}$ sont donc conjuguées et la somme des deux est réelle [34] :

$$F = \frac{1}{2} (F^{\downarrow\uparrow} + F^{\uparrow\downarrow}) = \text{Re}F^{\downarrow\uparrow} \quad (2.43)$$

La bicouche S/F est supposée infinie dans les directions parallèles à l'interface de sorte que les propriétés ne dépendent que de la variable x (figure 2.17). A l'interface en $x = 0$ on utilise les conditions aux limites calculées par Kupriyanov et Lukichev [60] qui s'écrivent dans la formulation utilisée par Tagirov [83] :

$$\sigma_S \nabla F_S(\omega_n, 0) = \sigma_F \nabla F_F(\omega_n, 0) = T_b \frac{3\sigma_F}{2l_F} (F_F(\omega_n, 0) - F_S(\omega_n, 0)) \quad (2.44)$$

Elles traduisent la continuité du courant de fuite supraconducteur respectivement à gauche, à droite et à l'intérieur de la barrière de transparence T_b variant de zéro (forte barrière) à l'infini (aucune barrière). En comparant cette équation à l'expression (2.14), on obtient la correspondance avec la résistance de barrière R_b et le coefficient de barrière γ_b souvent utilisé :

$$T_b = \frac{2}{3} \frac{\rho_F l_F}{R_b \mathcal{S}} = \frac{2}{3} \frac{1}{\gamma_b} \quad (2.45)$$

Les grandeurs $\sigma_{S,F}$ et l_F sont les conductivités et le libre parcours moyen élastique. Aux surfaces libres en $x = -d_S$ et $x = +d_F$, il ne peut pas y avoir de courant de fuite :

$$\nabla F_S(\omega_n, -d_S) = 0 = \nabla F_F(\omega_n, +d_F) \quad (2.46)$$

Les solutions analytiques

La relation d'auto-cohérence (2.41) ne peut être résolue analytiquement que dans des situations limites. Cependant lorsque l'énergie d'échange domine l'influence de la température dans le métal ferromagnétique, il est possible de résoudre cette équation. En effet, on peut alors négliger ω_n devant E_{ex} dans l'équation (2.40) et les solutions $F_F(\omega_n, x)$ deviennent indépendantes de ω_n . Dans ces conditions, les solutions :

$$F_S(\omega_n, x) = \frac{\Delta_0 \cos(k_S(x + d_S))}{\omega_n + \hbar D_S k_S^2/2} \quad (2.47)$$

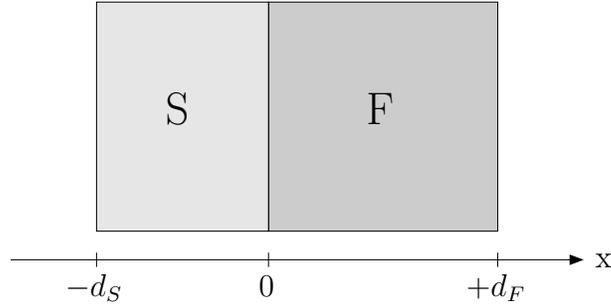


FIG. 2.17 – Schéma d'une bicouche S/F avec une région supraconductrice d'épaisseur d_S et une région ferromagnétique d'épaisseur d_F .

vérifient à la fois l'équation de diffusion (2.39), la relation de continuité (2.44) et l'équation d'auto-cohérence (2.41) avec un gap de la forme :

$$\Delta(x) = \Delta_0 \cos(k_S(x + d_S)) \quad (2.48)$$

le paramètre k_S étant déterminé par la relation de continuité.

Notons que dans le cas S/N (et dans le cas S/F lorsque l'énergie d'échange est du même ordre que la température) cette forme pour le gap ne serait qu'une approximation. En effet la relation de continuité (2.44) ferait intervenir $k_N = \sqrt{2\omega_n/\hbar D_N}$ de sorte que k_S devrait dépendre de ω_n . Dans le cas où les épaisseurs d_S et d_N sont plus grandes ou du même ordre que les longueurs de cohérence ξ_S et ξ_N , de Gennes et Werthamer [30] suggèrent d'utiliser l'approximation "une fréquence" qui ne retient que ω_0 et on retrouve alors une forme de gap en cosinus.

Revenons au cas S/F avec une énergie d'échange supérieure à la température (condition qui sera conservée dans toute l'étude de l'effet de proximité inverse). L'équation d'auto-cohérence se réécrit :

$$\ln\left(\frac{T_c}{T_{c0}}\right) = \Psi\left(\frac{1}{2}\right) - \operatorname{Re}\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \frac{T_{c0}}{T_c} (k_S \xi_S)^2\right) \quad (2.49)$$

où $\Psi(x)$ est la fonction digamma (dérivée logarithmique de la fonction gamma). Cette expression permet de calculer la température de transition T_c en fonction de sa valeur non perturbée T_{c0} , du paramètre k_S qui caractérise l'importance de l'effet de proximité et de la longueur de cohérence ξ_S définie par :

$$\xi_S = \sqrt{\frac{\hbar D_S}{2\pi k_B T_{c0}}} \quad (2.50)$$

La présence de la partie réelle correspond à la somme (2.43) des contributions conjuguées $F_S^{\downarrow\uparrow}$ et $F_S^{\uparrow\downarrow}$.

La solution $F_F(x)$ est une combinaison d'exponentielles croissantes et décroissantes qui, compte tenu de (2.46), s'écrit :

$$F_F(x) = A \cosh(k_F(x - d_F)) \quad (2.51)$$

où k_F le vecteur d'onde complexe :

$$k_F = \sqrt{\frac{2iE_{ex}}{\hbar D_F}} = (1+i)\sqrt{\frac{E_{ex}}{\hbar D_F}} = (1+i)k'_F = (1+i)\frac{1}{\xi_F} \quad (2.52)$$

La relation de continuité (2.44) permet de calculer le coefficient complexe A :

$$A = \frac{\sigma_S k_S \sin(k_S d_S)}{\sigma_F k_F \sinh(k_F d_F)} \quad (2.53)$$

et le vecteur d'onde complexe k_S solution de l'équation implicite :

$$k_S d_S \tan(k_S d_S) = \frac{\sigma_F}{\sigma_S} k_F d_S \tanh(k_F d_F) \times \left[1 + \frac{2k_F l_F}{3T_b} \tanh(k_F d_F) \right]^{-1} \quad (2.54)$$

La température de transition est donnée par la résolution successive des deux équations implicites (2.54) et (2.49) pour des valeurs données des paramètres :

$$T_{c0}, d_S, d_F, \xi_S, \xi_F, \sigma_S, \sigma_F, l_F, T_b \quad (2.55)$$

Analyse des solutions

La figure 2.18 montre la dépendance de la température de transition T_c/T_{c0} en fonction de d_S/ξ_S pour différentes transparences T_b . L'épaisseur d_F est prise très supérieure à ξ_F et les longueurs de cohérence ainsi que les conductivités sont supposées égales dans S et F. Pour une transparence donnée, plus l'épaisseur d_S est petite, plus la température de transition est basse. Il existe une épaisseur critique d_S^{cr} en-dessous de laquelle il n'y a plus de supraconductivité. Plus la transparence est mauvaise (T_b petit), moins la réduction de T_c est importante et plus d_S^{cr} est petit.

Notons que la résolution des équations a été faite pour une énergie d'échange qui domine l'effet de la température du côté ferromagnétique : $E_{ex} \gg 2\pi k_B T$. Ainsi lorsqu'on choisit $\xi_F = \xi_S$ avec $\sigma_F = \sigma_S$ comme sur la figure 2.18, on est dans le cas $E_{ex} \sim 2\pi k_B T_{c0}$, de sorte que le calcul n'est précis que pour $T \ll T_{c0}$, c'est-à-dire autour de l'épaisseur critique.

Si l'on fixe l'épaisseur du supraconducteur $d_S/\xi_S = 2.5$ et que l'on réduit l'épaisseur ferromagnétique, la température de transition ne remonte pas de façon monotone comme le montre la figure 2.19. Elle présente un minimum autour de $d_F/\xi_F = 1$ et peut même s'annuler dans le cas d'une bonne transparence. Ces oscillations de T_c proviennent des termes $e^{\pm k_F d_F} = e^{\pm(1+i)d_F/\xi_F}$ dans l'équation (2.54).

La forme de la partie réelle $\text{Re}[F(x)]$ de l'amplitude de paire est représentée sur la figure 2.20 pour quelques valeurs de l'épaisseur d_F et une transparence parfaite. Cette fonction peut changer de signe car elle contient des termes oscillants $e^{\pm(1+i)d_F/\xi_F}$. On remarque aussi que pour une épaisseur $d_F/\xi_F = 0.9$ l'amplitude de paire est minimum à l'interface, s'annule à la surface libre en $x = d_F$ et que cette épaisseur correspond à la région du minimum de température de transition sur la figure 2.19. En effet nous avons vu dans la partie 1.2.4 qu'il existe un minimum de T_c lorsqu'on a des états liés d'Andreev à énergie nulle car le courant de fuite est maximum. Or l'annulation de $\text{Re}[F(d_F)]$ correspond justement à un déphasage

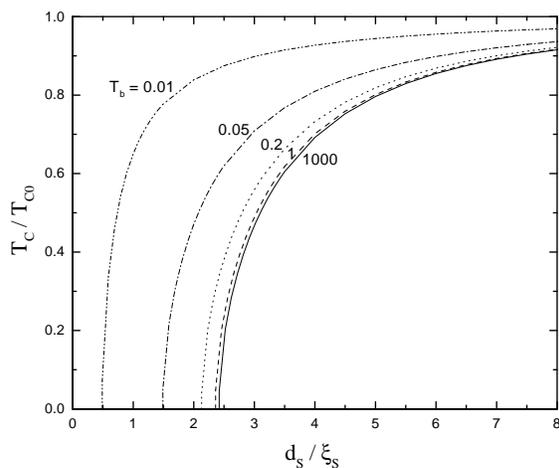


FIG. 2.18 – Température de transition T_c/T_{c0} en fonction de d_s/ξ_S pour différentes transparences $T_b = 0.01, 0.05, 0.2, 1, 1000$ et pour les paramètres $d_F \gg \xi_F$, $\xi_F = \xi_S$, $\sigma_F = \sigma_S$ et $l_F = 0.1\xi_F$.

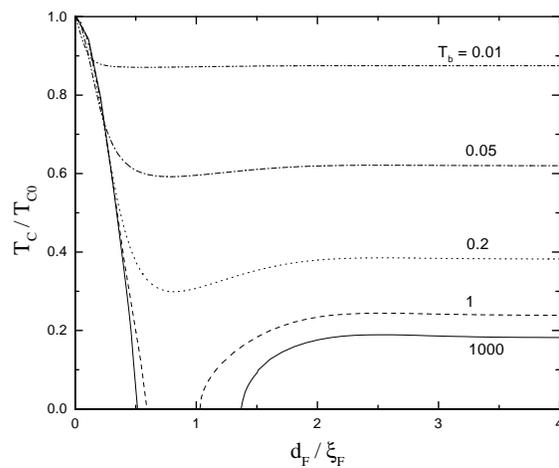


FIG. 2.19 – Température de transition T_c/T_{c0} en fonction de d_F/ξ_F pour différentes transparences $T_b = 0.01, 0.05, 0.2, 1, 1000$ et pour les paramètres $d_S = 2.5\xi_S$, $\xi_F = \xi_S$, $\sigma_F = \sigma_S$ et $l_F = 0.1\xi_F$.

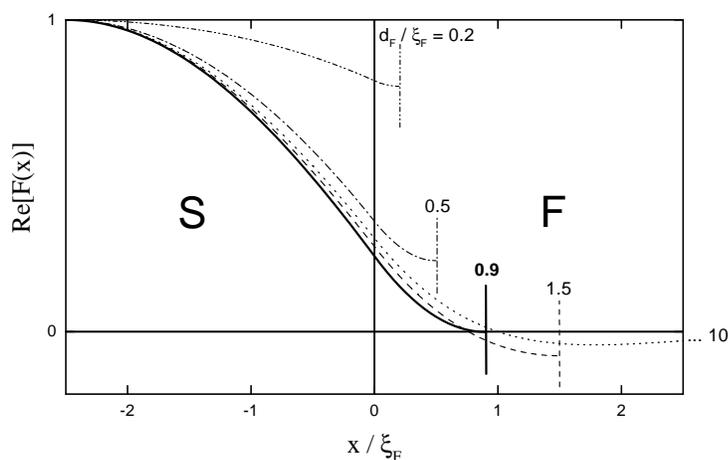


FIG. 2.20 – Partie réelle $\text{Re}[F(x)]$ de la fonction de Green pour différentes épaisseurs ferromagnétiques $d_F/\xi_F = 0.2, 0.5, 0.9, 1.5, 10$ et pour les paramètres $d_S = 2.5\xi_S$, $\xi_F = \xi_S$, $\sigma_F = \sigma_S$, $T_b = 1000$ et $l_F = 0.1\xi_F$.

$\Delta\varphi = \pi/2$ à la surface et $\Delta\varphi = \pi$ après un aller-retour dans la couche ferromagnétique, donc à un état lié à énergie nulle. Par conséquent cette oscillation de température de transition est la signature du déplacement des états liés d'Andreev par l'énergie d'échange avec un minimum de T_c à chaque fois que les états liés se trouvent majoritairement à énergie nulle.

2.4.2 Tricouches $F_1/S/F_2$

Considérons une région supraconductrice d'épaisseur d_S entourée de deux régions ferromagnétiques identiques d'épaisseurs d_F , avec l'origine des coordonnées $x = 0$ au centre du système comme indiqué sur la figure 2.21. Ce système $F_1/S/F_2$ se traite de la même manière que les bicouches S/F en ajoutant une équation pour décrire la seconde région ferromagnétique. Lorsque les deux aimantations sont parallèles, les fonctions de Green $F_{F_1}^{\downarrow\uparrow}$ et $F_{F_2}^{\downarrow\uparrow}$ sont solutions de la même équation (2.40).

Lorsque F_2 a une aimantation opposée à celle de F_1 , le déphasage dû à l'énergie d'échange est de signe opposé. L'équation d'Usadel en énergie contient un terme $(\epsilon - E_{ex})$ pour $F_{F_1}^{\downarrow\uparrow}$ et $(\epsilon + E_{ex})$ pour $F_{F_2}^{\downarrow\uparrow}$, ce qui donne respectivement $(\omega_n + i E_{ex})$ et $(\omega_n - i E_{ex})$ en formalisme de Matsubara. La résolution des équations peut se faire de façon analytique avec la même hypothèse que précédemment, à savoir dans le cas $E_{ex} \gg 2\pi k_B T$.

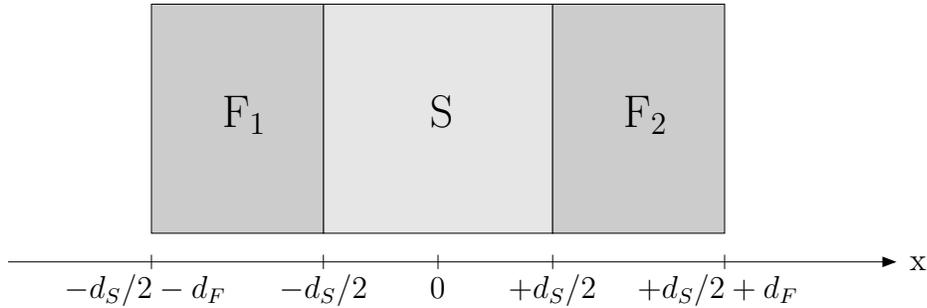


FIG. 2.21 – Schéma d'une tricouche $F_1/S/F_2$ de type vanne de spin avec une région supraconductrice d'épaisseur d_S et deux régions ferromagnétiques d'épaisseurs d_F .

Cas des aimantations anti-parallèles

Les solutions F_{F_1} et F_{F_2} font intervenir respectivement les vecteurs d'onde complexes conjugués $k_F = (1 + i)/\xi_F$ et $\bar{k}_F = (1 - i)/\xi_F$ avec la même longueur $\xi_F = \sqrt{\hbar D_F/E_{ex}}$ car les deux ferromagnétiques sont identiques. En tenant compte des conditions aux limites aux surfaces libres en $x = \pm d_S/2 \pm d_F$, on peut choisir des solutions de la forme :

$$F_{F_1}(x) = A \cosh(k_F(x + d_S/2 + d_F)) \quad (2.56)$$

$$F_{F_2}(x) = B \cosh(\bar{k}_F(x - d_S/2 - d_F)) \quad (2.57)$$

$$F_S(x) = \cos(k_S x) + C \sin(k_S x) \quad (2.58)$$

en normalisant $F_S(x)$ à 1 en $x = 0$. Il faut ensuite appliquer les conditions aux limites (2.44) aux deux interfaces en $x = \pm d_S/2$, soit 4 équations pour les 4 inconnues A , B , C et k_S .

En posant :

$$\phi = k_S(d_S/2) \quad (2.59)$$

$$R = \frac{\sigma_F}{\sigma_S} k_F(d_S/2) \tanh(k_F d_F) \times \left[1 + \frac{2k_F l_F}{3T_b} \tanh(k_F d_F) \right]^{-1} \quad (2.60)$$

l'équation sur ϕ donnant k_S s'écrit de deux manières équivalentes :

$$\tan 2\phi = \frac{\phi(R + \bar{R})}{\phi^2 - R\bar{R}} \quad (2.61)$$

$$(\phi \tan \phi - R')(\phi + R' \tan \phi) = R'^2 \tan \phi \quad (2.62)$$

où $R = R' + iR''$ et $\bar{R} = R(k_F \rightarrow \bar{k}_F) = R' - iR''$. La résolution de cette équation implicite donne une valeur k_S réelle et permet de calculer la température de transition T_c par l'équation implicite (2.49) qui reste inchangée. Les coefficients des fonctions de Green sont alors :

$$A = \frac{\sigma_S k_S}{\sigma_F k_F} \frac{\sin \phi + C \cos \phi}{\sinh(k_F d_F)} \quad (2.63)$$

$$B = \frac{\sigma_S k_S}{\sigma_F \bar{k}_F} \frac{\sin \phi - C \cos \phi}{\sinh(\bar{k}_F d_F)} \quad (2.64)$$

$$C = \frac{R - \phi \tan \phi}{R \tan \phi + \phi} \quad (2.65)$$

Cas des aimantations parallèles

Dans cette configuration, la fonction de Green $F^{\uparrow\uparrow}(x)$ se déphase dans le même sens dans les deux régions ferromagnétiques avec le même vecteur d'onde complexe $k_F = (1 + i)/\xi_F$. En remplaçant \bar{k}_F par k_F (donc \bar{R} par R) dans l'expression (2.61), on obtient l'équation implicite sur ϕ :

$$\phi \tan \phi = R \quad (2.66)$$

qui donne une solution k_S complexe et des coefficients $A = B$ et $C = 0$. Cette équation étant la même que (2.54), une tricouche F₁/S/F₂ avec aimantations parallèles est équivalente à deux bicouches F/S et S/F indépendantes. La température de transition calculée avec (2.49) pour une épaisseur d_S est donc identique à celle d'une bicouche d'épaisseur $d_S/2$.

Analyse des solutions

La dépendance de T_c/T_{c0} avec l'épaisseur de supraconducteur d_S/ξ_S est représentée sur la figure 2.22 pour différentes valeurs du paramètre $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F = 0.1, 0.25$ et 1. Lorsque l'épaisseur d_S est petite, on obtient :

$$T_c^P < T_c^{AP} \quad (2.67)$$

qui est le résultat obtenu par Buzdin [22] et par Tagirov [84] en analysant le cas où le paramètre $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F$ est très petit. Lorsque l'on trace la solution pour des valeurs plus

grandes (correspondant à des valeurs ξ_F plus petites), on trouve l'ordre opposé : $T_c^P > T_c^{AP}$. Ce résultat surprenant est-il dû à l'utilisation de la solution pour des valeurs numériques en-dehors de la région de validité ? Il ne devrait pas être lié à l'approximation $E_{ex} \gg 2\pi k_B T$ puisque celle-ci est au contraire mieux vérifiée lorsque ξ_F est plus petit. Cependant la forme du gap en $\cos(k_S x)$ ne semble intuitivement valable que lorsque $d_S \sim \xi_S$, mais pas lorsque $d_S \gg \xi_S$. Ceci pourrait être à l'origine d'un résultat erroné sur l'ordre des transitions T_c^{AP} et T_c^P lorsque l'épaisseur est trop grande ($d_S \gg \xi_S$). Par conséquent les courbes de la figure 2.22 ne permettent pas de déterminer précisément l'amplitude de la différence $T_c^{AP} - T_c^P$, seule une résolution numérique pourrait fournir les valeurs exactes.

La sensibilité à la direction relative des aimantations est maximale lorsque l'épaisseur critique d_S^{cr} est de l'ordre de ξ_S , ce qui nécessite un paramètre $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F \ll 1$. En pratique même avec des alliages dilués on a plutôt $\xi_S / \xi_F > 1$, de sorte qu'il faudrait $\sigma_F / \sigma_S \ll 1$ pour être dans de bonnes conditions. Dans le cas où $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F \sim 1$, la différence $|T_c^{AP} - T_c^P|$ est relativement faible, l'orientation des couches ferromagnétiques ne produit qu'une petite correction à l'effet de proximité inverse qui agit indépendamment à chaque interface.

En étudiant la dépendance de T_c/T_{c0} avec l'épaisseur ferromagnétique d_F/ξ_F dans le cas $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F = 0.1$ (figure 2.23), on remarque que la différence $T_c^{AP} - T_c^P$ est accrue à l'endroit où les interférences dans les couches ferromagnétiques produisent un minimum de T_c .

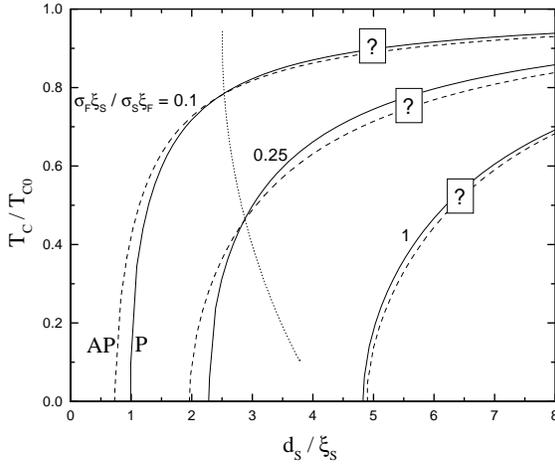


FIG. 2.22 – Température de transition T_c/T_{c0} en fonction de d_S/ξ_S pour $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F = 0.1$, 0.25 et 1. Transparence parfaite et épaisseur d_F infinie. Trait continu : configuration parallèle. Pointillés : configuration anti-parallèle. Pour $d_S \gg \xi_S$, l'ordre inversé pour T_c^P et T_c^{AP} pourrait être un artefact (voir texte).

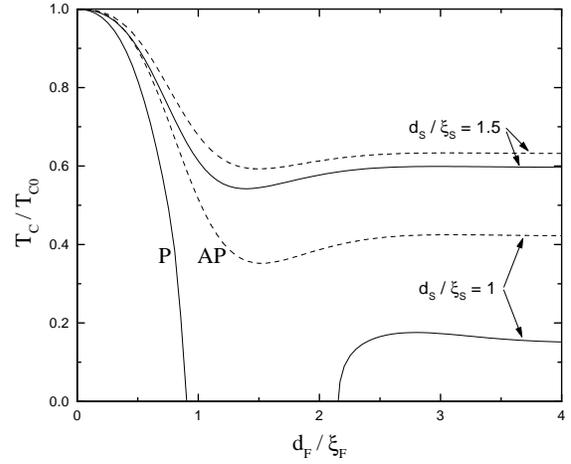


FIG. 2.23 – Température de transition T_c/T_{c0} en fonction de d_F/ξ_F pour $d_S/\xi_S = 1$ et 1.5. Transparence parfaite et $\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F = 0.1$. Trait continu : configuration parallèle. Pointillés : configuration anti-parallèle.

Pour essayer de donner une interprétation de cette différence de température de transition, on peut analyser les équations et chercher l'origine du résultat. Dans cette optique, la figure 2.24 montre la forme de l'amplitude de paire complexe $F^{\uparrow\downarrow}(x)$ dans les deux situa-

tions. Pour des aimantations parallèles, les déphasages sont de même signe dans les deux ferromagnétiques, alors que pour des aimantations anti-parallèles, ils sont de signes opposés. L'abaissement de la température de transition est donnée par l'importance des courants de fuite qui sont proportionnels aux gradients de la fonction $F^{\downarrow\uparrow}(x)$ aux interfaces. Pour des aimantations parallèles, les courants de fuite ont des parties imaginaires de même signe aux deux interfaces, alors que pour des aimantations anti-parallèles, les courants de fuite sont complexes conjugués. L'effet a ainsi pour origine le déphasage des paires d'Andreev par l'énergie d'échange et doit donc être relié d'une certaine manière au déplacement en énergie des états liés d'Andreev (comme les oscillations de température critique dans les bicouches S/F). Dans l'état parallèle, le premier niveau ($\downarrow\uparrow$) monte en énergie dans les deux ferromagnétiques. Dans l'état anti-parallèle, ce niveau monte en énergie dans l'un des deux et se rapproche de zéro dans l'autre.

Par rapport à une étude en fonction des épaisseurs, cet effet a l'avantage de pouvoir être mis en évidence avec un seul échantillon, car il est le résultat du couplage des deux interfaces dont on peut faire varier les caractéristiques par la direction relative des aimantations.

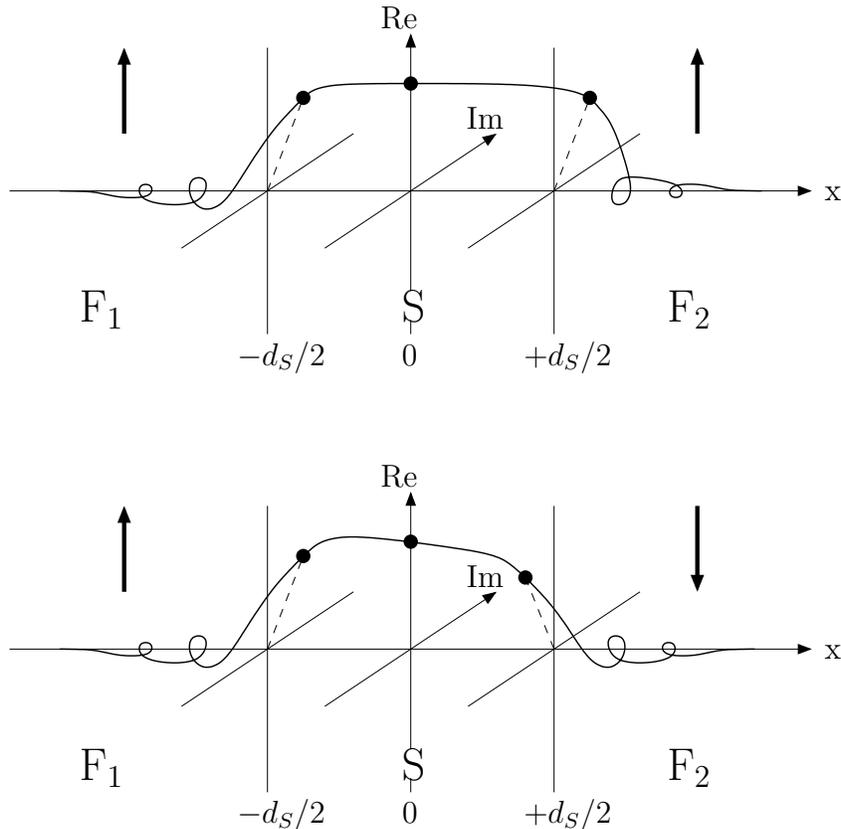


FIG. 2.24 – Amplitude de paire complexe $F^{\downarrow\uparrow}(x)$ en fonction de la position x dans la tricouche $F_1/S/F_2$ pour des aimantations parallèles (en haut) et anti-parallèles (en bas). Les valeurs sont représentées dans le plan complexe en perspective (Re = partie réelle, Im = partie imaginaire). La transparence est supposée parfaite.

Chapitre 3

Etude des multicouches S/F

Problématique de l'effet de proximité inverse

L'étude expérimentale de l'effet de proximité inverse consiste à mesurer la manière dont sont affaiblies les grandeurs caractéristiques de la supraconductivité par la présence du métal normal. La mesure de la température, du champ ou du courant critiques renseigne sur les caractéristiques du processus de fuite des paires de Cooper. On peut ainsi avoir accès à la transparence de l'interface, à la longueur de cohérence supraconductrice ou aux propriétés de décohérence du métal normal, induites par la température, par la diffusion spin-flip ou dans le cas qui nous intéresse par l'énergie d'échange ferromagnétique.

On étudie généralement des bicouches car cela permet de contrôler précisément les épaisseurs, et ce système étant invariant dans les deux directions latérales il correspond au modèle théorique unidimensionnel. La méthode classique consiste à fabriquer une série d'échantillons d'épaisseurs de couches différentes aussi bien pour le métal normal que pour le supraconducteur. Une difficulté importante est de garder constantes les propriétés intrinsèques des deux matériaux, car les épaisseurs étant relativement fines, ces propriétés diffèrent sensiblement de celles du matériau massif. La croissance cristalline est sensible à l'épaisseur finie de la couche, des diffusions atomiques à l'interface peuvent dans certains cas donner des alliages indésirables et la présence d'une surface libre en contact avec l'air conduit souvent à une oxydation plus ou moins profonde du métal superficiel.

Une étude précise et quantitative de l'effet de proximité inverse nécessite ainsi des métaux non-miscibles et déposés dans des conditions telles que leurs propriétés ne changent pas avec l'épaisseur. Par ailleurs chaque couche doit bien mouiller sur la précédente pour obtenir des interfaces planes avec des épaisseurs homogènes et la surface libre doit être protégée si le métal est oxydable. Ces conditions ne sont remplies que par un nombre limité de composés, comme par exemple le plomb qui a été le supraconducteur le plus utilisé pendant longtemps pour son immiscibilité avec de nombreux métaux.

Certaines études requièrent cependant des matériaux qui ne réunissent pas toutes ces conditions et il faut alors trouver des moyens de minimiser ou de contrôler les écarts à la situation idéale. Il est par exemple possible d'insérer une barrière de diffusion non-miscible avec les deux couches et d'épaisseur beaucoup plus fine que les variations spatiales de la supraconductivité. Elle affecte alors peu l'étude en fonction des épaisseurs et n'agit que comme une barrière plus compliquée à l'interface S/N ou S/F. Pour ce qui est de l'évolution des

propriétés intrinsèques des matériaux avec leur épaisseur, il faut la contrôler en la mesurant indépendamment dans des séries de couches d'épaisseur variable. Il est alors possible de l'inclure dans le modèle théorique pour interpréter quantitativement les résultats. La complexité que revêt alors ce type d'étude nous a conduit à considérer plutôt un effet de proximité inverse qui ne requiert pas directement la comparaison d'échantillons d'épaisseurs différentes.

Structures type vanne de spin $F_1/S/F_2$

Comme nous l'avons vu dans la partie théorique, le système $F_1/S/F_2$ de type vanne de spin doit présenter des variations de température de transition supraconductrice en fonction de la direction relative des aimantations des deux couches ferromagnétiques. La difficulté des variations d'épaisseur est levée, mais elle est remplacée par une autre car il faut maintenant savoir modifier le champ de retournement d'une couche ferromagnétique. En effet pour retourner sélectivement une seule des deux couches, les intervalles de champ magnétique sur lesquels s'opèrent les retournements des aimantations doivent être dissociés. Ceci implique des champs coercitifs différents et des cycles d'hystérésis relativement *carrés*. L'équipe de B. Diény (laboratoire de Nanostructures Magnétiques, puis SpinTec) nous a apporté le savoir-faire qu'elle a acquis dans la fabrication des vannes de spin classiques. La technique consiste à piéger l'aimantation d'une couche de cobalt en la déposant sur une sous-couche d'oxyde de nickel tandis que l'autre couche est laissée libre. Nous avons ensuite étendu ce procédé à des alliages plus faiblement ferromagnétiques et à plus basse température pour pouvoir travailler avec des supraconducteurs.

Ainsi une part importante de ce chapitre est consacrée aux propriétés magnétiques, et en particulier à la forme des cycles d'hystérésis, de structures $F_1/S/F_2$. Le supraconducteur est le niobium (Nb) et les métaux ferromagnétiques sont le cobalt (Co) et des alliages cuivre-nickel ($Cu_{40}Ni_{60}$ et $Cu_{50}Ni_{50}$) de plus faibles températures de Curie. Ces alliages n'étant pas ferromagnétiques à température ambiante, ils n'ont pas été étudiés auparavant dans des vannes de spin classiques. Nous montrerons que les couches de cuivre-nickel déposées sur une sous-couche d'oxyde de nickel ont des propriétés magnétiques qui sont modifiées de manière similaire aux couches de cobalt. Les cycles d'hystérésis des multicouches NiO/CuNi/Nb/CuNi présentent ainsi un plateau lors du retournement correspondant à une configuration d'aimantations anti-parallèles. En remplaçant le niobium par une très fine couche de cuivre, nous avons testé l'effet de type *magnéto-résistance géante* et obtenu une valeur de 0.4% pour l'alliage de composition $Cu_{40}Ni_{60}$. L'observation de cet effet vanne de spin classique dans nos échantillons à base de cuivre-nickel prouve que la différence de champs coercitifs obtenue permet effectivement d'obtenir des aimantations anti-parallèles.

La température de transition supraconductrice des échantillons a été déterminée par mesure de résistivité et montre un effet de proximité inverse important lorsque l'épaisseur du supraconducteur est réduite. Cependant les températures obtenues ont toujours été identiques dans les configurations parallèles et anti-parallèles, signe que l'effet de proximité principal se produisant de façon indépendante à chaque interface domine largement le couplage des deux interfaces. Pour accroître l'importance du couplage, il faut réduire l'épaisseur critique du supraconducteur à des valeurs de l'ordre de la longueur de cohérence, sans diminuer la

transparence de l'interface puisque l'effet recherché est une conséquence de l'effet de proximité. Une possibilité est alors d'augmenter la longueur de cohérence ξ_F en utilisant un métal ferromagnétique de faible énergie d'échange. C'est pourquoi à la suite des résultats obtenus avec le cobalt, nous avons utilisé les alliages cuivre-nickel dont la température de Curie peut a priori être abaissée continûment jusqu'à zéro.

Cependant nous verrons que l'épaisseur critique de supraconducteur dans les multicouches CuNi/Nb/CuNi ne peut pas être réduite autant que nécessaire, car elle sature à une valeur encore supérieure à la longueur de cohérence du niobium. La diminution de la température de Curie augmente certainement la longueur ξ_F mais elle peut également être à l'origine d'une réduction de la longueur de diffusion spin-flip L_{sf} . En effet, dans ce type d'alliage désordonné, il doit exister de plus en plus de moments magnétiques non couplés à la phase ferromagnétique et qui peuvent diffuser les électrons de conduction avec modification de leur spin. Dans ce cas la décohérence mesurée par l'effet de proximité inverse devient la conséquence de la diffusion spin-flip et n'est plus sensible à l'augmentation de la longueur ξ_F au-delà de L_{sf} . Ainsi l'épaisseur critique sature, ce qui empêche d'atteindre le régime des faibles épaisseurs de supraconducteur.

Cependant même si les caractéristiques de ces matériaux ne sont pas idéales, les multicouches de type vanne de spin qui ont été réalisées auraient pu présenter un effet de faible amplitude au regard des résultats du modèle théorique. Aucun signe de l'effet recherché n'a été observé même en analysant finement la magnéto-résistance des échantillons au milieu de la transition supraconductrice. Notons qu'au cours de ce type de mesure une faible diminution de la température de transition supraconductrice a été mise évidence aux valeurs des champs coercitifs des couches ferromagnétiques dans le cas du cobalt. Ces effets sont attribués au champ de fuite des domaines ferromagnétiques qui apparaissent lors du retournement des aimantations, ce sont des effets magnétiques dipolaires indépendants de ceux recherchés.

Etude détaillée de bicouches S/F

Afin de mieux caractériser l'effet de proximité inverse dans le système Nb/Cu₅₀Ni₅₀, nous présenterons une étude détaillée de plusieurs séries de bicouches et de tricouches d'épaisseurs supraconductrices et ferromagnétiques variables. La dépendance de la température de transition avec ces paramètres est comparée au modèle théorique du chapitre précédent et permet d'estimer la longueur ξ_F . La dépendance avec l'épaisseur de cuivre-nickel présente une légère oscillation caractéristique du déphasage des paires d'Andreev par l'énergie d'échange.

Cependant, comme nous l'avons remarqué plus haut, les propriétés intrinsèques des matériaux (comme la taille des grains) varient avec l'épaisseur des couches minces et doivent être contrôlées indépendamment. Les mesures magnétiques effectuées sur les couches de cuivre-nickel d'épaisseur de l'ordre de ξ_F montrent une certaine réduction du moment magnétique et de la température de Curie par rapport aux couches plus épaisses. De même les propriétés supraconductrices du niobium sont nettement affaiblies par rapport aux propriétés de volume dans la gamme d'épaisseurs utilisée pour l'effet de proximité inverse. Nous verrons que ces changements de propriétés sont corrélés à une augmentation de la résistivité des couches à faible épaisseur. Les températures de transition du niobium ont donc été systématiquement

mesurées sur des couches témoins lors des études de multicouches en fonction des épaisseurs.

Les résultats obtenus sur les multicouches Nb/CuNi ont été confirmés par une étude similaire menée par Jan Aarts du laboratoire Kamerlingh Onnes à Leiden aux Pays-Bas et à laquelle j'ai participé au cours d'un séjour financé par le programme européen COST sur la *Supraconductivité Mésoscopique*. La principale différence entre l'étude menée à Grenoble et celle effectuée à Leiden vient des propriétés du niobium de meilleure qualité dans le second cas grâce au dépôt des couches dans une enceinte ultra-vide. Cependant la comparaison des résultats obtenus avec différentes compositions d'alliage cuivre-nickel a montré la même saturation de l'épaisseur critique de niobium dans les tricouches CuNi/Nb/CuNi [76].

Nous allons maintenant décrire plus en détail la fabrication des différents échantillons, leur caractérisation magnétique et leurs propriétés supraconductrices. Nous commencerons par l'étude des caractéristiques du niobium, puis nous verrons celles des systèmes type vanne de spin avec le cobalt et les alliages cuivre-nickel, et enfin l'analyse plus détaillée des températures de transition supraconductrice des bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀.

3.1 Préparation et mesure des échantillons

3.1.1 Fabrication des multicouches

Description du groupe de dépôt

Les multicouches S/F sont préparées par pulvérisation cathodique dans un groupe de dépôt de la marque Plassys pouvant contenir 4 cibles dont 2 ont des axes de verticaux et 2 des axes obliques qui convergent à l'endroit des échantillons permettant de faire des co-pulvérisations. Sur la partie amovible de l'enceinte se trouve un porte-échantillon tournant pouvant accueillir jusqu'à 9 substrats répartis sur un cercle. Chaque substrat peut être placé au-dessus de chacun des 3 postes par rotation de la platine porte-échantillon. L'ouverture successive des différents caches placés au-dessus des cibles permet de fabriquer des multicouches de matériaux différents sans ouvrir l'enceinte à l'air.

Le vide limite obtenu avec une cryo-pompe est de l'ordre de $P_0 = 2 \times 10^{-8}$ mbar après une journée de pompage à température ambiante. Le gaz de pulvérisation est de l'argon et la pression de travail est réglée à $P = 2.7 \times 10^{-3}$ mbar par cette même pompe en mode de laminage.

Les cibles sont connectées à trois alimentations de type continu (DC) et à une alimentation de type radiofréquence (RF). La tension négative est appliquée à la cible par rapport à une couronne placée quelques millimètres au-dessus et reliée à la masse de même que le porte-échantillon. Le plasma d'argon se déclenche ainsi à la surface de la cible, là où la tension est suffisante pour provoquer l'ionisation du gaz. Les supports des cibles contiennent chacun un magnétron qui permet d'augmenter le taux de pulvérisation en concentrant le bombardement ionique sur une portion de la cible en forme d'anneau. Pour la plupart des cibles, l'amorçage du plasma nécessite d'augmenter temporairement la pression d'argon à quelques 10^{-2} mbar puis de la réajuster à la valeur de travail avec un temps de stabilisation de quelques minutes.

Procédure de dépôt

Un logiciel permet de gérer l'ensemble des procédures de pompage, d'arrivée d'argon, de contrôle de la puissance des alimentations, de positionnement du porte-échantillon et d'ouverture des caches. Ces différentes fonctions peuvent être activées manuellement ou à l'aide d'un programme qui permet d'automatiser les dépôts et ainsi d'améliorer la reproductibilité des échantillons.

Avant chaque séquence de dépôt, les cibles sont décapées de leur oxyde de surface par une pré-pulvérisation de quelques minutes qui permet généralement aux cibles de se stabiliser en température. Cependant on peut observer dans certains cas une dérive de la tension à courant constant à cause d'un mauvais contact thermique entre la cible et le magnétron malgré un refroidissement par une circulation d'eau. Notons que la température du porte-échantillon est maintenue à 20°C également par une circulation d'eau.

Les dépôts sont effectués sur des petits substrats de silicium oxydés en surface et fixés sur le porte-échantillon dans des mords de cuivre avec des tampons en indium. L'épaisseur des couches n'est pas mesurée in situ, elle est déterminée par le temps de pulvérisation pour des valeurs fixées des paramètres pression, débit de gaz, tension et courant sur la

cible. Cette technique nécessite une bonne stabilité des conditions de dépôt, mais celle-ci est de toute façon indispensable pour une bonne reproductibilité. Les vitesses de dépôt sont calibrées sur des couches de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur par diffraction des rayons X sous incidence rasante. La réflexion des rayons X sur la surface du film et sur l'interface film/substrat produit des interférences qui permettent de remonter à l'épaisseur du film connaissant la longueur d'onde des rayons X. Notons que la présence de battements dans les oscillations indique la formation d'une couche d'oxyde en surface. Son indice étant différent de celui du métal, l'interface métal/oxyde provoque une réflexion supplémentaire des rayons X et produit des battements dont la période permet d'estimer l'épaisseur de la couche d'oxyde.

Les conditions de dépôts des matériaux utilisés ont légèrement changé d'une période de fabrication à l'autre à cause de l'usure des cibles, d'une différence de contact thermique ou de positionnement dans le groupe de dépôt. En effet les cibles doivent être enlevées à la fin de chaque période pour laisser la place à d'autres utilisateurs. Le tableau 3.1 donne les vitesses de dépôt des sept matériaux utilisés pour des valeurs typiques des consignes de courant ou de puissance.

Cible	Consigne	Vitesse
Nb v.	900 mA	8.2 Å/s
Nb v.	400 mA	5.0 Å/s
Cu ₄₀ Ni ₆₀ c.	200 mA	1.5 Å/s
Cu ₅₀ Ni ₅₀ c.	200 mA	1.5 Å/s
Cu ₅₀ Ni ₅₀ c.	150 mA	1.1 Å/s
Ni c.	150 mA	0.9 Å/s
Cu c.	50 mA	0.4 Å/s
Co v.	50 mA	0.5 Å/s
NiO c. (RF)	150 W	0.3 Å/s
NiO v. (RF)	100 W	0.8 Å/s

FIG. 3.1 – *Vitesse de dépôt des différents matériaux utilisés en fonction de la consigne en courant ou en puissance. Le symbole v. ou c. indique si la cible est positionnée avec un axe vertical ou oblique convergent.*

Microscopie électronique en transmission

Dans une étude de systèmes multicouches il est intéressant de pouvoir visualiser la structure réelle de l'empilement pour voir si elle est conforme à la structure attendue. La microscopie électronique en transmission (TEM) permet de faire l'image d'une coupe de l'échantillon et d'analyser la rugosité des interfaces et la qualité des couches. La procédure consiste à amincir latéralement une tranche d'échantillon par polissage sur des plaques de granulométrie de plus en plus fine, puis par un faisceau d'ions rasant qui réduit localement l'épaisseur jusqu'à ce qu'un trou apparaisse. L'observation au microscope se fait sur la zone de quelques microns qui entoure le trou et qui contient une fine tranche de multicouche transparente au faisceau d'électrons.

La figure 3.2 montre la photographie d'une multicouche NiO/Co/Nb/Co d'épaisseurs 28/4/30/8 nm obtenue avec la collaboration de Pascale Bayle-Guillemaud. On reconnaît

l'oxyde de nickel dont les grains ont des bords obliques car la couche est déposée sous incidence oblique. Les grains du niobium ont une taille du même ordre que l'épaisseur de la couche. Les deux couches de cobalt sont par contre assez mal cristallisées. Les interfaces entre le niobium et le cobalt présentent une rugosité d'environ 10 \AA , visible sur les photographies prises en mode haute résolution. La structure obtenue est donc globalement conforme à celle envisagée même si les interfaces ne sont pas très régulières.

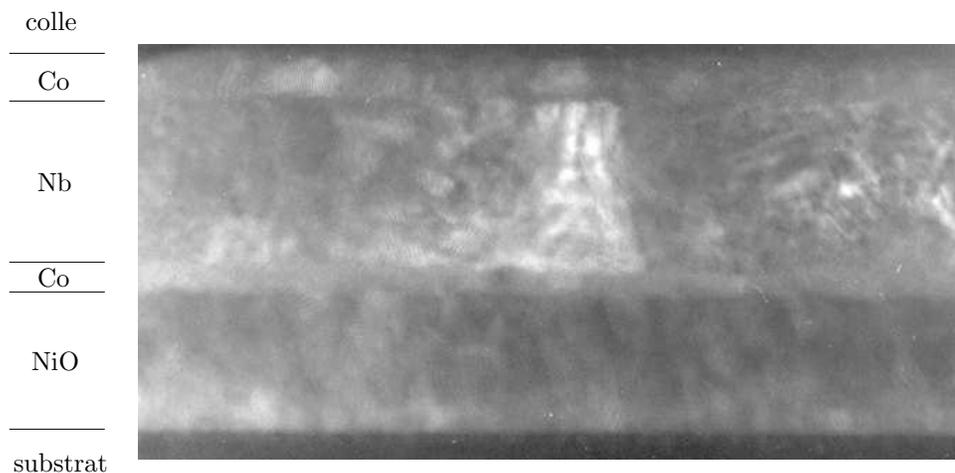


FIG. 3.2 – Coupe d'un échantillon $\text{NiO}/\text{Co}/\text{Nb}/\text{Co}$ ($28/4/30/8 \text{ nm}$) obtenue par microscopie électronique en transmission, avec la collaboration de P. Bayle-Guillemaud.

