



HAL
open science

Etude de l'aimantation irréversible, de la densité de courant critique et de la susceptibilité dans les nouveaux supraconducteurs

Abdelaziz Ramzi

► **To cite this version:**

Abdelaziz Ramzi. Etude de l'aimantation irréversible, de la densité de courant critique et de la susceptibilité dans les nouveaux supraconducteurs. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Faculté des Sciences d'Agadir, 2006. Français. NNT: . tel-00106405

HAL Id: tel-00106405

<https://theses.hal.science/tel-00106405>

Submitted on 15 Oct 2006

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

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



Thèse

Présentée à la

FACULTE DES SCIENCES D'AGADIR

Pour l'obtention du titre de Docteur

UFR : Contrôle, Mesure, Caractérisation et Modélisation
Spécialité : Sciences et Génie des Matériaux

Etude de l'aimantation irréversible, de la densité de courant critique et de la susceptibilité dans les nouveaux supraconducteurs

Par

Abdelaziz RAMZI

Soutenue le 16 mai 2006 devant la commission d'examen :

A. QACHAOU, PES, Faculté des Sciences, Université Ibn Tofail, Kenitra	Président
A. TAOUFIK, PES, Faculté des Sciences, Université Ibn Zohr, Agadir	Directeur de Thèse
Ch. SIMON, DR, Laboratoire CRISMAT, CNRS-ENSICAEN, Caen, France	Rapporteur
A. BENYOUSSEF, PES, membre de l'Académie Hassan II des Sciences et Techniques	Rapporteur
A. NAFIDI, PES, Faculté des Sciences, Université Ibn Zohr, Agadir	Rapporteur
F. PESTY, DR, LPS, Université Paris Sud 11, Orsay, France	Examineur
M. BENSALAM, PES, Facultés des Sciences de Bizerte, Zarzouna, Tunisie	Examineur
H. DARHMAOUI, PES, School of Science & Engineering, Al Akhawayn University, Ifrane	Examineur

Je dédie ce travail

à mes chers parents,
à mes sœurs,
à mes beaux-frères,
à leurs enfants,
et à mes amis...

Remerciement

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse le Professeur Ahmed TAOUFIK, qui m'a accueilli dans l'Equipe des Matériaux Supraconducteurs à Haute Température Critique, Faculté des Sciences, Université Ibn Zohr d'Agadir, durant cette thèse et il a toujours su me faire profiter de sa grande expérience, me prodiguant avis et conseils.

Ce travail a été réalisé en collaboration avec Monsieur Sadok SENOUSSE, directeur de recherche, Équipe de Structures Artificielles et auto-organisation du Laboratoire de Physique des Solides de l'Université Paris-Sud Orsay, dans le cadre du Programme International de Coopération Scientifique « PICS Réf. M/1132.02 du 22/01/02 ». Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur Sadok SENOUSSE pour les orientations judicieuses qu'il a su me donner tout au long de mon stage au sein de son laboratoire.

Je remercie également chaleureusement les membres du jury qui ont accepté de juger ce travail : le professeur Ahmed QACHAOU de l'Université Ibn Tofail, Kenitra ; pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury ; les professeurs Charles SIMON, de l'université de Caen, France, Abdelillah BENYOUSSEF de l'Université Mohammed V, Rabat et membre de l'Académie Hassan II des Sciences et Techniques, Abdelhakim NAFIDI de l'Université Ibn Zohr, Agadir pour avoir rapporté ce travail ; Les professeurs François PESTY du Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Orsay France, Mohamed BENSALAM de l'université Zarzouna, Tunisie et Hassan DARHMAOUI de l'université Al Akhawayn, Ifrane pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Je ne peux oublier le soutien moral et financier de MA FAMILLE, sans eux, ce travail n'aurait pas pu voir le jour, je tiens à leur exprimer mes sentiments de gratitude.