3.1.2 Aimantation et résistance

Magnétomètre VSM

Les propriétés magnétiques des échantillons sont déterminées par la mesure de l'aimantation en fonction du champ magnétique et de la température. Trois magnétomètres ont été utilisés pour cette étude suivant leur disponibilité et leurs caractéristiques, dont un utilisant la technique de l'échantillon vibrant (VSM) et deux la mesure de flux par interféromètre supraconducteur (SQUID).

Les magnétomètres à échantillon vibrant (Vibrating Sample Magnetometer) utilisent le principe de l'induction électromagnétique. L'échantillon est relié mécaniquement à un vibreur qui lui fait faire des oscillations de quelques millimètres à une fréquence de quelques dizaines de Hertz. Le déplacement du dipôle magnétique que constitue l'échantillon engendre une variation de flux dans des bobines de détection. La tension alternative qui apparaît à leurs bornes est préamplifiée puis mesurée à l'aide d'une détection synchrone accordée sur le signal d'excitation du vibreur.

Cet appareil est bien adapté à l'étude des cycles d'hystérésis car il peut mesurer continûment le moment magnétique pendant les variations de champ extérieur. Ces mesures en champ magnétique (appliqué dans le plan du film) peuvent être faites à différentes températures entre 10 K et 300 K grâce à une circulation d'hélium gazeux pompé sur un bain d'hélium

liquide. L'appareil utilisé pour cette étude ne permet pas de faire des mesures directes du moment magnétique en fonction de la température car le signal mesuré présente un décalage qui dépend fortement de la température de façon non monotone et non reproductible. Ce décalage est dû à des vibrations de la bobine de détection dans le champ magnétique extérieur à cause d'un couplage parasite avec le système vibrant. L'amplitude de ces vibrations dépend de la température à cause des changements de propriétés mécaniques des pièces. Pour mesurer la valeur absolue d'une aimantation il faut donc déterminer à chaque fois le décalage en décrivant l'ensemble d'un cycle d'hystérésis et en soustrayant la moyenne des valeurs d'aimantation obtenues à saturation en champs positif et négatif. Notons également la présence d'un décalage de quelques dizaines de Gauss entre le champ magnétique réel et le courant envoyé dans la bobine de champ. Pour les mesures à faible champ, il faut donc désaimanter la bobine supraconductrice et l'environnement en effectuant des oscillations du champ autour de zéro d'amplitude décroissante à partir de 1 Tesla.

Un bon réglage de l'électronique de détection donne un bruit d'environ 5×10^{-6} emu, ce qui permet de mesurer de petits volumes de matériaux magnétiques, en particulier des couches minces de quelques nanomètres d'épaisseur. Les dimensions d'un échantillon ne pouvant pas dépasser quelques millimètres, le volume magnétique est de l'ordre de 10^{-6} cm³, d'où un bruit en aimantation d'environ 5 emu/cm³. Certains graphes présentés par la suite présentent un bruit plus important dû à un moins bon réglage de l'appareil.

Magnétomètres SQUID

Ce type de magnétomètre mesure directement la valeur du flux présent dans la boucle de détection grâce à un dispositif supraconducteur dont le courant critique est modulé par le flux (plus de détails sur le fonctionnement d'un SQUID seront donnés dans la partie 4.2.2). Le flux magnétique est en fait transféré de la région où se trouve l'échantillon au dispositif SQUID par un circuit supraconducteur fermé appelé transformateur de flux. Pour distinguer le flux produit par l'échantillon du flux environnant, il faut extraire l'échantillon de l'intérieur de la boucle de détection et soustraire les deux flux mesurés.

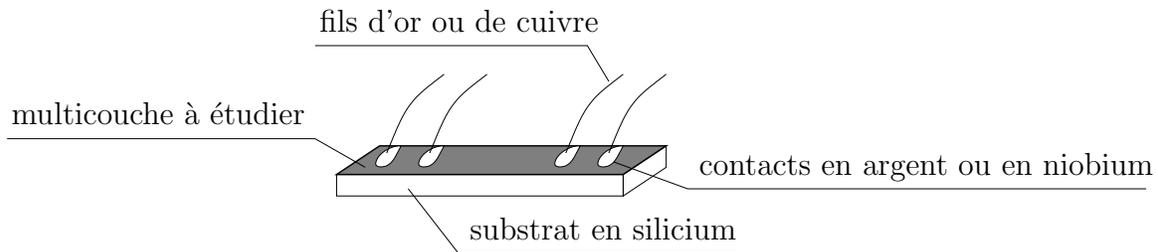
En pratique la technique est un peu plus compliquée et consiste à mesurer la dérivée spatiale du flux le long de l'axe du champ magnétique parallèle au plan du film. Le circuit supraconducteur contient alors deux ou trois boucles de polarités opposées permettant de mesurer la dérivée première ou seconde du flux lors de l'extraction de l'échantillon. Un ajustement de la courbe obtenue donne la contribution du dipôle que constitue l'échantillon et ainsi la valeur de son moment magnétique.

La très grande sensibilité du dispositif requiert une très bonne stabilité de la température et du champ magnétique pour que la mesure ne soit pas erronée. Ainsi chaque changement de champ nécessite un temps d'attente de 10 minutes environ pour atteindre la stabilité requise, le tracé d'un cycle d'hystérésis peut ainsi prendre une journée entière.

Pour cette raison la plupart des cycles en champ magnétique de cette étude sont faits avec le magnétomètre VSM et les dépendances en température des aimantations avec les magnétomètres SQUID. Ces derniers sont également indispensables pour la mesure des très faibles moments magnétiques de l'ordre de 10^{-6} emu comme dans le cas des fines couches de Cu₅₀Ni₅₀.

Mesures de résistance

La température de transition supraconductrice des échantillons est déterminée en mesurant leur résistance en fonction de la température avec quatre contacts disposés en ligne à la surface des multicouches. Deux techniques sont utilisées : soit des fils d'or sont collés avec de la laque conductrice à base d'argent, soit des petits plots d'indium sont pressés entre l'échantillon et des fils fins de cuivre. L'inconvénient de la première méthode est le décollement des contacts au cours des cyclages thermiques voire au premier refroidissement. Les substrats sont clivés en rectangles de 3 mm par 10 mm et les contacts de tension sont séparés en moyenne de 5 mm ce qui permet d'estimer grossièrement le facteur géométrique reliant la résistance à la résistivité. Le courant de mesure typique est de l'ordre de 1 mA très inférieur au courant critique des films de sorte que la transition se produit à la température critique. Les résistances par carrés des couches sont toutes de l'ordre de quelques Ohms ce qui donne des tensions facilement mesurables. Les échantillons sont fixés sur une plaque en cuivre à l'intérieur d'un calorimètre sous vide plongé dans l'hélium liquide. Le cryostat contient une bobine de champ supraconductrice et la température du bain d'hélium peut descendre jusqu'à 1.8 K par pompage. Une résistance Cernox permet de mesurer la température sous champ magnétique.



La mesure de la température de transition en résistivité peut a priori être différente de celle obtenue en aimantation ou en chaleur spécifique, ces techniques sondant les propriétés de volume de l'échantillon. En effet la résistance peut s'annuler grâce à l'existence d'un chemin supraconducteur sur un bord ou qui percole au milieu du film à une température qui n'est pas caractéristique du système à étudier. Ce genre de problème peut être testé en mesurant une deuxième fois la chute de résistance en utilisant un courant 10 fois plus grand, mais toujours très inférieur au courant critique estimé pour l'échantillon millimétrique. Une réduction de la température critique ou un étalement de la transition peuvent être le signe de la présence de chemins supraconducteurs de faible courant critique puisqu'ils n'occupent par définition qu'une petite fraction de l'échantillon. Les multicouches étudiées ne présentent pas de tels effets et les valeurs de température de transition mesurées sont donc considérées comme caractéristiques du système entier.

3.1.3 Caractérisation du niobium

Température de transition

Les propriétés supraconductrices du niobium dépendent beaucoup de la qualité des films. Les vitesses de dépôt utilisées (4 et 8 Å/s) donnent des températures de transition de l'ordre de 8.5 K pour des films d'épaisseur supérieure à 100 nm. La vitesse doit être assez élevée pour minimiser le nombre d'impuretés piégées dans la couche et peut-être aussi pour augmenter l'énergie déposée et donc la température pendant la pulvérisation augmentant ainsi la taille des grains.

L'étude de l'effet de proximité inverse nécessite de fabriquer des couches de niobium beaucoup plus fines et dans ces conditions la température de transition baisse de plusieurs degrés jusqu'à 5 K par exemple pour 10 nm d'épaisseur. La figure 3.3 montre ces variations de température critique T_c en fonction de l'épaisseur de niobium d_S , pour plusieurs séquences de dépôts effectuées à des périodes différentes dans des conditions de pulvérisation différentes (vitesse de dépôt, cible neuve ou ancienne, pré-pulvérisation, vide de base). La largeur des transitions (entre 10% et 90% de la résistance à l'état normal) est de l'ordre de 10 mK pour les films épais et atteint 100 mK pour les films très fins qui sont plus inhomogènes.

Pour l'analyse quantitative des résultats sur les bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ de la partie 3.4, la dépendance en épaisseur de la température de transition du niobium sera prise en compte dans le modèle théorique en utilisant la relation phénoménologique :

$$T_c(d_S) = T_0 \left(1 - \frac{d_0}{d_S} \right) \quad (3.1)$$

La courbe en trait continu de la figure 3.3 correspond à l'ajustement des films obtenus dans les conditions de dépôt des bicouches avec les paramètres $T_0 = 8.7$ K et $d_0 = 3.5$ nm.

Les images d'une section de multicouche par microscopie électronique en transmission montrent que le film de niobium est polycristallin et que la taille des grains est limitée par l'épaisseur du film. Ces défauts de cristallinité sont nuisibles à la supraconductivité particulièrement dans le cas du niobium où ils permettent une diffusion de l'oxygène par les joints de grains plus profondément que la couche d'oxyde de surface. L'oxyde majoritaire de formule Nb₂O₅ est isolant et ne fait a priori qu'ajouter du désordre, mais il se forme aussi des composés NbO_x métalliques qui peuvent réduire la température de transition comme dans l'effet de proximité.

L'épaisseur de l'oxyde de surface est estimée par la période des battements des oscillations de réflectivité des rayons X. Mesurée à la sortie du groupe juste après le dépôt, elle évolue rapidement au contact de l'air puis se stabilise à 2.7 nm environ au bout 2 jours. L'épaisseur de niobium supraconducteur est donc toujours inférieure à l'épaisseur totale lorsqu'il est déposé seul ou en dernier dans les multicouches.

Résistivité résiduelle

Le coefficient géométrique entre résistance et résistivité n'étant connu qu'approximativement, une mesure précise de la résistivité résiduelle ρ_0 peut se faire en utilisant le rapport des résistances entre la valeur à température ambiante (300 K) et la saturation à basse

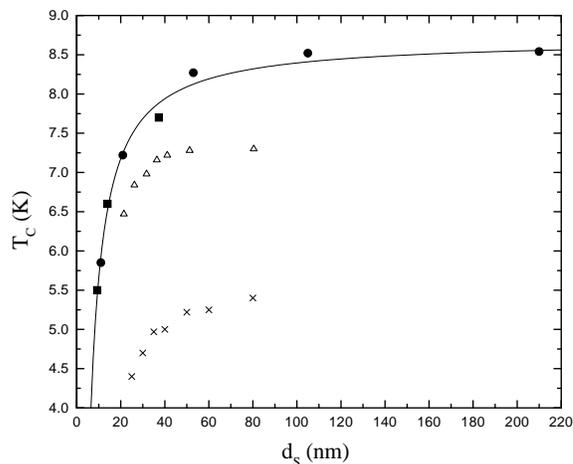


FIG. 3.3 – Température de transition supraconductrice des films de niobium en fonction de leur épaisseur. La courbe en trait continu correspond à la relation phénoménologique (3.1) ajustée sur les films de la cible neuve. Les symboles correspondent à des conditions de dépôt différentes. Croix : 0.7 \AA/s et cible ancienne. Triangle : 8 \AA/s et cible ancienne. Carré : 6.4 \AA/s et cible neuve. Rond : 5 \AA/s et cible neuve.

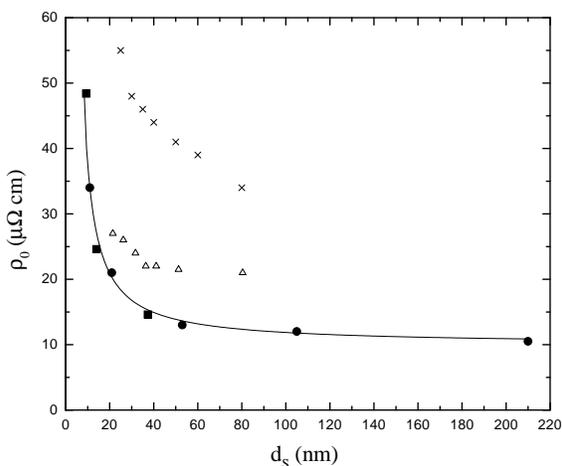


FIG. 3.4 – Résistivité des films de niobium en fonction de leur épaisseur. La courbe en trait continu donne le comportement qualitatif.

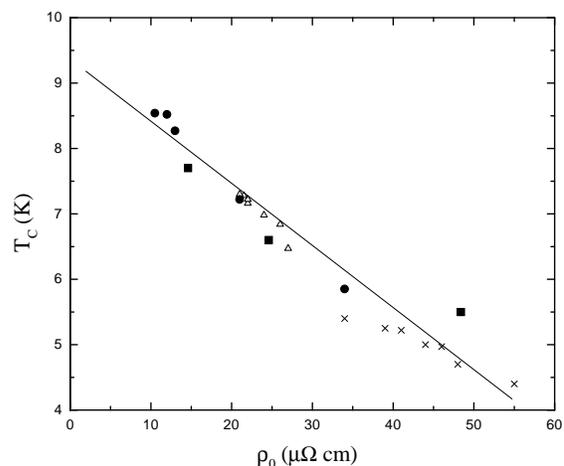


FIG. 3.5 – Corrélation entre la température de transition et la résistivité des films de niobium déposés dans diverses conditions.

température (10 K). Ce rapport $\beta = R_{300K}/R_{10K}$ fait disparaître le facteur géométrique et la résistivité résiduelle ρ_0 se calcule par l'expression :

$$\rho_0 = \rho_{300K}^{ph} \frac{1}{\beta - 1} \quad (3.2)$$

où $\rho_{300K}^{ph} = 15 \mu\Omega \text{ cm}$ est la contribution des phonons à la résistivité dans le niobium [5]. On peut alors calculer le libre parcours moyen élastique l_e en utilisant la relation : $\rho_0 l_e = 3.75 \times 10^{-6} \mu\Omega \text{ cm}$, qui inclue la densité d'états et la vitesse de Fermi du niobium. La valeur $v_F = 2.9 \times 10^5 \text{ m/s}$ permet ensuite de calculer le coefficient de diffusion $D = l_e v_F / 3$.

La figure 3.4 montre que la résistivité augmente de façon très importante lorsque l'épaisseur des couches devient inférieure à 50 nm et cette augmentation coïncide avec la forte chute de la température de transition. La figure 3.5 met en évidence la corrélation qui existe entre la valeur de la résistivité et la valeur de la température critique [69, 64]. La relation linéaire est la même pour toutes les conditions de dépôt alors que les températures asymptotiques aux grandes épaisseurs sont différentes.

Longueur de cohérence

La longueur de cohérence est déterminée expérimentalement par l'étude du champ magnétique critique $H_{c2}(T)$ appliqué perpendiculaire à la surface du film et mesuré au voisinage de la température critique. La théorie de Ginzburg-Landau prédit une dépendance linéaire du champ critique avec la température selon la relation :

$$H_{c2}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi \xi_{GL}^2} \frac{T_c - T}{T_c} \quad (3.3)$$

La mesure effectuée sur un film d'épaisseur 210 nm et de température critique $T_c = 8.5 \text{ K}$ donne une pente de champ critique égale à 0.38 T/K. Cette pente correspond à une valeur $\xi_{GL} = 10 \text{ nm}$ (longueur de cohérence de Ginzburg-Landau extrapolée à température nulle).

La longueur de cohérence ξ_S en régime diffusif utilisée dans les calculs de l'effet de proximité peut être reliée à la valeur ξ_0 en régime balistique :

$$\xi_S = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T_c}} \quad \text{et} \quad \xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta} \quad \Rightarrow \quad \xi_S = 0.54 \sqrt{\xi_0 l_e} \quad (3.4)$$

Par ailleurs la longueur de cohérence de Ginzburg-Landau ξ_{GL} en limite sale est reliée à la longueur ξ_0 en limite propre par :

$$\xi_{GL} = 0.855 \sqrt{\xi_0 l_e} \quad (3.5)$$

On obtient ainsi le coefficient qui relie ξ_S et ξ_{GL} à savoir :

$$\xi_S = 0.63 \xi_{GL} \quad (3.6)$$

ce qui donne pour le film de 210 nm considéré une longueur de cohérence $\xi_S = 6.3 \text{ nm}$.

La relation (3.4) permet également de calculer la longueur de cohérence simplement à partir du libre parcours moyen l_e issu de la résistivité et de la valeur tabulée de ξ_0 en limite

propre qui est $\xi_0 = 38$ nm pour le niobium. Le film de 210 nm a une résistivité résiduelle de $10.5 \mu\Omega$ cm soit un libre parcours moyen $l_e = 3.6$ nm et on retrouve une longueur de cohérence $\xi_S = 6.3$ nm.

La même mesure de champ critique perpendiculaire effectuée sur un film de 10 nm et de température critique $T_c = 5.2$ K donne une longueur de cohérence $\xi_{GL} = 6.2$ nm soit $\xi_S = 4.2$ nm. La résistivité résiduelle étant de $43 \mu\Omega$ cm, le libre parcours moyen vaut $l_e = 0.9$ nm et la relation (3.4) donne une valeur $\xi_S = 3.4$ nm inférieure à celle mesurée. En effet cette relation ne tient pas compte de l'abaissement du paramètre d'ordre qui est ici relativement important puisque $T_c = 5.2$ K. La longueur de cohérence ξ_0 étant inversement proportionnelle à T_c , il faudrait la remplacer par une longueur effective plus grande $\xi_0 \times (9.2/5.2)$, ce qui donnerait une valeur $\xi_S = 4.5$ nm plus proche de celle mesurée.

3.2 Etude des multicouches NiO/Co/Nb/Co

3.2.1 Propriétés magnétiques

Retournement d'une couche isolée

La réalisation d'un système vanne de spin nécessite d'avoir des valeurs différentes pour les champs de retournement des deux couches ferromagnétiques. Mais il faut tout d'abord trouver les paramètres de dépôts qui donnent des cycles d'hystérésis relativement *carrés*, de manière à passer de l'état parallèle à anti-parallèle de façon nette. Ce renversement de l'aimantation doit se faire de façon homogène c'est-à-dire à la même valeur de champ pour tous les domaines magnétiques, les couches restant quasiment saturées jusqu'au moment où elles se retournent. Dans une couche ferromagnétique mono-domaine, le processus de retournement est décrit par le modèle de rotation cohérente de Stoner-Wohlfarth, qui prédit un cycle d'hystérésis carré si le champ est appliqué parallèlement à l'axe d'anisotropie uniaxiale ou axe de facile aimantation.

Cependant les couches fabriquées par pulvérisation sont désordonnées et leur structure magnétique est multi-domaines. Le retournement se fait alors par nucléation de domaines inverses et propagation des parois de ces domaines. Le champ magnétique permet de franchir les barrières successives qui bloquent la progression des parois et le retournement de la couche se fait sur certaine gamme de champ. Par ailleurs, chaque domaine ayant sa direction privilégiée d'aimantation, la couche tend à se désaimanter en l'absence de champ. Ainsi les cycles d'hystérésis ont généralement une forme arrondie qui n'est pas celle recherchée pour les systèmes vanne de spin.

Pour rendre les cycles plus carrés il faut favoriser une direction d'anisotropie commune à l'ensemble des domaines de sorte que la couche reste saturée jusqu'à ce qu'un champ opposé suffisant permette la nucléation de domaines inverses et le retournement de la couche. Si un champ magnétique est appliqué pendant le dépôt, les grains croissent de façon à ce que l'axe de facile aimantation soit dans l'axe du champ. Les magnétrons placés sous les cibles rayonnent un champ magnétique qui peut favoriser ce processus. L'épaisseur du film est également un paramètre qui modifie de façon importante la forme du cycle d'hystérésis. Les films épais donnent des cycles souvent très arrondis avec une aimantation rémanente assez faible, alors que les films minces ont des cycles beaucoup plus carrés. En effet lorsque l'épaisseur est suffisamment fine, l'anisotropie de forme l'emporte sur l'anisotropie cristalline et oblige l'aimantation à être dans le plan du film (sinon cela coûterait beaucoup d'énergie dipolaire magnétique à cause du champ rayonné dans l'espace).

La figure 3.6 montre le cycle d'hystérésis d'une couche de cobalt de 3.7 nm dans une bicouche Co/Nb à 300 K et à 10 K. L'ensemble de la couche se retourne pour un champ de 40 G à 300 K et de 90 G à 10 K. La dépendance en température du champ coercitif est due à la différence d'activation thermique qui facilite la nucléation des domaines inverses et la propagation des parois à haute température.

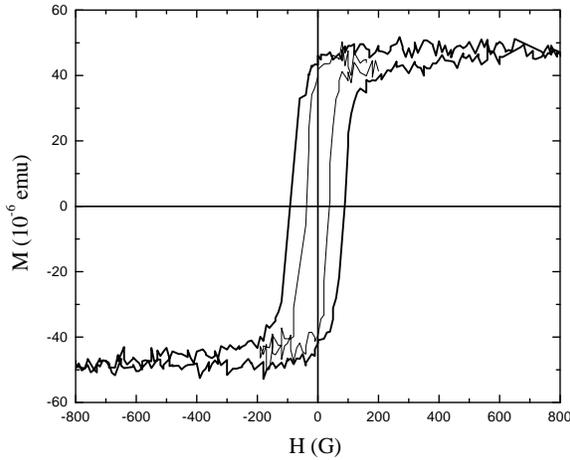


FIG. 3.6 – Cycle d'hystérésis d'une couche Co/Nb (3.7/32 nm) à 300 K (trait fin) et à 10 K (trait fort). (surface $S = 13 \text{ mm}^2$)

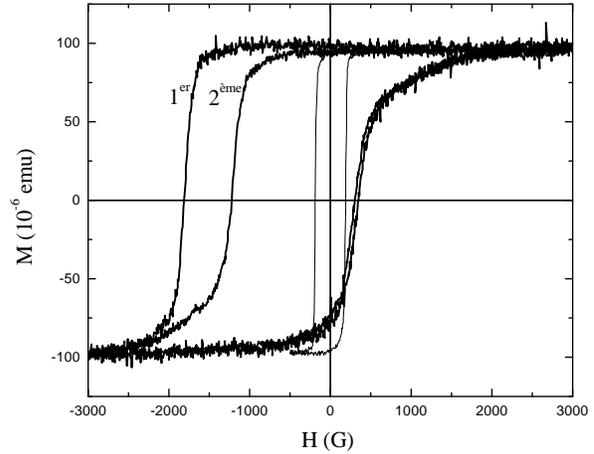


FIG. 3.7 – Cycle d'hystérésis d'une couche NiO/Co/Nb (29/3.7/32 nm) à 300 K (trait fin) et à 10 K (trait fort) après un refroidissement avec l'aimantation saturée positive. Le premier cycle obtenu à 10 K diffère des cycles ultérieurs. (surface $S = 25 \text{ mm}^2$)

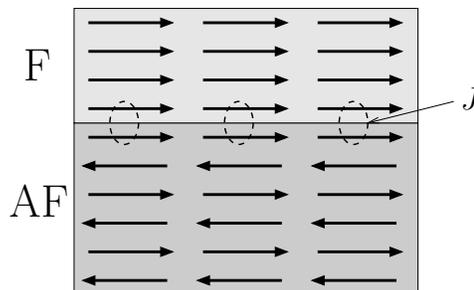
Piégeage par un antiferromagnétique

La deuxième étape consiste à fabriquer une couche de cobalt ayant une autre valeur de champ coercitif pour réaliser un dispositif type vanne de spin. Une augmentation de l'anisotropie de forme peut être obtenue en lithographiant les couches sous forme de fils micrométriques ce qui conduit généralement à une augmentation du champ coercitif et à des cycles bien carrés. Nous avons choisi une autre technique qui est celle utilisée dans les vanes de spin : le piégeage sur une sous-couche anti-ferromagnétique isolante d'oxyde de nickel.

Le principe du piégeage repose sur l'interaction d'échange entre les électrons de la couche ferromagnétique F et ceux de la couche antiferromagnétique AF. Les deux aimantations sont ainsi couplées avec la particularité que l'aimantation de la couche AF est insensible à l'application du champ magnétique car la structure magnétique est constituée de moments alternés (figure 3.8). Le retournement des aimantations doit se produire pour les deux couches en même temps, mais ne se fait que par l'action du champ sur la couche F. Il devient donc plus difficile de la retourner, ce qui augmente le champ coercitif.

Si la couche AF est beaucoup plus épaisse que la couche F, il peut devenir impossible de retourner la structure AF. Lors du retournement de F la structure antiferromagnétique se vrille pour se retrouver à 180° au niveau de l'interface AF/F. Dans certains cas c'est plutôt un défaut dans la structure qui apparaît soit dans la couche AF soit à l'interface AF/F. Toutes ces possibilités coûtent de l'énergie d'échange et nécessitent d'appliquer un champ négatif plus fort pour retourner F. Par contre il devient plus facile de revenir à la configuration initiale puisque le couplage d'échange à l'interface agit comme un champ magnétique positif. Le cycle d'hystérésis est donc décalé par rapport au champ nul.

FIG. 3.8 – Couplage par interaction d'échange entre une couche ferromagnétique F et une couche antiferromagnétique AF .



La figure 3.7 montre les cycles d'hystérésis d'une couche de cobalt de 3.7 nm déposée sur 29 nm d'oxyde de nickel dans une tricouche NiO/Co/Nb. A 300 K le cycle a la même forme que pour la couche de cobalt seule mais avec un champ coercitif plus grand égal à 200 G grâce à l'oxyde de nickel antiferromagnétique. En refroidissant l'échantillon à 10 K avec une aimantation rémanente positive on obtient un cycle de champ coercitif égal à 750 G et décalé vers les champs négatifs de -400 G. En effet la structure antiferromagnétique de NiO est bloquée dans la configuration réalisée à 300 K car sa cinétique de retournement devient extrêmement lente à basse température.

Une autre particularité est la différence obtenue entre le premier retournement en champ négatif et les retournements ultérieurs en champs positif et négatif. Le premier se fait de manière plus abrupte et à un champ plus élevé, -1800 G au lieu de -1200 G. La couche ayant été saturée à haute température, elle contient en effet très peu de domaines inverses résiduels. Pour retourner la couche, il faut donc d'abord nucléer des domaines inverses, ce qui nécessite un champ important. Pour les retournements effectués à basse température, à moins d'appliquer un champ très fort (de l'ordre de 3 T), il reste toujours quelques domaines non retournés. L'étape de nucléation n'est plus nécessaire et la couche se retourne plus facilement, expliquant le plus faible champ coercitif obtenu lors des retournements ultérieurs. De plus le cycle est plus arrondi car le piégeage n'est pas parfaitement homogène et conduit à des différences de champ de retournement [92].

Multicouche vanne de spin non protégée

La différence entre les champs coercitifs du cobalt *libre* et du cobalt *piégé* permet de fabriquer des dispositifs vanne de spin NiO/Co/Nb/Co. La figure 3.9 montre le cycle d'hystérésis obtenu à 300 K pour des épaisseurs de cobalt de 4 nm pour la couche piégée et de 8 nm pour la couche libre. Le retournement de la couche libre se produit vers 60 G et permet d'obtenir une configuration anti-parallèle des aimantations. Au-delà de 200 G la couche piégée se retourne et donne une configuration parallèle. Notons que le cycle de la couche piégée est légèrement décalé vers les champs négatifs indiquant qu'une partie du NiO reste bloquée même à 300 K.

Ce type de multicouche avec du cuivre à la place du niobium [23] a été étudié en détail à température ambiante mais pas à basse température. Dans notre cas il doit pouvoir fonctionner en-dessous de 10 K pour être utilisé dans l'état supraconducteur du niobium. La figure 3.9 montre également le cycle d'hystérésis de cette multicouche NiO/Co/Nb/Co mesuré à 10 K après refroidissement dans l'état parallèle avec des aimantations positives. Le premier retournement en champ négatif présente deux marches très raides dont les amplitudes sont

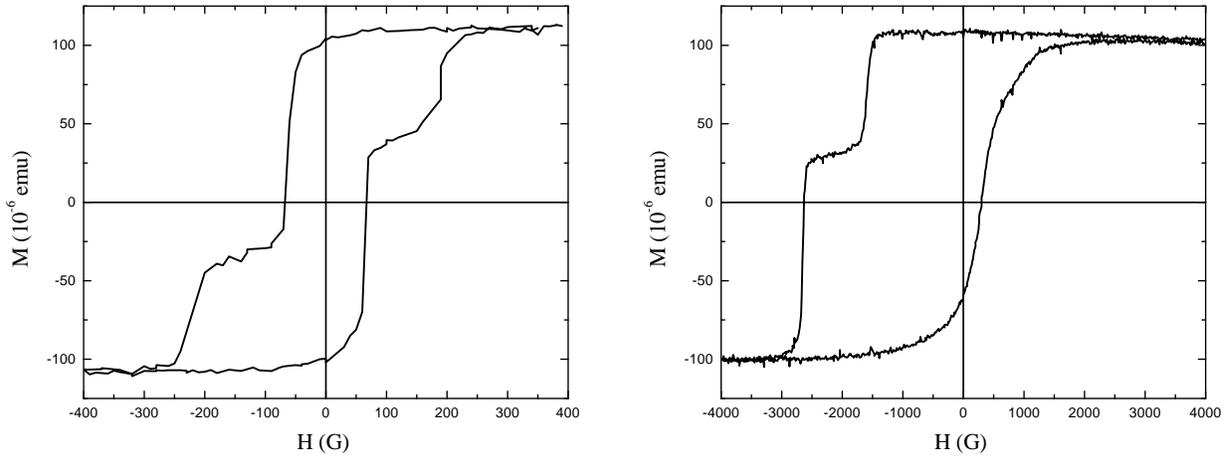


FIG. 3.9 – Cycle d’hystérésis d’une multicouche vanne de spin NiO/Co/Nb/Co (28/4/40/8 nm) à 300 K (à gauche) et lors du premier cycle à 10 K (à droite) après un refroidissement avec les deux aimantations positives. (surface $S = 15 \text{ mm}^2$)

inversées par rapport à 300 K. La couche *libre* de 8 nm se retourne à un champ très élevé de -2700 G alors que la couche *piégée* sur NiO de 4 nm se retourne avant pour -1600 G. Les rôles sont donc inversés et ceci s’explique par la présence d’un oxyde de cobalt CoO qui se forme en surface et qui devient antiferromagnétique juste en-dessous de la température ambiante (les températures de Néel sont 525 K pour NiO et 291 K pour CoO). Le piégeage de l’aimantation d’une couche ferromagnétique par une couche antiferromagnétique avait justement été découvert sur ce système Co/CoO par Meiklejohn et Bean [63] en 1956 en étudiant les propriétés de poudres compactées de particules nanométriques de cobalt couvertes d’oxyde. Le couplage Co/CoO est sans doute meilleur que le couplage NiO/Co dans nos échantillons et conduit à un fort piégeage de la couche de cobalt supérieure et donc à un fort champ coercitif.

Malheureusement les piégeages NiO/Co et Co/CoO se détériorent dès le second retournement comme on le voit sur le graphe où le plateau anti-parallèle a disparu. Tous les retournements ultérieurs sont identiques au second, il n’est donc plus possible d’obtenir la configuration anti-parallèle des aimantations. La raison de la différence entre le premier et les autres retournements est la même que celle donnée pour l’échantillon NiO/Co/Nb de la figure 3.7 : les couches se saturent moins bien à basse température et contiennent toujours de nombreuses parois qui facilitent le retournement de la couche. Les cycles d’hystérésis des couches NiO/Co et Co/CoO sont arrondis et les plages de champs de retournement se superposent. La couche de cobalt supérieure doit donc être protégée du contact de l’air pour conserver ses propriétés de couche douce (comme c’est le cas pour l’échantillon de la figure 3.6 où le cobalt se trouve sous le niobium).

Multicouche protégée en surface

De manière à conserver les propriétés de couche libre du cobalt, on rajoute une couche de cuivre de 4 nm en surface pour éviter l'oxydation du cobalt. La figure 3.10 obtenue avec une multicouche NiO/Co/Nb/Co/Cu montre que le cycle d'hystérésis de la couche Co/Cu conserve un champ coercitif faible par rapport à la couche NiO/Co même à 10 K. Le cycle de NiO/Co est fortement décalée en champ négatif et sa forme est relativement arrondie (sauf au premier retournement) de la même manière que précédemment. Le décalage est intéressant car il augmente la plage de champ magnétique négatif qui donne une configuration anti-parallèle (au détriment de la plage de champ positif). Si on effectue des cycles mineurs ne dépassant pas -400 G, on ne retourne que la couche libre de sorte que la couche piégée conserve son premier coercitif élevé. Notons enfin qu'un refroidissement avec les deux aimantations négatives décale le cycle de NiO/Co vers les champs positifs.

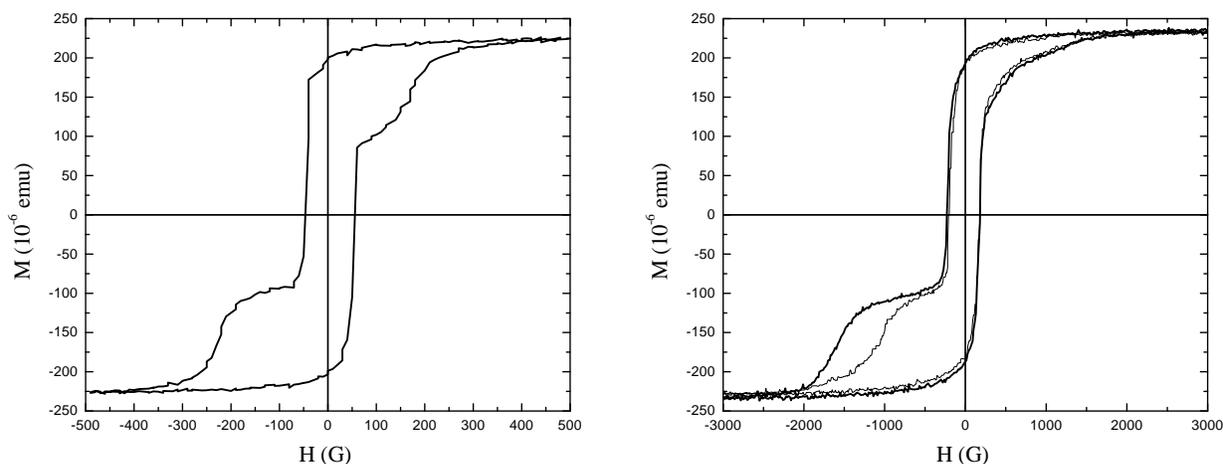


FIG. 3.10 – Cycle d'hystérésis d'une multicouche vanne de spin NiO/Co/Nb/Co/Cu (29/3.7/26/7.4/4.2 nm) à 300 K (à gauche) et à 10 K (à droite) lors du premier cycle (trait fort) et du second cycle (trait fin) après un refroidissement avec les deux aimantations positives.

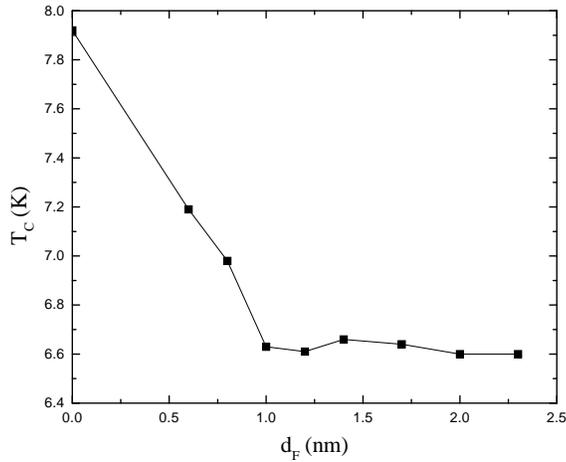
Afin de tester l'influence de la qualité de l'interface Nb/Co, on peut insérer une fine couche de cuivre de 2 nm entre le cobalt et le niobium. En effet le diagramme binaire Nb-Co comporte plusieurs alliages qui pourraient se former par diffusion atomique entre les couches (bien qu'à température ambiante ces diffusions soient assez limitées). A l'inverse Nb et Cu ainsi que Co et Cu sont des métaux non-miscibles et une couche de cuivre placée entre les deux agit comme une barrière de diffusion. Les mesures d'aimantation sur une multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu montrent que les propriétés magnétiques sont inchangées par rapport au cas sans barrière de cuivre.

3.2.2 Température de transition supraconductrice

Longueur de cohérence ferromagnétique

Nous allons maintenant étudier les propriétés supraconductrices des multicouches. La grande valeur de l'énergie d'échange du cobalt conduit à une très courte longueur de cohérence ($\xi_F \sim 1$ nm) de la supraconductivité induite par proximité. Ceci peut être vérifié en mesurant la température de transition de bicouches Nb/Co en fonction de l'épaisseur de cobalt. La figure 3.11 montre le résultat obtenu avec une épaisseur de niobium de 40 nm. La surface du cobalt est protégée de l'oxydation par une fine couche de niobium de 4 nm qui n'est pas supraconductrice à cette épaisseur car probablement à moitié oxydée. L'amplitude de variation de la température de transition entre 7.9 K et 6.6 K est faible car l'épaisseur de niobium est grande comparée à la longueur de cohérence de l'ordre de 5 nm. La température critique chute progressivement jusqu'à 1 nm de cobalt puis reste constante au-delà. On peut ainsi en déduire une estimation de la longueur de cohérence $\xi_F \sim 1$ nm. Cependant des mesures d'aimantation par effet Kerr à 300 K montrent que les propriétés ferromagnétiques du cobalt varient entre 0 et 1 nm. Ainsi l'énergie d'échange augmente et la longueur de cohérence diminue lorsque l'épaisseur du cobalt augmente. La décroissance de T_c entre 0 et 1 nm est donc la conséquence à la fois de l'augmentation de d_F et de la diminution de ξ_F .

FIG. 3.11 – Température de transition de multicouches Nb/Co/Nb' ($40/d_F/4$ nm) indiquant une longueur de cohérence $\xi_F \sim 1$ nm.



Multicouches vanne de spin

Les multicouches vanne de spin étudiées ont des épaisseurs de l'ordre de 4 nm et 8 nm, supérieures à la valeur estimée de la longueur de cohérence $\xi_F \sim 1$ nm. L'épaisseur minimale de niobium (ou épaisseur critique) qui donne de la supraconductivité est un peu inférieure à 25 nm dans ces multicouches NiO/Co/Nb/Co comme l'indique les valeurs du tableau 3.1. Cette valeur est environ 4 à 5 fois plus grande que la longueur de cohérence ξ_S , on s'attend donc à ce que l'effet de l'orientation relative des aimantations soit très faible.

On effectue un cycle de champ magnétique qui permet d'obtenir après suppression du champ une configuration parallèle ou anti-parallèle. La température de transition mesurée

TAB. 3.1 – *Température de transition de quelques multicouches NiO/Co/Nb/Co (28/4/d_S/8 nm) indiquant une épaisseur critique d_S^{cr} légèrement inférieure à 25 nm.*

d_s (nm)	32	27	26
T_c (K)	3.34	2.15	1.89

dans les deux cas est identique à mieux que 10 mK pour une largeur de la transition d'environ 50 mK. La procédure en champ est réalisée à froid, mais également à 300 K lorsque le plateau anti-parallèle est mieux défini. Aucune différence de température de transition n'est observée entre les deux configurations d'aimantation.

Pour améliorer la sensibilité de cette mesure, nous allons étudier les variations de résistance au milieu de la transition résistive en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan de la multicouche. Lorsque la couche libre se retourne en venant d'un état saturé donc parallèle, on devrait observer une variation de la résistance car les aimantations deviennent anti-parallèles. La résistance doit diminuer si $T_c^P < T_c^{AP}$ et augmenter si $T_c^P > T_c^{AP}$. Les fortes variations de résistance à la transition permettent a priori de détecter des changements de température de transition jusqu'à 1 mK.

3.2.3 Magnéto-résistance à la transition

L'anisotropie de magnéto-résistance du cobalt

Avant d'étudier les multicouches à la transition supraconductrice, rappelons que les couches ferromagnétiques présentent intrinsèquement de l'anisotropie de magnéto-résistance (AMR). Leur résistance est plus faible lorsque l'aimantation est perpendiculaire au courant de mesure que lorsqu'elle est parallèle. Lorsque la couche se retourne sous l'application d'un champ parallèle au courant, la résistance diminue à cause des domaines qui s'orientent perpendiculairement au courant avant de se retourner complètement. La résistance présente donc un pic négatif d'une fraction de pourcent à la valeur du champ coercitif et dont la forme reflète le processus de retournement de l'aimantation. La figure 3.12 de gauche montre cette anisotropie de magnéto-résistance sur une couche de cobalt mesurée à 10 K (il s'agit la couche supérieure d'une multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu). La résistance diminue progressivement à l'approche du champ coercitif autour de 70 G puis revient rapidement à sa valeur de départ indiquant que la couche s'est retournée. Grâce à ce phénomène d'AMR, il est possible de contrôler in situ le retournement des couches et le passage dans l'état anti-parallèle.

Le champ critique du niobium

Les supraconducteurs ont également une forte magnéto-résistance puisqu'ils transitent dans l'état normal au-delà du champ critique. Lorsque la température est très proche de la transition $T \approx T_c$, le champ critique du supraconducteur est très faible, donc la résistance augmente tout de suite dès l'application du champ. Cependant celui-ci étant parallèle à la couche, le champ critique n'augmente pas linéairement en $(T_c - T)$ mais en $\sqrt{(T_c - T)}$, car les

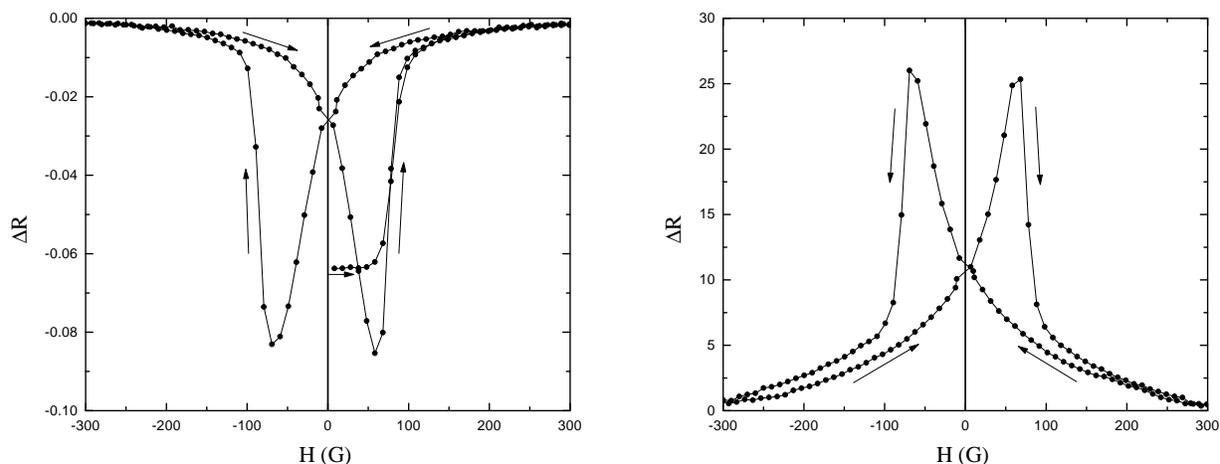


FIG. 3.12 – Magnéto-résistance de la partie Cu/Co/Cu d'une multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu (28/4/2/30/2/8/5 nm). A gauche : anisotropie de magnéto-résistance négative à 10 K (début du cycle en champ nul). A droite : magnéto-résistance positive à la température de transition $T_c = 4.93$ K. On voit la différence importante dans l'amplitude des deux effets (l'échelle de résistance est la même sur les deux graphes mais n'a pas été déterminée lors de la mesure).

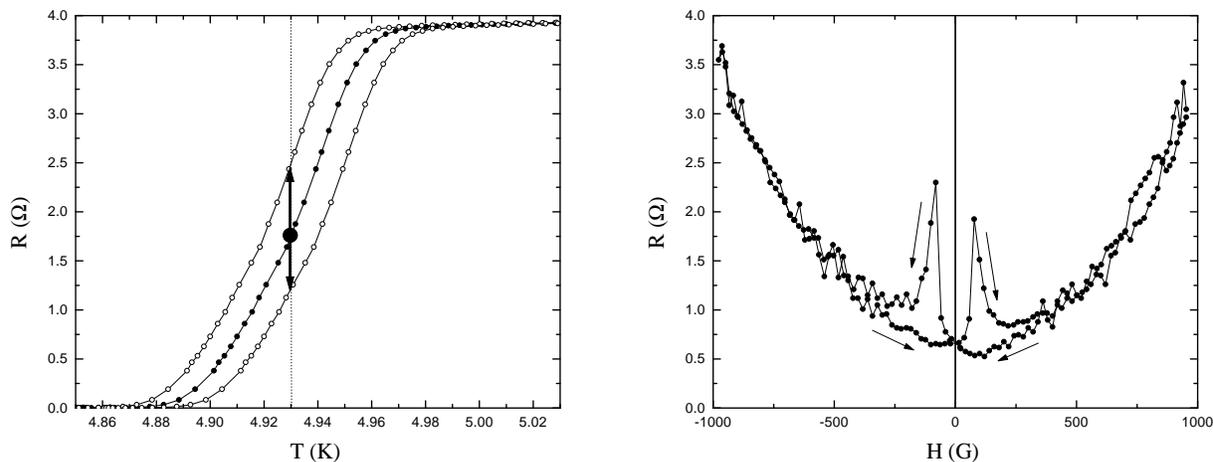


FIG. 3.13 – Transition résistive de la multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu (28/4/2/30/2/8/5 nm). L'étude de la magnéto-résistance dans la transition à température constante permet de détecter de faibles variations de température critique qui correspondent à des transitions décalées (courbes fictives avec les symboles creux).

FIG. 3.14 – Magnéto-résistance d'une bicouche Co/Nb (3.7/32 nm) à la température de transition $T_c = 6.11$ K. La résistance à l'état normal vaut $R_n = 11.3 \Omega$.

vortex sont confinés par l'épaisseur de la couche mince. Ainsi la résistance dans la transition n'augmente pas linéairement avec le champ mais décrit plutôt une parabole avant de saturer à la valeur de la résistance à l'état normal.

Influence du cobalt sur le niobium

Lorsqu'on mesure la magnéto-résistance de la multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu tout en régulant la température au milieu de la transition supraconductrice à $T_c = 4.93$ K (figure 3.13), on observe un grand pic positif à la même valeur de champ que le petit pic d'AMR négatif mesuré à 10 K (figure 3.12). La différence d'amplitude d'un facteur 300 et la différence de signe entre ces deux effets indiquent qu'ils sont de nature différente bien qu'ils aient la même origine : ils sont tout les deux liés au retournement de la couche de cobalt supérieure de la multicouche.

Ce pic à la valeur du champ coercitif est également présent lorsqu'on étudie une bicouche Co/Nb à sa température de transition $T_c = 6.11$ K. On voit sur la figure 3.14 que l'amplitude de la magnéto-résistance est de 100% entre le champ nul et le champ coercitif. On voit également l'effet direct du champ magnétique sur le niobium qui donne une forme parabolique à la courbe.

Les pics de résistance que l'on observe sont dus au champ magnétique rayonné par les nombreux domaines qui apparaissent lors du retournement. Ces champs de fuite traversent la couche de niobium et affaiblissent localement la supraconductivité comme un champ magnétique extérieur (figure 3.15). Des vortex peuvent également apparaître au-dessus des parois de domaines et créer de la dissipation. Cette magnéto-résistance est très grande car elle met en jeu la transition supraconductrice.

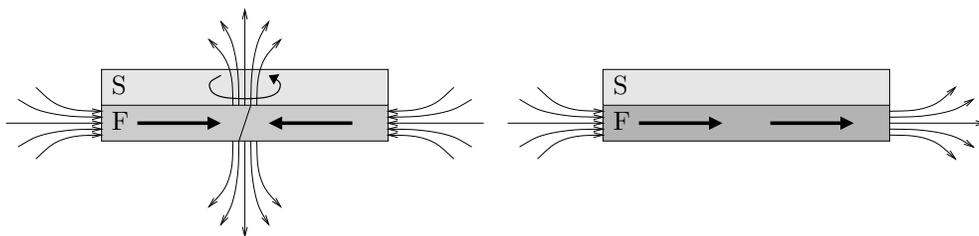


FIG. 3.15 – Champ de fuite rayonné par les domaines ferromagnétiques au travers du film supraconducteur avec apparition de vortex (à gauche). Champ magnétique canalisé par la couche ferromagnétique saturée (à droite).

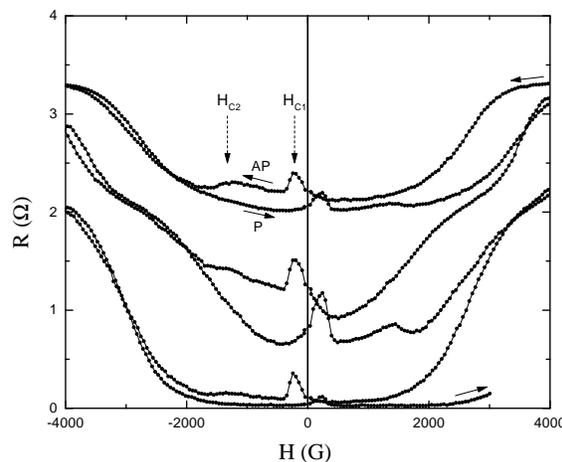
Influence des deux couches de cobalt

La figure 3.16 montre plusieurs courbes de magnéto-résistance d'une multicouche vanne de spin NiO/Co/Nb/Co/Cu sur une grande gamme de champ, lorsque la température est ajustée à $T_c = 2.17$ K au début du balayage mais n'est pas réglée ensuite et dérive jusqu'à 2.07 K. On voit l'effet du champ critique du niobium qui donne la courbure principale à la courbe, ainsi que des structures plus compliquées dans la région ± 2000 G avec un pic et un plateau sur chaque branche croissante et décroissante du champ.

Les deux pics apparaissent à ± 200 G en accord avec le champ coercitif de la couche supérieure de cobalt mesurée également en aimantation. L'autre couche de cobalt sur l'oxyde de nickel ne produit pas de pic mais son retournement qui a lieu vers 1500 G change la valeur de la résistance comme s'il y avait une région de résistance plus grande dans l'état anti-parallèle. Ces changements brutaux à ± 1500 G ne sont pas corrélés à des variations de température contrairement à d'autres anomalies visibles sur la figure. Pour vérifier si cette structure n'est pas un pic étalé en bosse qui proviendrait de la couche NiO/Co et qui se retournerait sur une grande gamme de champ, on effectue la même mesure sur un échantillon NiO/Co/Nb avec une seule couche de cobalt, mais on n'observe alors aucun pic ni bosse de magnéto-résistance.

Une différence de résistance $R^P < R^{AP}$ dans la région située entre les deux champs coercitifs correspondrait à une température de transition plus basse dans l'état anti-parallèle : $T_c^P > T_c^{AP}$. Cet ordre des températures de transition serait l'inverse de celui proposé par Buzdin et Tagirov, mais nous avons vu dans la partie 2.4.2 qu'un ordre différent pourrait être obtenu suivant la valeur des paramètres. En particulier le système niobium/cobalt a une épaisseur critique de niobium assez grande ($d_S^{cr}/\xi_S \sim 5$) qui correspond plutôt aux courbes les plus à droite ($\sigma_F \xi_S / \sigma_S \xi_F = 1$) sur la figure 2.22 qui présente l'ordre $T_c^P > T_c^{AP}$.

FIG. 3.16 – Cycles de magnéto-résistance d'une multicouche vanne de spin NiO/Co/Nb/Co/Cu (28/4/27/8/5 nm) à la température de transition $T_c = 2.17$ K. Le balayage en champ commence en haut à droite et la température dérive jusqu'à 2.07 K. La résistance à l'état normal vaut $R_n = 3.4 \Omega$.



Cette différence est également visible sur la figure 3.17 de gauche correspondant à une multicouche NiO/Co/Cu/Nb/Cu/Co/Cu qui transite à $T_c = 4.93$ K (le cuivre aux interfaces sert de barrière de diffusion entre le cobalt et le niobium). Les pics à faible champ sont dus à la couche douce Cu/Co/Cu et le reste correspond à une région de résistance plus élevée dans l'état anti-parallèle. Le cycle d'hystérésis en aimantation de cet échantillon montre que le retournement de la couche piégée NiO/Co/Cu se produit vers 1000 G et se prolonge jusqu'à 1500 G.

Cependant l'interprétation en terme de différence de température de transition $T_c^P > T_c^{AP}$ est remise en question par l'expérience suivante. Cet échantillon est chauffé jusqu'à 300 K à l'intérieur du cryostat, puis un champ magnétique de +6000 G est appliqué et conservé durant toute la descente en température jusqu'à 4.2 K. La courbe de magnéto-résistance est mesurée de nouveau à $T_c = 4.93$ K et donne le résultat de la figure 3.17 de droite. Les pics à

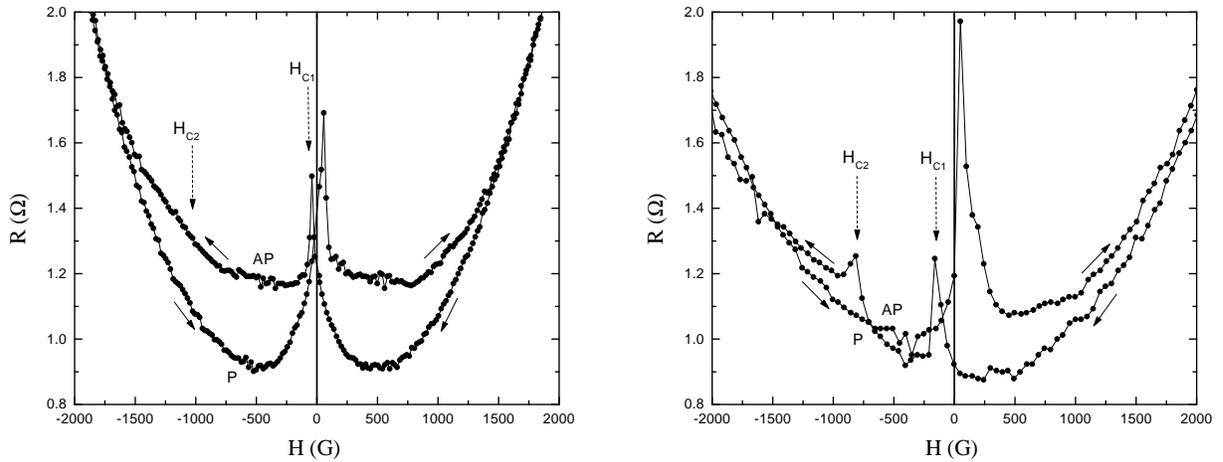


FIG. 3.17 – Magnéto-résistance d’une multicouche vanne de spin $\text{NiO}/\text{Co}/\text{Cu}/\text{Nb}/\text{Cu}/\text{Co}/\text{Cu}$ ($28/4/2/30/2/8/5$ nm) à la température de transition $T_c = 4.93$ K. La résistance à l’état normal vaut $R_n = 3.9 \Omega$. A gauche : après un refroidissement en champ nul. A droite : après l’application d’un champ magnétique de 6000 G pendant le refroidissement de 300 K à 4.2 K, la différence de résistance parallèle/anti-parallèle a disparu.

faible champ sont toujours présents, mais la résistance plus grande dans l’état anti-parallèle a disparu et ne revient pas après avoir fait deux cycles. Il semble par contre y avoir un petit pic à -800 G et un pic plus large autour de +100 G superposé à celui de la couche libre.

L’interprétation de cette différence de résistance pourrait donc être la même que pour les pics, à savoir le champ de fuite des domaines de la couche NiO/Co . Bien qu’aucun pic n’ait été vu dans l’échantillon testé $\text{NiO}/\text{Co}/\text{Nb}$, il n’est pas impossible que ce phénomène se produise. L’étalement des cycles d’hystérésis des couches piégées correspond en effet à la présence de nombreux domaines qui ne se retournent pas en même temps, ce qui produit beaucoup de configurations où les aimantations de deux domaines adjacents sont opposées comme sur la figure 3.15 de gauche. Le champ de fuite peut donc être important et provoquer une augmentation de la résistance lorsque la couche se retourne. Dans l’expérience où l’on sature complètement les couches grâce au champ de +6000 G appliqué à 300 K, la couche NiO/Co contient moins de domaines et produit moins de champ de fuite, d’où la disparition de la bosse observée précédemment. C’est probablement cette interprétation qu’il faut retenir, plutôt que l’existence d’un effet de type vanne de spin.

Cette absence d’influence de la configuration des aimantations sur la température de transition des multicouches $\text{NiO}/\text{Co}/\text{Nb}/\text{Co}$ doit être liée à la valeur de l’épaisseur critique de niobium plusieurs fois supérieure à la longueur de cohérence ξ_S . La grande valeur de l’énergie d’échange du cobalt produit un effet de proximité inverse très fort qui détruit la supraconductivité avant d’atteindre le régime $d_S \sim \xi_S$ où l’effet de couplage pourrait commencer à se manifester. Pour approcher ce régime, il est nécessaire de réduire fortement l’énergie d’échange afin d’augmenter la longueur ξ_F et réduire l’épaisseur critique de niobium. Pour cela nous allons remplacer le cobalt par des alliages cuivre-nickel dont la température

de Curie est beaucoup plus basse.

3.3 Utilisation d'alliages cuivre-nickel

3.3.1 Généralités sur les alliages massifs

Les atomes de cuivre et de nickel ont sensiblement les mêmes dimensions car les deux éléments sont voisins dans le tableau périodique. Ils peuvent ainsi occuper de façon aléatoire les différents sites d'un même réseau fcc et former un alliage désordonné cuivre-nickel pour toutes les compositions : on parle de solution solide. Le nickel est un métal ferromagnétique de température de Curie 630 K et de moment magnétique $0.6 \mu_B$ /atome porté par les électrons de conduction des bandes 3d. Le cuivre ne participe pas au magnétisme de l'alliage, il ne fait que diluer le nickel qui perd peu à peu son moment magnétique. En effet l'atome de nickel en tant qu'impureté dans le cuivre n'a pas de moment magnétique. Le magnétisme n'apparaît qu'au contact d'autres atomes de nickel, lorsque l'interaction d'échange entre les électrons 3d est suffisante. Ainsi l'alliage cuivre-nickel passe successivement de non-magnétique, à paramagnétique, à super-paramagnétique et enfin à ferromagnétique au-delà de 45% d'atomes de nickel. La température de Curie et l'aimantation augmentent alors linéairement avec la composition jusqu'aux valeurs du nickel pur. La figure 3.18 reproduit les valeurs expérimentales mesurées par Ahern et al. [2] sur des alliages massifs (les aimantations M mesurées en emu/cm^3 sont reliées au moment magnétique m en μ_B /atome par la relation $M [\text{CGS}] = 10^{-3} m \mu_B N_V [\text{SI}]$ avec une densité moyenne pour l'alliage cuivre-nickel $N_V = 9 \times 10^{28} \text{ atomes}/\text{m}^3$).

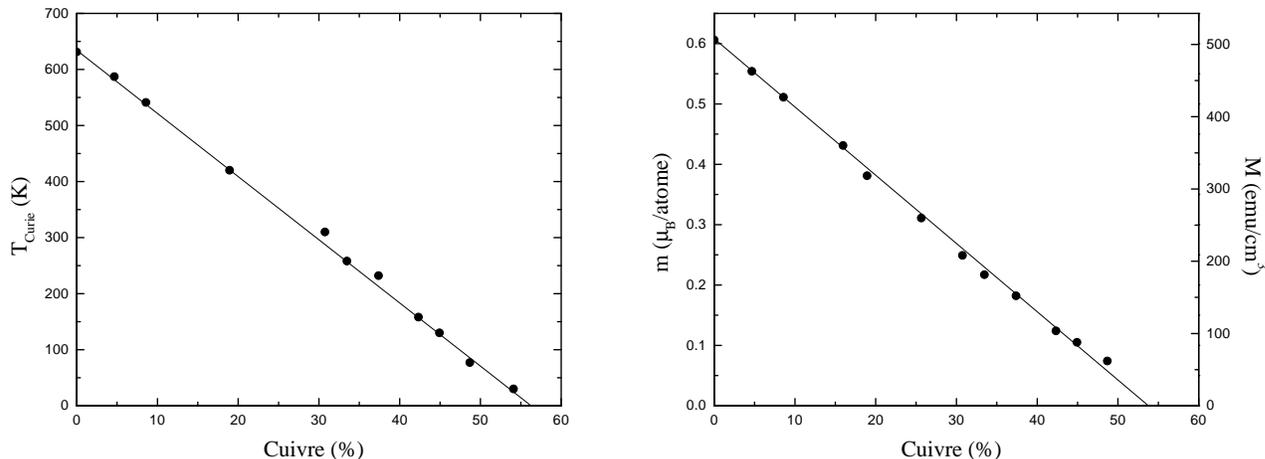


FIG. 3.18 – Température de Curie, moment magnétique par atome (m) et aimantation CGS (M) des alliages CuNi massifs mesurés par Ahern et al. [2].

Le régime super-paramagnétique a été étudié de manière approfondie du point de vue expérimental [51, 2] et théorique [75, 70, 61]. Ces études ont montré qu'un atome de nickel doit avoir en moyenne 7 voisins nickel sur les 12 du réseau fcc pour porter un moment magnétique. Juste en-dessous de la composition critique du ferromagnétisme (45% de nickel), le désordre dans l'arrangement respectif des atomes de cuivre et de nickel conduit à la

disparition du moment aux endroits où le nombre d'atomes de nickel voisins est insuffisant. L'alliage comporte alors des régions magnétiques plus ou moins bien couplées entre elles et le ferromagnétisme est remplacé par du super-paramagnétisme. L'ordre ferromagnétique qui s'étendait sur tout le volume est remplacé par un ordre local qui varie d'une région à une autre. Ces fluctuations spatiales de l'aimantation se font sur une longueur qui dépend de la composition et qui diverge à la composition critique du ferromagnétisme.

Un matériau super-paramagnétique ne présente pas d'aimantation spontanée macroscopique car les différentes régions sont orientées statistiquement dans toutes les directions. Il se comporte comme un matériau paramagnétique composé de moments géants qui s'orientent facilement sous champ magnétique. En-dessous d'une température de blocage T_B , ils conservent cette orientation après suppression du champ car l'énergie thermique est insuffisante pour retourner ces gros moments : ils sont gelés. Au-dessus de T_B ils retrouvent leur liberté et l'aimantation macroscopique disparaît. Une expérience équivalente consiste à refroidir l'échantillon en champ nul et à appliquer un faible champ magnétique à froid : l'aimantation reste égale à zéro car les régions sont piégées dans toutes les directions. Au cours de la montée en température elles se dépiègent progressivement et s'orientent suivant le champ, ce qui fait apparaître une aimantation. Celle-ci passe par un maximum à T_B et elle diminue ensuite à cause des fluctuations thermiques comme pour un matériau paramagnétique classique. Plus les régions magnétiques sont petites, plus la température de blocage est basse, et le matériau finit par devenir réellement paramagnétique.

3.3.2 Fabrication des alliages

L'objectif étant d'avoir une très faible énergie d'échange pour augmenter la longueur ξ_F , il faut utiliser une composition proche de la limite du ferromagnétisme, c'est-à-dire de 45% d'atomes de nickel. Pour trouver la composition optimale il serait intéressant de pouvoir la changer facilement et donc de fabriquer l'alliage par co-pulvérisation. Le groupe de dépôt utilisé permet justement de déposer des alliages à partir de deux cibles dont les axes de pulvérisation sont obliques et convergent sur le substrat. En ajustant les vitesses de dépôt de chaque cible on peut faire varier la composition de l'alliage et a priori faire varier continûment la température de Curie. Cependant les films obtenus à partir de la co-pulvérisation de cuivre et de nickel n'ont pas du tout les propriétés espérées : la température de Curie reste celle du nickel, seule la valeur de l'aimantation diminue. L'alliage obtenu avec ce procédé est en effet très inhomogène avec une juxtaposition de grains de cuivre et de grains de nickel, bien que la pulvérisation des cibles n'arrache en principe que très peu d'atomes à la fois. En effet un dépôt suivant un axe oblique conduit à la formation de grains en forme de colonnes inclinées suivant cet axe et il est possible que celles-ci fassent *de l'ombre* au dépôt de l'autre matériau produisant des zones riches en nickel et d'autres riches en cuivre.

Il est donc préférable d'utiliser une cible d'alliage obtenu par fusion des deux métaux dans les proportions souhaitées. Nous avons ainsi utilisé deux cibles de cuivre-nickel de composition atomique $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ et $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$. Après pulvérisation, la composition de l'échantillon diffère légèrement de celle de la cible car les atomes de cuivre et ceux de nickel ne sont pas arrachés de la cible de la même façon. La mesure de la composition exacte des alliages pulvérisés peut se faire par Rutherford Back Scattering (RBS). Un faisceau de particules α mono-énergétique

(2000 keV) est envoyé sur le film à étudier et on mesure l'énergie des particules diffusées par les atomes de l'échantillon dans une direction proche de 180° . La perte d'énergie est fonction du numéro atomique et de la profondeur de matière traversée. Le nickel et le cuivre ayant des numéros atomiques voisins ($Z=28$ et $Z=29$), il est indispensable de faire la mesure sur des films très fins pour pouvoir résoudre les deux pics correspondant. La figure 3.19 montre les spectres obtenus avec deux films de 5 et 10 nm de cuivre-nickel issus de la cible $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ (le silicium et l'oxygène de son oxyde présents dans le substrat sont plus légers, donc à plus basse énergie). Cette mesure a été faite avec la collaboration de Denis Jalabert du CEA-Grenoble. Pour ces épaisseurs de films, la largeur des pics est dominée par la résolution du spectromètre qui permet tout juste de séparer le nickel et le cuivre. Un programme permet de simuler ce spectre à partir de la structure de l'échantillon (matériaux et épaisseurs) en utilisant la composition isotopique naturelle des éléments. En ajustant la proportion de cuivre et de nickel suivant la stoechiométrie $\text{Cu}_{46}\text{Ni}_{54}$, on reproduit bien les deux spectres mesurés. Les échantillons sont donc plus riches en nickel que la cible, comme cela a été observé par les groupes de J. Aarts (Leiden) et de V. Ryazanov (Chernogolovka) qui utilisent ce même type d'alliage. La composition des films déposés à partir de l'autre cible n'ayant pas été déterminée, nous noterons par la suite les deux alliages avec les valeurs des cibles.

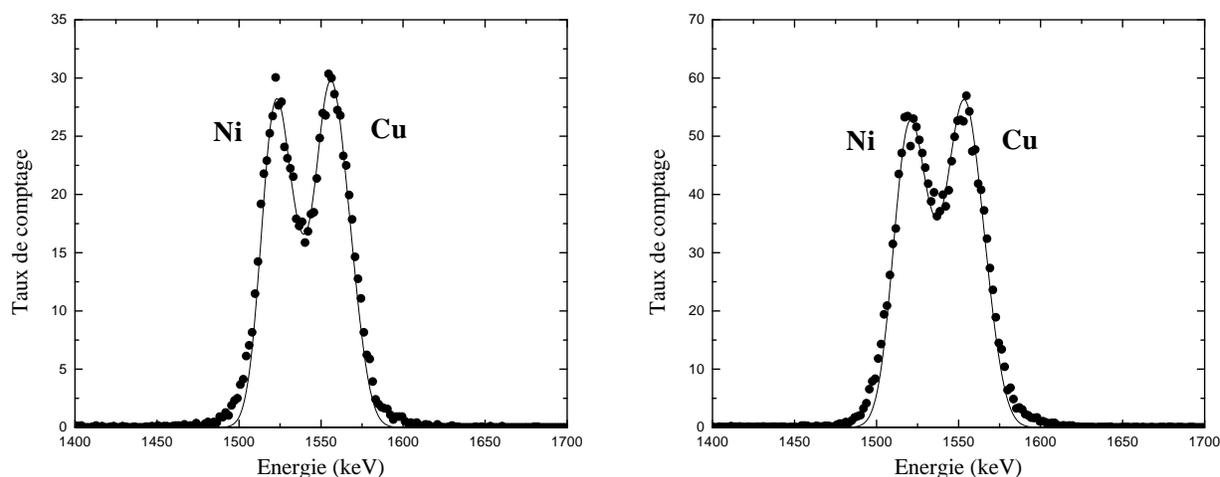


FIG. 3.19 – Spectres obtenus par Rutherford Back Scattering (points) sur des couches de cuivre-nickel de 5 nm (à gauche) et de 10 nm (à droite) à partir d'une cible de composition $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$. L'ajustement des spectres (trait continu) donne une composition $\text{Cu}_{46}\text{Ni}_{54}$ pour les échantillons (mesure faite par D. Jalabert).

3.3.3 Propriétés magnétiques du $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$

Caractérisation

La dépendance en température de l'aimantation d'un film de 38 nm de $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ mesurée sous 500 G avec le magnétomètre à SQUID *SHE* est présentée sur la figure 3.20. Il est nécessaire d'appliquer un champ pour obtenir une valeur proche de l'aimantation à saturation car le cycle d'hystérésis à 10 K a une forme arrondie avec une aimantation rémanente non saturée. En contrepartie, à cause du champ appliqué, l'aimantation ne s'annule pas à la température de Curie qui est environ $T_{\text{Curie}} = 160$ K. L'aimantation à température nulle vaut environ $M_0 = 125 \text{ emu/cm}^3$, soit $0.15 \mu_B/\text{atome}$. Cette valeur ainsi que la température de Curie sont proches des valeurs de l'alliage massif (figure 3.18) indiquant une bonne homogénéité du film obtenu par pulvérisation.

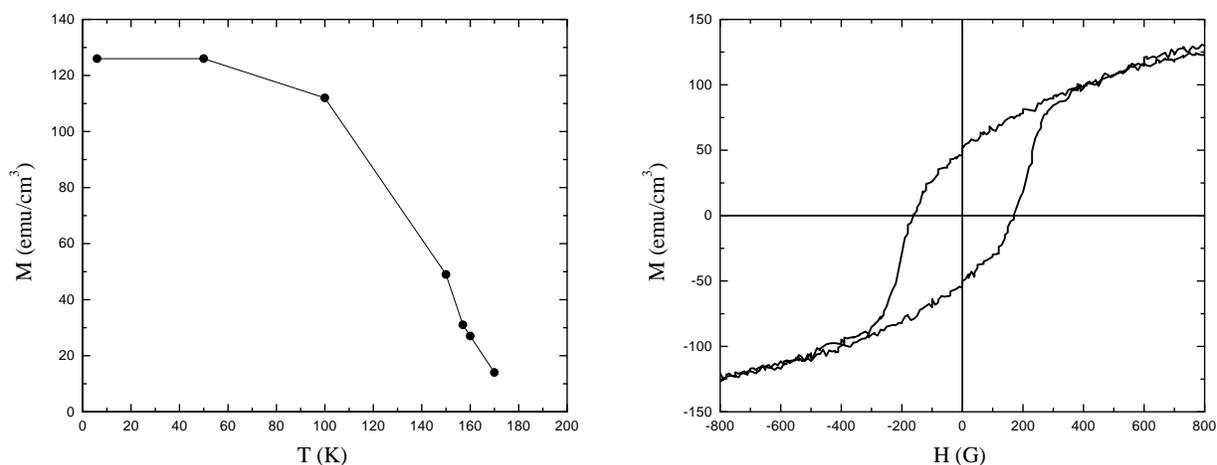


FIG. 3.20 – Film de $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ d'épaisseur 38 nm. A gauche : dépendance en température de l'aimantation sous 500 G. A droite : cycle d'hystérésis à 10 K.

Contrôle du retournement

Pour les multicouches vannes de spin il est important d'avoir un cycle d'hystérésis plus carré pour que le basculement dans l'état anti-parallèle soit net. La figure 3.21 montre deux autres cycles obtenus à 10 K sur des films d'épaisseurs 8 et 5.4 nm. La couche la plus fine commence à perdre ses propriétés ferromagnétiques et son cycle arrondi n'est pas utilisable pour des vannes de spin. Par contre l'autre a les caractéristiques requises avec un cycle carré et un champ coercitif d'environ 100 G.

Un second travail pour la vanne de spin consiste à modifier cette valeur pour avoir une deuxième couche qui se retourne à un champ plus élevé. La technique de piégeage de l'aimantation d'une couche ferromagnétique par une couche antiferromagnétique est a priori générale et on doit donc pouvoir l'extrapoler du cas NiO/Co au cas NiO/CuNi. Ce couplage n'avait pas été étudié auparavant et s'est révélé fonctionner relativement bien. La figure 3.22

montre les cycles d'hystérésis à 10 K d'une multicouche NiO/Cu₄₀Ni₆₀/Cu avec 10 nm de cuivre-nickel, obtenus après des refroidissements sous +1000 G et -1000 G. Grâce à l'oxyde de nickel le champ coercitif passe de 100 G à 600 G, avec un décalage de ±150 G dû au blocage de la structure antiferromagnétique à basse température. La polarisation de l'oxyde de nickel dans une direction préférentielle commence lorsque le cuivre-nickel devient ferromagnétique, donc en-dessous de la température de Curie de 160 K.

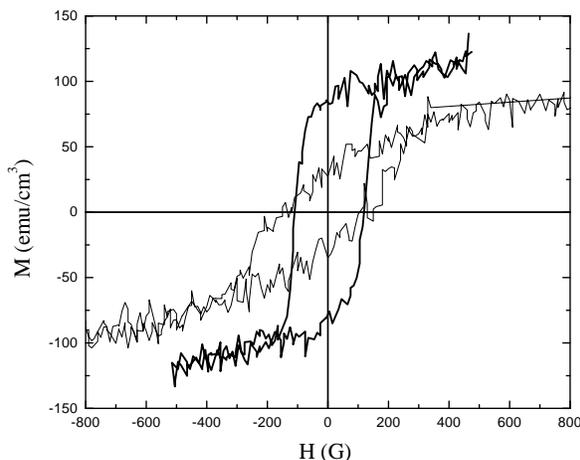


FIG. 3.21 – Cycle d'hystérésis à 10 K de deux couches Cu₄₀Ni₆₀ de 8 nm (trait fort) et de 5.4 nm (trait fin).

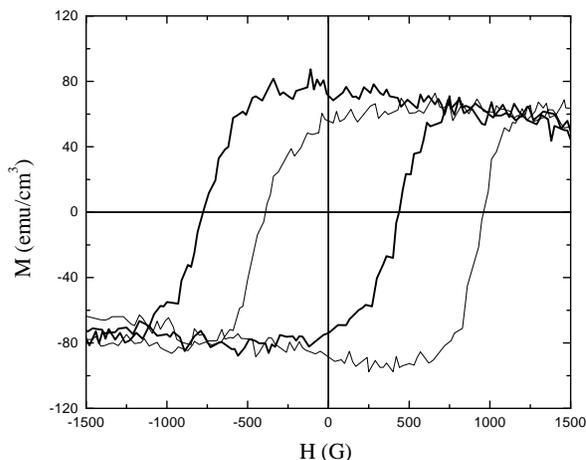


FIG. 3.22 – Cycle d'hystérésis d'une couche NiO/Cu₄₀Ni₆₀ (55/10 nm) à 10 K après un refroidissement sous +1000 G (trait fort) et sous -1000 G (trait fin).

Multicouches vannes de spin

Pour les multicouches vannes de spin NiO/Cu₄₀Ni₆₀/Nb/Cu₄₀Ni₆₀/Cu, on choisit une épaisseur de cuivre-nickel de 10 nm pour la couche libre et pour la couche piégée. Une fine couche de 2 nm de cuivre est ajoutée en surface par précaution pour éviter la formation d'oxyde, car la présence de nickel pourrait conduire à la formation d'oxyde de nickel antiferromagnétique. La figure 3.23 de gauche présente le premier et le second cycle d'hystérésis obtenus à 10 K après polarisation sous +1000 G. Le décalage du cycle de NiO/CuNi permet d'obtenir un état anti-parallèle entre -200 G et -800 G la première fois, puis sur une gamme de champ un peu plus réduite lors du deuxième retournement pour les mêmes raisons que pour les couches NiO/Co.

Le deuxième graphe est obtenu si aucun champ n'est appliqué pendant le refroidissement. Les domaines ferromagnétiques qui apparaissent en-dessous de 160 K sont alors dans toutes les directions et l'oxyde de nickel n'est pas du tout polarisé. Le cycle n'a pas de décalage et pas de plateau anti-parallèle, ce qui montre l'importance de la procédure à suivre pour étudier l'effet de l'orientation relative des aimantations.

Une tentative de co-pulvérisation à partir de la cible de Cu₄₀Ni₆₀ et d'une cible de cuivre pour diluer l'alliage a produit le même résultat négatif que dans le cas d'une cible de nickel

et d'une cible de cuivre discuté dans la partie 3.3.2. L'alliage est très inhomogène avec une température de Curie qui reste égale à celle du $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$. D'où l'utilisation d'une nouvelle cible $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ obtenue par fusion des deux métaux afin de réduire la température de Curie en gardant un alliage homogène.

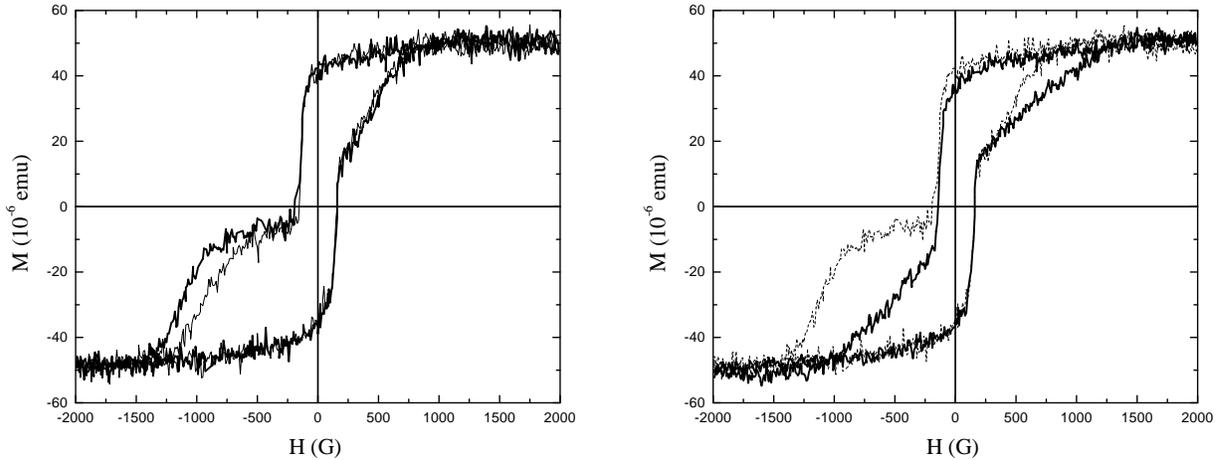


FIG. 3.23 – Cycle d'hystérésis à 10 K d'une multicouche vanne de spin $\text{NiO}/\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Nb}/\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Cu}$ (40/10/14/10/2 nm). A gauche : premier cycle (trait fort) et second cycle (trait fin) après un refroidissement sous +1000 G. A droite : premier cycle après un refroidissement en champ nul (trait fort) comparé au cas sous +1000 G (pointillés). (surface $S = 30 \text{ mm}^2$)

3.3.4 Propriétés magnétiques du $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$

Caractérisation

La figure 3.24 montre la dépendance en température de l'aimantation d'un film de $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ d'épaisseur 20 nm mesurée sous 500 G et sous 100 G avec un magnétomètre à SQUID QD , ainsi que le cycle d'hystérésis à 5 K. L'aimantation à saturation et à température nulle est égale à $M_0 = 70 \text{ emu/cm}^3$ (soit $0.08 \mu_B/\text{atome}$) et la température de Curie vaut environ $T_{Curie} = 120 \text{ K}$. Ces valeurs sont encore une fois très proches des caractéristiques magnétiques des alliages massifs (figure 3.18) contenant 54% de nickel, composition exacte mesurée par RBS de l'alliage obtenu par pulvérisation (voir section 3.3.2).

Un comportement particulier est observé en mesurant les cycles d'hystérésis à différentes températures entre zéro et T_{Curie} avec le magnétomètre VSM. La figure 3.25 en présente trois, mesurés à 10, 90 et 120 K, qui montrent que l'hystérésis disparaît bien avant la température de Curie. Le cycle se ferme vers 80 K alors que l'aimantation à saturation n'a chuté que de moitié, celle-ci ne disparaissant qu'à 120 K. Le graphe de gauche montre ces deux dépendances différentes en température pour l'aimantation à saturation et pour l'aimantation rémanente qui caractérise la présence d'hystérésis.

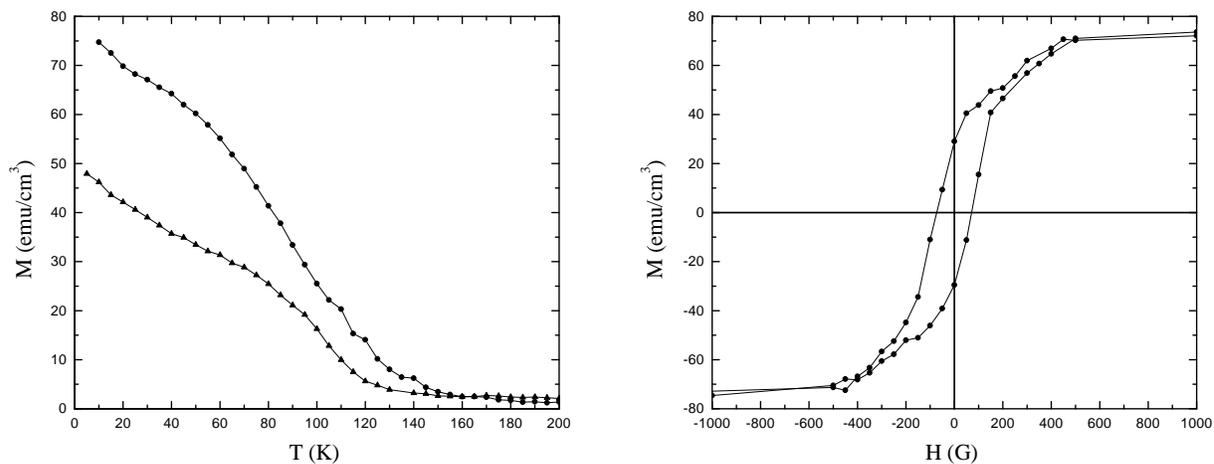


FIG. 3.24 – Film de $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ d'épaisseur 20 nm. A gauche : dépendance en température de l'aimantation sous 500 G (rond) et 100 G (triangle). A droite : cycle d'hystérésis à 5 K.

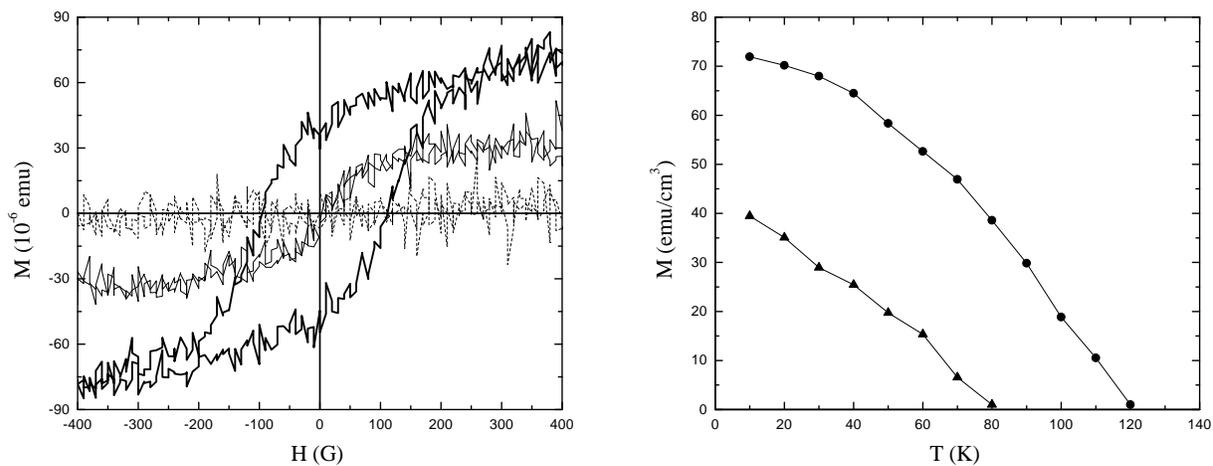


FIG. 3.25 – Film de $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ d'épaisseur 20 nm. A gauche : cycles d'hystérésis à 10 K (trait fort), 90 K (trait fin) et 120 K (pointillés). A droite : dépendance en température de l'aimantation à saturation (rond) et de l'aimantation rémanente (triangle). (surface $S = 57 \text{ mm}^2$)

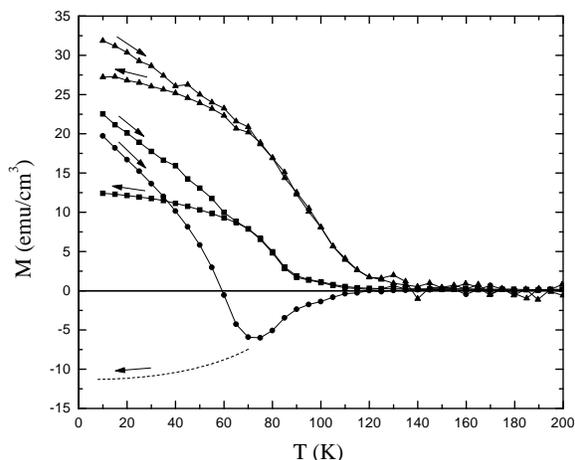


FIG. 3.26 – Film de $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ d'épaisseur 50 nm. Dépendance en température de l'aimantation sous un champ de +100 G (triangle), +10 G (carré) et -10 G (rond) après saturation sous +1000 G. Montée en température, puis redescente (sauf pour -10 G).

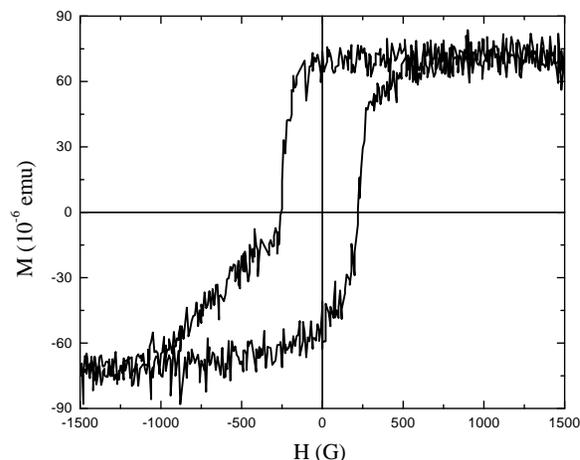


FIG. 3.27 – Cycle d'hystérésis à 10 K d'une multicouche vanne de spin $\text{NiO}/\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}/\text{Nb}/\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ (40/10/18/10 nm). Premier cycle après un refroidissement sous +1500 G. (surface $S = 70 \text{ mm}^2$)

Ces deux comportements réversible et irréversible apparaissent aussi clairement sur la figure 3.26 obtenue pour un film de $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ d'épaisseur 50 nm avec le magnétomètre à SQUID. Pour les trois courbes, l'échantillon a été saturé à froid par application d'un champ de +1000 G avant d'être mesuré sous +100 G, sous +10 G et sous -10 G. Sur la courbe +10 G, l'aimantation rémanente diminue linéairement avec la température jusqu'à 70 K, diminue ensuite avec une courbure convexe jusqu'à 85 K, puis avec une courbure concave jusqu'à disparaître autour de 120 K. A la redescente en température, l'aimantation suit exactement la même courbe qu'à la montée jusqu'à 70 K puis s'en écarte pour augmenter plus lentement et sans point anguleux à 70 K. La contribution supplémentaire en-dessous de 70 K obtenue lors de la montée en température est une partie irréversible qui a été produite par la saturation sous +1000 G et qui est restée bloquée, alors que la courbe obtenue lors de la redescente en température indique la partie réversible de l'aimantation due à la présence du champ. Le même phénomène est visible sur la courbe -10 G, la partie réversible étant maintenant négative et produisant un changement de signe de l'aimantation. La redescente en température n'a malheureusement pas été mesurée mais devrait donner la courbe en pointillés.

Ce comportement fait penser à du super-paramagnétisme avec de l'hystérésis en-dessous d'une température de blocage d'environ 70 K qui correspondrait à de grandes régions magnétiques. A haute température l'aimantation est réversible et son amplitude est beaucoup plus grande que pour un simple paramagnétique. Le domaine de température qui nous intéresse étant inférieur à 10 K pour l'étude de l'effet de proximité, la différence entre de grandes

régions super-paramagnétiques bloquées dans la même direction et des domaines ferromagnétiques n'est pas très importante. Nous pouvons donc poursuivre l'étude et considérer les multicouches vanes de spin.

Multicouches vanes de spin

Les remarques faites dans le cas de l'alliage $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ sont également valables pour l'alliage $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$, de sorte que les épaisseurs optimales sont autour de 10 nm de cuivre-nickel. Cependant le piégeage par l'oxyde de nickel devient moins efficace comme le montre la figure 3.27 où le plateau anti-parallèle en champ négatif a disparu malgré un refroidissement sous un champ de +1500 G. Le couplage d'échange est peut-être moins bon ou alors la température de Curie étant plus basse, l'oxyde de nickel est déjà partiellement bloqué au moment où apparaît le ferromagnétisme : il se polarise donc moins bien. La couche libre se retourne malgré tout de façon suffisamment nette pour produire un état anti-parallèle à -250 G grâce à la présence du décalage du cycle NiO/CuNi.

3.3.5 Transition supraconductrice des vanes de spin

Afin de tester la procédure de polarisation de la couche NiO/ $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ et vérifier que l'on a bien deux coercitifs différents, on peut mesurer l'anisotropie de magnéto-résistance dans l'état normal. Sur la figure 3.28 on observe effectivement deux pics négatifs à ± 150 G et ± 700 G correspondant au retournement de la couche libre et de la couche piégée de la vanne de spin. Le même résultat est obtenu si on mesure les deux couches séparément dans deux échantillons : la couche libre $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Cu}$ de la figure 3.30 se retourne à ± 100 G et la couche piégée NiO/ $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Cu}$ de la figure 3.31 se retourne à -900 et $+250$ G (puis -700 et $+250$ G). On retrouve ainsi les propriétés observées en aimantation, en particulier un décalage du cycle dû au refroidissement sous un champ de +1000 G et un second cycle plus petit que le premier. Les valeurs des champs coercitifs sont également en bon accord avec les mesures d'aimantations (voir figures 3.21 et 3.22).