Je suis particulièrement reconnaissant pour le Professeur Ali MOUDDEN, Directeur de l'École Supérieure de Technologie d'Agadir et Responsable de UFR "Contrôle, Mesure, Caractérisation et Modélisation". Qui a offert des meilleures conditions à cette UFR avec beaucoup d'enthousiasme.

J'exprime toute ma gratitude au Professeur Bouchta HLIMI, de l'Université Ibn Zohr d'Agadir, qui n'a cessé pendant ces ans de thèse de me faire partager ces compétences expertes.

Je tiens également à remercier le Professeur Ahmed TIRBIYINE de Centre Polydisciplinaire Safi et membre de l'Equipe des Matériaux Supraconducteurs à Haute Température Critique, pour son aide et ses conseils.

Ensuite, le travail présenté recouvre celui de plusieurs thésards du groupe, ce mémoire est aussi le fruit de leur travail : Abella BOUAADDI, Mustapha BGHOUR, Abdelaziz LABRAG, Abdellah ABARAGH. Je tiens à leur exprimer mes remerciements.

Je remercie enfin tout le personnel technique et administratif de la faculté des sciences d'Agadir, du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay et tous ceux qui par des actes directs, ou non, ont permis de réaliser ce travail.

TABLE DE MATIERES

INTRODUCTION	1
Références	5
CHAPITRE I : GENERALITE	6
1. Chronologie	7
2. Propriétés physiques des supraconducteurs	10
2.1. Effet Meissner et classification	10
2.1.1. Effet Meissner	10
2.1.2. Supraconducteurs de type I	11
2.1.3. Supraconducteurs de type II	12
2.2. Effet isotopique	13
3. Modèles phénoménologiques.....	13
3.1. Modèle de Ginzburg-Landau	13
3.1.1. Longueurs caractéristiques	15
3.1.1.a. Longueur de pénétration $\lambda(T)$	15
3.1.1.b. Longueur de cohérence $\xi(T)$	16
3.1.2. Tension de surface entre les phases supraconductrice et normale	17
3.2. Théorie d'Abrikosov de l'état mixte des SHTC	17
3.3. Modèle de London	20
3.4. Théorie de BCS	22
4. Supraconducteurs anisotropes.....	23
4.1. Modèle de Ginzburg-Landau anisotrope	23
4.2. Anisotropie des longueurs caractéristiques	23
4.3. Anisotropie des champs critiques H_{c1} et H_{c2}	25
5. Supraconducteurs en couches	26
5.1. Effet Josephson	26
5.2. Modèle de Lawrence-Doniach	27
5.3. Description du réseau de vortex	28
6. Dynamique des vortex	29
6.1. Force de Lorentz et écoulement du flux	29
6.2. Force de piégeage et fluage du flux	30
7. Conclusion	31
Références	32
CHAPITRE II : APPAREILLAGE ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES	33
1. Introduction.....	34
2. Mesures Magnétique.....	35
2.1. Cryostat	35
2.2. Anticryostat	35
2.3. Bobines de détection (ou ‘pick-up’)	37
2.4. Vibreur	40
2.5. Canne porte-échantillon	41