L'épaisseur critique de niobium dans les multicouches $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Nb}/\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}$ est autour de $d_S^{cr} = 15$ nm comme le montre la figure 3.29, c'est-à-dire trois fois supérieure à la longueur de cohérence ξ_S . Elle est cependant plus petite que dans le cas des multicouches Co/Nb/Co et on peut rechercher si une variation de température de transition se produit dans l'état anti-parallèle des multicouches vanes de spin NiO/ $\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Nb}/\text{Cu}_{40}\text{Ni}_{60}/\text{Cu}$. Le refroidissement en-dessous de la température de Curie se fait sous un champ de +1000 G pour obtenir un plateau anti-parallèle bien défini en champ négatif. Aucun effet n'a été détecté sur les échantillons avec 18 nm et 28 nm de niobium même en mesurant précisément la magnéto-résistance dans la transition supraconductrice comme avec le cobalt. Par ailleurs le champ de fuite des domaines ferromagnétiques lors du retournement des couches n'a pas d'effet sur la supraconductivité sans doute à cause d'une intensité plus faible du champ rayonné par rapport au cobalt. Trois autres multicouches de caractéristiques différentes ou moins favorables ont été testées avec le même résultat négatif.

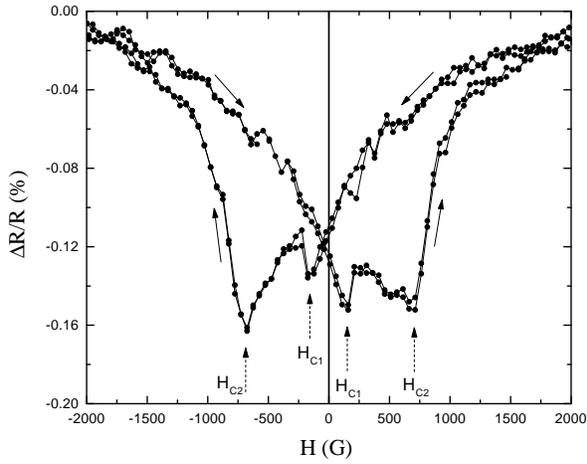


FIG. 3.28 – Magnéto-résistance d'une multicouche $NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Nb/Cu_{40}Ni_{60}/Cu$ (40/40/14/10/2 nm) à 4.2 K après refroidissement en champ nul (cet échantillon n'est pas supraconducteur). Pics négatifs d'anisotropie de magnéto-résistance au retournement des couches ferromagnétiques.

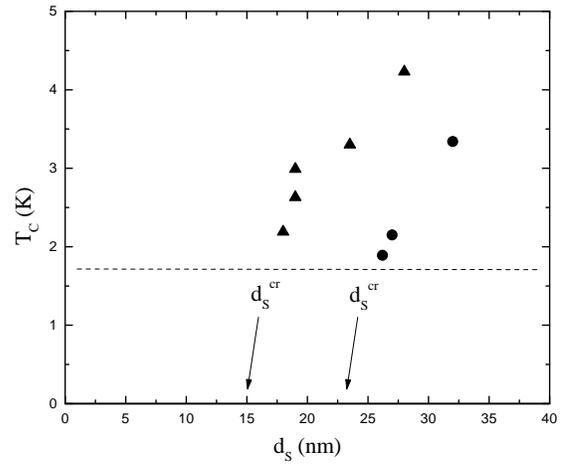


FIG. 3.29 – Température de transition supraconductrice de quelques multicouches $(NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Nb/Cu_{40}Ni_{60}/Cu)$ indiquant une épaisseur critique $d_s^{cr} \sim 15$ nm (triangle), comparées aux multicouches avec le cobalt (rond). Le trait horizontal indique la température limite du cryostat.

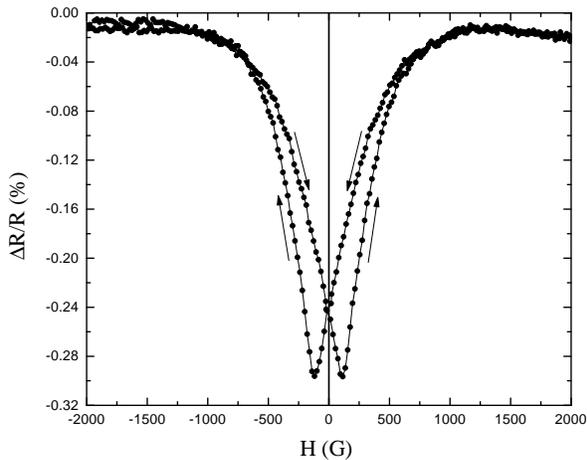


FIG. 3.30 – Anisotropie de magnéto-résistance d'une couche $Cu_{40}Ni_{60}/Cu$ (10/2 nm) à 4.2 K.

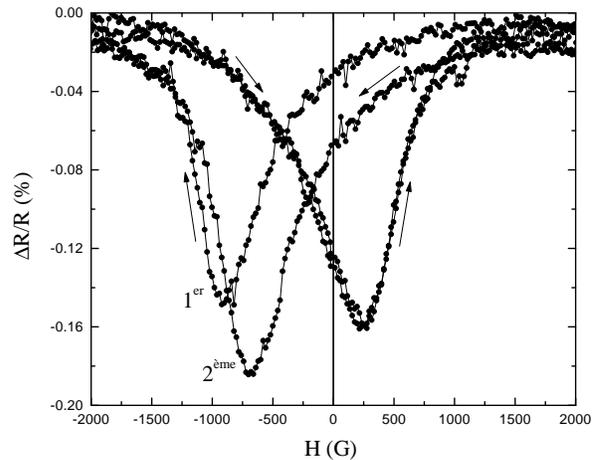


FIG. 3.31 – Anisotropie de magnéto-résistance d'une couche $NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Cu$ (56/10/2 nm) à 4.2 K. Premier et second cycles après refroidissement sous +1000 G.

3.3.6 Vannes de spin classiques avec du cuivre

Dans les multicouches $F_1/N/F_2$ où le métal normal est plus fin que le libre parcours moyen et que la longueur spin-flip, on observe généralement un effet de magnéto-résistance géante positive avec un courant dans le plan des couches. L'explication de ce phénomène a été donnée dans la partie 1.2.5 : il est dû à la diffusion des électrons du métal normal par les deux couches ferromagnétiques, cette diffusion étant plus importante dans l'état anti-parallèle. Avec des matériaux ferromagnétiques comme le cobalt ou l'alliage fer-nickel, les variations de résistance atteignent 10 à 20% et l'on parle de magnéto-résistance géante.

Pour voir si cet effet est présent dans les vannes de spin fabriquées avec l'alliage cuivre-nickel, on remplace la couche de niobium par une fine couche de cuivre. Le cycle d'hystérésis en aimantation d'une multicouche $NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Cu/Cu_{40}Ni_{60}$ avec 4 nm de cuivre présente un plateau d'aimantation anti-parallèle plus réduit, car les deux couches magnétiques sont partiellement couplées au travers de la couche très fine de cuivre. Ce couplage peut être d'origine dipolaire lorsque la rugosité corrélée des deux couches fait apparaître aux mêmes endroits des charges magnétiques de signe opposé qui s'attirent et favorisent la configuration parallèle.

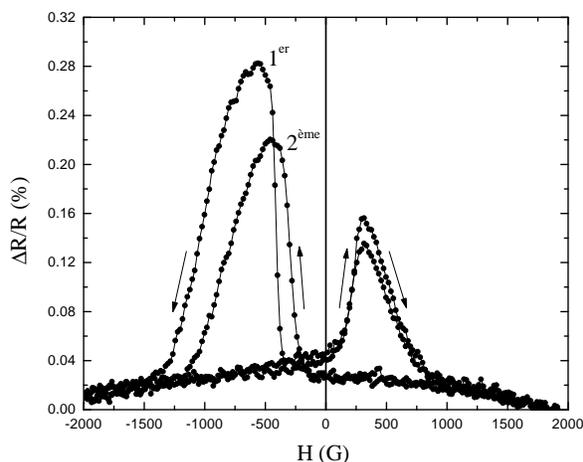


FIG. 3.32 – Magnéto-résistance positive d'une multicouche $NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Cu/Cu_{40}Ni_{60}$ (40/10/4/10 nm) à 4.2 K montrant l'effet vanne de spin classique. Premier et second cycle après refroidissement sous +1000 G.

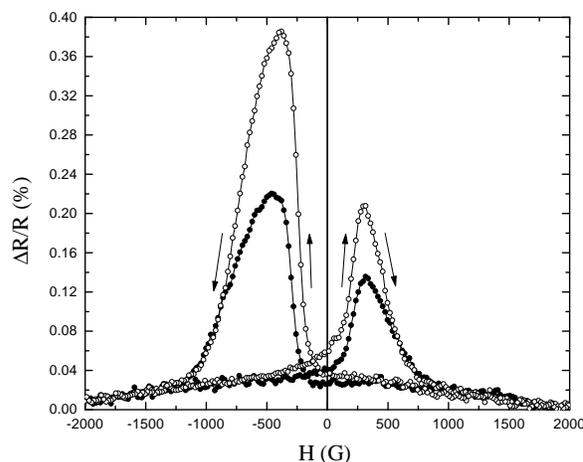


FIG. 3.33 – Magnéto-résistance positive de multicouches $NiO/Cu_{40}Ni_{60}/Cu/Cu_{40}Ni_{60}$ (40/10/ d_{Cu} /10 nm) à 4.2 K. Symboles creux : $d_{Cu} = 2$ nm. Symboles pleins : $d_{Cu} = 4$ nm. Seconds cycles après refroidissement sous +1000 G.

Lorsqu'on mesure la résistance de cet échantillon en fonction du champ à 4.2 K (après refroidissement sous +1000 G), on observe bien un effet de magnéto-résistance positive comme le montre la figure 3.32. L'anisotropie de magnéto-résistance intrinsèque à chacune des couches et qui donnerait des pics négatifs à chaque retournement est masquée par ce signal positif de magnéto-résistance "géante". Les variations sont seulement de 0.2% pour la vanne de spin avec 4 nm de cuivre entre les deux couches de cuivre-nickel et de 0.4% si on réduit

l'épaisseur de cuivre à 2 nm comme le montre la figure 3.33 (l'effet diminue avec l'épaisseur de cuivre sur l'échelle du libre parcours moyen). La faible amplitude de la magnéto-résistance est liée au faible moment magnétique de cet alliage. On remarque qu'elle est plus grande en champ négatif car le plateau anti-parallèle est mieux défini suite au refroidissement sous +1000 G.

Cette expérience démontre ainsi que les structures vannes de spin fabriquées en cuivre-nickel ont le bon comportement magnétique et que l'absence d'effet sur la température de transition dans le cas du niobium a une autre raison liée directement à la supraconductivité. Pour essayer de mieux comprendre l'effet de proximité entre le niobium et le cuivre-nickel, il est nécessaire de revenir à une étude plus classique mais également plus délicate quant à l'interprétation. Il s'agit de fabriquer et de comparer les températures de transition d'un grand nombre d'échantillons d'épaisseurs d_S et d_F différentes. Nous allons faire cette étude pour la composition $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$ moins riche en nickel afin de réduire l'énergie d'échange et voir si l'on réduit également l'épaisseur critique de niobium dans les tricouches $\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}/\text{Nb}/\text{Cu}_{50}\text{Ni}_{50}$.

3.4 Effet de proximité dans le système Nb/Cu₅₀Ni₅₀

3.4.1 Oscillation de la température de transition

La première étude consiste à mesurer la température de transition d'un ensemble de bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ dont l'épaisseur d_S de niobium est fixée à 12 nm et en variant l'épaisseur d_F de cuivre-nickel entre 0 et 12 nm. La figure 3.34 a été obtenue avec 3 séries successives contenant chacune 9 échantillons fabriqués au cours de la même séquence de dépôt. Chaque série contient des épaisseurs réparties dans la gamme 0–12 nm et la faible dispersion des points au-delà de 6 nm montre une bonne reproductibilité d'une série à une autre. La température critique ne vaut que 6 K pour le film de niobium de 12 nm sans cuivre-nickel à cause de la forte dépendance en épaisseur discutée dans la partie 3.1.3.

La gamme 2–8 nm contient plus d'échantillons afin de tester la présence d'une oscillation de la température critique, signature du déphasage des paires d'Andreev par l'énergie d'échange (voir les parties 1.2.4 et 2.4.1). Bien que faiblement marquée, cette oscillation semble être présente dans ces bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ car 8 valeurs sur 9 des températures de transition dans la gamme 3.5–6 nm sont inférieures à la valeur asymptotique de 3.4 K. L'amplitude du creux est d'environ 0.3 K avec une dispersion assez grande des points dans cette gamme d'épaisseur indiquant une grande sensibilité de cet effet à la qualité des échantillons. Notons que la largeur des transitions supraconductrices est inférieure à 0.1 K qui est la taille d'un point sur le graphe.

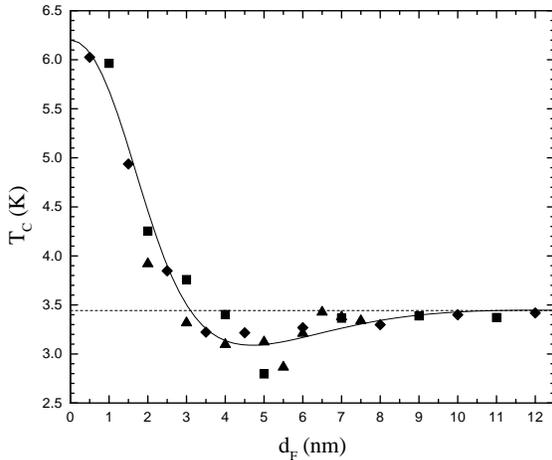


FIG. 3.34 – Température de transition de bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ (12 nm/ d_F) en fonction de l'épaisseur de cuivre-nickel (les 3 symboles correspondent aux 3 séries). La courbe est un ajustement à l'aide des équations de la partie 2.4.1 avec les paramètres $T_{c0} = 6.2$ K, $\xi_S = 4.8$ nm, $\sigma_F/\sigma_S = 0.5$, $l_F = 1$ nm, $\xi_F = 4.5$ nm et $T_b = 1$.

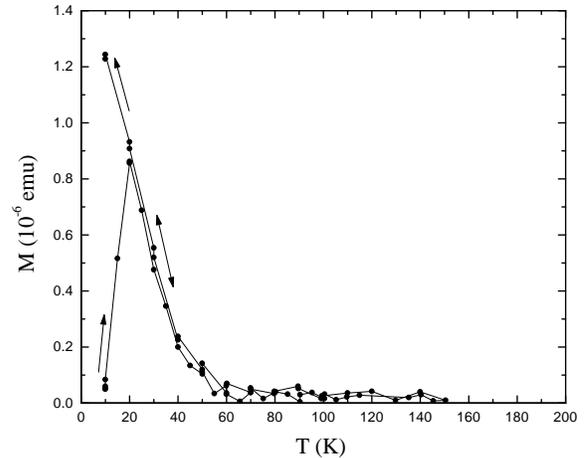


FIG. 3.35 – Aimantation d'une couche Nb/Cu₅₀Ni₅₀ (12/5 nm). Montée puis redescende en température sous +100 G après un refroidissement préalable en champ nul. Température de blocage vers 20 K. Surface $S = 32$ mm².

3.4.2 Comparaison avec le modèle théorique

L'étude théorique sur les bicouches S/F présentée dans la partie 2.4.1 permet de comparer les résultats expérimentaux obtenus avec le comportement issu de la résolution des équations d'Usadel. Parmi l'ensemble des paramètres intervenant dans ces équations, la plupart sont connus au moins de façon approchée à partir de mesures indépendantes. Les caractéristiques du niobium ont été présentées dans la partie 3.1.3 montrant que la température de transition chute, que la résistivité augmente et que la longueur de cohérence diminue lorsque l'épaisseur devient fine. Pour le film de 12 nm considéré, on a $T_{c0} = 6.2$ K, $\rho_0 = 30 \mu\Omega$ cm et on prendra $\xi_S = 4.8$ nm.

Dans l'alliage cuivre-nickel, le désordre engendré par la position aléatoire des atomes de cuivre et de nickel conduit à une résistivité importante. Entre la température ambiante et 4.2 K, la résistivité d'un film de 10 nm d'épaisseur baisse seulement de $\rho_{300} = 66 \mu\Omega$ cm à $\rho_0 = 59 \mu\Omega$ cm. Le libre parcours moyen élastique l_e peut être déterminé connaissant la densité d'états et la vitesse de Fermi qui fixent la valeur du produit $\rho_0 l_e$ quels que soient le désordre et les impuretés. La valeur $\rho_0 l_e = 6.3 \times 10^{-16} \Omega \text{ m}^2$ pour le cuivre permet d'estimer un libre parcours moyen autour de $l_e = 1$ nm dans l'alliage. La vitesse de Fermi du cuivre étant $v_F = 1.57 \times 10^6$ m/s, le coefficient de diffusion est autour de $D = l_e v_F / 3 = 5 \text{ cm}^2/\text{s}$.

Seules la longueur de cohérence ξ_F et la transparence T_b ne peuvent pas être mesurées de façon simple, il faut donc ajuster leur valeur pour obtenir une courbe qui reproduise les températures de transition mesurées. L'échelle spatiale des variations impose une longueur $\xi_F = 4.5$ nm et l'amplitude de la décroissance entre 6.2 K et 3.4 K impose une transparence $T_b = 1$. On obtient ainsi la courbe tracée sur la figure 3.34 qui présente un creux autour de 4 nm dont l'amplitude correspond assez bien à la moyenne des points mesurés. Pour augmenter ce creux il faudrait réduire l'épaisseur d_S afin d'augmenter la sensibilité de la température de transition à l'effet de proximité. Cette étude nécessiterait un très bon contrôle de l'épaisseur de niobium car la température de transition deviendrait alors également très sensible à ce paramètre.

Une valeur de transparence $T_b = 1$ équivaut à une résistance de barrière $R_b \approx \rho_F l_F / S$ d'après la relation (2.45). L'interface Nb/Cu₅₀Ni₅₀ a donc une assez bonne transparence puisqu'elle est équivalente à mettre en série une couche de cuivre-nickel de seulement un libre parcours moyen.

3.4.3 Discussion sur l'énergie d'échange

De la longueur de cohérence $\xi_F = 4.5$ nm on peut déduire la valeur de l'énergie d'échange de cet alliage cuivre-nickel par la relation $\xi_F = \sqrt{\hbar D / E_{ex}}$ et on obtient $E_{ex} = 16$ meV. L'énergie d'échange du nickel pur est de 400 meV et sa valeur dans les alliages cuivre-nickel décroît avec la concentration en cuivre de manière linéaire comme la température de Curie et le moment magnétique [17]. Comme elle doit s'annuler pour 45% de nickel et que la composition réelle de l'alliage étudié est de 54% de nickel, on en déduit une énergie d'échange de 65 meV, très supérieure à la valeur obtenue. Ce résultat est sans doute à rapprocher du comportement de type super-paramagnétique (partie 3.3.4) avec des interactions plus faibles que dans les alliages massifs qui eux sont bien ferromagnétiques.

De plus lorsque l'épaisseur de cuivre-nickel est très fine comme ici, on observe une diminution de la température de blocage indiquant encore un affaiblissement des interactions. La figure 3.35 montre par exemple la dépendance en température de l'aimantation de la bicouche $d_F = 5$ nm qui présente une température de blocage de 20 K (au lieu de 70 K pour les épaisseurs plus grandes). Le champ de 100 G est appliqué à 10 K après un refroidissement en champ nul et l'aimantation reste bloquée à zéro. Lorsque la température augmente, les grains magnétiques "dégèlent" et l'aimantation passe par un maximum avant de décroître et de disparaître vers 60 K. A la redescente en température sous 100 G, l'aimantation suit la même courbe réversible jusqu'à 20 K puis continue à augmenter.

Ainsi plus l'épaisseur d_F est grande, plus l'énergie d'échange est importante, ce dont nous n'avons pas tenu compte dans la comparaison avec le modèle théorique. Cette variation des propriétés magnétiques contribue à réduire la gamme d'épaisseur où se situe le creux de l'oscillation de la température de transition car le rapport d_F/ξ_F augmente plus vite que d_F .

Des résultats semblables ont été obtenus par V. Ryazanov sur le même système Nb/CuNi avec un alliage à 57% de nickel et une épaisseur de niobium de 11 nm. Un creux d'environ 0.3 K a également été observé avec un minimum pour une épaisseur $d_F = 5$ nm. Ces résultats ont été interprétés par Fominov [40, 41] donnant une longueur de cohérence $\xi_F = 4.4$ nm et une énergie d'échange $E_{ex} = 11$ meV.

Cette oscillation étant provoquée par le déplacement des états liés d'Andreev dans la couche ferromagnétique, il serait intéressant de mesurer la densité d'états par spectroscopie tunnel à la surface du cuivre-nickel. On s'attend à un déplacement du maximum de densité de l'énergie du gap vers l'énergie nulle, comme l'ont montré Kontos et al. [58] dans des bicouches Nb/PdNi.

3.4.4 Dépendance avec l'épaisseur de niobium

On étudie maintenant la température de transition des bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ en fonction de l'épaisseur de niobium d_S et on obtient les valeurs de la figure 3.36. L'épaisseur de cuivre-nickel choisie $d_F = 10$ nm est équivalente à une épaisseur infinie pour l'effet de proximité car la température critique ne dépend plus de cette épaisseur au-delà de 8 nm (voir figure 3.34). La dépendance obtenue pour les bicouches doit être comparée à celle des couches simples de niobium dont la température de transition diminue également pour les fines épaisseurs. Dans la partie 3.1.3 nous avons ajusté cette dépendance intrinsèque du niobium avec la relation (3.1). En utilisant cette relation $T_{c0}(d_S)$, la résolution des équations de la partie 2.4.1 permet de reproduire les valeurs expérimentales de la dépendance avec l'épaisseur d_S en utilisant les mêmes paramètres que ceux issus de l'ajustement en fonction de l'épaisseur d_F . On a donc une bonne cohérence entre l'étude expérimentale et le modèle théorique.

Pour l'étude des multicouches vanes de spin, une quantité importante est l'épaisseur critique de niobium d_S^c comparée à la longueur de cohérence ξ_S . Afin de déterminer cette valeur dans le cas de l'alliage Cu₅₀Ni₅₀ on fabrique une série de tricouches Cu₅₀Ni₅₀/Nb/Cu₅₀Ni₅₀ d'épaisseur de niobium variable et d'épaisseur de cuivre-nickel égale à 10 nm (comme dans les vanes de spin). Cette structure symétrique étant théoriquement équivalente à une bicouche d'épaisseur de niobium deux fois plus petite, on s'attend à obtenir une épaisseur critique double de celle des bicouches. Les températures de transition mesurées sont indiquées sur la

figure 3.37 et donnent approximativement la valeur $d_S^{cr} = 15$ nm . Là encore on peut comparer ces valeurs à la courbe théorique obtenue toujours avec les mêmes paramètres et la dépendance intrinsèque du niobium $T_{c0}(d_S)$. Mais cette fois-ci on trouve un désaccord entre les deux qui pourrait s'expliquer par une différence des propriétés intrinsèques des matériaux lorsqu'ils sont déposés sur des surfaces différentes. En effet dans les deux études précédentes, l'empilement est le même, alors qu'ici on commence par du cuivre-nickel et on dépose le niobium après. La courbe en trait continu sur la figure correspond à la solution pour des aimantations parallèles et la courbe en trait mixte à la configuration anti-parallèle : l'ordre des transitions est $T_c^P > T_c^{AP}$ avec un écart de 200 mK. Dans les échantillons vannes de spin avec l'alliage Cu₄₀Ni₆₀ (voir figure 3.29), les températures de transition sont très proches des courbes théoriques de la figure 3.37, mais nous n'avons rien observé avec une résolution meilleure que 10 mK.

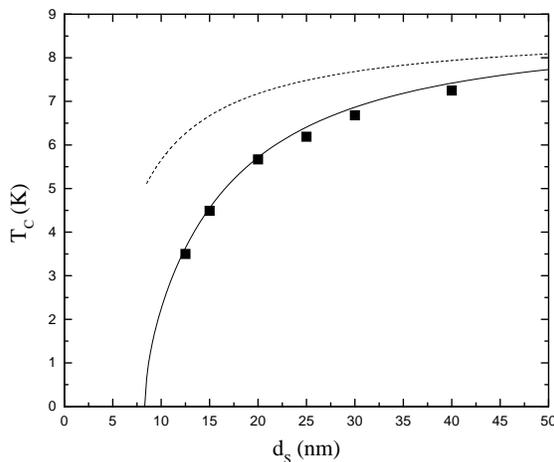


FIG. 3.36 – *Température de transition de bicouches Nb/Cu₅₀Ni₅₀ ($d_S/10$ nm) en fonction de l'épaisseur de niobium. La courbe continue est la solution des équations de la partie 2.4.1 avec les paramètres de la figure 3.34 et la dépendance intrinsèque des films de niobium (en pointillés).*

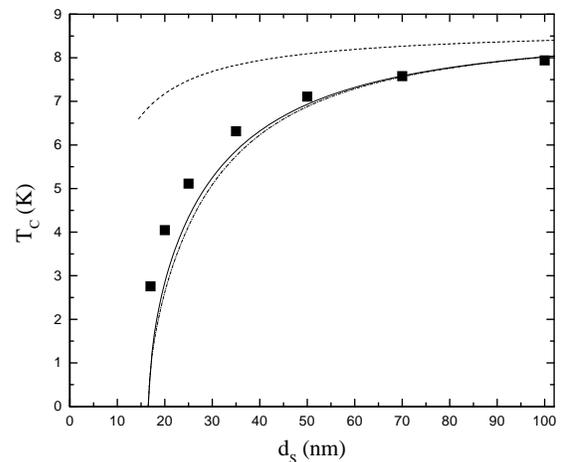


FIG. 3.37 – *Température de transition de tricouches Cu₅₀Ni₅₀/Nb/Cu₅₀Ni₅₀ ($10/d_S/10$ nm) en fonction de l'épaisseur de niobium. La courbe continue est la solution des équations de la partie 2.4.1 avec les paramètres de la figure 3.34 et la dépendance intrinsèque des films de niobium (en pointillés). La courbe en trait mixte est la courbe théorique pour l'état anti-parallèle des aimantations.*

3.4.5 Saturation de l'épaisseur critique

Malgré la réduction de la température de Curie et de l'aimantation (donc a priori de l'énergie d'échange), on constate que l'épaisseur critique de niobium n'a pas changée entre l'alliage Cu₄₀Ni₆₀ et l'alliage Cu₅₀Ni₅₀. Ceci est contraire au comportement auquel on s'attend si les paramètres autres que le ferromagnétisme sont inchangés ce qui devrait être le

cas pour ces deux matériaux très proches. On pourrait invoquer une augmentation de la transparence de l'interface lorsque l'alliage est plus dilué comme cela a été proposé pour le système $V/V_{1-x}Fe_x$ [1].

On pourrait également proposer une explication faisant intervenir un processus de diffusion spin-flip qui viendrait mettre une limite à l'augmentation de la longueur de cohérence de la supraconductivité dans le cuivre-nickel lorsque l'énergie d'échange est réduite. En effet la longueur spin-flip L_{sf} mesurée pour des compositions entre 7 et 23% de nickel indique des valeurs relativement petite entre 23 et 7.5 nm respectivement [52]. Pour ces concentrations la diffusion semble être d'origine spin-orbite car le nickel n'a pas de moment magnétique. Si on extrapole cette dépendance on obtient facilement des longueurs spin-flip de l'ordre de 5 nm pour 50% de nickel. A cela s'ajoutent les moments magnétiques des atomes de nickel (non nuls pour la concentration utilisée ici) dont certains doivent pouvoir fluctuer dans cet alliage proche du super-paramagnétisme et provoquer des diffusions spin-flip. Lorsque la longueur ξ_F reliée à l'énergie d'échange devient supérieure à L_{sf} , on ne gagne plus à réduire l'énergie d'échange, car l'effet de proximité est de toute façon limité par L_{sf} . Les diffusions spin-flip détruisent la cohérence des états d'Andreev sur cette longueur et déterminent la température de transition et l'épaisseur critique de niobium.

Cette saturation de d_S^{cr} a également été constatée dans l'étude menée par Jan Aarts du laboratoire Kamerlingh Onnes à Leiden (Pays-Bas) en comparant les résultats obtenus pour les trois cibles $Cu_{40}Ni_{60}$, $Cu_{50}Ni_{50}$ et $Cu_{55}Ni_{45}$ donnant des alliages de compositions respectives $Cu_{33}Ni_{67}$, $Cu_{41}Ni_{59}$ et $Cu_{48}Ni_{52}$. La même valeur $d_S^{cr} = 14$ nm a été mesurée dans les tricouches $CuNi/Nb/CuNi$ pour les trois compositions ! L'étude de l'alliage $Cu_{48}Ni_{52}$ a été faite avec ma participation au cours d'un séjour d'un mois à Leiden avec Jan Aarts. La description de l'étude réalisée sur les diverses compositions de cuivre-nickel est présentée dans un article [76].

L'impossibilité de réduire l'épaisseur critique du niobium à des valeurs proches de sa longueur de cohérence laisse peu d'espoir de voir l'effet de l'orientation des aimantations dans les multicouches vannes de spin avec le système $Nb/CuNi$. La direction à suivre pour continuer ce travail serait d'utiliser un matériau ferromagnétique d'énergie d'échange très faible et sans problème de diffusion spin-flip de manière à réduire l'épaisseur critique. Notre étude des multicouches s'est arrêtée à ce stade et nous avons alors commencé celle des jonctions Josephson toujours à base de niobium et de cuivre-nickel. Nous verrons que ce problème de diffusion spin-flip peut également expliquer les très faibles valeurs de courant critique que nous avons mesurées dans ces jonctions.

Chapitre 4

Etude des jonctions S/F/S

Bien que la prédiction de la jonction π S/F/S date de 1982 [20], elle n'a été mise en évidence que très récemment par quelques groupes dont le nôtre au cours de cette thèse. La difficulté de ce type d'expérience vient de la très courte longueur de cohérence de la supraconductivité dans les matériaux ferromagnétiques. Pour qu'un courant supraconducteur puisse traverser la barrière, il faut que la jonction ait une épaisseur de quelques nanomètres seulement. Nous avons donc choisi d'étudier des jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb avec un alliage très faiblement ferromagnétique afin d'avoir une longueur de cohérence suffisamment grande pour obtenir un courant supraconducteur au travers d'épaisseurs bien contrôlées. Dans l'étude de l'effet de proximité inverse du chapitre précédent, deux alliages cuivre-nickel ont déjà été utilisés mais nous verrons que cette composition Cu₅₂Ni₄₈ est plus proche de la limite ferromagnétique.

Nous décrirons la méthode utilisée pour mesurer continûment le courant critique, avec en particulier l'utilisation d'un SQUID pour détecter la très faible tension dans l'état normal. Les jonctions étudiées d'épaisseurs comprises entre 15 et 20 nm présentent des comportements différents en température, avec pour certaines une signature de la transition 0- π . Nous étudierons les caractéristiques tension-courant et les figures de diffraction en champ magnétique. Une partie sera ensuite consacrée à l'effet Josephson alternatif avec l'étude des marches de Shapiro et la mesure des oscillations Josephson à proximité de l'état fondamental 0 ou π . Le modèle présenté au chapitre 2 sera utilisé pour interpréter les dépendances du courant critique en fonction de la température et de l'épaisseur. L'écart quantitatif avec le modèle théorique sera interprété en terme de processus de diffusion spin-flip. Ces résultats seront finalement comparés aux expériences récentes réalisées également avec du cuivre-nickel, mais aussi avec du palladium-nickel.

4.1 Fabrication des jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb

4.1.1 Géométrie des échantillons

La longueur de la barrière devant être de l'ordre de quelques fois la longueur de cohérence ξ_F , c'est-à-dire de quelques dizaines de nanomètres seulement, il n'est pas possible de réaliser des jonctions latérales par lithographie. Il est donc nécessaire de fabriquer des jonctions planaires constituées d'un empilement de trois couches, où la longueur de la barrière correspond à l'épaisseur du film de cuivre-nickel. Cette épaisseur doit être contrôlée avec une bonne précision, car on cherche à observer le passage de l'état 0 à l'état π en température, ce qui ne se produit que dans une gamme très limitée d'épaisseurs.

Contrairement aux multicouches du chapitre précédent, la fabrication des jonctions doit être réalisée en salle blanche car elle nécessite cinq étapes de lithographie optique avec quatre dépôts et une gravure. Afin d'obtenir une bonne qualité de l'interface entre le niobium et le cuivre-nickel, les trois couches Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb constituant la jonction sont déposées in situ au cours de la même séquence de pulvérisation. Cette première étape est la plus importante car elle détermine les propriétés de la barrière. Les étapes suivantes permettent de réduire la taille de la jonction et de connecter une électrode à la couche de niobium supérieure après isolation des bords (figure 4.1).

Les différents motifs sont obtenus par lithographie optique à l'aide de cinq niveaux de masques qu'ils faut aligner à chaque étape. Ces masques contiennent 88 puces dont 27 permettent de fabriquer des jonctions carrées de 1 à 30 μm de côté (figure 4.2). Il y a trois configurations de mesure, deux en "quatre fils" en forme de croix où le courant est injecté et récupéré dans le même axe ou à 90°, et une en "deux fils" où seulement deux électrodes partent de la jonction et servent au courant et à la tension. Les jonctions qui ont été retenues pour l'étude sont de dimensions 10 \times 10 μm^2 et les trois configurations de mesure se sont révélées équivalentes.

4.1.2 Description du procédé

Premier niveau : électrodes dans la tricouche Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb

Les échantillons sont fabriqués sur des plaques de 75 mm de diamètre en silicium recouvert d'une couche d'oxyde isolant. Les substrats sont préalablement nettoyés dans du trichloréthylène (5 min), puis de l'acétone (5 min) et enfin rincés avec de l'isopropanol. Les motifs du premier niveau servent d'électrodes et sont faits en lift-off avec de la résine inversible AZ5214E en mode négatif. La résine est couchée par rotation à 4000 tours/min pendant 50 s donnant une épaisseur d'environ 1 μm . La plaque est chauffée à 100°C pendant 1 min pour évaporer les solvants, puis insolée au travers du masque par une lampe UV pendant 2 s. Elle est ensuite chauffée à 125°C pendant 2 min pour provoquer l'inversion, puis insolée sans le masque pendant 8 s. Les zones non-insolées en présence du masque sont dissoutes à l'aide du révélateur AZ351B (dilué à 1/4 avec de l'eau) pendant 45 s. La résine restante est chauffée une dernière fois à 120°C pendant 1 min.

Le groupe de dépôt contient un porte-substrat que l'on peut placer soit sous la cible de niobium, soit sous la cible de cuivre-nickel, soit sous un troisième poste permettant de

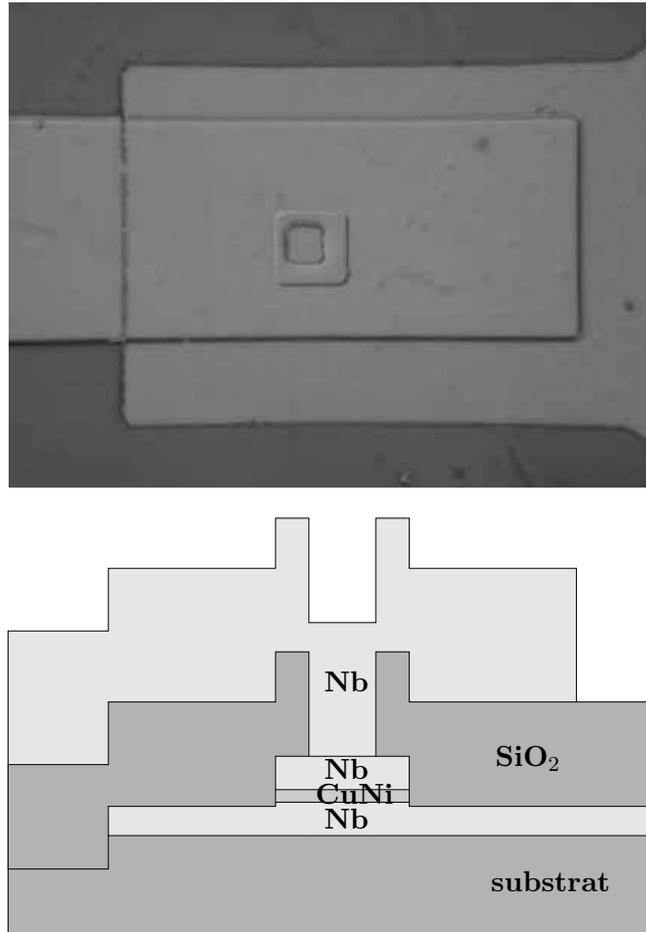


FIG. 4.1 – Photographie au microscope optique et schéma en coupe d'une jonction Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb (100/20/100 nm) en géométrie "deux fils". La tricouche est gravée pour définir la jonction de surface $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ et le niobium inférieur sert d'électrode de base. Une contre-électrode en Nb (450 nm) vient faire le contact avec le niobium supérieur de la tricouche au travers d'une fenêtre de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ dans la couche isolante de SiO₂ (350 nm).

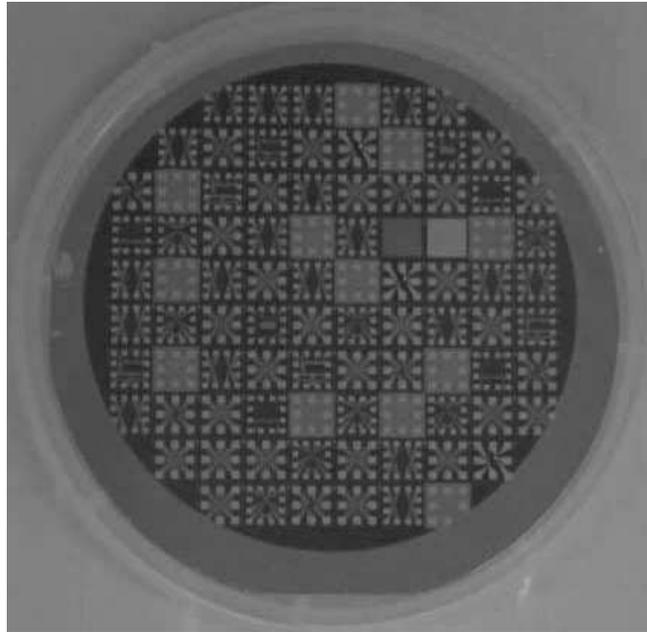


FIG. 4.2 – Photographie d'une plaque en silicium de 75 mm de diamètre sur laquelle ont été fabriquées des jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb. Sur les 88 puces de 6 mm de côté, 27 contiennent des jonctions situées au centre des puces et entourées par les contacts en or.

décaper la surface de la plaque. Les cibles de 10 cm de diamètre sont fixées sur un magnétron, elles sont refroidies par une circulation d'eau et sont reliées à des alimentations continues. La pression résiduelle dans l'enceinte est de l'ordre de 10^{-7} mbar (obtenu par une pompe à diffusion). La pression d'argon utilisée pour la pulvérisation est de 1.64×10^{-2} mbar.

Le dépôt est précédé d'un décapage ionique du substrat par un plasma d'argon pendant 5 min (alimentation radio-fréquence, puissance 50 W). Les cibles subissent ensuite une pré-pulvérisation, avec le substrat laissé sous le poste de décapage afin de ne pas trop chauffer la résine (la cible de niobium à pleine puissance chauffe beaucoup). Compte-tenu du vide résiduel qui n'est pas parfait, les trois couches sont déposées par précaution le plus rapidement possible : le substrat est placé sous le cache du niobium que l'on ouvre pendant 25 s, puis on l'amène immédiatement sous le cache du cuivre-nickel que l'on ouvre 30 s et on refait de la même façon 25 s de niobium. On éteint alors les deux alimentations, on repompe le gaz et on laisse refroidir quelques minutes avant d'ouvrir.

Le substrat est ensuite placé pendant 1/2 heure dans l'acétone pour dissoudre la résine et faire apparaître les motifs de tricouche par lift-off (l'utilisation des ultra-sons n'est pas nécessaire). Lorsque des résidus de film restent accrochés, on peut les enlever en balayant la plaque avec un bâtonnet muni d'un embout en fils de coton (l'adhérence du niobium sur le substrat est très bonne et les motifs restent intacts). L'épaisseur totale est contrôlée avec l' α -step et confirme le dépôt de 20 nm de cuivre-nickel et de deux fois 100 nm de niobium.

Deuxième niveau : gravure de la jonction

La jonction est définie par lithographie d'un plot de résine à la surface de la tricouche Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb puis gravure des deux premières couches sur tout la surface restante. On utilise la résine AZ1512HS en mode positif avec une seule insolation d'une durée de 3.5 s au travers du masque, le reste de la procédure étant semblable au cas de la résine AZ5214E.

Le niobium est attaqué par gravure ionique réactive à l'aide d'un plasma constitué d'un mélange O₂/SF₆ en proportions respectives 1/9 sous une pression totale de 1.5×10^{-2} mbar. Les 100 nm de niobium se gravent en 2 min et laisse une surface de cuivre-nickel relativement rugueuse (nombreux pics à l' α -step et taches au microscope).

La plaque est ensuite placée dans un groupe d'usinage où le cuivre-nickel est gravé par un bombardement d'atomes d'argon. Le faisceau est produit par ionisation du gaz, accélération, puis neutralisation des ions. Il arrive sur la plaque avec un angle d'incidence de 37° par rapport à la normale pour augmenter l'efficacité de la gravure. La rotation continue de la plaque permet d'obtenir une meilleure uniformité. Les 20 nm de cuivre-nickel se gravent en 1 min, mais on continue encore pendant 2 min afin d'être sûr d'obtenir une électrode de niobium sans résidus de cuivre-nickel en surface (ceci pourrait affecter les propriétés supraconductrices).

On serait tenté de faire les deux gravures (niobium supérieur et cuivre-nickel) avec l'usineur pour simplifier la procédure. Cependant le SiO₂ du substrat situé entre les motifs se grave également et il se grave très vite à l'usineur contrairement au groupe de gravure ionique réactive qui est plus sélectif. La procédure utilisée permet donc de réduire la hauteur de la marche SiO₂-Nb que devront franchir les films déposés par la suite. La mesure à l' α -step indique que cette marche fait 240 nm (celle située au niveau de la jonction fait 140 nm).

On retire ensuite à l'acétone le plot de résine qui a protégé le carré de la jonction. La résine se dissout souvent assez mal car elle chauffe beaucoup durant les gravures (on peut l'aider à partir à l'aide du bâtonnet).

Troisième niveau : isolation par du SiO₂

Pour pouvoir déposer une électrode de niobium uniquement en contact avec la partie supérieure de la jonction, on doit protéger tout le tour avec un isolant déposé en lift-off. On lithographie une couche de résine AZ5214E en mode négatif de manière à ne conserver de la résine que sur les zones où doivent s'effectuer les contacts, à savoir la jonction et l'extrémité des électrodes. La taille du plot de résine est inférieure à celle de la jonction de manière à protéger à coup sûr les bords et éviter ainsi les court-circuits.

On pulvérise un film de 350 nm de SiO₂ sur toute la plaque dans un groupe de dépôt différent du précédent. Le lift-off de la résine couverte de SiO₂ est très difficile car les zones à dissoudre sont très petites et ne sont pas connectées. En pratique, si on ne fait rien la résine ne part pas, l'acétone ne parvient pas à traverser le film relativement épais. Il faut frotter énergiquement à l'aide d'un bâtonnet de manière à introduire des défauts et favoriser la pénétration de l'acétone. De cette manière on parvient à retirer les carrés de SiO₂ déposés sur la résine, sans abîmer le reste du film.

Quatrième niveau : contre-électrode en Nb

La partie supérieure de la jonction doit être connectée à une autre électrode par une bande de niobium déposée en lift-off en utilisant la résine AZ5214E en mode négatif. Avant le dépôt, la surface du niobium de la tricouche au niveau des fenêtres dans le SiO_2 est décapée par un plasma d'argon de 35 W pendant 10 min pour enlever la couche d'oxyde qui pourrait faire un lien faible en série avec la jonction. Le niobium est ensuite pulvérisé dans les mêmes conditions que pour la tricouche avec un temps de dépôt de 2 min (quatre fois 30 s séparées par 30 s d'attente pour laisser refroidir la plaque). L'épaisseur obtenue est de 450 nm (mesurée à l' α -step) et permet de franchir la marche de SiO_2 située sur la jonction.

Cinquième niveau : dépôt de contacts Ti/Au

Chaque extrémité d'électrode en niobium possède également une fenêtre dans la couche d'isolant dans laquelle on dépose une bicouche Ti/Au par lift-off en utilisant la résine AZ5214E en mode positif (le masque est négatif). La couche de titane donne une bonne adhérence de la couche d'or ce qui permet par la suite de venir souder des fils d'or avec une micro-soudeuse à ultra-sons.

4.1.3 Caractérisation du niobium

Les paramètres de pulvérisation du niobium sont optimisés pour obtenir de bonnes propriétés supraconductrices. Un courant de 2 A permet d'atteindre une vitesse de pulvérisation de 40 Å/s dans des conditions très stables, après un pré-pulvérisation de 3 min à 0.7 A puis de 5 min à 2 A.

Un film de niobium de 60 nm d'épaisseur lithographié sous forme d'un fil de 20 μm de large a les caractéristiques suivantes : température de transition $T_c = 8.5$ K, résistivité résiduelle $\rho_0 = 8 \mu\Omega \text{ cm}$, libre parcours moyen élastique $l_e = 4.7$ nm, coefficient de diffusion $D = 4.5 \text{ cm}^2/\text{s}$. Ce niobium est donc de meilleure qualité que celui utilisé dans le chapitre précédent pour l'étude de l'effet de proximité inverse (voir la partie 3.1.3).

La pente de champ critique perpendiculaire mesurée entre 8.5 et 6.5 K est de 0.32 T/K, donnant un coefficient de Ginzburg-Landau $\xi_{GL} = 11$ nm. La longueur de cohérence en régime diffusif calculée selon (3.6) est alors $\xi_S = 7.5$ nm, proche de la valeur calculée à partir du libre parcours moyen et de la relation (3.4) qui vaut 7.8 nm.

La densité de courant critique du fil peut être ajustée près de T_c par la relation $J_c(T) = J_{cGL}(1 - T/T_c)^{3/2}$ de la théorie de Ginzburg-Landau pour les films minces (dans lesquels le paramètre d'ordre est uniforme sur l'épaisseur du film). On obtient un coefficient $J_{cGL} = 1.5 \times 10^{12} \text{ A/m}^2$ en bon accord avec la formule théorique où intervient la résistivité [44]. La valeur du courant critique à 6.5 K est de 100 mA pour une section $S = 1.2 \mu\text{m}^2$.