2.6. Chaîne de mesure.....	43
2.6.1. Alimentation de la bobine supraconductrice	43
2.6.2. Détection synchrone.....	43
2.6.3. Régulation de température.....	45
2.6.4. Enregistrement d'un cycle	45
2.6.5. Dispositif d'enregistrement	47
2.7. Calibrage du magnétomètre à échantillon vibrant	48
3. Mesures de transport.....	49
4. Magnétomètres à SQUID	52
4.1. Jonction Josephson et magnétisme	52
4.2. SQUID	52
4.3. Dispositif de mesure	53
Référence	55
CHAPITRE III : MATERIAUX ETUDIÉS	56
5. Introduction.....	57
6. Structure cristallographique des composés YBaCuO.....	57
6.1. Structure Orthorhombique	59
6.2. Structure quadratique.....	60
7. Structure cristallographique des composés LaSrCuO.....	61
8. Structure cristallographique des composés organiques κ-(BEDT-TTF)₂X.....	63
9. Caractéristiques des échantillons étudiés.....	65
9.1. Films minces d'YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}	65
9.2. Monocristal d'YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}	66
9.3. Monocristal de La _{2-x} Sr _x CuO ₄ ($x = 15\%$)	66
9.4. Monocristal κ -(BEDT-TTF) ₂ Cu[N(CN) ₂]Br	66
Références.....	67
CHAPITRE IV : DENSITE DE COURANT CRITIQUE PAR LES MESURES MAGNETIQUES	68
1. Introduction.....	69
2. Les cycles d'hystérésis.....	69
2.1. Trace d'un cycle d'hystérésis.....	69
2.2. Qu'est-ce qu'un cycle d'aimantation ?.....	70
3. Modèle de Bean	71
3.1. Hypothèse du modèle	71
3.2. Densité de courant critique	72
3.3. Equations du cycle d'hystérésis	72
3.3.1. Etat critique	72
3.3.2. Première aimantation M_{vg}	73
3.3.3. Les branches M^{\pm} du cycle.....	74
3.3.4. Courbe de renversement du champ M_{rj}	75
3.3.5. Cycle d'hystérésis de Bean	75
4. Modèle de Bean étendu.....	76

4.1. Définitions des différentes densités de courant critique	76
4.2. Effet couplé de l'anisotropie et de la forme de l'échantillon	78
4.3. Prise en compte de la variation de la densité de courant en fonction du champ magnétique.....	79
5. Résultats expérimentaux	83
5.1. Cyclographie.....	83
5.1.1. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	83
5.1.1.a. Champ parallèle à l'axe c	83
5.1.1.b. Champ parallèle aux plans ab	88
5.1.2. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	88
5.1.2.a. Champ parallèle à l'axe c	88
5.1.2.b. Champ parallèle aux plans ab	90
5.2. Densité de courant critique	91
5.2.1. Dépendance en champ de la densité de courant critique	92
5.2.1.a. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	93
5.2.1.b. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	94
5.2.2. Dépendance en température de la densité de courant critique.....	96
5.2.2.a. Limite théorique : courant de dépairage.....	96
5.2.2.b. Cas des supraconducteurs classiques	96
5.2.2.c. Cas des SHTC.....	97
5.2.2.c.i. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	97
5.2.2.c.ii. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	100
5.3. Conclusion	100
Références.....	102

CHAPITRE V : DENSITE DE COURANT CRITIQUE PAR LES MESURES DE TRANSPORT.....103

1. Introduction.....	104
2. Caractéristiques $E(J)$.....	104
3. Modèle de flux creep dans SHTC	105
3.1. Formulation générale.....	105
3.2. Application au flux creep.....	106
3.3. Détermination de la densité de courant critique à partir des $E(J)$	109
4. Résultats expérimentaux	110
4.1. Caractéristiques $E-J$ des films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	110
4.2. Variations du produit de volume des bandes de vortex et leur longueur de saut.....	111
4.3. Diagramme de phase.....	115
4.4. Transition de phase verre-liquide dans le réseau de vortex	117
4.4.1. Introduction	117
4.4.2. Théorie du verre de vortex	118
4.4.3. Résultats expérimentaux et discussions.....	119
4.5. Densité de courant critique	122
4.5.1. Dépendance en champ de la densité de courant critique $J_c(H)$	122
4.5.2. Dépendance en température de la densité de courant critique $J_c(T)$	123
4.5.3. Mécanismes limitant la densité du courant critique	124
4.5.3.a. Mécanisme de dépairage.....	124
4.5.3.b. Mécanisme de désancrage.....	125
4.5.3.c. Mécanisme de découplage ou faible couplage.....	126
4.6. Conclusion	126
Référence	127

**CHAPITRE VI : INFLUENCE DE LA TRANSITION VITREUSE SUR LA
SUPRACONDUCTIVITE GRANULAIRE DANS LES MATERIAUX
ORGANIQUES.....128**

1. Propriétés des κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br.....	129
2. Modèle granulaire :.....	130
3. Résultats expérimentaux	131
3.1. Céramiques frittées à haut T_c	131
3.2. Supraconducteurs organiques	135
4. Conclusion	143
Référence	144

CONCLUSION GENERALE.....145

ANNEXE : PRINCIPAUX SYSTEMES D'UNITE EN MAGNETISME148

Trois systèmes d'unités principaux	149
Unités CGS UEM pratiques	150
Principales unités dans les différents systèmes et conversion des formules	150

RÉSUMÉ152

Introduction

Le phénomène de la supraconductivité a été découvert en 1911 quand H.K. Onnes [1] a mis en évidence la chute de la résistivité du mercure à la température critique $T_c = 2.4$ K. Depuis cet événement, l'un des principaux buts de la recherche dans le domaine de la supraconductivité a toujours été d'atteindre des températures critiques de plus en plus élevées. Le point de vue dominant, était que la température critique T_c ne devrait pas dépasser le record de 23.3 K observé dans $K(Nb_3Ge)$ [2].

La découverte de la supraconductivité à haute température critique (dénomé SHTC) [3] et la supraconductivité des composés organiques [4] ont fait reculer cette limite qui était jugée insurmontable dans le cadre de la théorie BCS: La température de transition de l'état supraconducteur à l'état normal ou température critique T_c . L'hypothèse de l'interaction électron-phonon dans le cadre de cette théorie avait conduit à prédire une limite de $\approx 23-30$ K pour T_c . Ces découvertes qui se sont succédées dans un laps de temps relativement court ont fait naître beaucoup d'espoirs pour leurs applications pratiques et suscité de très nombreux travaux théoriques et expérimentaux.

Les applications de la supraconductivité à basse température critique nécessitent l'emploi de l'hélium liquide qui est rare donc cher. A cette rareté de l'hélium s'ajoute, du fait de sa très basse température d'ébullition (4.2 K), la difficulté de le stocker et de le transporter. Les équipements utilisés pour cela nécessitent une technologie encore très coûteuse. La possibilité d'avoir des matériaux supraconducteurs à une température supérieure à celle d'ébullition de l'azote liquide (77.7 K) ouvre donc des perspectives d'applications dont les implications technologiques et économiques seraient importantes. Ces applications touchent des domaines très variés comme :

- ✓ L'imagerie par résonance magnétique (I.R.M.) : utilisé dans le domaine Médical.
- ✓ Les aimants pour la recherche : qui génèrent plusieurs Teslas.
- ✓ Les tokamaks : L'électricité d'origine nucléaire actuellement produite provient de la fission de noyaux d'atomes.
- ✓ Le stockage de l'électricité sous forme magnétique.
- ✓ Transport : les trains à lévitation magnétique et bateau à propulsion MHD (la magnétohydrodynamique)

Depuis la découverte de ces nouveaux supraconducteurs (organiques et céramiques), que nous citerons désormais par leurs initiales SHTC, un nombre important de travaux a été consacré à l'étude de leur densité de courant critique et au problème plus général de

l'interaction entre le réseau de vortex et les défauts de structure dans le matériau. Un grand progrès a été accompli pour la compréhension de ces problèmes mais beaucoup de points fondamentaux n'ont pas encore été éclaircis et sont encore l'objet de recherches poussées. Certains de ces problèmes concernent l'effet de l'orientation du champ appliqué par rapport aux axes cristallographiques sur la densité de courant critique et sur l'aimantation associés. Ainsi que la variation de la susceptibilité à champ alternatif. Qui font l'objet de cette thèse. Beaucoup de données expérimentales (particulièrement les mesures d'aimantation) sont analysées dans le cadre du modèle de Bean [4, 5] qui propose l'hypothèse d'une densité de courant critique constante à l'intérieur de l'échantillon, donc indépendante du champ appliqué et du champ induit par le courant.