4.1.4 Caractérisation du cuivre-nickel

Etalonnage de l'épaisseur

La vitesse de dépôt du cuivre-nickel au centre du substrat est de 7 Å/s pour un courant de 100 mA sur la cible (le temps de pré-pulvérisation est de 5 min sous 100 mA). Comme le

cuivre-nickel constitue la barrière de la jonction, son épaisseur doit être connue précisément. Plusieurs jonctions étant fabriquées en même temps sur une même plaque, il faut calibrer l'épaisseur à chaque emplacement.

Une première technique est d'utiliser la réflectivité des rayons X sous incidence rasante (explications dans la partie 4.1) pour mesurer l'épaisseur d'un film de cuivre-nickel en quelques points le long d'un diamètre de la plaque. L'épaisseur au centre est de 40 nm pour 1 min de dépôt et le profil d'épaisseur a un maximum qui n'est pas au centre : cible et substrat sont légèrement décentrés.

La deuxième technique est de mesurer avec l' α -step la hauteur de plots obtenus par dépôt puis lift-off. Cette mesure étant plus rapide, on peut mesurer l'épaisseur en tout point et obtenir la cartographie complète de la vitesse de dépôt sur toute la plaque. L'épaisseur au centre est de 200 nm pour 5 min de dépôt et descend jusqu'à 130 nm sur les bords comme l'indique la figure 4.3.

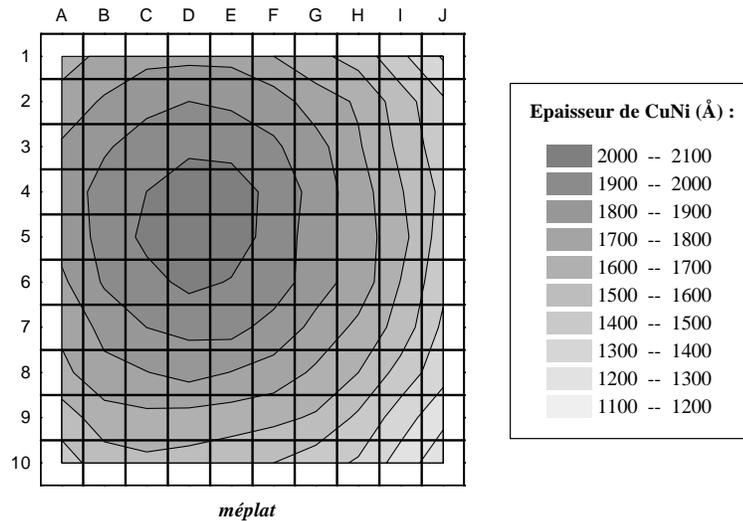


FIG. 4.3 – Cartographie de l'épaisseur d'une couche de cuivre-nickel pour un temps de dépôt de 5 min (le méplat est parallèle à la face avant du groupe lorsque le substrat est sous la cible de niobium). Le quadrillage correspond aux puces du masque.

Les jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb qui sont présentées dans la suite sont issues de deux plaques ("Galibier" et "Madeleine") avec des temps de dépôt de cuivre-nickel respectivement de 30 s et de 35 s donnant des épaisseurs au centre de 20 nm et 23 nm. Leur position angulaire dans le groupe de dépôt étant différente de celle de l'étalonnage, leur profil d'épaisseur est obtenu par rotation à partir du profil mesuré. Cependant la position de la première plaque ("Galibier") dans le groupe de dépôt n'a pas été notée... Les différences de comportement entre les jonctions mesurées permettent néanmoins d'estimer le gradient d'épaisseur et de retrouver ainsi la position angulaire probable de la plaque pendant le dépôt (pratiquement la même position que la plaque "Madeleine").

Mesure de la composition

La composition exacte de l'alliage a été mesurée par Rutherford Back Scattering sur deux films d'épaisseurs 5 et 10 nm avec la collaboration de Denis Jalabert (voir les explications dans la partie 3.3.2). L'ajustement des spectres de la figure 4.4 donne une concentration de 48% de nickel, nous utiliserons donc la notation $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ pour cet alliage. Cette concentration est légèrement inférieure à celle de la cible qui a été commandée à 50% de nickel et reçue à 52% de nickel (selon l'analyse chimique du fournisseur).

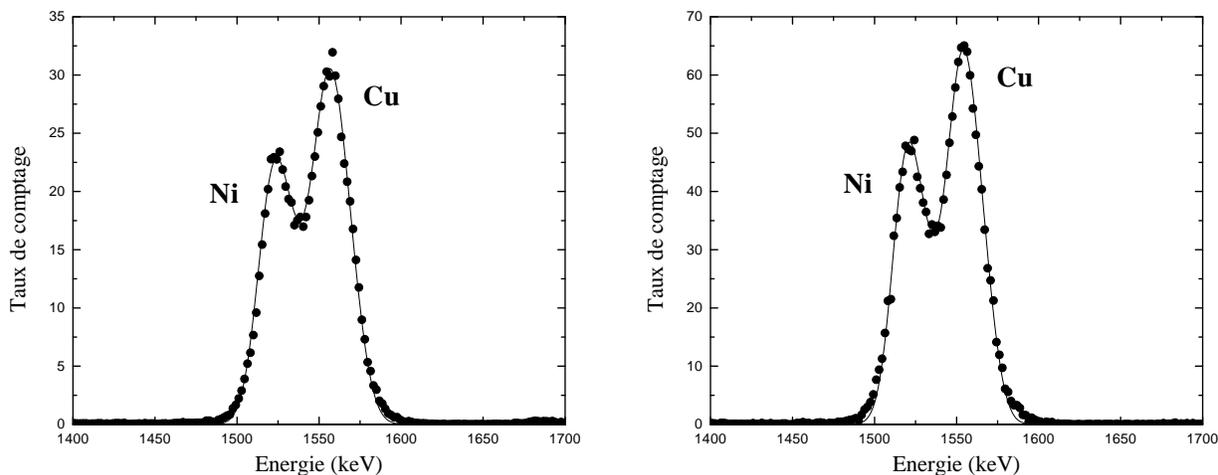


FIG. 4.4 – Spectres obtenus par Rutherford Back Scattering (points) sur les couches de cuivre-nickel de 5 nm (à gauche) et de 10 nm (à droite). L'ajustement des spectres (trait continu) donne la composition $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ (mesure faite par D. Jalabert).

Propriétés électriques

La résistivité résiduelle est de l'ordre de $\rho_0 \approx 50 \mu\Omega \text{ cm}$ comme pour l'alliage utilisé dans l'étude des bicouches (voir partie 3.4.2). Cette résistivité importante reflète le désordre dû à la position aléatoire des atomes de cuivre et de nickel dans l'alliage. En utilisant les paramètres du cuivre, on en déduit un libre parcours moyen élastique $l_e \approx 1 \text{ nm}$ et un coefficient de diffusion $D \approx 5 \text{ cm}^2/\text{s}$.

Propriétés magnétiques

On étudie l'aimantation macroscopique de films de cuivre-nickel de différentes épaisseurs et de surfaces entre 20 et 30 mm^2 avec un magnétomètre à SQUID permettant de mesurer des moments magnétiques jusqu'à 10^{-7} emu .

Pour une couche assez épaisse de 200 nm déposée sur une plaque de silicium, l'aimantation en fonction du champ à 5 K est représentée sur la figure 4.5 après soustraction de la pente diamagnétique du silicium. Elle ne sature pas même sous un champ fort de 1 T et disparaît complètement lorsque l'on revient en champ nul. La courbe est parfaitement réversible, il

n'y a aucune aimantation rémanente dans la limite de la sensibilité de l'appareil, qui donne une valeur limite $M(0) < 0.3 \text{ emu/cm}^3$. L'aimantation mesurée sous un champ de 100 G et 200 G est également réversible entre la montée et la descente en température et disparaît vers 30 K.

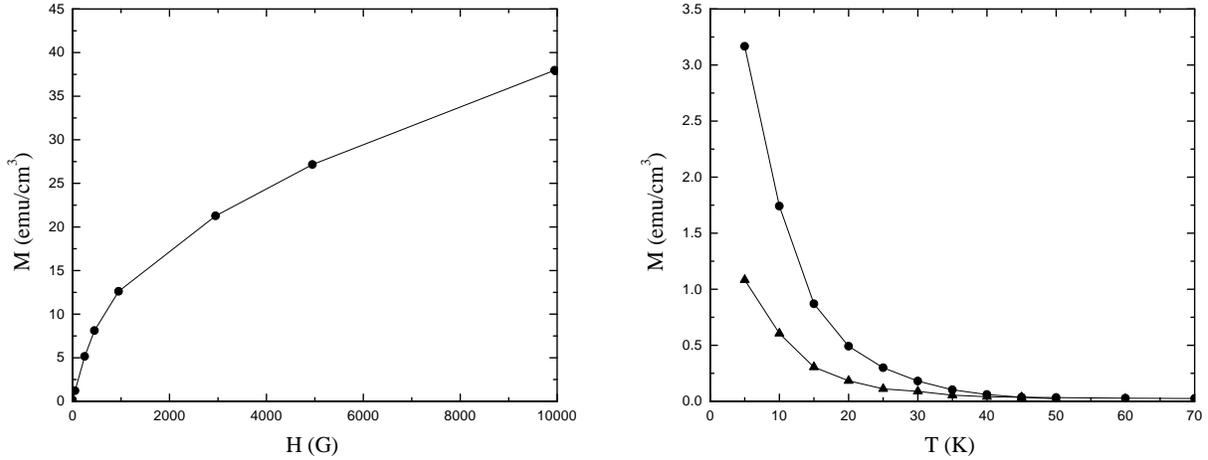


FIG. 4.5 – Aimantation d'une couche de $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ de 200 nm d'épaisseur. A gauche : en fonction du champ à 5 K. A droite : en fonction de la température sous 200 G (rond) et 100 G (triangle).

La figure 4.6 montre la dépendance en température sous 200 G pour une couche plus fine de 40 nm d'épaisseur. L'aimantation décroît également très vite avec la température et elle entièrement réversible en fonction du champ magnétique.

Pour être dans des conditions plus proches de la jonction, on s'intéresse maintenant à une tricouche Nb/ $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ /Nb avec 20 nm de cuivre-nickel et deux fois 16 nm de niobium. On réduit l'épaisseur de niobium par rapport aux vraies jonctions pour abaisser la température critique par effet de proximité inverse et pouvoir descendre jusqu'à 6 K sans être gêné par la transition supraconductrice. Jusqu'à cette température, l'aimantation est complètement réversible même après application d'un champ magnétique de 5 T. La figure 4.7 montre que la température caractéristique à laquelle l'aimantation disparaît sous un champ de 100 G et de 200 G est un peu plus élevée que dans les films seuls. Ceci indique que la structure de l'alliage déposé sur le niobium est légèrement différente de celle de l'alliage directement sur le substrat.

Discussion de l'état magnétique

Le ferromagnétisme des alliages massifs mesurés par Ahern et al. [2] disparaît en-dessous de 45% de nickel (figure 3.18). Les propriétés de l'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ massif ont été mesurées par Hicks et al. [51]. Ils trouvent un comportement ferromagnétique avec une température de Curie $T_{Curie} = 23 \text{ K}$ et un moment $\mu = 0.041 \mu_B/\text{atome}$ correspondant à une aimantation à saturation $M_{sat} = 34 \text{ emu/cm}^3$. Ces valeurs sont assez proches de celles obtenues dans les films, puisque la température caractéristique est d'environ 30 K dans les différents

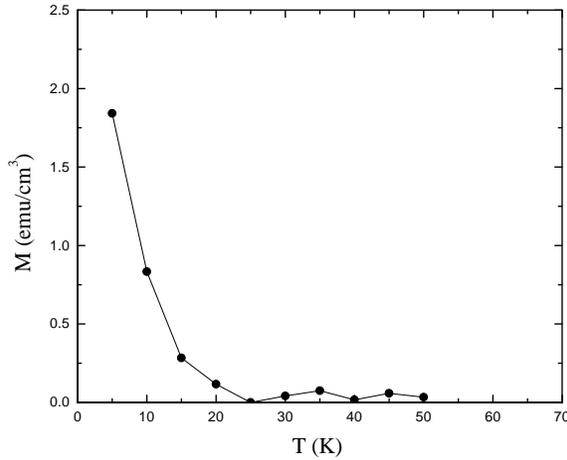


FIG. 4.6 – Aimantation d'une couche de $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ de 40 nm d'épaisseur en fonction de la température sous 200 G.

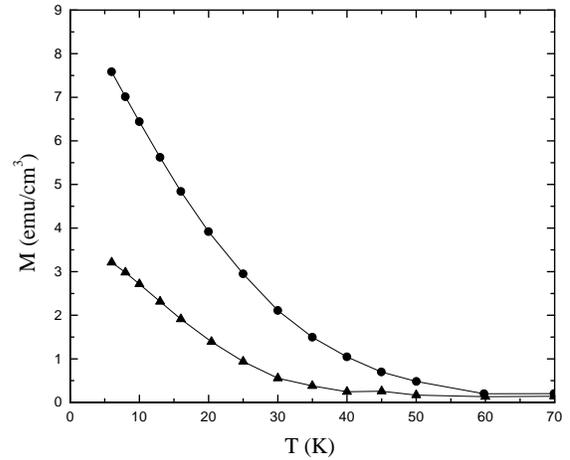


FIG. 4.7 – Aimantation d'une tricouche de $\text{Nb}/\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}/\text{Nb}$ (16/20/16 nm) en fonction de la température sous 200 G (rond) et 100 G (triangle).

échantillons mesurés et que l'aimantation à saturation estimée d'après la dépendance en champ est de l'ordre de $M_{sat} = 50 \text{ emu/cm}^3$.

Cependant le caractère réversible de l'aimantation et sa difficulté à saturer font plutôt penser à un comportement super-paramagnétique. L'aimantation est beaucoup plus forte que si l'alliage était simplement paramagnétique, ce qui indique que les moments magnétiques ont des interactions importantes. L'alliage $\text{Cu}_{46}\text{Ni}_{54}$ étudié dans le précédent chapitre (partie 3.3.4) présente également un domaine de température où l'aimantation est réversible, mais de l'hystérésis apparaît en-dessous d'une température de blocage de 70 K. Plus la concentration en nickel est élevée, plus les régions magnétiques sont grandes et l'énergie thermique nécessaire pour faire fluctuer ces moments géants est importante. L'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ utilisé ici est très faiblement ferromagnétique et les régions magnétiques sont probablement relativement petites, ce qui explique pourquoi la température de blocage est très basse (inférieure à 5 K).

La description des jonctions S/F/S présentée dans les chapitres 1 et 2 est basée sur l'existence d'un champ d'échange qui déphase les états liés d'Andreev. Malgré l'absence d'aimantation rémanente macroscopique, l'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ super-paramagnétique possède une énergie d'échange qui différencie les électrons de spin up de ceux de spins down dans la direction locale de l'aimantation. Si ces fluctuations spatiales se font sur des distances supérieures à la taille des paires et à l'épaisseur de la barrière, chaque paire d'Andreev voit une seule direction d'aimantation et la description théorique faite dans le cas uniforme doit pouvoir s'appliquer.

4.2 Dispositif de mesure des jonctions

4.2.1 Connexions dans le cryostat

La puce carrée de 6 mm de côté sur laquelle se trouve la jonction à mesurer est collée sur une plaque de cuivre où se trouve également un relais électrique avec quatre pistes en cuivre. Les quatre électrodes de la jonction sont connectées à ce relais par des fils d'or que l'on soude par ultra-sons sur les plots d'or carrés situés à l'extrémité des électrodes. La plaque de cuivre porte-échantillon est vissée au bout d'une tige de cuivre reliée à la chambre de mélange d'un cryostat à dilution. Les deux fils de tension partent du relais et sont connectés à la bobine d'entrée d'un dispositif SQUID commercial avec en série une résistance de $40\text{ m}\Omega$ appelée résistance de référence.

Une des prises permet de faire sortir du cryostat les deux fils de courant de l'échantillon, les deux fils de chauffage du porte-échantillon et deux autres fils connectés à la résistance de référence. Une autre prise permet de relier le dispositif SQUID à son électronique qui se trouve hors du cryostat. La température de l'échantillon est mesurée avec une résistance en germanium dans la gamme 0.5–10 K. Une bobine de champ magnétique de 88 G/A est fixée autour du calorimètre (non blindé) à la hauteur de l'échantillon.

4.2.2 Picovoltmètre à SQUID

Principe de la mesure

La tension qui apparaît aux bornes de la jonction au-delà du courant critique est de quelques nanovolts que l'on mesure avec un "picovoltmètre à SQUID". La technique consiste à dériver une petite fraction du courant au travers d'un circuit nettement plus résistif que la jonction et qui contient la bobine d'entrée d'un SQUID (figure 4.8). Le courant dans la jonction n'est pas modifié car sa résistance dans l'état normal est de seulement $0.2\text{ m}\Omega$ alors que celle de la dérivation est d'environ $80\text{ m}\Omega$. Le courant dérivé est le rapport de la tension à mesurer aux bornes de la jonction sur la résistance de la dérivation.

Ce courant dérivé traverse la bobine d'entrée du SQUID et produit un flux au travers du SQUID lui-même modifiant ainsi son courant critique. Un dispositif électronique permet en fait de maintenir constant ce courant critique en compensant le flux produit par la bobine d'entrée à l'aide d'une seconde bobine couplée au SQUID (figure 4.9). Le courant de compensation est proportionnel au courant dérivé et donc à la tension à mesurer. Le dispositif électronique indique 1 V lorsqu'il compense un courant de $2\text{ }\mu\text{A}$ dans la bobine d'entrée. Si la résistance de la dérivation fait $80\text{ m}\Omega$, la tension aux bornes de la jonction est alors de 160 nV.

La résistance du circuit de détection est mesurée précisément en injectant un courant par deux fils connectés sur la résistance de référence. Ce courant se divise en deux composantes, l'une circulant dans la résistance de référence R_{ref} , l'autre dans la branche contenant la jonction et la bobine d'entrée du SQUID de résistance R_{fil} . Connaissant le courant total et le courant mesuré par le SQUID, on peut déterminer le rapport des résistances des deux branches. Sachant que $R_{ref} = 40\text{ m}\Omega$ à 4.2 K, on obtient la résistance totale du circuit $R_{tot} = R_{ref} + R_{fil}$ de l'ordre de 70 à $80\text{ m}\Omega$. Sa valeur doit être mesurée pour chaque

échantillon car elle fait intervenir les résistances des soudures et des fils d'or qui changent légèrement à chaque fois.

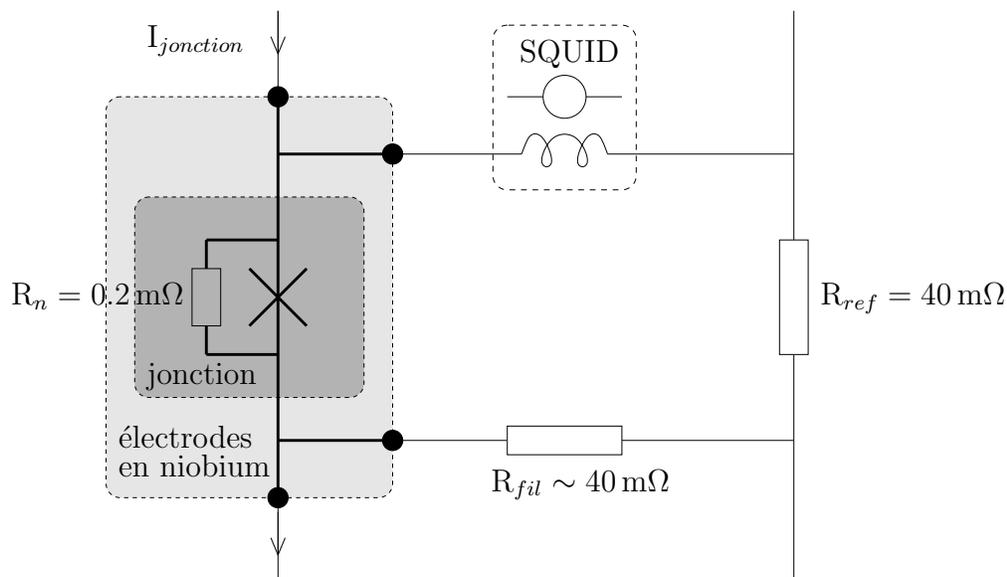


FIG. 4.8 – Schéma de principe du picovoltmètre à SQUID. Au-delà du courant critique de la jonction, un très faible courant est dérivé dans la bobine d'entrée du SQUID, ce qui permet de mesurer la tension.

Remarques sur l'utilisation du SQUID

Le SQUID shunté est polarisé en courant au milieu de la transition résistive, là où les variations de flux produisent le maximum de variation de la tension. Le signal utilisé pour l'asservissement est la réponse en tension à une modulation de flux haute-fréquence à 500 kHz injectée à l'aide de la seconde bobine appelée ainsi "bobine de modulation". La plus grande sensibilité est obtenue lorsque la dérivée seconde de la tension $V(\phi)$ est maximum. L'asservissement se fait ainsi autour de la valeur qui annule la réponse à la fréquence de la modulation (figure 4.10).

Le courant critique du SQUID étant périodique en flux, il ne peut pas distinguer deux valeurs qui diffèrent d'un nombre entier de quantum de flux $\Phi_0 = h/2e$, mais grâce à l'asservissement on peut mesurer des flux beaucoup plus grands que Φ_0 . Cependant on ne peut pas mesurer la valeur absolue du flux, seulement ses variations.

Si l'environnement électromagnétique contient un bruit important ou à haute fréquence, il peut se produire des "sauts de flux" dans le signal d'asservissement, c'est-à-dire qu'il rajoute un ou plusieurs Φ_0 en essayant de suivre le bruit. Ceci est surtout gênant lorsqu'on mesure un signal continu, mais peut aussi perturber la mesure d'un signal alternatif si ces sauts se produisent trop souvent. Il est donc nécessaire de bien filtrer tous les fils qui entrent dans le cryostat et particulièrement ceux qui sont en contact électrique direct avec le SQUID.

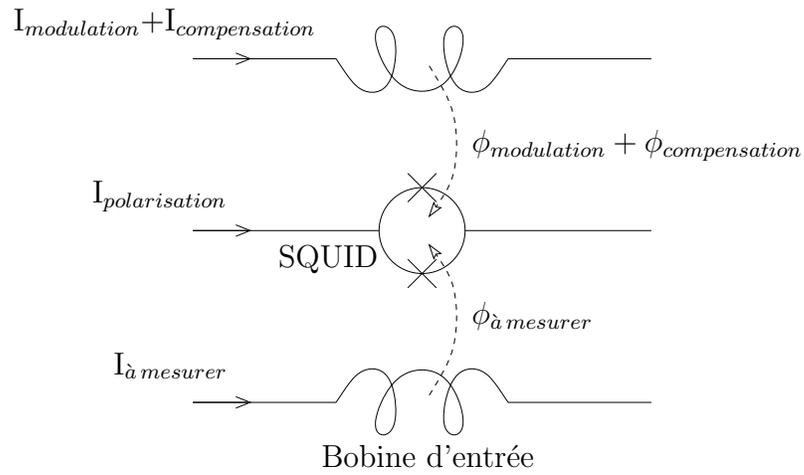


FIG. 4.9 – Schéma de principe du fonctionnement d'un SQUID. Le flux produit par le courant à mesurer est compensé grâce à une seconde bobine. L'asservissement utilise la réponse à une modulation de flux.

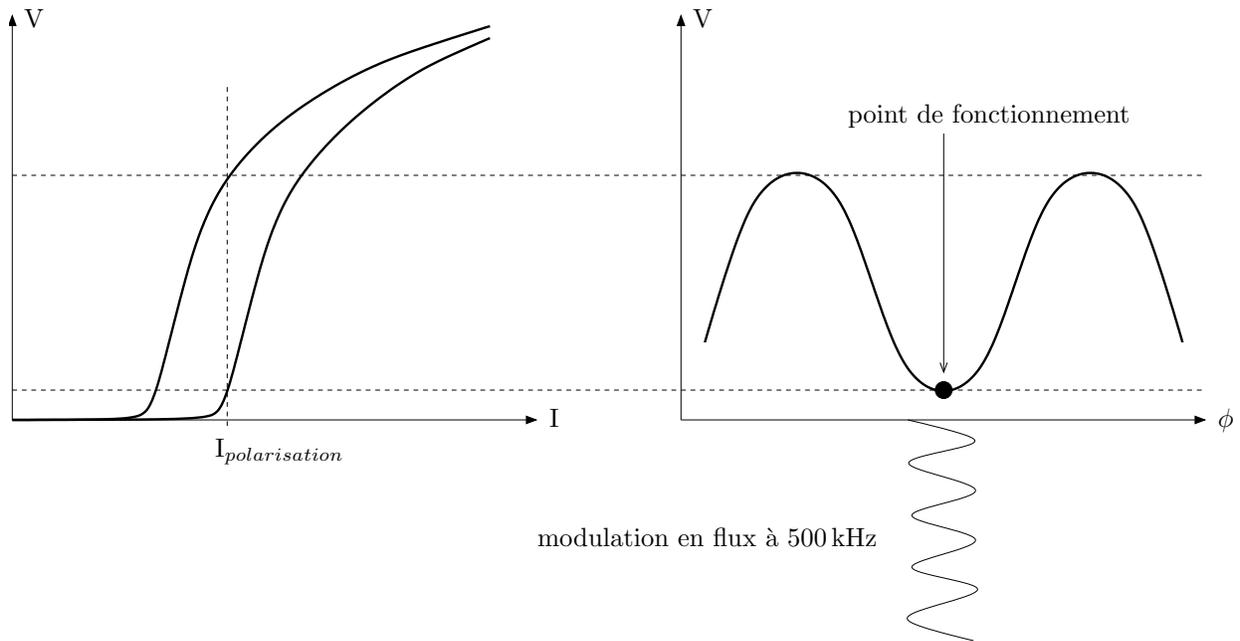


FIG. 4.10 – Schéma de la caractéristique tension-courant du SQUID pour les positions limites en fonction du flux. Le SQUID est polarisé en courant au milieu de sa transition. La tension est une fonction périodique du flux. L'asservissement cherche à annuler la réponse à la fréquence de la modulation de flux à 500 kHz.

4.2.3 Mesure du courant critique

Dans les jonctions Josephson S/I/S avec une barrière tunnel, la caractéristique tension-courant présente généralement de l'hystérésis à cause de la grande résistance et de la capacité. Dans les jonctions en forme de microponts, l'hystérésis est dû au chauffage de la constriction dès que le courant critique est atteint. Pour mesurer le courant critique, il est nécessaire dans ces conditions de faire des rampes en courant jusqu'à la transition et de revenir à zéro après chaque mesure.

Dans les jonctions planaires S/F/S étudiées ici, la résistance dans l'état normal est très faible, de sorte qu'elles n'ont pas d'hystérésis, ni intrinsèque, ni dû au chauffage. Il est donc possible d'osciller de façon réversible autour du courant critique et de maintenir continûment le courant à cette valeur par une technique d'asservissement. On peut ainsi mesurer continûment les variations du courant critique en fonction de la température et du champ magnétique.

La régulation du courant se fait à partir de la tension qui apparaît aux bornes de la jonction. La tension doit être détectée en alternatif pour être insensible aux dérives continues provoquées par les changements de température ou de champ (ainsi qu'aux "sauts de flux" du SQUID qui se produisent par moment). On ajoute donc au courant continu une petite composante alternative d'amplitude $1 \mu\text{A}$ à la fréquence de 88 Hz. Lorsque le courant continu atteint le courant critique, il apparaît une tension alternative qui est détectée par le SQUID. On veut que cette tension soit la plus faible possible pour que le courant continu soit le plus proche possible du courant critique : on choisit une valeur de 0.1 nV qui correspond à un signal de sortie du SQUID de 0.5 mV.

Pour réguler le courant autour de ce point de fonctionnement (figure 4.11), le signal du SQUID est d'abord envoyé sur une détection synchrone en phase avec la source de courant alternatif et qui permet de :

- transformer la tension alternative en tension continue,
- introduire un décalage de 0.5 mV pour réguler autour du point de fonctionnement,
- inverser le signe pour que l'apparition de la tension entraîne la réduction du courant,
- amplifier le signal pour accroître la rapidité de l'asservissement.

Ce signal d'erreur est ensuite envoyé à l'entrée de la source de courant continu qui alimente la jonction. La valeur du courant est le résultat d'une régulation proportionnelle-intégrale sur le signal d'erreur fourni par la détection synchrone. En ajustant les paramètres de régulation, on obtient un courant continu stable avec des fluctuations inférieures à 1%. La mesure du courant critique peut ainsi se faire à tout instant au cours des balayages en température et en champ magnétique.

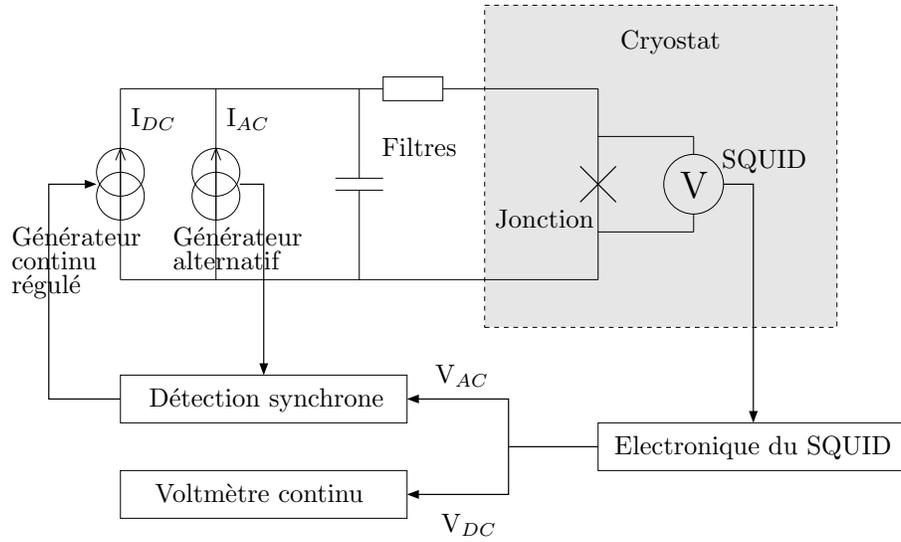


FIG. 4.11 – Dispositif pour mesurer le courant critique des jonctions. La réponse au courant alternatif est transformée par la détection synchrone en signal d'erreur pour la régulation du courant continu à la valeur du courant critique.

4.3 Transition $0 - \pi$ en température

4.3.1 Caractéristique tension-courant

Nous allons commencer par étudier les propriétés d'une jonction dont l'épaisseur de cuivre-nickel est environ 18 nm. Sa caractéristique tension-courant représentée sur la figure 4.12 est mesurée en injectant uniquement un courant continu et en mesurant la réponse en tension avec le SQUID. Cette caractéristique suit la relation :

$$V(I) = R_n \sqrt{I^2 - I_c^2} \quad (4.1)$$

avec un courant critique $I_c = 207 \mu\text{A}$ et une résistance $R_n = 1.61 \times 10^{-4} \Omega$. Cette dépendance correspond au modèle RSJ (Resistively Shunted Junction) pour des jonctions Josephson de faible résistance ou de faible capacité ($\beta = 2\pi I_c R_n^2 C / \Phi_0 \ll 1$) dont les oscillations Josephson sont suramorties (voir Likharev [62]). Sur l'agrandissement de la figure 4.12, on remarque qu'une très faible tension apparaît juste avant le courant critique. Cet élargissement est de l'ordre de $20 \mu\text{A}$, très supérieur au bruit intrinsèque d'origine thermique qui est inférieur à $1 \mu\text{A}$ entre 0 et 10 K. Il est donc probablement dû au bruit électromagnétique en partie amené par les fils connectés à la jonction.

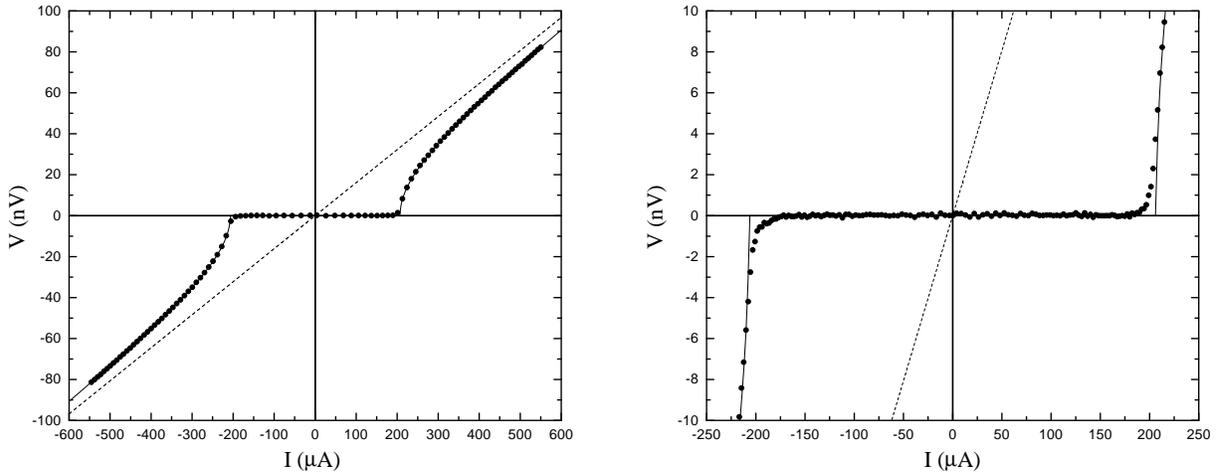


FIG. 4.12 – Jonction $G-C_4$ ($d_F = 18 \text{ nm}$). Caractéristique tension-courant à 3.47 K ajustée par le modèle RSJ en trait continu. A droite : détail au voisinage du courant critique.

4.3.2 Annulation du courant critique à T^*

Le courant critique est mesuré continûment en fonction de la température en utilisant la technique de régulation présentée dans la partie 4.2.3 et on obtient la courbe de la figure 4.13. Le courant critique apparaît dès la température de transition des électrodes à $T_c = 8.7 \text{ K}$, passe par un maximum à 6.3 K , redescend ensuite pour s'annuler à $T^* = 4.3 \text{ K}$, avant de réaugmenter avec une tendance à saturer en-dessous de 1 K (la dilution ne parvient

pas à descendre en-dessous de 0.3 K probablement à cause d'un manque de mélange). Ce comportement est tout à fait inhabituel par rapport à une jonction Josephson classique dont le courant critique ne fait qu'augmenter en diminuant la température.

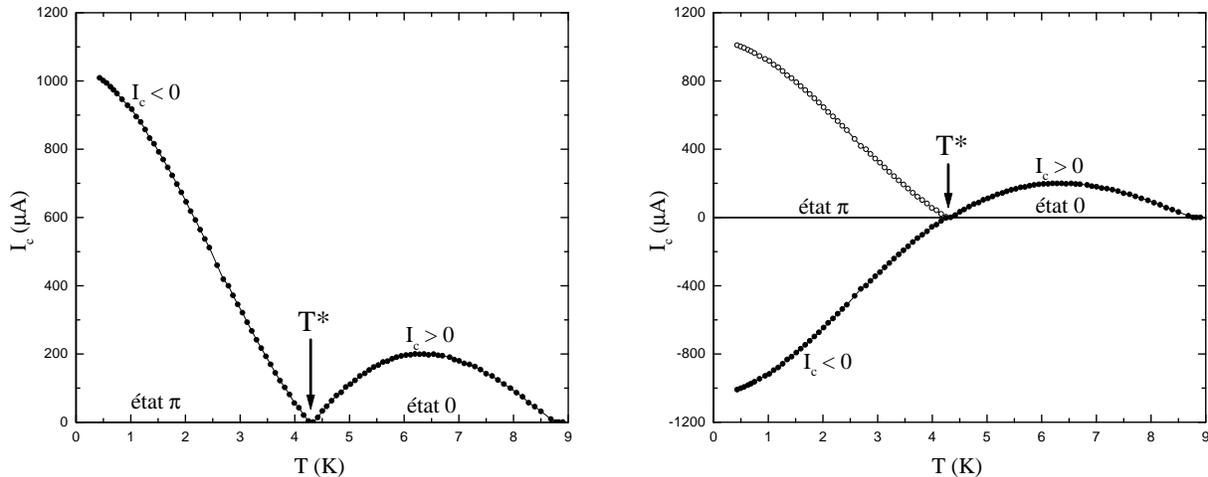


FIG. 4.13 – Jonction $G-C_4$ ($d_F = 18$ nm). Courant critique $|I_c|$ en fonction de la température avec une annulation à $T^* = 4.3$ K. Le changement de signe à la transition 0- π est mis en évidence en traçant $-|I_c|$ dans la région $T < T^*$.

Si on trace la courbe symétrique du côté négatif, il semble concevable que l'annulation à T^* observé dans cette jonction corresponde en fait à un changement de signe du courant critique, car on ne mesure en pratique que la valeur absolue. Nous avons en effet montré dans la partie théorique 2.3 que ce phénomène est possible dans les jonctions S/F/S grâce à un mécanisme que nous allons rappeler brièvement. Le déplacement des états liés d'Andreev par l'énergie d'échange E_{ex} donne un courant critique négatif lorsque le rapport E_{ex}/E_{Th} est suffisamment grand ($E_{Th} = \hbar D/d_F^2$ est l'énergie de Thouless). De plus lorsque l'épaisseur d_F de la jonction correspond à un courant critique négatif à température nulle, mais que d_F est proche de la valeur limite, le signe peut redevenir positif en augmentant la température. Ce phénomène est dû à l'élargissement de la surface de Fermi qui supprime les états d'Andreev de plus faible énergie, ceux qui sont responsables du supercourant négatif. Ce mécanisme peut agir seul ou être favorisé par une dépendance en température de l'énergie d'échange. Expérimentalement un courant critique est toujours positif puisque son signe est imposé par la source, mais pour simplifier nous confondrons dans toute la suite le terme "courant critique" et le terme "coefficient de la relation courant-phase". Nous parlerons ainsi de courant critique négatif en-dessous de la température T^* comme indiqué sur la figure 4.13.

Par ailleurs l'état fondamental d'une jonction de courant critique négatif a une différence de phase $\phi_{gs} = \pi$. En l'absence de courant, la jonction présentée sur la figure 4.13 est donc dans l'état π en-dessous de T^* et dans l'état 0 au-dessus. Cette annulation du courant critique à T^* permettant de passer de l'état 0 à l'état π avec la température constitue un résultat important de ce travail. Il confirme les expériences récentes faites par Ryazanov et al. [78] avec des jonctions similaires Nb/Cu₄₈Ni₅₂/Nb mais dont l'alliage est plus concentré

en nickel. Nous comparerons leurs résultats et les nôtres à la fin de ce chapitre (partie 4.7.4). Par ailleurs Ryazanov et al. [79] ont étudié les figures d'interférences de réseaux frustrés contenant cinq jonctions permettant une mesure directe du signe du courant critique. Ils ont obtenu un signe négatif en-dessous de T^* et un signe positif au-dessus, conformément à l'analyse que nous avons faite.

4.3.3 Figures en champ magnétique

Lorsqu'on mesure le courant critique d'une jonction Josephson en fonction du champ magnétique appliqué dans le plan de la jonction, on obtient des oscillations périodiques d'amplitudes décroissantes. Le potentiel vecteur \vec{A} induit un gradient de phase au travers de la jonction qui varie dans la direction y contenue dans le plan de la jonction. Il en résulte une modulation spatiale de la densité de courant Josephson $j_s(y) = j_c \sin(\phi + 2\pi B y l / \Phi_0)$ où $l = d + 2\lambda_L$ est la longueur effective sur laquelle pénètre le champ magnétique compte tenu de l'épaisseur d de la jonction et de la longueur de pénétration $\lambda_L(T)$ du supraconducteur qui diverge à T_c . L'intégrale de cette densité pour $0 < y < w$ (où w est la largeur de la jonction) donne un courant critique $I_c(B) = I_c |\text{sinc}(\pi \Phi / \Phi_0)|$ qui s'annule à chaque fois que le flux dans la jonction $\Phi = B w l$ est égal à nombre entier de quantum de flux $\Phi_0 = h/2e$. Cette description est valable tant que la densité de courant critique par unité de surface j_c est trop faible pour écranter le champ magnétique extérieur, autrement dit lorsque la longueur Josephson $\lambda_J = \sqrt{\Phi_0 / 2\pi l j_c \mu_0}$ est supérieure à la largeur w de la jonction.

La figure 4.14 montre la dépendance en champ du courant critique de la même jonction que précédemment mesurée à 0.5 K. La figure obtenue est légèrement décalée par rapport au zéro de champ et n'est pas symétrique pour des raisons sur lesquelles nous reviendrons dans la suite. Elle ressemble cependant à la courbe théorique représentée en trait continu dont on a ajusté la position et la longueur effective $l = 140$ nm pour reproduire le pic central. Cette valeur correspond à une longueur de pénétration du champ dans le niobium $\lambda_L = 60$ nm (en limite sale λ_L est augmentée par rapport à la valeur de 40 nm du niobium en limite propre). On obtient une courbe proche du sinus cardinal car la longueur Josephson $\lambda_J = 14 \mu\text{m}$ (calculée avec un courant critique de 1 mA) est supérieure à la largeur $w = 10 \mu\text{m}$ de la jonction. Ce type de courbe est parfois appelé *figure de diffraction de Fraunhofer* car elle ressemble à celle obtenue en optique en observant la lumière transmise au travers d'une fente très fine. Dans ce cas c'est l'angle d'observation qui induit un gradient de phase des ondes électromagnétiques diffusées par la fente. Celle-ci étant de taille finie, l'intégrale donne un sinus cardinal comme pour la jonction. La différence entre la figure de diffraction du courant critique et celle de la lumière vient du fait qu'on mesure la valeur absolue de l'amplitude du supercourant alors qu'on mesure le carré de l'amplitude de l'onde électromagnétique.

Cette figure de diffraction conserve sa forme et sa position lorsqu'on change la température comme le montre la figure 4.14 (la période des oscillations à 6 K est toutefois légèrement inférieure car la longueur de pénétration λ_L augmente avec la température). La valeur maximale du courant critique ainsi que l'ensemble de la courbe suit la dépendance en température de la figure 4.13. En particulier la figure disparaît complètement à $T^* = 4.3$ K puis réapparaît à la même position avant de disparaître finalement à T_c . Cette disparition uniforme à T^* pour toutes les valeurs du champ prouve que l'annulation observée en température n'est pas

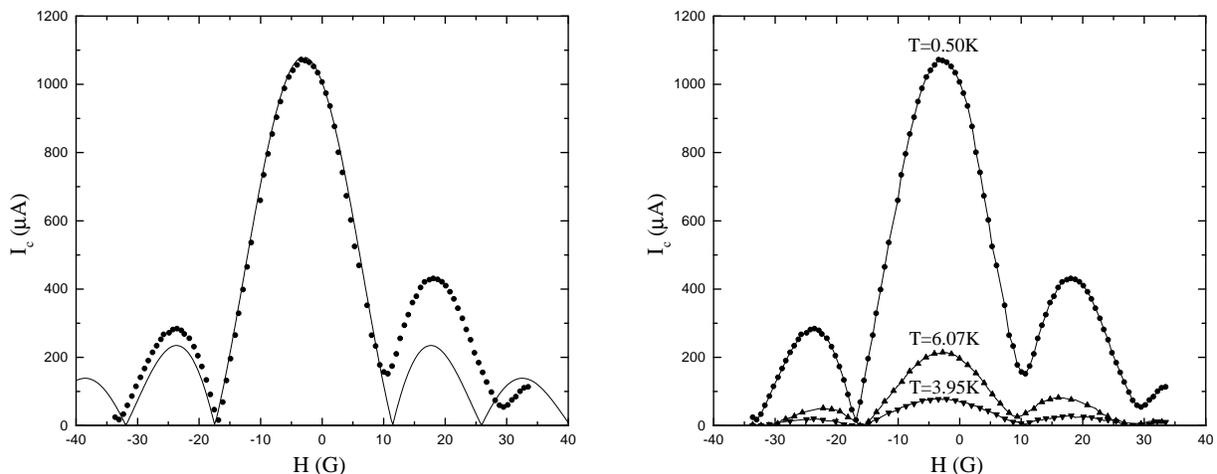


FIG. 4.14 – Jonction $G-C4$ ($d_F = 18$ nm). Figure de diffraction en champ magnétique déformée par rapport au comportement idéal représenté en trait continu (à gauche). Evolution en température de part et d'autre de $T^* = 4.3$ K (à droite).

due à une variation de flux dans la jonction, car si c'était le cas, l'application d'un champ magnétique à T^* ferait réapparaître un courant critique non nul.

Il y a une différence fondamentale entre l'annulation du courant critique avec la température et celles que l'on peut observer en champ magnétique lorsque le flux est un multiple de Φ_0 . L'annulation qui se produit à T^* est due à une compensation de la distribution *spectrale* de supercourant pour une valeur particulière de la distribution thermique des quasi-particules. Les supercourants de directions opposées portés par les états liés d'Andreev à différentes énergies se compensent exactement annulant ainsi le courant critique. Ce phénomène est différent et indépendant de l'annulation périodique du courant critique en fonction du champ qui est due à une distribution *spatiale* de supercourants qui circulent sous forme de boucles dans la jonction et annulent le courant critique pour certaines valeurs du champ magnétique.

4.4 Evolution avec l'épaisseur de cuivre-nickel

Nous allons comparer le comportement en température du courant critique de huit jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb dans une gamme d'épaisseur de cuivre-nickel allant de 15 à 20 nm. Cinq jonctions proviennent de la plaque "Galibier" (G-C4, G-C6, G-D9, G-F3, G-G7) et trois de la plaque "Madeleine" (M-C4, M-C6, M-C9). Malgré l'étalonnage présenté dans la partie 4.1.4, l'épaisseur de chaque jonction n'est pas connue très précisément, on peut estimer l'incertitude à ± 1 nm. Les valeurs qui sont données par la suite proviennent de l'étalonnage, mais certaines sont réajustées de 0.5 ou 1 nm pour être cohérentes avec le comportement du courant critique et cela revient essentiellement à réajuster une plaque par rapport à l'autre. Les paramètres caractéristiques de ces huit jonctions sont rassemblés dans le tableau 4.1.