Le travail de cette thèse est consacré à l'étude des courants critiques et de l'ancrage des vortex par l'intermédiaire de mesures d'aimantation et de mesures de caractéristique $E(J)$ dans des échantillons SHTC. Les mesures d'aimantation ont été faites en utilisant un magnétomètre à échantillon vibrant. Les matériaux étudiés sont l' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et le $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ sous forme de monocristaux. Les mesures de caractéristique $E(J)$ ont été faites en utilisant la méthode de courant pulsé. Les matériaux étudiés sont l' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ sous forme de films minces. Enfin, le magnétomètre à SQUID a été utilisé pour les mesures d'aimantation et de susceptibilité dans les composés organiques. Nous avons concentré nos efforts d'un part à l'étude des courants critiques et des susceptibilités en fonction du champ, de la température, et, d'autre part, à l'anisotropie de l'ancrage des vortex dans les échantillons. Le manuscrit présente des modèles phénoménologiques qui permet de calculer des cycles d'hystérésis et des caractéristiques $E(J)$ qui correspondent assez bien aux résultats que nous présentons et met en évidence la dépendance entre les courants critiques et la température d'un part, et le champ magnétique d'autre part.

Dans ce qui suit la structure du manuscrit :

Le chapitre I est consacré aux généralités théoriques sur les notions fondamentales liées aux matériaux supraconducteurs. A partir de ces modèles, nous insisterons sur quelques propriétés physiques importants, essentiellement celles dont nous aurons besoin dans la suite.

Dans Le chapitre II, nous présentons l'appareillage utilisé et les techniques de mesures expérimentales. Comme ce type d'appareillage est peu commun, nous avons insisté aussi bien sur l'aspect descriptif que sur les problèmes que l'on rencontre en utilisant un tel appareillage.

Le chapitre III est consacré à la description de la structure cristalline et les valeurs des différentes constantes fondamentales des nouveaux matériaux y sont exposées.

Le regroupement de mesure des cycles d'hystérésis pour déduire la variation de l'aimantation irréversible, ainsi la densité de courant critique associé avec la température et en fonction de l'angle entre le champ appliqué et l'axe cristallographique \vec{c} , dans le cadre de modèle de Bean, seront traités au chapitre IV.

Dans le chapitre V, nous regroupons l'ensemble des résultats de mesure des caractéristiques $E(J)$ par la méthode du courant pulsé, et la variation de la densité de courant critique déduite de ces mesures. Ainsi des informations obtenues sur les mécanismes d'ancrage des vortex dans les échantillons d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ sont analysées dans le cadre des modèles de flux Creep et du verre vortex.

Dans le dernier chapitre, nous étudions la variation de la susceptibilité magnétique ac et de l'aimantation dc de la phase supraconductrice d'un composé organique. Nous avons exécuté une série de traitements thermiques sur le monocristal $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$. Le recuit de l'échantillon se fait à l'intérieur du cryostat du SQUID à différentes températures fixes. Les résultats sont traités dans le cadre d'un modèle granulaire.

Une synthèse des résultats est alors faite et les perspectives des développements futurs sont proposées dans ce qui est la conclusion générale de cette thèse.

Références

- [1] H. Kamerlingh Onnes, *Leiden comm.*, **122** (1911) 124 c.
- [2] J. Bardeen, L. Cooper, J.R. Schneiffer, *Phys. Rev.*, **108** (1957) 1175.
- [3] J.G. Bednorz, K.A. Müller, *Z. Phys B : cond. mat.* **64** (1986) 189.
- [4] D. Jérôme, M. Ribault, A. Mazaud, *J. Phys. Lett.* **41** (1980) L95.
- [5] C.P. Bean, J.D. Livingston *Phys. Rev. Lett.* **12** (1964) 14.
- [6] C.P. Bean, *Rev. Mod. Phys.* **36** (1964) 31.