Jonction	G-D9	M-C9	G-C6	G-C4	M-C6	M-C4	G-F3	G-G7
d_F (nm)	15	16	17	18	19	19.5	20	20
S (μm^2)	100	100	100	100	100	100	50	200
$I_c(0)$ (μA)	4000	1300	200	1050	600	?	?	2000
T^* (K)	—	—	1.1	4.3	5.3	5.9	—	—
T^{max} (K)	2.9	3.6	4.9	6.3	6.8	7.2	—	—
$I_c(T^{max})$ (μA)	5000	1800	950	200	45	15	—	—

TAB. 4.1 – *Caractéristiques des jonctions.* d_F est l'épaisseur de cuivre-nickel. S est la surface. $I_c(0)$ est le courant critique à température nulle. T^* est la température de la transition $0-\pi$. T^{max} est la température où le courant critique passe par un maximum $I_c(T^{max})$.

4.4.1 Jonctions avec une transition $0 - \pi$

La jonction G-C4 d'épaisseur $d_F = 18$ nm a la dépendance en température de la figure 4.13 décrite précédemment. Le courant critique s'annule à $T^* = 4.3$ K pour passer d'une valeur négative en-dessous à une valeur positive au-dessus. L'état fondamental de la jonction passe de l'état $\phi_{gs} = \pi$ à l'état $\phi_{gs} = 0$.

La jonction M-C6 d'épaisseur $d_F = 19$ nm a le même type de comportement en température représenté sur la figure 4.15. Mais elle est plus épaisse que la précédente, elle est donc plus loin de l'épaisseur minimum qui donne un courant critique négatif à température nulle, il faut donc une température $T^* = 5.3$ K plus élevée pour retrouver un courant critique positif.

La jonction M-C4 est encore plus épaisse $d_F = 19.5$ nm et la transition $0-\pi$ est à $T^* = 5.9$ K comme le montre la figure 4.16. L'ajustement de la caractéristique tension-courant à 4.2 K avec la relation (4.1) du modèle RSJ donne une résistance $R_n = 1.33 \times 10^{-4} \Omega$. La figure 4.18 montre également la caractéristique mesurée à T^* , c'est une droite passant par l'origine dont la pente est égale à R_n . Le courant critique de cette jonction est exactement nul et on ne remarque pas de non-linéarité dans la caractéristique.

La jonction G-C6 est cette fois plus fine avec une épaisseur $d_F = 17$ nm et le courant critique s'annule à $T^* = 1.1$ K sur la figure 4.17. La région de température dans laquelle la jonction est dans l'état π en l'absence de courant est donc très réduite. Lorsqu'on cherche

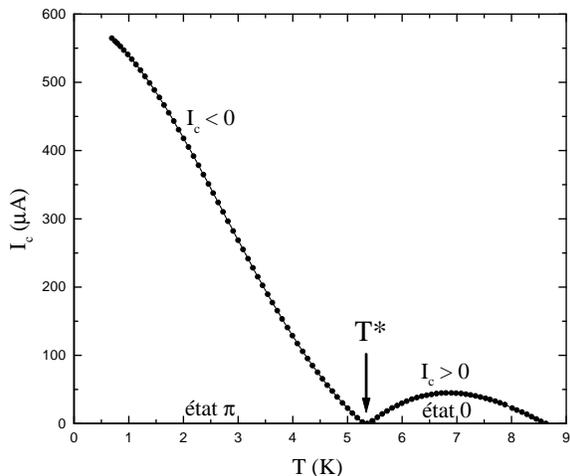


FIG. 4.15 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm). Courant critique en fonction de la température avec une transition $0-\pi$ à $T^* = 5.3$ K.

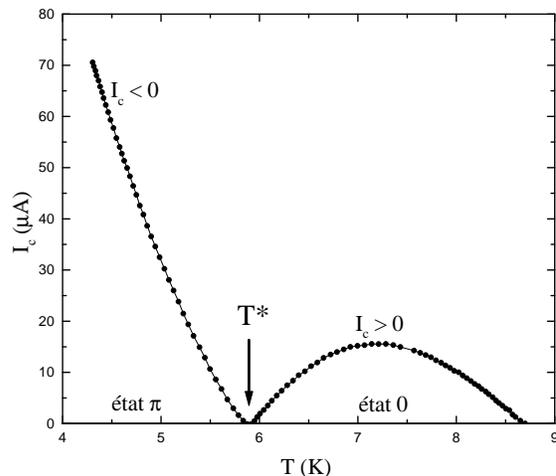


FIG. 4.16 – Jonction M-C4 ($d_F = 19.5$ nm). Courant critique en fonction de la température avec une transition $0-\pi$ à $T^* = 5.9$ K.

à mesurer précisément la valeur du courant critique au voisinage de T^* , on trouve qu'il ne s'annule pas complètement, il reste $4 \mu\text{A}$. En traçant la caractéristique tension-courant à 1.136 K qui correspond précisément à T^* , on n'obtient pas une droite, mais une courbe qui présente un résidu de courant critique. Celui-ci est toutefois pratiquement détruit par le bruit électromagnétique qui élargit les caractéristiques, comme on le voit également sur la courbe mesurée à 0.33 K. La méthode de mesure du courant critique utilisé pour étudier les dépendances en température et en champ (partie 4.2.3) consiste à détecter l'apparition d'une pente résistive en mesurant la réponse à un courant alternatif d'amplitude $1 \mu\text{A}$. Ainsi la valeur résiduelle de $4 \mu\text{A}$ sur la figure 4.17 correspond simplement au courant continu nécessaire pour que la pente atteigne la valeur utilisée pour l'asservissement. L'ajustement de la caractéristique à 1.136 K avec la relation (4.1) du modèle RSJ donne un courant critique résiduel de $12 \mu\text{A}$ et une résistance $R_n = 1.54 \times 10^{-4} \Omega$. Cette jonction est la seule des quatre dont le courant critique ne s'annule pas complètement, mais comme c'est aussi la seule dont la température T^* soit si basse, on peut envisager l'interprétation suivante.

Dans le modèle présenté dans la partie 2.3, nous avons fait l'approximation d'une faible amplitude des corrélations supraconductrices induites dans la barrière et obtenu une relation courant-phase sinusoïdale à toute température. Dans ces conditions le courant critique doit s'annuler exactement quelle que soit la température T^* . Cependant la résolution des équations d'Usadel non-linéaires [50, 73] prédit un passage de l'état 0 à l'état π sans annulation du courant critique : la relation courant-phase n'est pas purement sinusoïdale et seul le fondamental s'annule à T^* de sorte que le courant critique passe d'une valeur positive finie à une valeur négative finie de même valeur absolue (voir la discussion dans la partie 2.3). Ceci est surtout valable à basse température, car la relation courant-phase de toute jonction Josephson finit par devenir sinusoïdale en approchant T_c . Ceci peut donc expliquer pourquoi on observe un courant critique résiduel pour $T^* = 1.1$ K et non pour $T^* = 4.3, 5.3$ et 5.9 K.

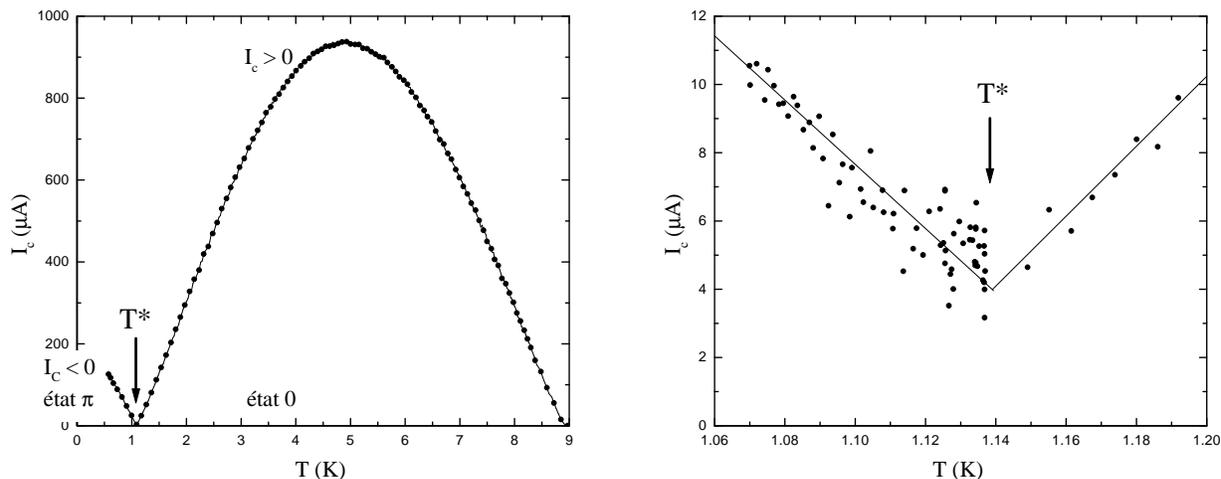


FIG. 4.17 – Jonction G-C6 ($d_F = 17$ nm). Courant critique en fonction de la température. Il ne s'annule pas complètement lors de la transition $0-\pi$ à $T^* = 1.136$ K.

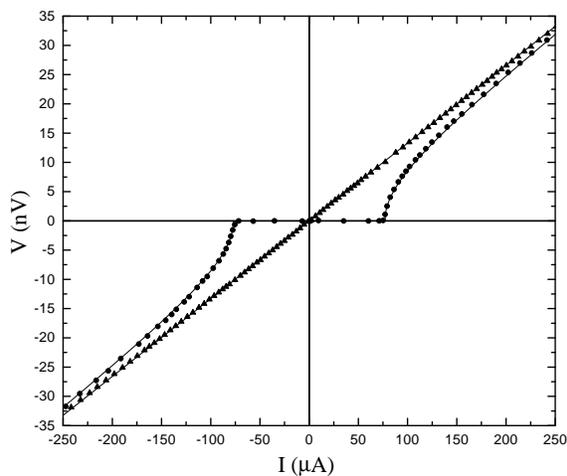


FIG. 4.18 – Jonction M-C4 ($d_F = 19.5$ nm). Caractéristiques tension-courant à 4.2 K (rond) et à $T^* = 5.9$ K (triangle) ajustées par le modèle RSJ en trait continu.

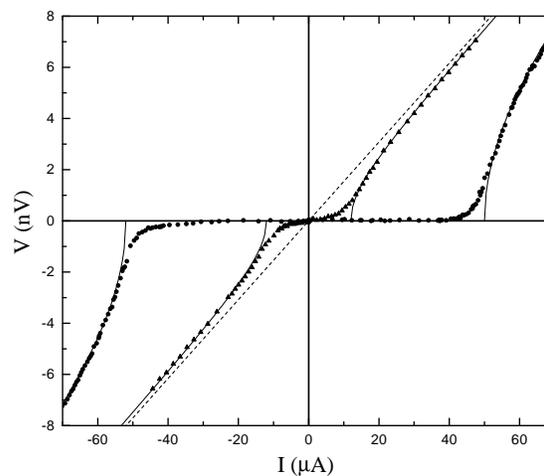


FIG. 4.19 – Jonction G-C6 ($d_F = 17$ nm). Caractéristiques tension-courant à 0.33 K (rond) et à $T^* = 1.136$ K (triangle) ajustées par le modèle RSJ en trait continu. Le courant critique résiduel à T^* est de $12 \mu\text{A}$.

4.4.2 Jonctions dans l'état 0

La jonction M-C9 a une épaisseur $d_F = 16$ nm inférieure aux précédentes jonctions et la dépendance en température de la figure 4.20 ne présente plus de transition 0- π . Le courant critique étant déjà positif à température nulle, il ne peut pas changer de signe, l'état fondamental est $\phi_{gs} = 0$ à toute température. La dépendance du courant critique avec la température reste cependant très différente d'une jonction S/N/S car elle présente un maximum à $T^{max} = 3.6$ K. Les états liés d'Andreev sont toujours déplacés par l'énergie d'échange, mais pas suffisamment pour inverser le signe du courant critique. Les contributions positives dans la densité spectrale de supercourant dominent toujours les contributions négatives. Le renforcement du courant critique est dû à la suppression par la température des contributions négatives proches du niveau de Fermi.

La jonction G-D9 d'épaisseur $d_F = 15$ nm présentée sur la figure 4.21 a le même type de comportement que la précédente. Cependant le courant critique est plus grand et la température à laquelle il passe par le maximum est plus basse ($T^{max} = 2.9$ K). L'épaisseur étant plus faible, le décalage des états liés est plus faible, et une température plus basse est suffisante pour réduire les contributions négatives.

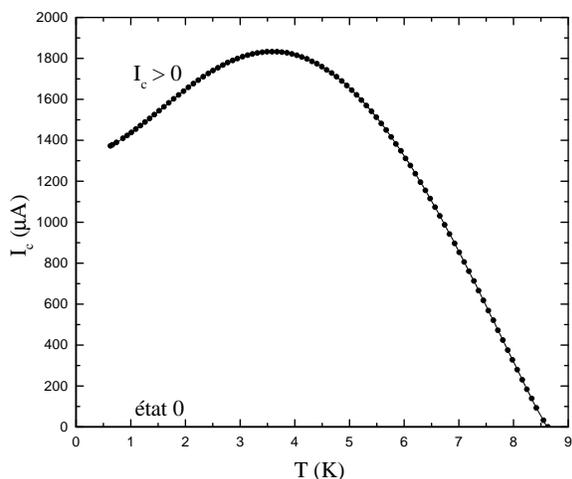


FIG. 4.20 – *Jonction M-C9* ($d_F = 16$ nm). Courant critique en fonction de la température, toujours positif mais avec un maximum à $T^{max} = 3.6$ K.

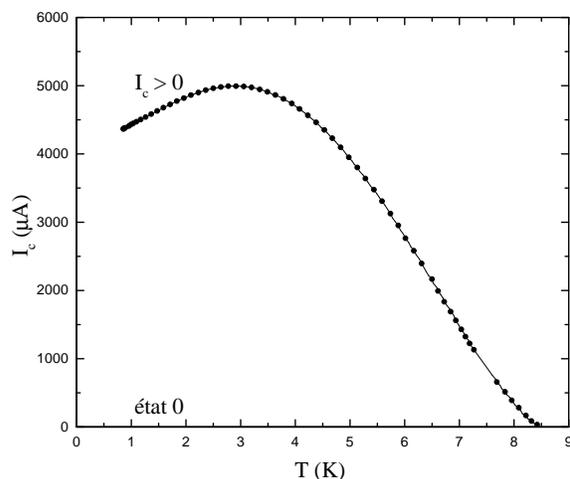


FIG. 4.21 – *Jonction G-D9* ($d_F = 15$ nm). Courant critique en fonction de la température, toujours positif mais avec un maximum à $T^{max} = 2.9$ K.

4.4.3 Jonctions dans l'état π

L'échantillon G-G7 est en fait un SQUID de structure un peu compliquée que l'on fabrique en même temps que les jonctions lorsqu'on utilise les mêmes masques. En mesurant ce SQUID l'objectif était de voir si *par hasard* les oscillations du courant critique en fonction du flux étaient suffisantes pour étudier des SQUID 0- π faits avec ces masques en induisant une dissymétrie dans l'épaisseur des jonctions. La boucle a une forme carrée de $100 \mu\text{m}$ de

côté, elle contient deux jonctions de surfaces identiques dans une branche ($10 \times 10 \mu\text{m}^2$) et deux jonctions de surfaces différentes dans l'autre branche ($10 \times 10 \mu\text{m}^2$ et $10 \times 30 \mu\text{m}^2$). La figure 4.22 montre les oscillations de courant critique obtenues à 0.72 K et 8.33 K en appliquant un champ magnétique au travers de la boucle. La périodicité de 1 mG correspond à peu près à la surface intérieure de la boucle qui est de $100 \times 120 \mu\text{m}^2$. L'amplitude des oscillations (de l'ordre de $3 \mu\text{A}$) est très petite car l'inductance L de la boucle (de l'ordre de 10^{-10} H) est grande pour le courant critique I_c des jonctions (entre 2000 et $20 \mu\text{A}$ sur la figure). En effet lorsque le paramètre $2\pi LI_c/\Phi_0$ est plus grand que 1, le flux produit par le courant supraconducteur qui circule dans la boucle écrante le champ magnétique extérieur et réduit l'amplitude de la figure d'interférence du SQUID. Dans la limite où ce paramètre est très grand, les variations de courant critique sont de l'ordre de $\Phi_0/2\pi L$ quel que soit le courant critique moyen. Dans notre cas (figure 4.22), le paramètre $2\pi LI_c/\Phi_0$ vaut 600 et 6, ce qui explique pourquoi les oscillations sont faibles, et l'expression $\Phi_0/2\pi L$ donne bien une amplitude de $3 \mu\text{A}$. La géométrie des SQUID fabriqués avec ces masques n'est donc pas bien adaptée aux courants critiques de ces jonctions.

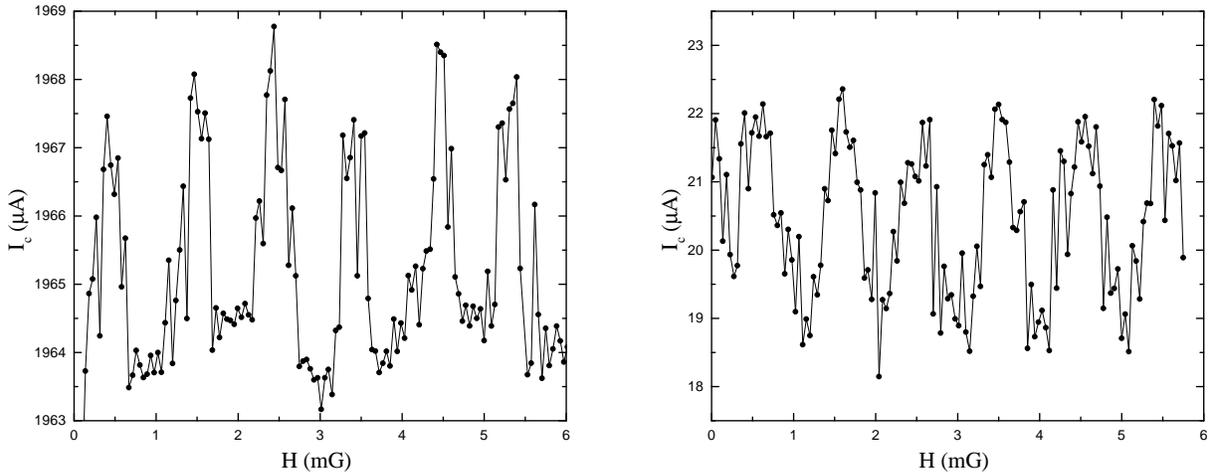


FIG. 4.22 – Oscillations de courant critique dans le SQUID G-G7 en fonction du champ appliqué à 0.72 K (à gauche) et à 8.33 K (à droite).

La figure 4.23 présente la dépendance en température du courant critique de ce SQUID dont les jonctions ont la même épaisseur $d_F = 20$ nm dans les deux branches (elles ne sont séparées que de $100 \mu\text{m}$). Les interférences dans la boucle étant limitées à $3 \mu\text{A}$, on peut considérer que la valeur du courant critique mesuré est la somme des courants critiques de deux jonctions indépendantes en parallèle, ou encore d'une seule jonction de surface $2 \times 10 \times 10 \mu\text{m}^2$. Le comportement en température est différent de celui des jonctions précédentes, il n'y a ni annulation du courant critique, ni maximum entre 0 et T_c . Cependant la courbure concave au voisinage de T_c est inhabituel pour une jonction relativement "courte" dont l'énergie de Thouless $E_{Th} = \hbar D/d_F^2 = 0.82$ meV est du même ordre que le gap du supraconducteur $\Delta_0 = 1.32$ meV : on s'attend dans ce cas à une dépendance en $\Delta(T)^2$ linéaire en température au voisinage de T_c .

L'épaisseur $d_F = 20$ nm étant plus grande que toutes les précédentes, cette jonction doit avoir un courant critique négatif dans toute la gamme de température entre 0 et T_c , avec un état fondamental $\phi_{gs} = \pi$. La courbure concave observée reflète le fait que si la supraconductivité ne disparaissait pas à T_c , on pourrait avoir une annulation du courant critique à une température $T^* > T_c$, suivie d'un changement de signe qui donnerait un courant critique positif. La transition des électrodes dans l'état normal survient avant que la température soit suffisante pour produire cet effet. La décroissance rapide au voisinage de T_c est la combinaison de la dépendance habituelle en $\Delta(T)^2$ et de la proximité d'une annulation avec changement de signe.

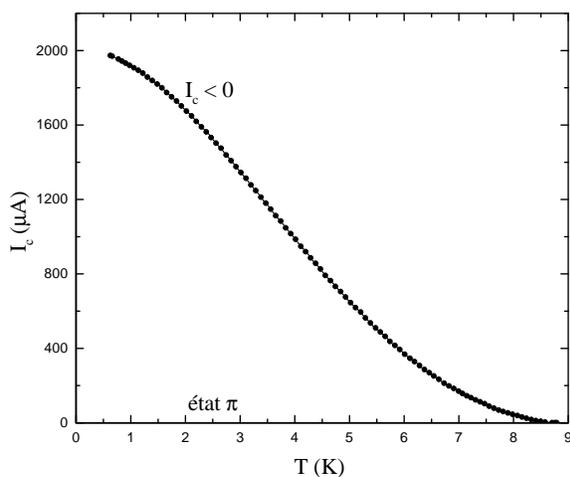


FIG. 4.23 – *Jonctions du SQUID G-G7 ($d_F = 20$ nm) de surface effective double des autres jonctions. Courant critique en fonction de la température, toujours négatif, avec une courbure concave près de T_c .*

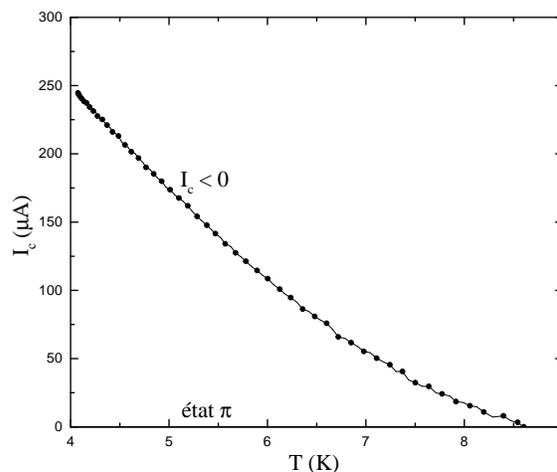


FIG. 4.24 – *Jonction G-F3 ($d_F = 20$ nm). Courant critique en fonction de la température, toujours négatif, avec une faible courbure concave près de T_c .*

La jonction G-F3 a une épaisseur $d_F = 20$ nm et une surface de $7 \times 7 \mu\text{m}^2$ (c'est la seule jonction avec le SQUID G-G7 qui ne soit pas de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$). Son comportement en température au voisinage de T_c sur la figure 4.24 est similaire à celui de la jonction précédente G-G7, mais la courbure concave est moins marquée. Ceci correspond à une température T^* "fictive" encore plus supérieure à T_c de sorte que l'épaisseur de cuivre-nickel doit probablement être un peu plus grande.

4.5 Etude des figures de diffraction

4.5.1 Dépendance en température

En étudiant la jonction G-C4 dans la partie 4.3.3, nous avons déjà discuté l'importance de l'annulation uniforme du courant critique à T^* quel que soit le champ appliqué. Ceci est une preuve que l'annulation n'est pas due une variation de flux dans la jonction provoquée par une éventuelle modification des propriétés magnétiques de la couche ferromagnétique. La température ne modifie pas la distribution *spatiale* de supercourant, mais sa distribution *spectrale*. Cette propriété se vérifie sur toutes les jonctions, dont les quatre que nous allons présenter maintenant, qui ont ou non une transition 0- π en température.

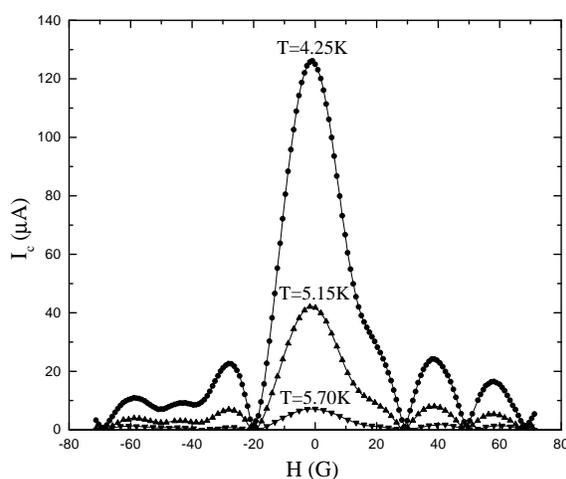


FIG. 4.25 – *Jonction M-C4* ($d_F = 19.5$ nm). *Figures de diffraction en champ magnétique en s'approchant de la transition 0- π à $T^* = 5.9$ K.*

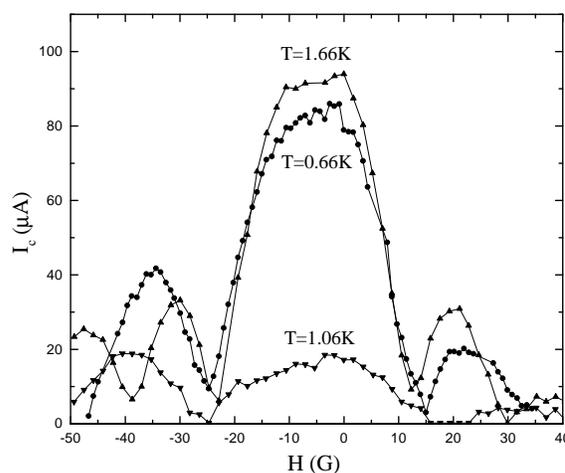


FIG. 4.26 – *Jonction G-C6* ($d_F = 17$ nm). *Figures de diffraction en champ magnétique de part et d'autre de $T^* = 1.1$ K.*

La jonction M-C4 ($d_F = 19.5$ nm) a une transition à $T^* = 5.9$ K. La figure 4.25 montre que la position et la forme des figures de diffraction ne sont pas modifiées en fonction de la température. L'annulation à T^* se produit uniformément pour toutes les valeurs du champ. Par ailleurs les nombreuses distortions (sur lesquelles nous reviendrons plus loin) sont conservées sans modification lorsqu'on passe de 4.25 K à 5.70 K.

La jonction G-C6 ($d_F = 17$ nm) a une transition à $T^* = 1.1$ K. Son comportement en champ est représenté sur la figure 4.26 au voisinage de cette transition. Comme nous l'avons montré dans la partie 4.4.1, le courant critique de cette jonction ne disparaît pas complètement à T^* avec une valeur résiduelle autour de $10 \mu A$ (suivant la valeur de tension choisie pour l'asservissement du courant). Ceci explique pourquoi la figure de diffraction à 1.06 K est encore relativement grande : elle ne disparaît pas à T^* . Par contre elle ne se déplace pas avec la température et c'est ce qui importe pour montrer que l'effet est indépendant du champ. Ces figures présentent beaucoup plus de fluctuations de courant critique que d'habitude et les distortions sont différentes pour les trois températures. Les fluctuations

locales peuvent venir d'un mauvais asservissement du courant mais les changements de forme et l'écrêtage du pic central sont plus difficiles à expliquer.

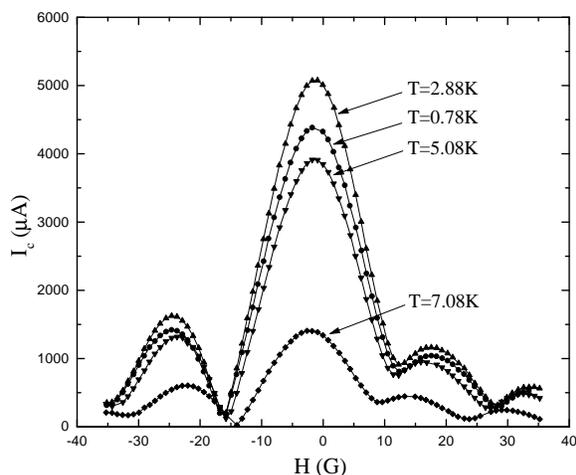


FIG. 4.27 – Jonction G-D9 ($d_F = 15$ nm). Figures de diffraction en champ magnétique de part et d'autre du maximum à $T^{max} = 2.9$ K.

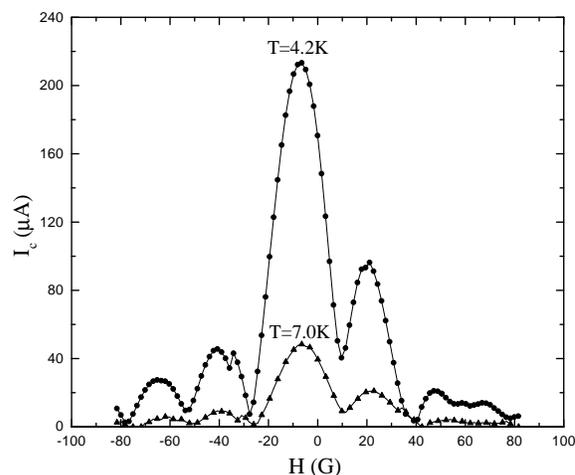


FIG. 4.28 – Jonction G-F3 ($d_F = 20$ nm). Figures de diffraction en champ magnétique à 4.2 K et 7.0 K.

La jonction G-D9 ($d_F = 15$ nm) n'a pas de transition $0-\pi$, mais un maximum de courant critique positif à $T^{max} = 2.9$ K. La figure 4.27 montre que l'ensemble de la figure de diffraction grandit entre 0.78 K et 2.88 K sans se modifier, puis diminue à plus haute température. Elle se rétrécit de plus en plus car la longueur de pénétration $\lambda_L(T)$ diverge en approchant T_c , nécessitant un champ magnétique plus faible pour produire un quantum de flux Φ_0 .

La jonction G-F3 ($d_F = 20$ nm) n'a pas non plus de transition, mais cette fois le courant critique est négatif. Les figures de diffraction à 4.2 K et 7.0 K sur la figure 4.28 ont les mêmes caractéristiques que pour les autres jonctions, dont les distorsions que nous allons analyser maintenant.

4.5.2 Distorsion des figures

La figure de diffraction idéale d'une jonction Josephson de petite dimension ($w < \lambda_J$) a été décrite dans la partie 4.3.3. Toutes les figures expérimentales présentent cependant des distorsions importantes par rapport à la fonction $I_c(B) = I_c |\text{sinc}(\pi B w l / \Phi_0)|$ et des décalages par rapport au zéro du champ. Cependant il ne devrait pas y avoir de flux au travers de la jonction en l'absence de champ magnétique extérieur car l'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ de ces jonctions n'a pas d'aimantation rémanente (voir la partie 4.1.4). La limite supérieure à l'aimantation rémanente macroscopique est de l'ordre de 1 emu/cm^3 équivalent à 12 G. Cette induction magnétique ne s'applique que dans la barrière d'épaisseur d_F alors que le champ extérieur pénètre sur $l = d_F + 2\lambda_L$. Le décalage en champ que pourrait provoquer une aimantation résiduelle sur les figures de diffraction est donc limité à 1 ou 2 G, c'est pourquoi le maximum des figures de diffraction est toujours à peu près centré autour de zéro.

Dans les jonctions étudiées par Ryazanov et al. [77, 78], les alliages cuivre-nickel utilisés ont une aimantation rémanente non-nulle. Si l'échantillon est refroidi en champ nul, la couche magnétique est désaimantée et la figure de diffraction est centrée en zéro. Mais si un champ important est appliqué, le flux magnétique produit par l'aimantation rémanente reste présent dans les jonctions après suppression du champ. Ce flux décale les figures de diffraction d'un dizaine de Φ_0 , de sorte que le courant critique en champ nul est quasiment égal à zéro.

Dans les jonctions étudiées ici, le décalage et l'asymétrie des figures sont dus à la présence de vortex dans les électrodes de niobium qui perturbent la distribution de champ. Ils peuvent traverser perpendiculairement la jonction mais ne sont pas à l'intérieur même de la barrière car la longueur Josephson λ_J est plus grande que la jonction. Ils se forment au passage de la transition supraconductrice à T_c et sont piégés dès que la température est inférieure. Lorsque la jonction est refroidie en passant la transition en présence d'un courant dans la jonction ou d'un champ magnétique, la figure obtenue est encore plus dissymétrique et décalée différemment. Même si on refroidit l'échantillon en l'absence de courant et de champ dans la bobine, il reste le champ magnétique terrestre qui crée quelques vortex dont la position peut changer entre deux refroidissements. Par contre elle n'évolue plus dès que la température est inférieure à T_c et quels que soient les champs ou les courants appliqués et les variations de température maintenues en-dessous de T_c .

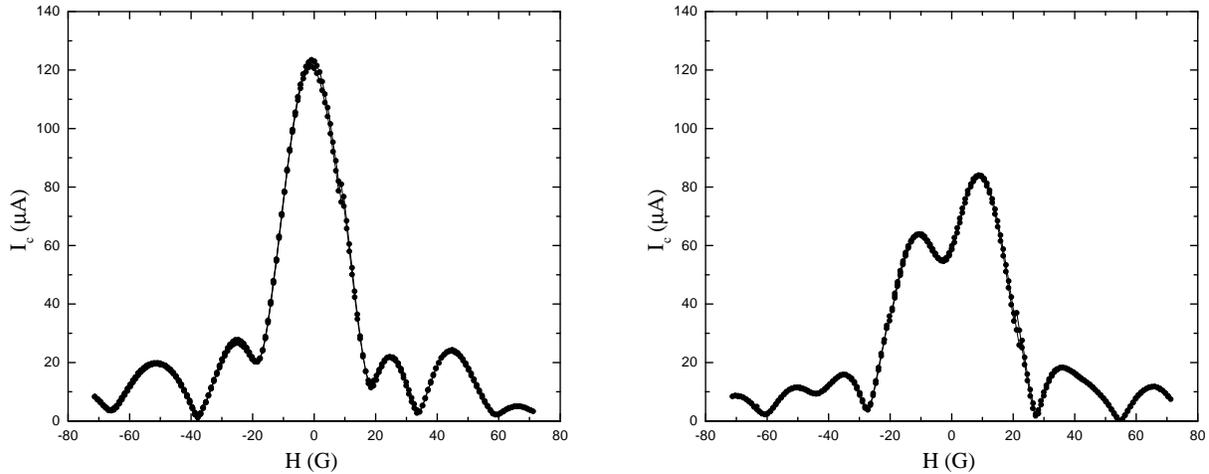


FIG. 4.29 – *Jonction M-C4* ($d_F = 19.5$ nm). *Figures de diffraction en champ magnétique à 4.25 K obtenues après deux conditions de refroidissement différentes au passage de T_c . A gauche : en présence d'un champ de 40 G dans le plan de la jonction. A droite : en présence d'un champ important créé par une bobine de 3 T en fonctionnement dans un cryostat voisin.*

La figure 4.29 montre ainsi deux types de figures de diffraction mesurées sur la jonction M-C4 pour des conditions de refroidissement différentes au passage de T_c . Parfois certaines courbes se reproduisent à l'identique après en avoir obtenu d'autres entre temps et malgré des conditions apparemment différentes. Il doit donc y avoir un nombre limité de configurations de vortex dans les électrodes au voisinage de la jonction. Pour obtenir des figures de diffraction symétriques, centrées et reproductibles, il faudrait supprimer complètement le

champ magnétique en entourant le calorimètre d'un écran supraconducteur ou en μ -métal, mais ceci n'a pas été fait.

Certaines figures présentent également des discontinuités de courant critique qui saute d'une courbe à une autre et de façon non-réversible avec le sens de balayage du champ, comme sur la figure 4.30 obtenue avec la jonction G-D9. Ces sauts sont reproductibles si on fait le même balayage et correspondent à des décalages de la figure de diffraction comme si le champ vu par la jonction changeait brutalement. Ce décalage est peut-être dû au déplacement d'un vortex entre deux positions de piégeage sous l'action du champ magnétique et avec de l'hystérésis.

La jonction G-D9 a une autre particularité, le courant critique est différent lorsque le courant circule dans un sens ou dans l'autre au travers de la jonction. Les deux figures de diffraction correspondantes sont représentées sur la figure 4.31. Le champ magnétique créé par le courant s'ajoute ou se soustrait au champ extérieur et au champ créé par les vortex, affaiblissant ou renforçant le courant critique.

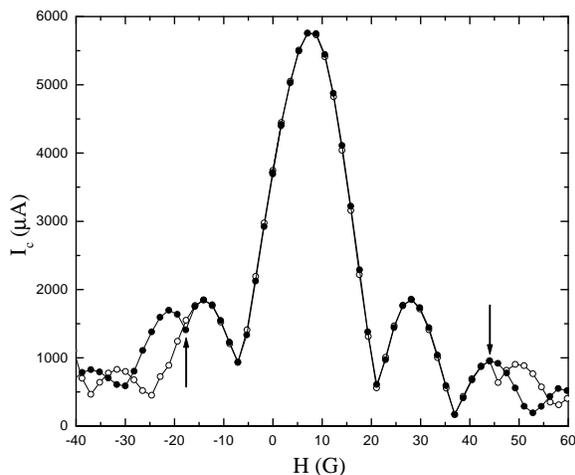


FIG. 4.30 – *Jonction G-D9 ($d_F = 15$ nm). Figures de diffraction en champ magnétique à 4.2 K présentant des discontinuités avec de l'hystérésis entre le champ croissant (symboles pleins) et décroissant (symboles creux).*

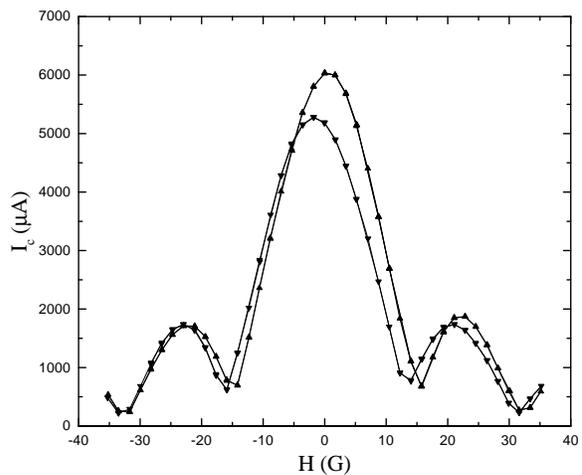


FIG. 4.31 – *Jonction G-D9 ($d_F = 15$ nm). Figures de diffraction en champ magnétique à 0.8 K présentant une asymétrie entre le courant injecté dans un sens ou dans l'autre.*

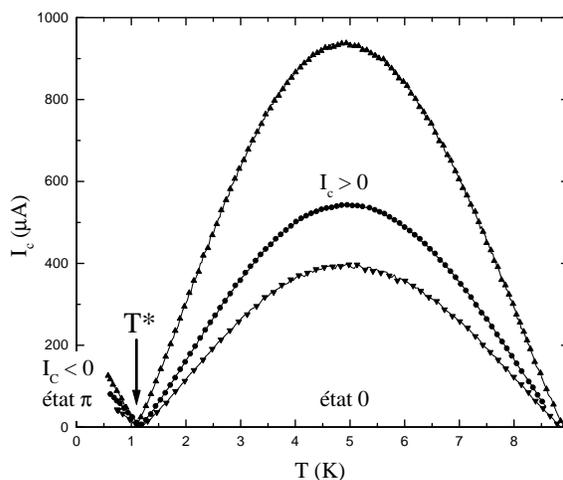
4.5.3 Conséquence sur les courants critiques

Une conséquence importante du champ produit par les vortex est la non-reproductibilité du courant critique. Sa vraie valeur n'est donc pas connue précisément car on mesure toujours une valeur inférieure avec des variations qui vont typiquement du simple au double, comme sur la figure 4.32 obtenue avec la jonction G-C6. Lorsqu'on effectue des balayages en température en allant jusqu'à la transition à T_c , les courbes de courant critique sont presque à chaque fois différentes. Pour conserver la même configuration des vortex et donc le même

courant critique, il ne faut pas dépasser T_c . Une solution pour remédier à ce problème serait de réduire la taille des jonctions pour minimiser l'influence des vortex piégés, ou encore de blinder le calorimètre avec un écran en μ -métal pour réduire l'effet du champ magnétique terrestre.

Malgré ces différences d'amplitude, les dépendances en température sont toujours homothétiques. En particulier, la température T^* à laquelle s'annule le courant critique est la même à chaque refroidissement, quel que soit le champ présent pendant la transition à T_c . En effet le champ magnétique des vortex du niobium ne fait que changer la distribution *spatiale* du supercourant dans la jonction, alors que l'annulation à T^* est liée à une compensation de la distribution *spectrale* du supercourant.

FIG. 4.32 – Jonction G-C6 ($d_F = 17\text{ nm}$). Différentes courbes de courant critique mesurées après avoir chauffé au-delà de T_c . La température T^* de la transition 0 - π est inchangée.



4.6 Effet Josephson alternatif

4.6.1 Description des marches de Shapiro

Lorsqu'on applique un courant continu légèrement supérieur au courant critique, il apparaît un courant normal de quasi-particules et une tension qui fait croître la différence de phase ϕ entre les électrodes supraconductrices selon la relation Josephson :

$$V = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{d\phi}{dt} \quad (4.2)$$

Le supercourant I_s se met alors à osciller entre les valeurs positive et négative du courant critique. Le courant total étant imposé, la composante normale I_n et donc la tension V oscillent également. Dans le cadre du modèle RSJ, l'évolution temporelle de la différence de phase ϕ en présence d'un courant constant $I_{dc} > I_c$ est donnée par l'équation :

$$I_{dc} = I_c \sin \phi + \frac{V}{R_n} = I_c \sin \phi + \frac{\Phi_0}{2\pi R_n} \frac{d\phi}{dt} \quad (4.3)$$

La phase ϕ n'augmentant pas linéairement au cours du temps, les oscillations de supercourant ne sont pas sinusoïdales et la tension est une succession de pics. La valeur moyenne \bar{V} suit la relation (4.1) utilisée précédemment pour interpréter les caractéristiques tension-courant.

Si on ajoute au courant appliqué à la jonction une composante alternative de fréquence f , elle peut interférer avec les oscillations Josephson et modifier ainsi la contribution du supercourant au courant continu total. La caractéristique tension-courant non-linéaire génère de nombreuses harmoniques de la fréquence d'excitation, de sorte que les interférences se produisent à chaque fois que la fréquence Josephson :

$$f_V = \frac{\bar{V}}{\Phi_0} \quad (4.4)$$

est un multiple de la fréquence d'excitation $f_V = m f$ où m est un entier. A chacune des valeurs discrètes correspondantes de la tension :

$$\bar{V}_m = m \Phi_0 f \quad (4.5)$$

on a la possibilité d'avoir un supercourant continu supplémentaire qui peut varier continûment entre deux valeurs. En maintenant la tension constante à une des valeurs V_m , on peut ainsi faire varier le courant total sur un certain intervalle. Autrement dit la caractéristique tension-courant présente des marches à chaque tension V_m . Leur existence avait été prévue par Josephson [56] et on les appelle couramment marches de Shapiro.

Il peut également apparaître des marches lorsque la fréquence des oscillations Josephson est un sous-multiple de la fréquence d'excitation, c'est-à-dire dans le cas général lorsque $n f_V = m f$ où m et n sont des entiers. En effet lorsque la relation courant-phase n'est pas sinusoïdale, les oscillations Josephson contiennent des harmoniques de la fréquence f_V qui peuvent aussi interférer avec l'excitation et ses harmoniques.

Dans la limite où le courant critique est faible ($R_n I_c < \Phi_0 f$), il existe une solution analytique qui donne une largeur $2I_m = 2I_c |J_m(a)|$ pour la marche d'ordre m (voir Likharev [62]). I_c est le courant critique en l'absence d'excitation et $J_m(a)$ la fonction de Bessel

d'ordre m , avec un coefficient $a = R_n I_{ac} / \Phi_0 f$ relié au courant d'excitation d'amplitude I_{ac} et de fréquence f . La marche $m = 0$ correspond à l'état supraconducteur dont le courant critique $I_0 = I_c |J_0(a)|$ est réduit par la présence de l'excitation.

Pour induire ces marches dans la caractéristique tension-courant, la fréquence choisie doit être suffisante pour que les tensions V_m soient mesurables, c'est-à-dire une fraction raisonnable de la tension caractéristique $V_c = R_n I_c$. La correspondance entre la fréquence et la tension étant de 500 GHz/mV et la tension étant souvent dans la gamme du *microvolt*, on utilise des générateurs hyper-fréquence et on préfère envoyer une onde électromagnétique sur la jonction plutôt qu'un courant directement au travers. Cependant dans le cas où la tension caractéristique V_c est dans la gamme du *nanovolt*, la fréquence adaptée est autour de 500 kHz et il est possible d'envoyer un courant directement dans la jonction sans utiliser de câble coaxial. Clarke [25] a ainsi observé les marches harmoniques et sous-harmoniques dans des jonctions longues Pb/Cu/Pb pour des fréquences entre 10 et 250 kHz. Il a étudié la largeur des marches en fonction de l'amplitude du courant alternatif et du champ magnétique. Dans nos jonctions, le courant critique varie typiquement entre 10^{-6} A et 10^{-3} A et la résistance de la barrière est autour de $10^{-4} \Omega$, de sorte que la tension caractéristique $V_c = R_n I_c$ est aussi dans la gamme du *nanovolt*. Sa mesure nécessite l'utilisation d'un SQUID, mais d'un autre côté elle permet d'étudier les marches de Shapiro en utilisant des fréquences assez basses.

4.6.2 Etude expérimentale des marches de Shapiro

La figure 4.33 montre ainsi les courbes obtenues avec la jonction M-C4, lorsqu'on ajoute au courant continu une composante alternative de fréquence 600, 800 ou 1100 kHz et d'amplitude $100 \mu\text{A}$. Les trois caractéristiques avec les marches sont comparées à celle obtenue en l'absence du courant alternatif (avec les mêmes axes, puis décalées pour plus de clarté). On observe 7, 5 et 3 marches de hauteurs 1.2, 1.6 et 2.2 nV et une réduction du courant critique de 20, 15 et $10 \mu\text{A}$ respectivement pour 600, 800 et 1100 kHz. La hauteur des marches suit bien la relation Josephson $V_m/m = \Phi_0 f$ comme l'indique la figure 4.34. Ceci montre par ailleurs que l'étalonnage du voltmètre est correcte : en effet pour chaque échantillon il faut déterminer la résistance du circuit de détection (référence + fils de connexions + soudures) car le SQUID n'est qu'un ampèremètre (voir partie 4.2.2).