Chapitre I

Généralité

1. Chronologie

L'étude et l'histoire de la supraconductivité sont intéressantes à plus d'un titre. Elle a été découverte dès 1911 par le laboratoire du physicien hollandais Heike Kamerlingh Onnes [1] en mettant en évidence l'absence de toute résistivité électrique. En effet, une étude faite sur le mercure a montré une chute brutale de la résistance à 4.2 K (figure I. 1) ce qui signifiait une électricité parfaite d'où le nom de supraconducteur. Ce même laboratoire accumulait les succès: trois années auparavant, la première liquéfaction de l'hélium atteignant alors la plus basse des températures connues. En 1914, Onnes a aussi observé que l'on peut faire disparaître les propriétés de supraconductivité par application d'un champ magnétique. En 1933, Meissner et Oschenfeld [2] observent l'expulsion totale du flux magnétique d'un cylindre supraconducteur en dessous d'une température critique T_c (température au-dessous de laquelle le matériau est supraconducteur).

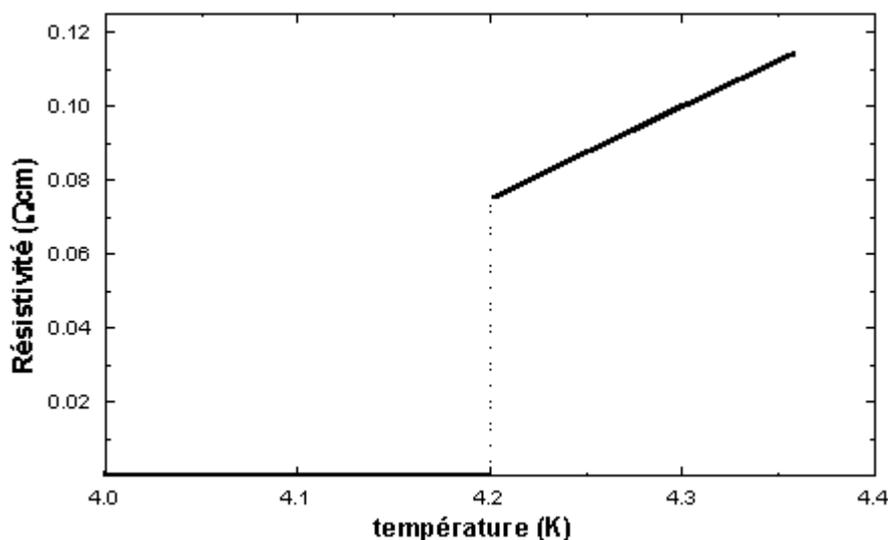


Figure I. 1 : Variation de la résistivité en fonction de la température (Cas du mercure).

La figure I. 2 représente la découverte des matériaux supraconducteurs au fil des années. Les études ont été faites sur les éléments simples, et notamment sur les métaux qui se présentaient comme les meilleurs candidats. Malheureusement, tous les éléments

n'étaient pas supraconducteurs, et, plus étonnant encore, les meilleurs métaux (cuivre, or, argent) ne présentaient aucune trace de supraconductivité. L'élément simple possédant la plus grande T_c , étant le niobium avec 9.2 K, on chercha alors à obtenir des alliages à base de niobium. En l'absence de théorie pour ce nouveau phénomène, les chercheurs partaient à l'aventure en jonglant avec les éléments et le tâtonnement était la règle. En travaillant avec des proportions adéquates des éléments simples supraconducteurs, les chercheurs espéraient trouver un alliage à plus haute T_c . Mais la chance ne fut pas toujours de la partie. L'échantillon obtenu pouvait soit ne pas être supraconducteur, soit l'être, mais à des températures encore plus basses que d'ordinaire (par exemple 0.7 K pour le titanate de strontium dopé au niobium). Lorsque la chance était au rendez-vous, on atteignait la dizaine de degrés Kelvin. Malgré cela, les composés au niobium semblaient présenter des facilités à devenir supraconducteurs : Parmi les composants classiques aux plus hautes T_c on trouve souvent des alliages contenant cet élément. Le nitrure de niobium (NbN) avec 17,3 K et Nb₃Ge avec 23,3 K (qui détenait le record jusqu'en 1986) en sont de très bons exemples.

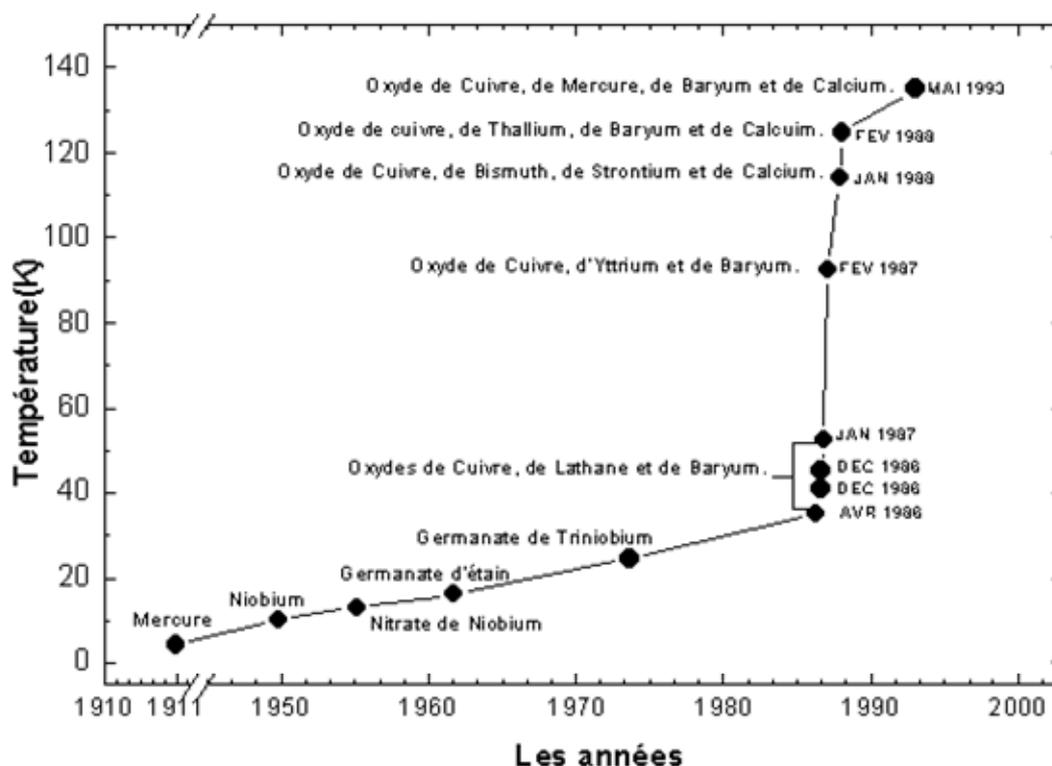


Figure I. 2 : la découverte des matériaux supraconducteurs au fil des années.

Une autre question restait posée : d'où provenait ce phénomène qu'aucune théorie n'avait jusqu'à présent soupçonné ? En 1935 les frères London [3], puis Vitaly Ginzburg et Lev Landau en 1952 [4], proposèrent des théories assez puissantes, mais incomplètes. Par la

suite, l'étude sous champ magnétique du comportement des supraconducteurs dans le cadre de la théorie de Ginzburg-Landau a permis à Abrikosov [5] de distinguer deux types de supraconducteurs : type I et type II, que nous définissons plus loin. Une autre partie de la réponse fut donnée par la théorie mise au point par Bardeen, Cooper et Schrieffer. Celle-ci, plus connue sous le nom de théorie BCS [6], fut publiée en 1957. Près de 45 ans après la découverte du phénomène, une théorie pouvait le décrire au niveau microscopique. Cela valut à ses auteurs de recevoir le prix Nobel en 1973. Son idée de base est que les électrons (ou une partie d'entre eux) s'attirent plus qu'ils ne se repoussent naturellement et se couplent en paires. L'origine de l'attraction est un phénomène polaronique lié à la vibration des atomes (que l'on appelle un phonon). Dans les paires ainsi formées, les électrons possèdent une énergie plus faible, ainsi que des spins opposés.