Le produit $R_n I_c = 10 \text{ nV}$ est supérieur aux tensions Josephson $\Phi_0 f = 1.2, 1.6$ et 2.2 nV , de sorte que l'expression théorique $2 I_m = 2 I_c |J_m(a)|$ qui donne la largeur des marches ne doit pas être valable. Dans l'étude des jonctions Pb/Cu/Pb, Clarke [25] constate que cette relation reproduit qualitativement le comportement expérimental bien que $R_n I_c > \Phi_0 f$. C'est pourquoi nous allons tout de même essayer de comparer la largeur des marches obtenues dans nos jonctions avec cette relation.

En présence du courant alternatif de fréquence $f = 600 \text{ kHz}$, le courant critique (marche $m = 0$) est égal à 75% de la valeur maximum I_c . Ce facteur correspond à la fonction de Bessel d'ordre zéro $J_0(a)$ avec un coefficient $a = 1.05$. L'amplitude du courant alternatif peut alors être déduite de cette valeur par $a = R_n I_{ac} / \Phi_0 f$ sachant que $R_n = 1.3 \times 10^{-4} \Omega$. On obtient ainsi $I_{ac} = 10 \mu\text{A}$, bien que l'on ait envoyé $100 \mu\text{A}$. Comme on utilise des fils torsadés non blindés, une part importante de l'amplitude peut être perdue au travers des capacités parasites à haute fréquence. La largeur des marches donnée par l'expression $2 I_m =$

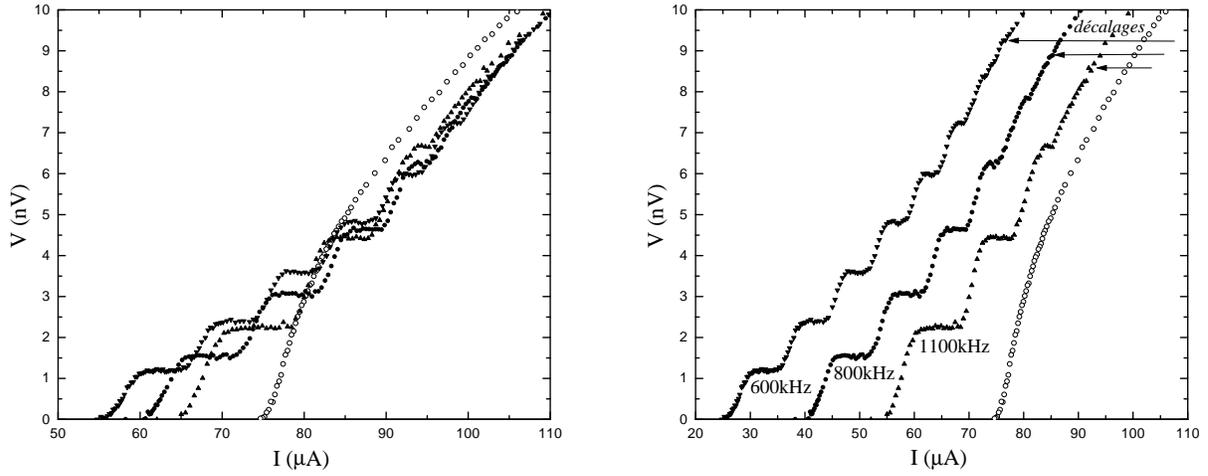


FIG. 4.33 – Jonction $M-C4$ ($d_F = 19.5$ nm). Marches de Shapiro dans la caractéristique tension-courant à 4.25 K, obtenues en ajoutant un courant alternatif à 600 kHz (triangle vers le bas), 800 kHz (rond plein) et 1100 kHz (triangle vers le haut). Rond creux : caractéristique en courant continu seulement. Sur la seconde figure, les courbes sont décalées pour plus de clarté.

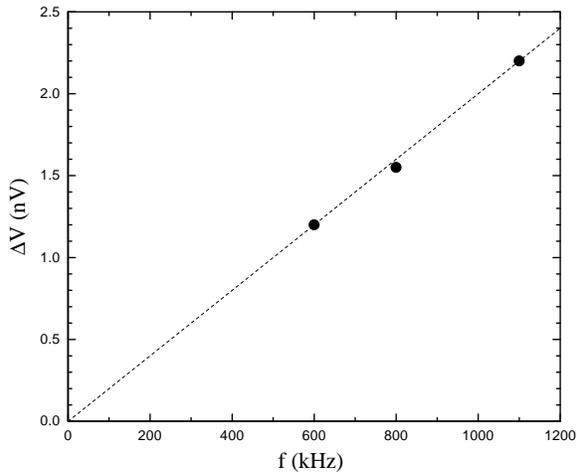


FIG. 4.34 – Jonction $M-C4$ ($d_F = 19.5$ nm). Hauteurs des marches de Shapiro de la figure 4.33 vérifiant la relation $\Phi_0 f$.

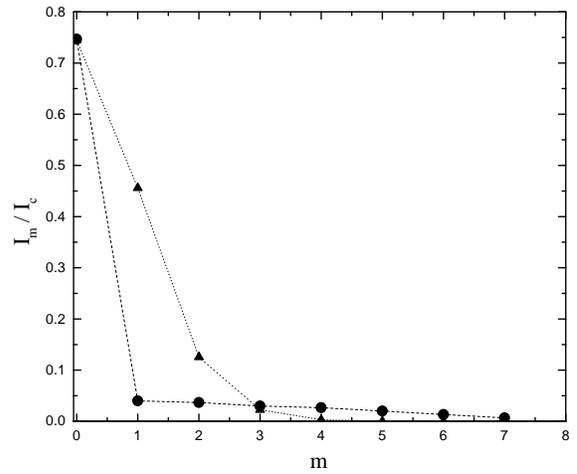


FIG. 4.35 – Jonction $M-C4$ ($d_F = 19.5$ nm). Demi-largeur en courant I_m des marches de Shapiro à 600 kHz (rond) comparée aux fonctions de Bessel $|J_m(a)|$ avec $a = 1.05$ ajusté pour $m = 0$ (triangle).

$2 I_c |J_m(a)|$ décroît exponentiellement avec l'indice m de la marche. La figure 4.35 montre un désaccord entre la décroissance théorique de I_m et les valeurs expérimentales. La marche $m = 1$ est beaucoup plus petite que sa valeur attendue et les marches suivantes ne diminuent que très lentement. Par ailleurs les facteurs de réduction du courant critique pour $f = 800$ kHz et $f = 1100$ kHz donnent respectivement des coefficients $a = 0.90$ et $a = 0.75$ qui ne suivent pas le comportement théorique en $1/f$ qui donnerait respectivement $a = 0.79$ et $a = 0.57$. L'expression théorique ne s'applique donc pas à ces jonctions dans la limite où $R_n I_c > \Phi_0 f$. Pour étudier plus en détail le comportement des marches, il faudrait faire une étude en fonction de l'amplitude du courant alternatif.

Dépendance en température

On étudie maintenant les marches de Shapiro de part et d'autres de la transition $0-\pi$ autour de la température $T^* = 5.37$ K en utilisant la jonction M-C6. On cherche à voir si les propriétés des marches sont modifiées en passant d'un courant critique négatif à un courant critique positif.

La figure 4.36 de gauche montre les caractéristiques tension-courant à 4.23 K obtenues sans et avec le courant alternatif de fréquence 800 kHz et d'amplitude $100 \mu\text{A}$. Comme avec la jonction précédente, on observe 5 marches de 1.6 nV de hauteur et une réduction du courant critique de $15 \mu\text{A}$. L'ajustement de la caractéristique sans marche par la relation (4.1) montre un élargissement de l'ordre de $3 \mu\text{A}$ de la position du courant critique à cause des fluctuations électromagnétiques. Elles réduisent également la largeur des marches de Shapiro qui sont elles-aussi produites par une composante continue de supercourant. A plus basse température le courant critique est plus important et on peut voir de plus en plus de marches, jusqu'à 11 sur la figure 4.36 de droite mesurée à 0.60 K dans les mêmes conditions ($I_{ac} = 100 \mu\text{A}$ et $f = 800$ kHz).

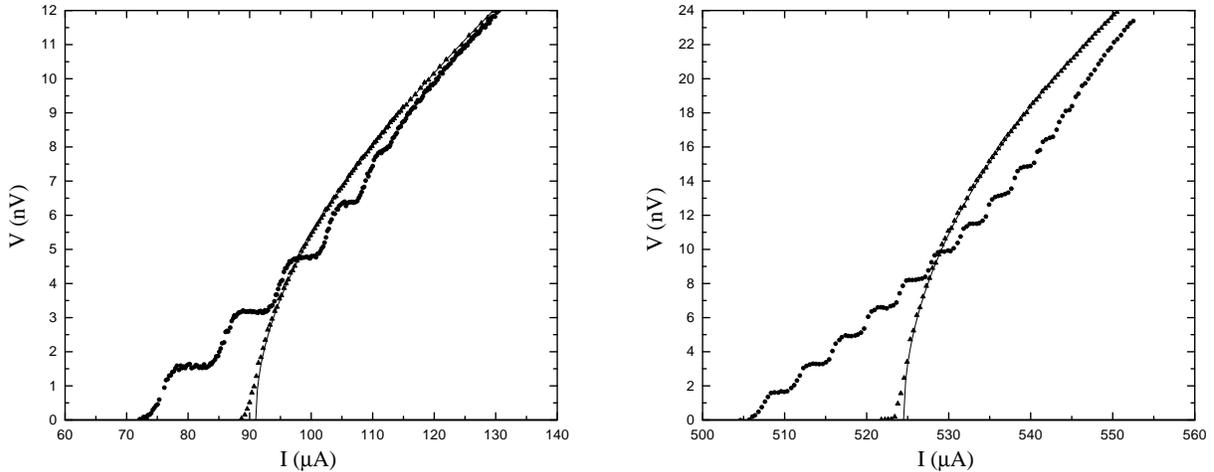


FIG. 4.36 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm). Marches de Shapiro avec un courant alternatif à 800 kHz comparées à la caractéristique sans excitation (+ courbe RSJ en trait continu) à 4.23 K (à gauche) et à 0.60 K (à droite).

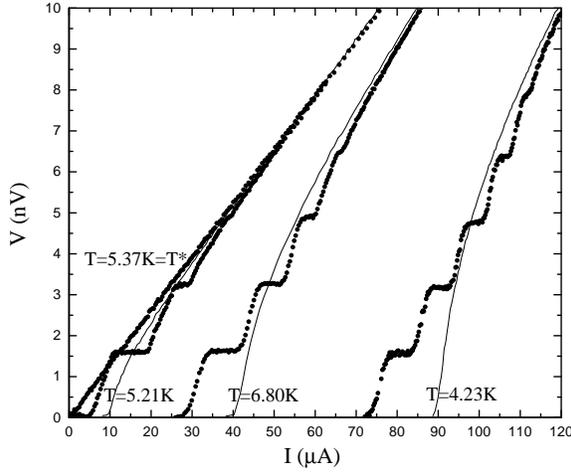


FIG. 4.37 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm). Marches de Shapiro avec un courant alternatif à 800 kHz pour différentes températures au voisinage de $T^* = 5.37$ K (caractéristiques sans excitation en trait continu).

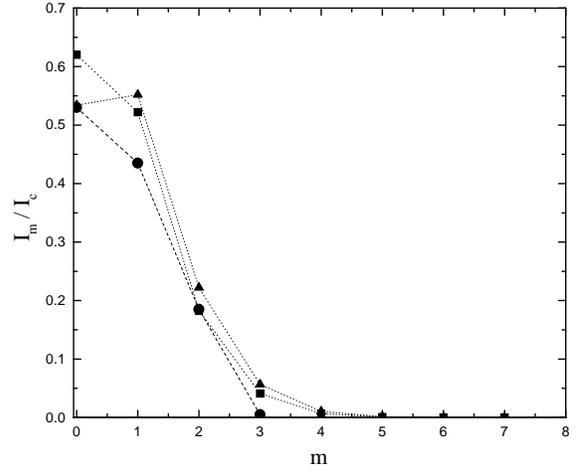


FIG. 4.38 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm). Demi-largeur en courant I_m des marches de Shapiro à 5.21 K (rond) comparée aux fonctions de Bessel $|J_m(a)|$ pour $a = 1.46$ ajusté en $m = 0$ (triangle) et pour $a = 1.3$ (carré).

Les caractéristiques mesurées à quatre températures différentes autour de la transition $0-\pi$ sont présentées sur la figure 4.37. Il n’y a que trois marches de Shapiro à 5.21 K car le courant critique est faible. A $T^* = 5.37$ K les marches disparaissent car le courant critique est nul : la caractéristique est identique avec et sans courant alternatif, elle est ohmique avec une pente $R_n = 1.3 \times 10^{-4} \Omega$. Si on continue à augmenter la température, on retrouve un courant critique dont le signe est maintenant “positif”, mais les 4 marches de Shapiro mesurées à 6.80 K sont identiques à celles que l’on pourrait mesurer avec un courant critique “négatif” de même valeur absolue.

A 5.21 K le courant critique est très faible et le produit $R_n I_c = 1.3$ nV est légèrement inférieur à la tension Josephson $\Phi_0 f = 1.6$ nV, de sorte que l’expression de la largeur des marches $2 I_m = 2 I_c |J_m(a)|$ doit être valable. En effet les dépendances théorique et expérimentale de la figure 4.38 sont en bien meilleur accord que dans le cas de la figure 4.35. Si on ajuste la réduction du courant critique $I_0 = 0.53 I_c$, on obtient un coefficient $a = 1.46$ dans la fonction de Bessel $J_0(a)$. Si on ajuste la différence entre les marches $m = 0$ et $m = 1$, on obtient $a = 1.3$. Compte tenu de l’incertitude sur les largeurs mesurées, on peut dire que l’expression théorique reproduit assez bien la dépendance en fonction de m dans ce cas où $R_n I_c < \Phi_0 f$.

4.6.3 Tension Josephson alternative autour de T^*

Pour sonder l'état fondamental de la jonction à la recherche d'une signature de l'état 0 ou de l'état π , il faut trouver une mesure qui puisse se faire sans atteindre ni dépasser le courant critique. On peut alors penser à mesurer les oscillations de tension Josephson qui apparaissent lorsqu'on applique un courant alternatif inférieur au courant critique en l'absence de courant continu de manière à rester dans l'état fondamental à proximité de la valeur $\phi_{gs} = 0$ ou $\phi_{gs} = \pi$.

Des oscillations sinusoïdales de courant d'amplitude I_{ac} induisent des oscillations de la différence de phase ϕ et font ainsi apparaître une tension d'après les relations :

$$I_{ac} \sin(2\pi ft) = I_c \sin \phi + \frac{V}{R_n} \quad (4.6)$$

$$V = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{d\phi}{dt} \quad (4.7)$$

On considère le cas où la fréquence vérifie $\Phi_0 f \gg R_n I_c$, de sorte que le terme V/R_n soit négligeable. Lorsque l'amplitude du courant est très faible $I_{ac} \ll I_c$, la phase oscille de façon sinusoïdale avec une amplitude I_{ac}/I_c et la tension qui apparaît est également sinusoïdale mais en quadrature avec le courant. L'amplitude de cette tension Josephson est proportionnelle à la fréquence f et au rapport I_{ac}/I_c par la relation :

$$V = \Phi_0 f \frac{I_{ac}}{I_c} \cos(2\pi ft) \quad (4.8)$$

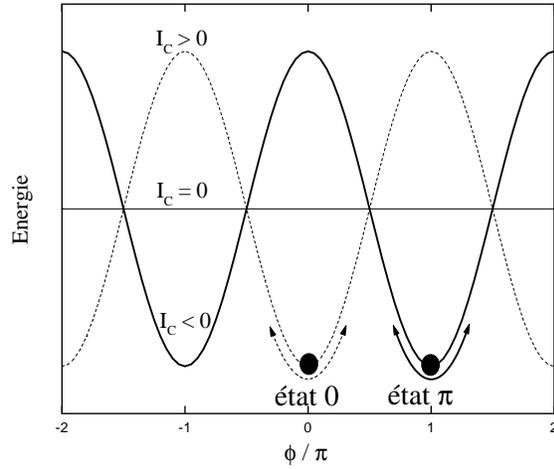
La phase temporelle des oscillations de $\phi(t)$ par rapport à celle du courant $I(t)$ semble à première vue dépendre du signe de I_c en regardant l'équation (4.6) : $I_c > 0$ donnerait $\phi(t)$ et $I(t)$ en phase et $I_c < 0$ les donnerait en opposition de phase. La tension $V(t)$ étant la dérivée de $\phi(t)$, elle serait respectivement en quadrature avance et en quadrature retard, ce qui pourrait être mesuré pour distinguer si le courant critique est positif ou négatif. Cependant ce n'est pas ce qui se passe, car lorsque le courant critique devient négatif, l'état fondamental de la jonction devient $\phi_{gs} = \pi$, ce qui supprime le signe moins. On peut expliciter cela en écrivant $\phi(t)$ comme la somme de la valeur dans l'état fondamental et de la variation : $\phi(t) = \phi_{gs} + \delta\phi(t)$. On obtient alors les relations :

$$I(t) = |I_c| \sin \delta\phi(t) \quad (4.9)$$

$$V(t) = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{d\delta\phi}{dt} \quad (4.10)$$

Les *variations* de $\phi(t)$ sont donc toujours en phase avec le courant et la tension toujours en quadrature avance. La relation énergie-phase de la figure 4.39 permet de représenter ce changement simultané du signe du courant critique et de la valeur de ϕ_{gs} dans l'état fondamental. Le courant étant la dérivée de cette relation ($I_s = (2\pi/\Phi_0) dE/d\phi$), on voit que le courant I_s et la phase ϕ varient de la même façon, que l'on soit près de $\phi_{gs} = 0$ ou de $\phi_{gs} = \pi$. La mesure de la tension Josephson alternative ne permet donc pas de différencier les deux situations et de mesurer directement le signe du courant critique.

FIG. 4.39 – Relations énergie-phase pour un courant critique positif (pointillés), nul (trait horizontal) ou négatif (trait fort). Les flèches représentent les variations de phase $\delta\phi(t)$ autour de l'état fondamental 0 ou π .



On peut toutefois chercher à mesurer cette tension pour vérifier que le changement de signe du *courant critique* qui se produit à la température T^* s'accompagne bien d'un changement de phase de l'état fondamental entre $\phi_{gs} = 0$ et $\phi_{gs} = \pi$. Si ce n'était pas le cas la tension devrait passer de quadrature avancée à quadrature retard (ou l'inverse) par rapport au courant, donc changer de signe.

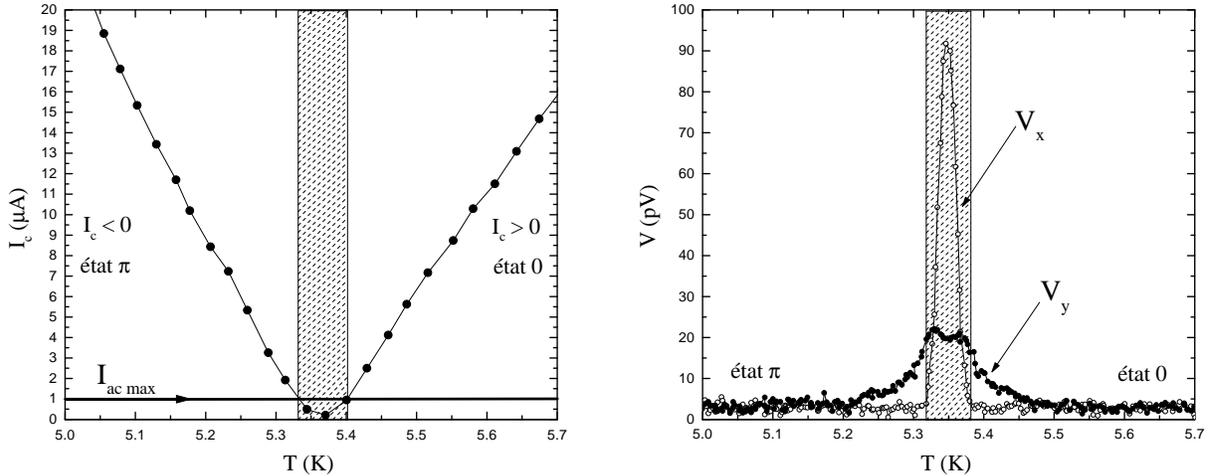


FIG. 4.40 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm). A gauche : détail de l'annulation du courant critique à la transition $0-\pi$ à T^* . En dehors de la zone hachurée le courant alternatif est inférieur au courant critique. A droite : la tension Josephson V_y en quadrature avec le courant a le même signe de part et d'autre de la zone hachurée.

La jonction M-C6 a une transition $0-\pi$ à $T^* = 5.37$ K comme le montre la figure 4.40. On applique un courant alternatif à 10 kHz d'amplitude $1 \mu\text{A}$ et on mesure la tension alternative en phase (V_x) et en quadrature (V_y) qui apparaît aux bornes de la jonction en fonction de la température. Lorsqu'on se rapproche de T^* en conservant $I_c > I_{ac}$, l'augmentation du

rapport I_{ac}/I_c fait croître la tension Josephson V_y jusqu'à environ $\Phi_0 f$. Dès que $I_c < I_{ac}$ il apparaît une réponse résistive qui fait croître V_x jusqu'à la valeur $R_n I_{ac}$ à la température T^* . Lorsque le courant critique devient de nouveau supérieur au courant alternatif, V_x disparaît et la tension Josephson V_y décroît lentement. La tension étant tracée en valeur algébrique, on voit bien que V_y ne change pas de signe entre les régions de courant critique négatif et positif.

Cette mesure est relativement difficile à faire car la tension Josephson est de quelques *picovolts* pour les fréquences que l'on peut mesurer avec le voltmètre à SQUID. En effet l'impédance du circuit de détection se met à augmenter à haute fréquence à cause de l'inductance $L = 1.8 \times 10^{-6}$ H de la bobine d'entrée du SQUID ce qui réduit la sensibilité. Lorsque la valeur $L\omega$ domine la résistance du circuit, on ne gagne plus à augmenter la fréquence. De plus la phase de la tension alternative n'est plus reliée simplement à celle du courant envoyé, car les inductances du circuit d'injection et de détection déphasent les signaux. Il faut donc ajuster la phase de la détection synchrone pour obtenir le signal résistif à T^* sur la sortie V_x .

Une autre conséquence de l'inductance de la bobine d'entrée est qu'il faut réétalonner le voltmètre à haute fréquence pour déterminer le coefficient de conversion entre le courant mesuré par le SQUID et la tension aux bornes de la jonction. En pratique on a ajusté l'amplitude des tensions pour que le signal V_x soit égal à la valeur efficace de $R_n I_{ac}$ à la température T^* lorsque la caractéristique est parfaitement ohmique. On obtient alors une tension Josephson V_y dont le maximum est de 20 pV en bon accord avec le produit $\Phi_0 f$.

Notons par ailleurs que la tension totale mesurée est la somme du signal à étudier qui est relativement faible et d'un signal parasite beaucoup plus grand dû au couplage électromagnétique direct entre le circuit d'injection du courant et le circuit de détection. Ce signal est indépendant de la température et il est soustrait avant la mesure en compensant le flux qu'il produit dans la bobine d'entrée du SQUID par un signal identique en amplitude et en phase que l'on injecte sur la bobine de compensation du SQUID. Le zéro de tension est fait loin de T^* , là où le signal à étudier est négligeable.

4.7 Comparaison avec le modèle théorique

La figure 4.41 rassemble les courbes de courant critique des 6 jonctions mesurées jusqu'à 0.5 K en rétablissant le signe négatif en-dessous des températures T^* afin de faire ressortir l'évolution en fonction de l'épaisseur de cuivre-nickel. Sur la figure de gauche, l'épaisseur va de 15 à 18 nm et le courant critique à température nulle décroît progressivement en changeant de signe vers 17 nm. Sur la figure de droite, l'épaisseur va de 17 à 20 nm et la température T^* augmente progressivement jusqu'à disparaître à T_c .

Dans la partie 4.5.3 nous avons vu que l'amplitude du courant critique mesurée est toujours inférieure à la valeur maximale qu'il pourrait avoir en l'absence de vortex dans les électrodes. Pour tenter de comparer quantitativement avec le modèle théorique, on choisit les courbes qui ont la plus forte amplitude en espérant ne pas être trop loin de la valeur maximale.

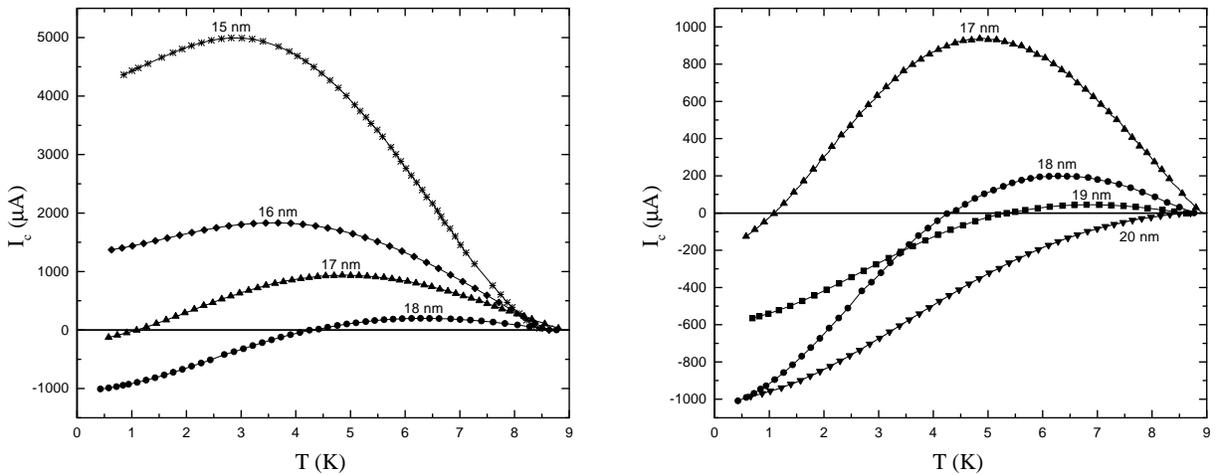


FIG. 4.41 – Evolution du comportement en température du courant critique en fonction de l'épaisseur des jonctions (G-D9 15 nm, M-C9 16 nm, G-C6 17 nm, G-C4 18 nm, M-C6 19 nm et G-G7 20 nm) pour une surface ramenée à $S = 100 \mu\text{m}^2$.

4.7.1 Modèle avec énergie d'échange constante

Avec le modèle présenté dans la partie 2.3, il est possible de calculer le produit $R_n I_c$ d'une jonction S/F/S connaissant les trois énergies caractéristiques suivantes : gap du supraconducteur Δ , énergie de Thouless E_{Th} et énergie d'échange E_{ex} . Dans ces jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb, on ne connaît pas la valeur de l'énergie d'échange, mais on connaît l'énergie de Thouless et on peut supposer que l'amplitude du gap est donnée par la température de transition. L'amplitude du courant critique n'est pas connue précisément, mais le changement de signe en fonction de l'épaisseur et de la température est par contre une caractéristique intrinsèque. On peut donc l'utiliser pour déterminer la valeur de l'énergie d'échange en ajustant les valeurs expérimentales aux courbes données par les équations (2.27) et (2.36) du

modèle.

Nous allons tout d'abord considérer le cas de la jonction G-C4 d'épaisseur $d_F = 18$ nm qui présente une transition $0-\pi$ à $T^* = 4.3$ K. La résistance normale de la jonction est $R_n = 1.6 \times 10^{-4} \Omega$ et le gap du niobium est $\Delta_0 = 1.3$ meV pour une température de transition $T_c = 8.7$ K. En utilisant ces valeurs, la figure 4.42 présente la dépendance en température expérimentale sous la forme du produit $2eR_n I_c / \Delta_0$ en fonction du paramètre T/T_c . Avec le coefficient de diffusion $D \approx 5$ cm²/s et l'épaisseur $d_F = 18$ nm, on calcule l'énergie de Thouless $E_{Th} = \hbar D / d_F^2 = 1$ meV = $0.77 \Delta_0$. Pour que le modèle reproduise le courant critique négatif à température nulle et le changement de signe à $T^* = 4.3$ K = $0.49 T_c$, on choisit une énergie d'échange $E_{ex} = 6.4$ meV = $4.93 \Delta_0$. La figure 4.42 compare la courbe expérimentale à celle du modèle dont l'amplitude a due être fortement réduite d'un facteur 0.0033 pour être à peu près comparable à l'expérience.

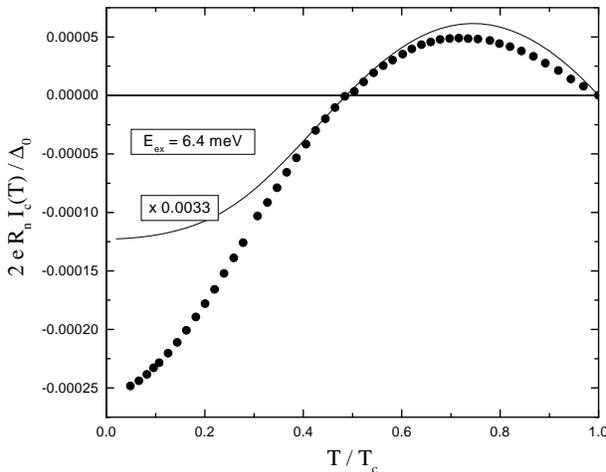


FIG. 4.42 – *Jonction G-C4* ($d_F = 18$ nm, $E_{Th} = 1$ meV = $0.77 \Delta_0$) comparée au modèle avec $E_{ex} = 6.4$ meV = $4.93 \Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.0033 (trait continu).

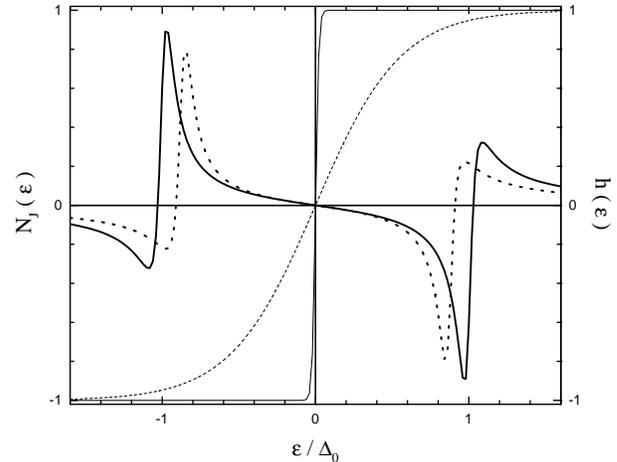


FIG. 4.43 – *Densité spectrale de supercourant* $N_J(\epsilon)$ (traits forts) et *fonctions de distribution* $h(\epsilon)$ (traits fins), à température nulle (trait continu) et à $T^* = 0.49 T_c$ (pointillés).

La figure 4.43 présente les densités spectrales de supercourant $N_J(\epsilon)$ à température nulle et à la température T^* , pour les paramètres de la figure 4.42, ainsi que les fonctions de distribution $h(\epsilon)$. La surface sous la courbe $N_J(\epsilon)$ est négative pour cette valeur de l'énergie d'échange, mais lorsqu'elle est multipliée par $h(\epsilon)$, elle devient égale à zéro à la température T^* , car les contributions négatives et positives sont égales. La réduction et le décalage de la densité spectrale correspondent au début de fermeture du gap entre 0 et T^* . Cette situation correspond aux graphes 2.13 et 2.14 obtenus pour $E_{Th} = \Delta_0$ et différentes énergies d'échange.

Mise à part la faible amplitude du courant critique sur laquelle nous reviendrons plus loin, une autre différence est la moindre saturation à basse température. Dans les jonctions Josephson relativement courtes, dont l'énergie de Thouless est du même ordre que le gap, le courant critique sature assez vite en-dessous de $0.2 T_c$ car le gap est saturé. Pour expliquer le fait que le courant critique ne sature pas (ou beaucoup moins vite), il faut qu'un paramètre

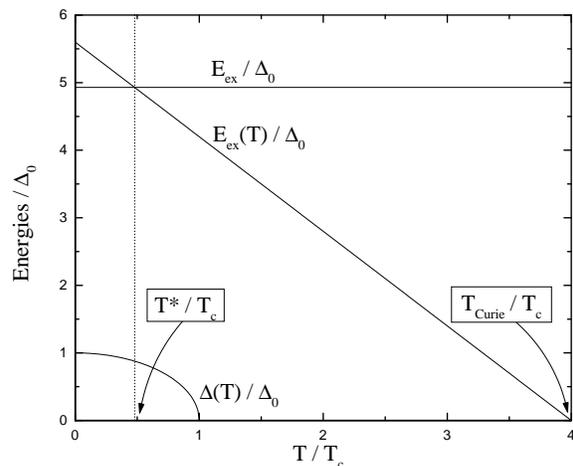
continue à dépendre de la température, ce qui peut être le cas de l'énergie d'échange.

4.7.2 Energie d'échange dépendante de la température

Les mesures d'aimantation sur les alliages massifs par Ahern et al. [2] montrent que le comportement en température change en fonction de la composition des alliages mesurés jusqu'à 52% de nickel. L'aimantation du nickel pur suit la loi de Stoner (2.37) des ferromagnétiques itinérants avec une saturation à basse température. Plus l'alliage cuivre-nickel est dilué, plus le comportement en température s'écarte de cette loi, avec une dépendance de plus en plus linéaire qui ne présente plus de région saturée à basse température.

De plus l'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ utilisé ici est encore moins riche en nickel et son comportement est plutôt celui d'un matériau super-paramagnétique, on peut donc penser que l'énergie d'échange locale sature encore moins vite. Bien que les courbes d'aimantation macroscopique ne reflètent pas exactement l'ordre magnétique local, on remarque qu'aucune des courbes mesurées (figures 4.5, 4.6 et 4.7) ne présente de signe de saturation jusqu'à 5 K. En se basant sur le comportement de la figure 4.7 d'une couche de cuivre-nickel de 20 nm dans les mêmes conditions que la jonction, nous allons supposer une dépendance linéaire de l'énergie d'échange avec la température. Les conséquences d'une dépendance $E_{ex}(T)$ ont été discutées lors de l'étude théorique du courant critique (voir les figures 2.15 et 2.16) et nous allons maintenant les appliquer à ces jonctions.

FIG. 4.44 – Dépendance en température de l'énergie d'échange $E_{ex}(T)$ permettant de reproduire le changement de signe du courant critique à $T^* = 0.49 T_c$ avec une température de Curie $T_{Curie} = 4 T_c$.



La figure 4.44 montre la dépendance linéaire $E_{ex}(T)$ qui suit la relation (2.38) avec $\alpha = 1$ et une température de Curie que l'on fixe à $T_{Curie} = 35 \text{ K} = 4 T_c$. L'énergie d'échange est ajustée à $E_{ex}(0) = 7.3 \text{ meV} = 5.6 \Delta_0$ pour obtenir un courant critique qui change de signe à la température $T^* = 0.49 T_c$ de la jonction G-C4 (l'énergie d'échange $E_{ex}(T^*) = 4.93 \Delta_0$ a alors la même valeur que précédemment). On obtient ainsi la courbe de la figure 4.48 qui ressemble à la précédente, sauf que la saturation à basse température est moins marquée et plus proche des valeurs expérimentales.

Les figures 4.45 à 4.50 montrent les 6 courbes de courant critique expérimentales comparées à celles obtenues avec ce modèle où l'énergie d'échange dépend de la température.

On fixe la température de Curie $T_{Curie} = 4T_c$ et on ajuste la valeur de l'énergie d'échange à température nulle $E_{ex}(0)$ autour de 7 meV afin de reproduire au mieux chaque comportement. Sans la forte dépendance en température $E_{ex}(T)$, les énergies d'échange $E_{ex}(0)$ obtenues pour chaque jonction seraient très différentes : elles diminueraient de plus en plus lorsque l'épaisseur augmente. Cette diminution est naturellement prise en compte avec la dépendance en température, puisque la valeur $E_{ex}(T^*)$ (qui détermine l'ajustement) diminue lorsque T^* augmente de 0 à T_c .

FIG. 4.45 – Jonction G-D9 ($d_F = 15$ nm, $E_{Th} = 1.43$ meV = $1.10\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 6.8$ meV = $5.2\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.0021.

FIG. 4.47 – Jonction G-C6 ($d_F = 17$ nm, $E_{Th} = 1.12$ meV = $0.86\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 7.2$ meV = $5.5\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.00145.

FIG. 4.49 – Jonction M-C6 ($d_F = 19$ nm, $E_{Th} = 0.90$ meV = $0.69\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 7.0$ meV = $5.35\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.00045.

FIG. 4.46 – Jonction M-C9 ($d_F = 16$ nm, $E_{Th} = 1.26$ meV = $0.97\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 6.8$ meV = $5.2\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.0012.

FIG. 4.48 – Jonction G-C4 ($d_F = 18$ nm, $E_{Th} = 1.00$ meV = $0.77\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 7.3$ meV = $5.6\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.001.

FIG. 4.50 – Jonction G-G7 ($d_F = 20$ nm, $E_{Th} = 0.81$ meV = $0.62\Delta_0$) comparée au modèle (trait continu) avec $E_{ex}(0) = 7.4$ meV = $5.7\Delta_0$ et une réduction d'un facteur 0.0006.

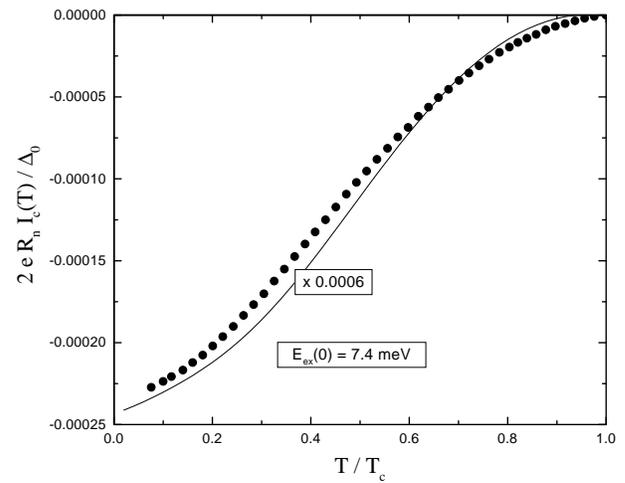
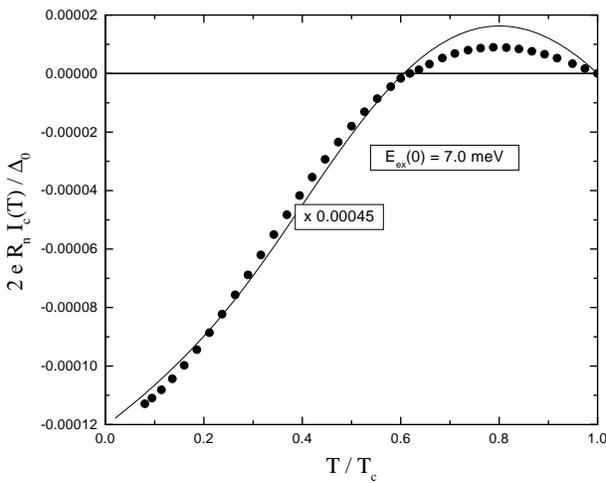
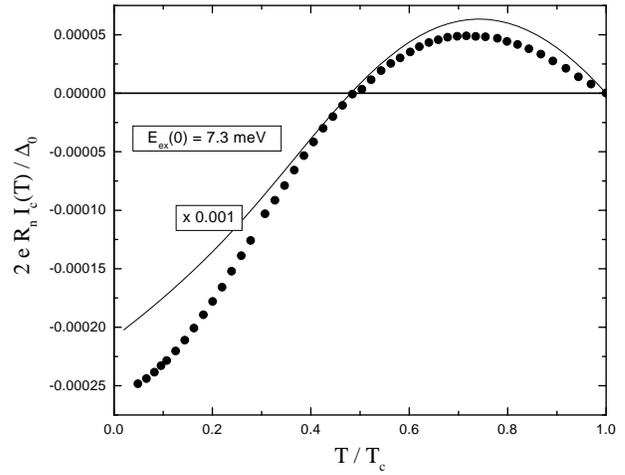
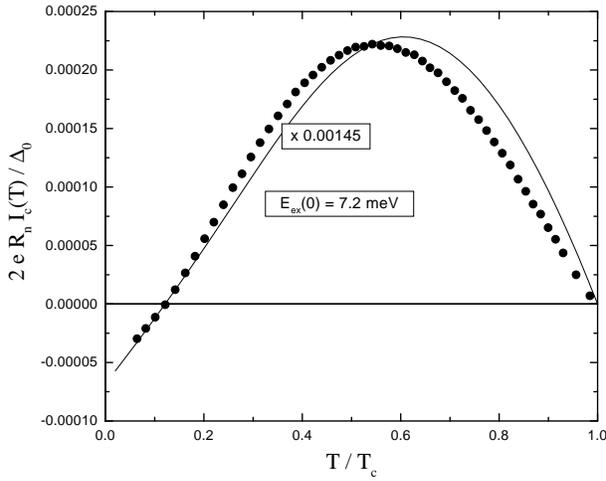
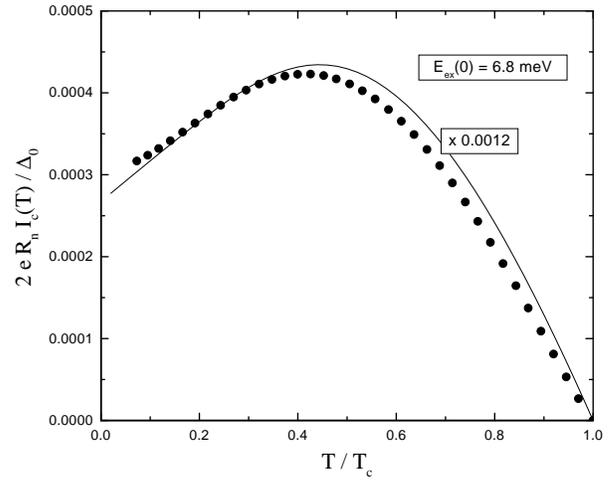
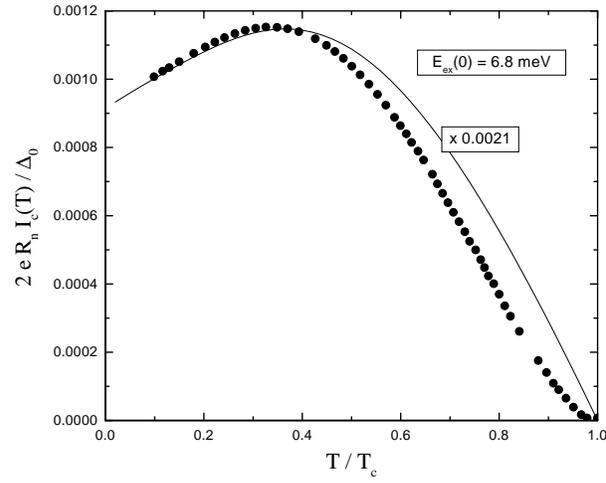
4.7.3 Discussion de l'amplitude du courant critique

L'amplitude $2eR_n I_c / \Delta_0$ donnée par le modèle doit toujours être réduite d'un facteur important autour de 0.001. Cette faible amplitude du courant critique justifie a priori une approximation du modèle qui est d'utiliser les équations d'Usadel linéarisées, valables lorsque l'amplitude des corrélations supraconductrices sont faibles. Ceci explique pourquoi on observe une annulation complète du courant critique à T^* , car la relation courant-phase obtenue dans les équations linéarisées est de la forme $I_s(\phi) = I_c \sin \phi$ avec un seul coefficient I_c qui varie continûment et s'annule à T^* . Si on regarde vraiment dans le détail et à basse température, on peut toutefois détecter un très faible courant critique résiduel sur la jonction G-C6 de $T^* = 1.1$ K montrant un petit écart à la forme sinusoïdale (voir la partie 4.4.1).

Pour expliquer la différence importante entre le modèle et les valeurs expérimentales, on peut alors considérer l'effet d'une transparence imparfaite de l'interface Nb/Cu₅₂Ni₄₈ qui réduirait le courant critique et qui n'a pas été prise en compte dans le modèle. De la valeur de la résistance normale $R_n = 1.6 \times 10^{-4} \Omega$ et de la résistance intrinsèque du cuivre-nickel $\rho_0 d_F / S = 1 \times 10^{-4} \Omega$, on peut estimer le paramètre de barrière $\Gamma_b = 0.3$. Comme on peut le voir avec l'expression (2.21) d'une jonction S/N/S, cette valeur réduit à peine le courant critique, en aucun cas d'un facteur 0.001.

Une inhomogénéité de l'épaisseur ou des propriétés magnétiques dans le plan de la jonction peut induire des différences de température à laquelle la densité surfacique de supercourant $j_c(T)$ change de signe. Lorsque le supercourant total $I_c(T) = \int j_c(T) dS$ s'annule à

4.7. COMPARAISON AVEC LE MODÈLE THÉORIQUE



la température T^* , les supercourants sont localement non-nuls mais de signe opposés et se compensent exactement. En effet l'intégrale sur $j_c(T)$ se fait en valeur algébrique et non en valeur absolue car tous les points de la jonction sont liés de façon cohérente par le supraconducteur. Quelle que soit la distribution des températures où les $j_c(T)$ s'annulent, il existe une valeur T^* à laquelle l'intégrale s'annule. Des fluctuations dans les propriétés de la barrière ne détruisent donc pas l'annulation du courant critique et son amplitude en dehors de T^* reflète la valeur moyenne de l'épaisseur ou des propriétés magnétiques. Des inhomogénéités ne peuvent donc pas être responsables du faible courant critique.

Dans la partie 3.4.5 sur la température de transition des multicouches Nb/Cu₄₆Ni₅₄, nous avons déjà discuté la possibilité d'un fort processus de diffusion spin-flip dans ces alliages cuivre-nickel faiblement ferromagnétiques voire super-paramagnétiques. Les moments magnétiques des atomes de nickel sont faiblement couplés entre eux de sorte qu'ils peuvent fluctuer sans que cela coûte trop d'énergie. Ils peuvent ainsi interagir avec le spin des paires d'Andreev qui perdent alors leur cohérence au bout d'une longueur caractéristique L_{sf} . Si cette longueur spin-flip est plus courte que l'épaisseur de la barrière, un grand nombre de paires d'Andreev qui auraient pu porter un supercourant sont détruites avant d'avoir eu le temps de traverser la jonction. Seules les paires qui survivent peuvent transporter le supercourant, dont l'amplitude est alors fortement réduite comme on l'observe expérimentalement. Ces paires qui traversent la barrière subissent le déphasage dû à l'énergie d'échange de sorte leur comportement est inchangé par rapport au cas sans diffusion spin-flip.

Pour tenir compte de ce processus spin-flip lors du calcul du supercourant, il faudrait ajouter un terme dans l'équation d'Usadel et recalculer la solution. Cependant en première approximation on peut qualitativement multiplier l'amplitude des corrélations supraconductrices au milieu de la barrière par un facteur $\exp(-(d_F/2)/L_{sf})$ qui traduit la destruction des paires d'Andreev sur la longueur caractéristique L_{sf} . Cette amplitude intervient au carré dans l'expression du supercourant (2.20), de sorte que le courant critique I_c est modifié par rapport à sa valeur idéale I_{c0} selon la relation :

$$I_c = I_{c0} e^{-d_F/L_{sf}} \quad (4.11)$$

La figure 4.51 de gauche montre en pointillés la dépendance en épaisseur du courant critique $I_{c0}(0)$ à température nulle et sans diffusion spin-flip, pour une énergie d'échange $E_{ex}(0) = 7.2$ meV correspondant à $\xi_F = 6.8$ nm. A cette échelle les 6 valeurs expérimentales entre 15 et 20 nm paraissent égales à zéro car elles sont mille fois plus petites. En utilisant l'expression (4.11) avec une longueur spin-flip $L_{sf} = 2.7$ nm, on obtient la courbe en trait continu qui semble s'annuler au-delà de 12 nm et passe par les points expérimentaux. En fait cette courbe contient la même dépendance en épaisseur que I_{c0} avec un changement de signe pour $d_F = 16.7$ nm, comme le montre la figure de droite qui est un très fort agrandissement de la région où se situe ce changement de signe.

La valeur $L_{sf} = 2.7$ nm permet de reproduire les valeurs expérimentales qui ont une incertitude d'environ 1 nm sur l'épaisseur et dont le courant critique n'est qu'une limite inférieure : on a choisi la plus grande des valeurs mesurées et l'ordre de grandeur des fluctuations permet d'estimer que la valeur maximale peut être supérieure d'un facteur deux. La longueur spin-flip obtenue est relativement petite, mais ceci n'est pas impossible compte-tenu du fait que l'alliage Cu₅₂Ni₄₈ utilisé ici est super-paramagnétique avec des moments faiblement couplés

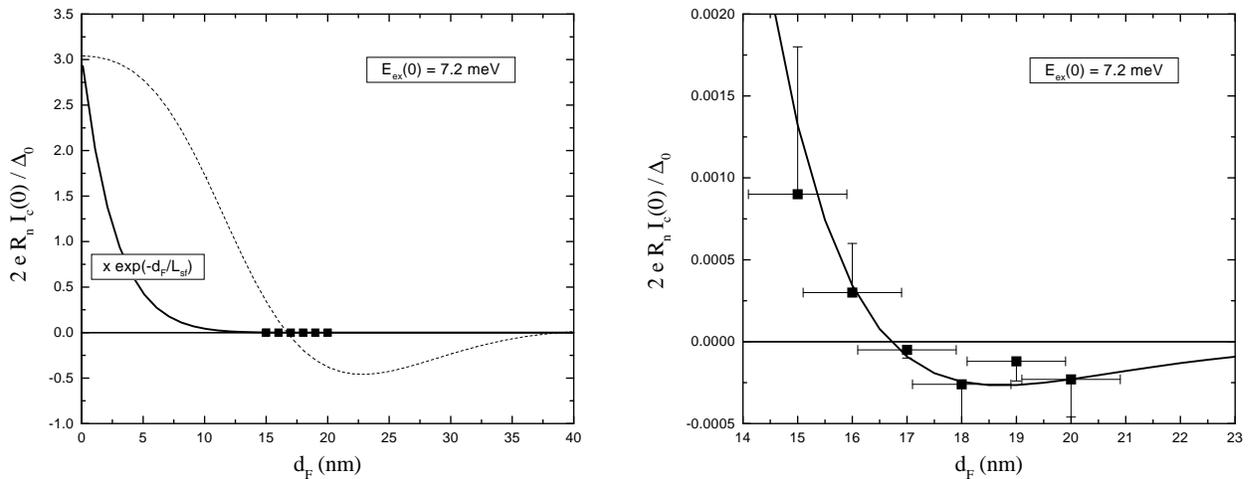


FIG. 4.51 – Courant critique à température nulle en fonction de l'épaisseur de cuivre-nickel pour une énergie d'échange $E_{ex}(0) = 7.2 \text{ meV}$. Courbe en pointillés : situation idéale. Courbe en trait continu : avec un processus de diffusion spin-flip sur une longueur $L_{sf} = 2.7 \text{ nm}$. Symboles : valeurs expérimentales des jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb. La figure de droite est un agrandissement autour de la région du changement de signe du courant critique.

entre eux. Par ailleurs L_{sf} a été mesurée à seulement 7.5 nm dans l'alliage Cu₇₇Ni₂₃ qui est pourtant non-magnétique, simplement à cause du couplage spin-orbite [52].

Cette forte décohérence doit affaiblir le gap du niobium à l'interface par effet de proximité inverse. Cet effet a été négligé dans le modèle dans lequel nous avons utilisé la valeur du gap $\Delta_0 = 1.3 \text{ meV}$ correspondant à la température de transition des électrodes. La relation de continuité à l'interface (2.14) permet d'estimer la réduction du gap sachant que le rapport des pentes de l'amplitude de paire est égal au rapport des résistivités. La décroissance se fait sur la longueur $\xi_S = 7.5 \text{ nm}$ côté niobium et $L_{sf} = 2.7 \text{ nm}$ côté cuivre-nickel, les résistivités valent respectivement $\rho_S = 8 \mu\Omega \text{ cm}$ et $\rho_F = 50 \mu\Omega \text{ cm}$. En appelant x le facteur de réduction, la relation de continuité dans le cas d'une transparence parfaite s'écrit $(1 - x)/x = (\xi_S \rho_S)/(L_{sf} \rho_F)$ et on obtient $x = 0.7$. Par conséquent même avec cette forte décohérence, le gap à l'interface $\Delta_0 = 0.9 \text{ meV}$ n'est pas tellement réduit et ce processus n'intervient que très partiellement dans l'origine du faible courant critique.

L'expression (4.11) indique que le courant critique de jonctions plus fines que celles mesurées deviendrait rapidement très grand : $I_c(0) = 250 \text{ mA}$ pour $d_F = 10 \text{ nm}$ et la même surface $\mathcal{S} = 100 \mu\text{m}^2$. Non seulement cette dépendance exponentielle avec l'épaisseur ne supprime pas le passage au courant critique négatif, mais il permet d'obtenir des valeurs autour de 1 mA au lieu de 1 A dans la gamme d'épaisseur où se situe le changement de signe.

Il est possible de tenir compte du spin-flip dans l'équation d'Usadel (2.3) en ajoutant un terme $+\gamma_{sf}G(\epsilon, r)F(\epsilon, r)$ dans le premier membre de l'équation. $\gamma_{sf} = \hbar/\tau_{sf}$ est le taux de diffusion spin-flip qui permet de calculer la longueur spin-flip $L_{sf} = \sqrt{D\tau_{sf}}$. Dans l'approximation des équations d'Usadel linéarisées, ce terme spin-flip peut être regroupé au terme contenant l'énergie sous la forme $-i(\epsilon + i\gamma_{sf})F(\epsilon, r)$. Il suffit alors de remplacer ϵ par $\epsilon + i\gamma_{sf}$

dans la densité spectrale de supercourant $N_J(\epsilon)$ donnée par la relation (2.25). Cette transformation ne doit être faite que dans le second terme provenant de la propagation des paires dans la région normale où a lieu la diffusion spin-flip (et non dans le premier terme qui provient des électrodes supraconductrices et dans lequel $\gamma \rightarrow 0^+$). En procédant de cette manière on retrouve une décroissance exponentielle du supercourant pour $d_F > L_{sf}$ et l'ajustement des valeurs expérimentales conduit à $L_{sf} = 2.5$ nm très proche des 2.7 nm obtenus à l'aide de la relation (4.11). Cependant l'énergie d'échange qui reproduit le changement de signe du supercourant vers $d_F = 17$ nm n'est plus de 7.2 meV mais de 20 meV. L'énergie d'échange et le spin-flip ne sont donc pas deux processus indépendants comme nous l'avions supposé avec la relation (4.11). Avec cette valeur plus grande de l'énergie d'échange, l'influence directe de la température sur le signe du supercourant devient plus faible et les variations en température de l'énergie d'échange $E_{ex}(T)$ prennent une part dominante dans l'origine des transitions $0-\pi$ observées en température.

4.7.4 Comparaison avec d'autres jonctions π

Jonctions Nb/CuNi/Nb

Au cours des trois dernières années d'autres groupes ont réussi à fabriquer des jonctions π dont celui de Valery Ryazanov à Chernogolovka en Russie avec des jonctions Nb/CuNi/Nb.

Un premier article [77] étudie les figures de diffraction sous champ magnétique en montrant le décalage produit par le champ magnétique de la couche de cuivre-nickel. Pour obtenir des figures centrées à zéro, l'échantillon doit être refroidi en champ nul de manière à ce que le cuivre-nickel soit désaimanté avec des domaines dans toutes les directions. Dans notre cas cette condition est toujours réalisée puisqu'il n'y a pas d'aimantation rémanente macroscopique, donc pas de champ créé par la couche.

Un second article [88] rapporte l'observation d'un comportement non-monotone du courant critique en fonction de la température. Ils l'ont attribué dans un premier temps à des variations de l'énergie d'échange car l'aimantation ne paraissait pas complètement saturée à basse température. Grâce à ces variations, le signe du supercourant peut être inversé dans une même jonction qui présente ainsi une transition $0-\pi$.

Par la suite [78], l'interprétation a été modifiée pour une dépendance en température de la longueur de cohérence $\xi_F(T)$ en faisant intervenir les fréquences de Matsubara [80] par l'effet habituel de la température sur le courant Josephson. Dans le modèle présenté dans la partie 2.3, nous avons préféré revenir au formalisme en énergie afin de mieux faire apparaître l'origine et le signe de la dépendance en température en parlant de la fonction de distribution des excitations thermiques qui réduisent la densité spectrale de supercourant à basse énergie.

Dans notre cas l'alliage $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$ étant très faiblement ferromagnétique nous avons dû ajouter la dépendance en température de l'énergie d'échange. Ceci n'est peut-être pas nécessaire pour les alliages $\text{Cu}_{48}\text{Ni}_{52}$, $\text{Cu}_{46}\text{Ni}_{54}$ et $\text{Cu}_{43}\text{Ni}_{57}$ que Ryazanov et ses collaborateurs ont utilisés, car ils sont plus riches en nickel, donc l'énergie d'échange doit moins dépendre de la température. L'amplitude des courants critiques qu'ils ont obtenus est beaucoup plus faible que la prédiction du modèle d'un facteur 10^{-5} , mais son origine n'a pas été discutée. Il est probable que la diffusion spin-flip que nous avons introduite soit également présente dans leurs jonctions.

Ce groupe a aussi effectué la mesure directe du signe négatif du supercourant en fabriquant un réseau frustré de cinq jonctions Nb/CuNi/Nb identiques [79]. Dans l'état π un courant spontané circule dans la boucle pour satisfaire la relation qui lie les différences de phase aux bornes de chaque jonction. Il en résulte un décalage d'un demi quantum de flux de la figure d'interférence sous champ magnétique lorsque la température passe d'un côté à l'autre de la transition $0-\pi$ à T^* . Le zéro de champ magnétique dans le réseau est connu précisément grâce à un écran supraconducteur qui est refroidi de manière à expulser le champ terrestre. Ceci permet de déterminer de manière absolue quelle est la figure d'interférence dont le courant critique est minimum en champ nul correspondant aux jonctions dans l'état π . Le résultat est conforme à l'interprétation qui avait été faite : les jonctions sont dans l'état π en-dessous de T^* et dans l'état 0 au-dessus.

Jonctions Nb/PdNi/Nb

Des jonctions π utilisant l'alliage palladium-nickel $\text{Pd}_{88}\text{Ni}_{12}$ ont été réalisées récemment par Marco Aprili et Takis Kontos [57]. Ce sont des jonctions Nb/Al/Al₂O₃/PdNi/Nb du type S/I/F/S où la barrière d'alumine permet de réduire le courant critique en augmentant la résistance. Le courant critique présente un comportement non-monotone en fonction de l'épaisseur de palladium-nickel et l'annulation observée pour $d_F = 6.5$ nm marque le passage des jonctions 0 aux jonctions π . Les figures de diffraction restent centrées à champ nul quelle que soit l'épaisseur, indiquant que l'aimantation ne modifie pas le courant critique.

Les produits $R_n I_c$ obtenus expérimentalement sont dans la gamme du microvolt et sont compatibles avec la prédiction théorique : il n'y a pas de réduction due à des processus de diffusion spin-flip contrairement au cas du cuivre-nickel. La nature magnétique des alliages est très différente car la concentration d'atomes de nickel nécessaire pour obtenir du ferromagnétisme est plus faible dans le cas du palladium facilement polarisable. Par ailleurs l'épaisseur critique au-delà de laquelle la jonction passe dans l'état π est plus courte dans le cas du palladium-nickel, donc les processus de diffusion spin-flip auraient moins d'influence.

Ces jonctions ne présentent pas de transition de l'état π vers l'état 0 en augmentant la température même pour des valeurs proches de l'épaisseur critique $d_F = 6.5$ nm, contrairement au cas du cuivre-nickel pour lequel le comportement non-monotone se manifeste sur une large gamme d'épaisseurs (entre 15 et 20 nm) de part et d'autre de la valeur critique $d_F = 16.7$ nm. La plus grande valeur de l'énergie d'échange dans le palladium-nickel réduit l'intervalle d'épaisseurs dans lequel la transition $0-\pi$ en température peut se produire. De plus la température de Curie de 100 K rend négligeables les variations de l'énergie d'échange qui favorisent la transition dans le cas du cuivre-nickel. Cependant il faut noter que cette transition $0-\pi$ en température a été observée par Ryazanov avec l'alliage $\text{Cu}_{43}\text{Ni}_{57}$ de température de Curie également autour de 100 K.

Ces jonctions π en palladium-nickel ont été testées dans des SQUIDS $0-\pi$ par Philippe Gandit et Wiebke Guichard [48] (en poursuivant un travail commencé avec Olivier Bourgeois [16, 15] sur les barrières en gadolinium). Contrairement aux réseaux de Ryazanov, il s'agit ici de SQUIDS classiques à deux jonctions, dont l'une est dans l'état 0 et l'autre dans l'état π . Les épaisseurs sont choisies de part et d'autre de la valeur critique de telle manière que les courants critiques soient égaux en valeur absolue. Pour satisfaire la relation

qui lie les différences de phase, un courant spontané apparaît dans l'anneau et décale la figure d'interférence d'un demi quantum de flux. Comme les jonctions Nb/PdNi/Nb n'ont pas de transition $0-\pi$ en température, le décalage est visualisé par la comparaison in situ d'un SQUID $0-\pi$ et d'un SQUID $0-0$ (ou encore d'un SQUID $\pi-\pi$). Cette expérience apporte la confirmation que la dépendance non-monotone en fonction de l'épaisseur de palladium-nickel correspond effectivement à l'obtention de jonctions π .

Conclusions et perspectives

Au cours de cette thèse, nous avons étudié l'effet de proximité inverse dans des multicouches $F_1/S/F_2$ où les deux couches ferromagnétiques sont métalliques et dont les aimantations peuvent être parallèles ou anti-parallèles. Les théories existantes prévoient une dépendance de la température de transition supraconductrice en fonction de la configuration des aimantations. Cependant aucune influence de l'orientation relative n'a été détectée expérimentalement, probablement à cause d'une épaisseur critique de supraconducteur trop grande qui ne permet pas de coupler les effets de proximité aux deux interfaces. Nous avons cherché à résoudre ce problème en remplaçant le cobalt par des alliages cuivre-nickel de plus en plus dilués pour réduire l'énergie d'échange. La présence d'un fort processus de décohérence par des diffusions spin-flip empêche d'abaisser l'épaisseur critique en-dessous d'une valeur limite de plusieurs fois la longueur de cohérence du supraconducteur. La poursuite de cette étude nécessiterait donc l'utilisation d'autres matériaux ferromagnétiques qui aient à la fois une grande longueur de cohérence pour la supraconductivité ξ_F et une longueur encore plus grande de diffusion spin-flip L_{sf} . Une difficulté est de trouver des matériaux dont l'aimantation reste saturée en champ nul et se retourne à des valeurs de champ magnétique qui puissent être différentes pour les deux couches. Ces propriétés pourront être obtenues en induisant une forte anisotropie de forme grâce à des structures lithographiées de petites dimensions.

La seconde partie de la thèse a été consacrée à l'étude des jonctions $Nb/Cu_{52}Ni_{48}/Nb$ en utilisant un alliage très faiblement ferromagnétique. Nous avons mis en évidence la présence de jonctions π grâce la dépendance non-monotone du courant critique en fonction de la température, le flux magnétique dans la jonction étant constant et proche de zéro. L'annulation du courant critique à la température T^* correspond à un changement de signe du supercourant avec passage de l'état fondamental $\phi_{gs} = 0$ à $\phi_{gs} = \pi$. Cette transition $0-\pi$ en température n'existe que si l'épaisseur de la barrière est comprise entre 17 et 19.5 nm. Les jonctions plus courtes et plus longues sont respectivement dans l'état 0 et dans l'état π à toute température entre 0 et T_c . Une étude de l'effet Josephson alternatif a été faite à la fois de manière indirecte en mesurant les marches de Shapiro dans la caractéristique tension-courant et de manière directe en mesurant les oscillations alternatives de la tension Josephson induites par une excitation au voisinage de l'état fondamental $\phi_{gs} = 0$ ou $\phi_{gs} = \pi$. Nous avons utilisé un modèle théorique approché, mais adapté aux jonctions étudiées, pour reproduire la transition $0-\pi$ en température en tenant compte des variations possibles de l'énergie d'échange. Les faibles valeurs du courant critique ne peuvent s'expliquer que si l'on ajoute au modèle un processus de décohérence important comme une diffusion spin-flip par les moments magnétiques faiblement couplés dans cet alliage de type super-paramagnétique.

Malgré la présence de ce processus, le supercourant qui subsiste est sensible à l'énergie d'échange et permet de coupler les deux supraconducteurs dans l'état 0 ou dans l'état π , suivant l'épaisseur et la température.

L'existence des jonctions π a été cherchée pendant longtemps via l'effet de proximité inverse dans les multicouches S/F en comparant une série d'échantillons d'épaisseur ferromagnétique croissante. L'évolution des propriétés magnétiques avec l'épaisseur rend incertains les résultats obtenus. On pourrait donc utiliser le système Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb pour refaire ce type d'étude en profitant de la transition 0- π qui donne une signature de la jonction π grâce à un seul échantillon. Dans ce cas ce n'est plus la température de transition qu'il faut étudier, mais le courant critique longitudinal de la tricouche en fonction de la température. Ce courant critique doit présenter un minimum à la température T^* lorsque la jonction passe de l'état 0 à l'état π car l'effet de proximité inverse qui affaiblit le paramètre d'ordre du supraconducteur est alors maximum. L'effet serait d'autant plus marqué que les épaisseurs des films supraconducteurs sont proches de la longueur de cohérence. Naturellement la température de transition de la tricouche est dans ces conditions fortement réduite, ce qui réduit la plage de température dans laquelle doit se trouver T^* . Ce projet a été commencé en mesurant le courant critique d'un fil de 10 μ m de large lithographié dans une tricouche Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb d'épaisseurs 16/19/16 nm. La température de transition vers 6 K indique l'influence de l'effet de proximité inverse. Le courant critique présente une singularité vers 4 K qui pourrait être attribuée à la transition 0- π , mais qui est cependant trop faible pour permettre de conclure. Si ce projet est poursuivi, le gradient d'épaisseur de cuivre-nickel présent sur une même plaque permettrait de fabriquer simultanément des tricouches dont l'une au moins doit présenter une température T^* même si la température de transition T_c est fortement réduite.

La jonction π dans les structures S/F/S nécessite une aimantation uniforme sur une région suffisamment grande pour que chaque paire traverse la barrière dans un champ d'échange constant. En utilisant un alliage au comportement super-paramagnétique, nous avons tout de même obtenu des jonctions π , signe que la direction de l'aimantation fluctue spatialement sur des distances supérieures à l'épaisseur de la barrière. Il serait intéressant de poursuivre l'étude des jonctions Nb/CuNi/Nb en réduisant progressivement la concentration en nickel pour explorer le régime où l'alliage devient paramagnétique. Lorsque la taille caractéristique des régions magnétiques devient plus petite que l'extension des paires, la jonction π devrait disparaître. Le transport du supercourant dans ces jonctions métalliques diffère en effet de l'effet tunnel dans les jonctions isolantes dopées en impuretés paramagnétiques pour lesquelles Bulaevskii et al. [18] ont prédit les premières jonctions π .

La mesure directe du signe négatif du supercourant ne peut se faire qu'en plaçant la jonction π à l'intérieur d'un SQUID de manière à faire circuler un courant spontané. Cette expérience a été réalisée par Ryazanov et al. [79] confirmant le signe négatif du supercourant dans la relation courant-phase de la jonction π . Dans ce type de SQUID DC on ne mesure pas directement le courant spontané, mais sa conséquence sur le courant critique au travers de l'anneau. Une expérience intéressante serait de fabriquer, au centre d'un SQUID standard, un SQUID AC (non connecté) de grande inductance et contenant une jonction présentant une transition 0- π en température. Le SQUID extérieur permettrait de mesurer directement le flux produit par le courant spontané dans l'état- π de la jonction. Contrairement aux mesures

de courant critique, cette technique sonde l'état fondamental du système. Le supercourant peut circuler dans un sens ou dans l'autre, voire être dans une superposition des deux directions si la barrière énergétique qui les sépare est suffisamment faible. Cette condition peut être réalisée en plaçant trois jonctions π dans l'anneau avec des courants critiques légèrement différents. Ce système permettrait ainsi d'étudier la cohérence quantique d'une superposition des deux états de courant, préparée et manipulée avec un champ magnétique, et mesurée avec un SQUID standard fabriqué autour de ce *quantum-bit*. Contrairement aux expériences récentes sur les qubits de phase qui sont frustrés par un champ magnétique extérieur [87], les qubits à base de jonctions π seraient intrinsèquement frustrés, ce qui supprimerait une partie de la décohérence apportée par le champ. D'un autre côté ce sont des jonctions métalliques, dans lesquelles le mini-gap est probablement trop faible pour empêcher la présence d'excitations thermiques contribuant à la décohérence. En tous cas, même si les jonctions π ne sont pas utilisées dans l'ordinateur quantique de demain, l'observation directe des courants spontanés et de la superposition quantique de deux états de courant dans les qubits π est un projet tout à fait passionnant.

Bibliographie

- [1] J. Aarts, J. M. E. Geers, E. Brück, A. A. Golubov, and R. Coehoorn, *Interface transparency of superconductor/ferromagnetic multilayers*, Phys. Rev. B **56** (1997), 2779.
- [2] S. A. Ahern, M. J. C. Martin, and W. Sucksmith, *The spontaneous magnetization of nickel+copper alloys*, Proc. Roy. Soc. (London) **248** (1958), 145.
- [3] A. F. Andreev, *The thermal conductivity of the intermediate state in superconductors*, Sov. Phys. JETP **19** (1964), 1228.
- [4] ———, *Electron spectrum of the intermediate state of superconductors*, Sov. Phys. JETP **22** (1966), 455.
- [5] A. Andreone, A. Cassinese, M. Iavarone, R. Vaglio, I. I. Kulik, and V. Palmieri, *Relation between normal-state and superconductive properties of niobium sputtered films*, Phys. Rev. B **52** (1995), 4473.
- [6] I. Baladié, A. Buzdin, N. Ryzhanova, and A. Vedyayev, *Interplay of superconductivity and magnetism in superconductor/ferromagnet structures*, Phys. Rev. B **63** (2001), 054518.
- [7] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, *Theory of superconductivity*, Phys. Rev. **108** (1957), 1175.
- [8] J. Bardeen and J. L. Johnson, *Josephson current flow in pure superconducting-normal-superconducting junctions*, Phys. Rev. B **5** (1972), 72.
- [9] J. J. A. Baselmans, A. F. Morpurgo, B. J. van Wees, and T. M. Klapwijk, *Reversing the direction of the supercurrent in a controllable Josephson junction*, Nature **397** (1999), 43.
- [10] J. J. A. Baselmans, B. J. van Wees, and T. M. Klapwijk, *Controlable π SQUID*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001), 2940.
- [11] C. W. J. Beenakker, *Why does a metal-superconductor junction have a resistance?*, cond-mat/9909293.
- [12] W. Belzig, C. Bruder, and G. Schön, *Local density of states in a dirty normal metal connected to a superconductor*, Phys. Rev. B **54** (1996), 9443.
- [13] W. Belzig, F. K. Wilhelm, C. Bruder, G. Schön, and A. D. Zaikin, *Quasiclassical Green's function approach to mesoscopic superconductivity*, Superlat. Microstruct. **25** (1999), 1251.
- [14] G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk, *Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions : excess current, charge imbalance, and supercurrent conversion*, Phys. Rev. B **25** (1982), 4515.

- [15] O. Bourgeois, *Mesures de transport sur des jonctions supraconducteur/composé magnétique*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier (Grenoble), 1999.
- [16] O. Bourgeois, P. Gandit, J. Lesueur, A. Sulpice, X. Grison, and J. Chaussy, *Josephson effect through a ferromagnetic layer*, *Europ. Phys. J. B* **21** (2001), 75.
- [17] F. Brouers, A. V. Vedyayev, and M. Giorgino, *Residual resistivity of concentrated ferromagnetic disordered alloys*, *Phys. Rev. B* **7** (1973), 380.
- [18] L. N. Bulaevskii, V. V. Kuzii, and A. A. Sobyenin, *Superconducting system with weak coupling to the current in the ground state*, *JETP Lett.* **25** (1977), 291.
- [19] A. Buzdin, *Density of states oscillations in a ferromagnetic metal in contact with a superconductor*, *Phys. Rev. B* **62** (2000), 11377.
- [20] A. I. Buzdin, L. N. Bulaevskii, and S. V. Panyukov, *Critical-current oscillations as a function of the exchange field and thickness of the ferromagnetic metal (F) in an S-F-S josephson junction*, *JETP Lett.* **35** (1982), 179.
- [21] A. I. Buzdin and M. Yu. Kupriyanov, *Josephson junction with a ferromagnetic layer*, *JETP Lett.* **53** (1991), 321.
- [22] A. I. Buzdin, A. V. Vedyayev, and N. V. Ryzhanova, *Spin-orientation-dependent superconductivity in F/S/F structures*, *Europhys. Lett.* **48** (1999), 686.
- [23] M. Cartier, *Vannes de spin et jonctions tunnel à base d'oxyde de nickel : les briques élémentaires d'un transistor magnétique*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier (Grenoble), 2000.
- [24] P. Charlat, H. Courtois, Ph. Gandit, D. Mailly, A. F. Volkov, and B. Pannetier, *Reentrance of the metallic conductance in a mesoscopic proximity superconductor*, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996), 4950.
- [25] J. Clarke, *Finite-voltage behavior of lead-copper-lead junctions*, *Phys. Rev. B* **4** (1971), 2963.
- [26] H. Courtois, P. Charlat, Ph. Gandit, D. Mailly, and B. Pannetier, *The spectral conductance of a proximity superconductor and the reentrance effect*, *J. Low Temp. Phys.* **116** (1999), 187.
- [27] H. Courtois, Ph. Gandit, D. Mailly, and B. Pannetier, *Long-range coherence in a mesoscopic metal near a superconducting interface*, *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996), 130.
- [28] H. Courtois, Ph. Gandit, and B. Pannetier, *Proximity-induced superconductivity in a narrow metallic wire*, *Phys. Rev. B* **52** (1995), 1162.
- [29] H. Courtois, Ph. Gandit, B. Pannetier, and D. Mailly, *Long-range coherence and mesoscopic transport in NS metallic structures*, *Superlat. Microstruct.* **25** (1999), 721.
- [30] P. G. de Gennes, *Boundary effects in superconductors*, *Rev. Mod. Phys.* **36** (1964), 225.
- [31] ———, *Coupling between ferromagnets through a superconducting layer*, *Phys. Lett.* **23** (1966), 10.
- [32] P.-G. de Gennes, *Superconductivity of metals and alloys*, Addison-Wesley, 1966.
- [33] M. J. M. de Jong and C. W. J. Beenakker, *Andreev reflection in ferromagnet-superconductor junctions*, *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995), 1657.

-
- [34] E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley, *Superconducting proximity effects in magnetic metals*, Phys. Rev. B **55** (1997), 15174.
- [35] G. Deutscher and D. Feinberg, *Coupling superconducting-ferromagnetic point contacts by Andreev reflections*, Appl. Phys. Lett. **76** (2000), 487.
- [36] G. Deutscher and F. Meunier, *Coupling between ferromagnetic layers through a superconductor*, Phys. Rev. Lett. **22** (1969), 395.
- [37] P. Dubos, H. Courtois, B. Pannetier, F. K. Wilhelm, A. D. Zaikin, and G. Schön, *Josephson critical current in a long mesoscopic SNS junction*, Phys. Rev. B **63** (2001), 064502.
- [38] G. Eilenberger, *Transformation of Gorkov's equation for type II superconductors into transport-like equations*, Z. Physik **214** (1968), 195.
- [39] G. Falci, D. Feinberg, and F. W. J. Hekking, *Correlated tunneling into a superconductor in a multiprobe hybrid structure*, Europhys. Lett. **54** (2001), 255.
- [40] Ya. V. Fominov, N. M. Chtchelkatchev, and A. A. Golubov, *Critical temperature of superconductor/ferromagnet bilayers*, JETP Lett. **74** (2001), 96.
- [41] ———, *Nonmonotonic critical temperature in superconductor/ferromagnet bilayers*, Phys. Rev. B **66** (2002), 014507.
- [42] A. Furusaki and M. Tsukada, *Current-carrying states in josephson junctions*, Phys. Rev. B **43** (1991), 10164.
- [43] N. N. Garif'yanov, Yu. V. Goryunov, Th. Mühge, L. Lazar, G. G. Khaliullin, K. Westerholt, I. A. Garifullin, and H. Zabel, *Proximity effect in Fe/Pb/Fe trilayers*, Europ. Phys. J. B **1** (1998), 405.
- [44] J. M. E. Geers, M. B. S. Hesselberth, and J. Aarts, *Depairing currents in the superconductor/ferromagnet proximity system Nb/Fe*, Phys. Rev. B **64** (2001), 094506.
- [45] A. A. Golubov, F. K. Wilhelm, and A. D. Zaikin, *Coherent charge transport in metallic proximity structures*, Phys. Rev. B **55** (1997), 1123.
- [46] L. P. Gor'kov, *On the energy spectrum of superconductors*, Sov. Phys. JETP **34** (1958), 505.
- [47] S. Guéron, H. Pothier, N. O. Birge, D. Esteve, and M. H. Devoret, *Superconducting proximity effect probed on a mesoscopic length scale*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 3025.
- [48] W. Guichard, Ph. Gandit, and M. Aprili, π SQUID, unpublished.
- [49] J. J. Hauser, *Coupling between ferrimagnetic insulators through a superconducting layer*, Phys. Rev. Lett. **23** (1969), 374.
- [50] T. T. Heikkilä, F. K. Wilhelm, and G. Schön, *Non-equilibrium supercurrent through mesoscopic ferromagnetic weak links*, Europhys. Lett. **51** (2000), 434.
- [51] T. J. Hicks, B. Rainford, J. S. Kouvel, G. G. Low, and J. B. Comly, *Giant moments in Ni-Cu alloys near the critical composition*, Phys. Rev. Lett. **22** (1969), 531.
- [52] S.-Y. Hsu, P. Holody, R. Loloee, J. M. Rittner, W. P. Pratt, and P. A. Schroeder, *Spin-diffusion lengths of $Cu_{1-x}Ni_x$ using current perpendicular to plane magnetoresistance measurements of magnetic multilayers*, Phys. Rev. B **54** (1996), 9027.

- [53] C. Ishii, *Josephson currents through junctions with normal metal barriers*, Progr. Theoret. Phys. **44** (1970), 1525.
- [54] X. Jehl, M. Sanquer, R. Calemczuk, and D. Mailly, *Detection of double shot noise in short normal metal/superconductor junctions*, Nature **405** (2000), 50.
- [55] J. S. Jiang, D. Davidović, D. H. Reich, and C. L. Chien, *Oscillatory superconducting transition temperature in Nb/Gd multilayers*, Phys. Rev. Lett. **74** (1995), 314.
- [56] B. D. Josephson, *Possible new effects in superconductive tunneling*, Phys. Lett. **1** (1962), 251.
- [57] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, F. Genêt, B. Stephanidis, and R. Boursier, *Ferromagnetic π -junctions*, cond-mat/0201104.
- [58] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, and X. Grison, *Inhomogeneous superconductivity induced in a ferromagnet by proximity effect*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 304.
- [59] I. O. Kulik, *Macroscopic quantization and the proximity effect in SNS junctions*, Sov. Phys. JETP **30** (1970), 944.
- [60] M. Yu. Kupriyanov and V. F. Lukichev, *Influence of boundary transparency on the critical current of dirty SS'S structures*, Sov. Phys. JETP **67** (1988), 1163.
- [61] K. Levin and D. L. Mills, *Contribution of giants spin clusters to the resistivity, neutron-scattering cross section, and specific heat in alloys : application to Ni-Cu*, Phys. Rev. B **9** (1974), 2354.
- [62] K. K. Likharev, *Superconducting weak links*, Rev. Mod. Phys. **51** (1979), 101.
- [63] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, *New magnetic anisotropy*, Phys. Rev. **105** (1957), 904.
- [64] M. S. M. Minhaj, S. Meepagala, J. T. Chen, and L. E. Wenger, *Thickness dependence on the superconducting properties of thin Nb films*, Phys. Rev. B **49** (1994), 15235.
- [65] R. Mélin, *Superconducting cross-correlations in ferromagnets : implications for thermodynamics and quantum transport*, J. Phys. : Condens. Matter **13** (2001), 6445.
- [66] Th. Mühge, N. N. Garif'yanov, Yu. V. Goryunov, G. G. Khaliullin, L. R. Tagirov, K. Westerholt, I. A. Garifullin, and H. Zabel, *Possible origin for oscillatory superconducting transition temperature in superconductor/ferromagnet multilayers*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 1857.
- [67] Yu. V. Nazarov and T. H. Stoof, *Diffusive conductors as andreev interferometers*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), 823.
- [68] Y. Obi, M. Ikebe, T. Kubo, and H. Fujimori, *Oscillation phenomenon of transition temperatures in Nb/Co and V/Co superconductor/ferromagnet multilayers*, Physica C **317** (1999), 149.
- [69] S. I. Park and T. H. Geballe, *t_c depression in thin Nb films*, Physica B **135** (1985), 108.
- [70] J. P. Perrier, B. Tissier, and R. Tournier, *Nearest-neighbor model of magnetism for copper-nickel alloys and clustering of magnetic moments*, Phys. Rev. Lett. **24** (1970), 313.

- [71] S. Pilgram, W. Belzig, and C. Bruder, *Excitation spectrum of mesoscopic proximity structures*, Phys. Rev. B **62** (2000), 12462.
- [72] Z. Radović, L. Dobrosavljević-Grujić, A. I. Buzdin, and J. R. Clem, *Upper critical fields of superconductor-ferromagnet multilayers*, Phys. Rev. B **38** (1988), 2388.
- [73] Z. Radović, L. Dobrosavljević-Grujić, and B. Vujičić, *Coexistence of stable and metastable 0 and π states in Josephson junctions*, Phys. Rev. B **63** (2001), 214512.
- [74] Z. Radović, M. L. and L. Dobrosavljević-Grujić, A. I. Buzdin, and J. R. Clem, *Transition temperatures of superconductor-ferromagnet superlattices*, Phys. Rev. B **44** (1991), 759.
- [75] C. G. Robbins, H. Claus, and P. A. Beck, *Magnetism in Ni-Cu alloys*, Phys. Rev. Lett. **22** (1969), 1307.
- [76] A. Rusanov, R. Boogaard, M. Hesselberth, H. Sellier, and J. Aarts, *Inhomogeneous superconductivity induced in a weak ferromagnet*, Physica C **369** (2002), 300.
- [77] V. V. Ryazanov, *Josephson superconductor-ferromagnet-superconductor π contact as an element of a quantum bit*, Phys. Usp. **42** (1999), 825.
- [78] V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. Yu. Rusanov, A. V. Veretennikov, A. A. Golubov, and J. Aarts, *Coupling of two superconductors through a ferromagnet : evidence for a π junction*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 2427.
- [79] V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. V. Veretennikov, and A. Yu. Rusanov, *Intrinsically frustrated superconducting array of superconductor-ferromagnet-superconductor π junctions*, Phys. Rev. B **65** (2001), 020501.
- [80] V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. V. Veretennikov, A. Yu. Rusanov, A. A. Golubov, and J. Aarts, *Coupling of two superconductors through a ferromagnet. SFS π -junctions and intrinsically-frustrated superconducting networks*, Usp. Fiz. Nauk **171** (2001), 81.
- [81] M. Schöck, C. Sürgers, and H. v. Löhneysen, *Superconducting and magnetic properties of Nb/Pd_{1-x}Fe_x/Nb triple layers*, Europ. Phys. J. B **14** (2000), 1.
- [82] C. Strunk, C. Sürgers, U. Paschen, and H. v. Löhneysen, *Superconductivity in layered Nb/Gd films*, Phys. Rev. B **49** (1994), 4053.
- [83] L. R. Tagirov, *Proximity effect and superconducting transition temperature in superconductor/ferromagnet sandwiches*, Physica C **307** (1998), 145.
- [84] ———, *Low-field superconducting spin switch based on a superconductor/ferromagnet multilayer*, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), 2058.
- [85] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity (2nd edn)*, McGraw Hill, New York, 1996.
- [86] K. D. Usadel, *Generalized diffusion equation for superconducting alloys*, Phys. Rev. Lett. **25** (1970), 507.
- [87] C. H. van der Wal, A. C. J. ter Haar, F. K. Wilhelm, R. N. Schouten, C. J. P. M. Harmans, T. P. Orlando, S. Lloyd, and J. E. Mooij, *Quantum superposition of macroscopic persistent-current states*, Science **290** (2000), 773.
- [88] A. V. Veretennikov, V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. Yu. Rusanov, V. A. Larkin, and J. Aarts, *Supercurrents through the superconductor-ferromagnet-superconductor (SFS) junctions*, Physica B **284** (2000), 495.

- [89] M. Vinet, C. Chapelier, and F. Lefloch, *Spatially resolved spectroscopy on superconducting proximity nanostructures*, Phys. Rev. B **63** (2001), 165420.
- [90] A. F. Volkov and H. Takayanagi, *Long-range phase-coherent effects in the transport properties of mesoscopic superconductor-normal metal structures*, Phys. Rev. B **56** (1997), 11184.
- [91] F. K. Wilhelm, G. Schön, and A. D. Zaikin, *Mesoscopic superconducting-normal metal-superconducting transistor*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), 1682.
- [92] D. X. Yang, H. D. Chopra, P. J. Chen, H. J. Brown, L. J. Swartzendruber, and W. F. Egelhoff, *Magnetization reversal in polycrystalline NiO-Co exchange anisotropy coupled bilayers*, J. Appl. Phys. **87** (2000), 4942.
- [93] S. K. Yip, *Magnetic field effect on the supercurrent of an SNS junction*, cond-mat/0002395.
- [94] ———, *Energy-resolved supercurrent between two superconductors*, Phys. Rev. B **58** (1998), 5803.
- [95] M. Zareyan, W. Belzig, and Yu. V. Nazarov, *Oscillations of andreev states in clean ferromagnetic films*, Phys. Rev. B **65** (2002), 184505.
- [96] F. Zhou, P. Charlat, B. Spivak, and B. Pannetier, *Density of states in superconductor-normal metal-superconductor junctions*, J. Low Temp. Phys. **110** (1998), 841.

Abstract

This work studies different aspects of the proximity effect between a superconductor (S) and a ferromagnetic metal (F).

In a normal metal confined between two superconducting electrodes, bound states appear and electron pairs (with opposite spins) can be transferred in a coherent way. The supercurrent carried by these states depends on the phase difference ϕ between the two superconductors. In an S/F/S junction, the ferromagnetic exchange energy modifies the bound states spectrum and can reverse the direction of the supercurrent (compared to the S/N/S case). The ground state phase difference is then $\phi = \pi$ (instead of $\phi = 0$) and the junction is called a π -junction. The 0 - π crossover can be observed as a function of the ferromagnetic thickness, but also as a function of the temperature if the exchange energy is not much larger than the superconducting gap. The 0 - π crossover is revealed by a non-monotonic dependence of the critical current versus temperature, as we experimentally observed in Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb junctions. To obtain this result, we used a very weakly ferromagnetic copper-nickel alloy near the super-paramagnetic limit. The critical current vanishes as a function of the temperature at a value T^* (less than T_c) : below T^* the junction is in the π -state, above T^* it is in the 0 -state. This behavior is independent of the magnetic field that produces diffraction patterns always centered at zero field. The alternative Josephson effect studied on both sides of the 0 - π crossover does not provide any difference between the two states. The dependence of the critical current with the ferromagnetic thickness and with temperature can be understood using the Usadel equations. This analysis suggests that a spin-flip diffusion process strongly reduces the critical current amplitude.

S/F bilayers also have bound states whose spectrum depends on the ferromagnetic exchange energy and thickness. The superconducting transition temperature exhibits oscillations as a function of these two parameters, because it is sensitive to the energy of these states via the inverse proximity effect. We measured a small signature of this effect in Nb/CuNi bilayers. In F₁/S/F₂ trilayers, similar to spin-valves, the transition temperature should theoretically depend on the relative direction of the ferromagnetic magnetizations. However we did not measure any difference neither in NiO/Co/Nb/Co nor in NiO/CuNi/Nb/CuNi multilayers, because the niobium thickness below which the superconductivity disappears is several times larger than the coherence length. This saturation of the critical thickness is attributed to a spin-flip process in this very dilute alloy.

Keywords

S/F/S π -junction	Andreev bound state
F ₁ /S/F ₂ spin-valve	Negative supercurrent
S/F bilayer	Alternative Josephson effect
Copper-nickel alloy	Inverse proximity effect

Résumé

Cette thèse étudie quelques aspects de l'effet de proximité entre un supraconducteur (S) et un métal ferromagnétique (F).

Dans un métal normal confiné entre deux électrodes supraconductrices, il se forme des états liés qui permettent le passage cohérent de paires d'électrons (de spins opposés). Le supercourant transporté par ces états dépend de la différence de phase ϕ entre les deux supraconducteurs. Dans le cas d'une jonction S/F/S, l'énergie d'échange ferromagnétique modifie le spectre des états liés et peut inverser la direction du supercourant (par rapport au cas S/N/S). En l'absence de courant, l'état fondamental a alors une différence de phase $\phi = \pi$ (au lieu de $\phi = 0$) et l'on parle de *jonction* π . La transition 0- π peut s'observer en fonction de l'épaisseur ferromagnétique, mais également en fonction de la température si l'énergie d'échange n'est pas beaucoup plus grande que le gap supraconducteur. Cette transition se caractérise par une dépendance non-monotone du courant critique avec la température, comportement que nous avons observé dans des jonctions Nb/Cu₅₂Ni₄₈/Nb. Dans ces jonctions la couche de cuivre-nickel est très faiblement ferromagnétique, voire super-paramagnétique. Le courant critique s'annule en fonction de la température à une valeur T^* (inférieure à T_c) : en-dessous de T^* la jonction est dans l'état π , au-dessus de T^* elle est dans l'état 0. L'annulation est indépendante du champ magnétique qui produit une figure de diffraction toujours centrée en champ nul. L'effet Josephson alternatif étudié de part et d'autre de la transition 0- π ne montre pas de différence entre les deux états. L'évolution du courant critique avec l'épaisseur ferromagnétique et la température peut être modélisée à partir des équations d'Usadel. Cette analyse suggère la présence d'un processus de diffusion spin-flip qui réduit fortement l'amplitude du courant critique.

Les bicouches S/F présentent également des états liés dont le spectre est fonction de l'énergie d'échange et de l'épaisseur ferromagnétique. La température de transition supraconductrice présente des oscillations en fonction de ces deux paramètres, car elle est sensible à la position de ces états via l'effet de proximité inverse. Nous avons pu mesurer une faible signature de cet effet dans des bicouches Nb/CuNi. Dans les tricouches F₁/S/F₂, de type vanne de spin, la température de transition doit en théorie dépendre de l'orientation relative des aimantations ferromagnétiques. Cependant nous n'avons mesuré aucune différence dans des multicouches NiO/Co/Nb/Co, puis NiO/CuNi/Nb/CuNi, car l'épaisseur de niobium en-dessous de laquelle la supraconductivité disparaît reste plusieurs fois supérieure à la longueur de cohérence. Cette saturation de l'épaisseur critique est attribuée à un fort processus de diffusion spin-flip dans cet alliage très dilué.

Mots clés

Jonction π S/F/S	Etat lié d'Andreev
Vanne de spin F ₁ /S/F ₂	Supercourant négatif
Bicouche S/F	Effet Josephson alternatif
Alliage cuivre-nickel	Effet de proximité inverse