Cette théorie guida les chercheurs dans certaines directions : l'étude des vibrations atomiques, c'est-à-dire des phonons. On arriva alors à obtenir des composés intéressants, mais dont la T_c restait toujours inférieure ou égale à 23 K. De plus la théorie prédisait une limite de température au-dessus de laquelle tout matériau perdait ses propriétés supraconductrices. Certains scientifiques se détournèrent alors du phénomène pour poursuivre des recherches dans d'autres domaines, pendant que quelques rares chercheurs s'obstinaient...

Parmi ces chercheurs, Le britannique Brian Josephson [7] a montré, en 1962, que des paires de Cooper peuvent franchir, par effet tunnel, une fine couche d'isolant séparant deux supraconducteurs. Cet effet (spécifiquement quantique) constitue le point de départ d'une technologie des supraconducteurs très prometteuse dans le domaine de l'électronique.

En avril 1986, Johannes Bednorz et Alex Müller [8], finirent par découvrir un nouveau composé à base de baryum, lanthane, cuivre et d'oxygène (que l'on notera Ba-La-Cu-O), un oxyde, qui devenait supraconducteur en dessous de 34 K, le record était battu. Mais ce n'était qu'un début : 9 mois après, Y-Ba-Cu-O avec 92 K [9], Bi-Sr-Ca-Cu-O en 1988 avec 110 K [10], puis également en 1988 Tl-Ba-Ca-Cu-O avec 125 K [11] furent découverts. Le monde scientifique exultait ! La barrière de la température de liquéfaction de l'azote (77 K) était largement dépassée. De tels résultats étaient au-delà de toute espérance quelques mois plutôt. Une nouvelle vague de recherche frénétique s'emparait du monde scientifique. Tous les espoirs de voir un supraconducteur à température ambiante se réveillaient. De plus cette découverte remettait en cause la théorie BCS, sa limite théorique de température étant largement dépassée. De nouveaux problèmes se présentaient. Dans la forme céramique la plus facile à préparer, ces oxydes supraconducteurs à haute température critique (SHTC) voyaient leurs capacités supraconductrices bridées par un courant critique I_c décevant. Le gain en température ne se traduisait pas vraiment par un gain en performances...

Les supraconducteurs céramiques ne sont d'ailleurs pas les seuls à échapper à la règle de BCS, puisqu'en 1988, de composés, organiques cette fois, nommée κ -(ET)₂X s'est mise à présenter des propriétés très similaires. Dès lors, plusieurs ont tenté de faire ressortir les traits communs entre ces deux types de matériaux afin de chercher à comprendre le mécanisme sous-jacent à la supraconductivité non-conventionnelle.

Le record de T_c atteint 160 K [12], à la fin de l'année 1994, avec des composés au mercure sous haute pression, un facteur 7 a été gagné en 10 ans et on ne désespère pas d'obtenir des supraconducteurs à la température ambiante.

Récemment, un nouveau matériau, MgB₂, est apparu avec une T_c de 40 K [13], et a donné lieu à des résultats très importants.

La course aux T_c s'essouffle quelque peu au profit d'un souci de compréhension des phénomènes physiques au niveau atomique. Que les matériaux soient réellement supraconducteurs, par exemple, en 2000, D. Jurek et al, parlent de la supraconductivité à l'ambiante (300 K) dans le composé Pb₃CO₅-Ag₂O [14]. Ce nouveau résultat, douteux, est actuellement difficile à confirmer.

2. Propriétés physiques des supraconducteurs

La supraconductivité est un phénomène pour lequel un matériau perd toute résistance électrique. Les courants électriques peuvent donc circuler à travers ce matériau sans aucune dissipation d'énergie. Un courant peut ainsi circuler indéfiniment dans un circuit du moment que ce dernier reste à une température inférieure à la température critique T_c . Le champ magnétique appliqué doit être inférieur au champ magnétique critique H_c , et la densité de courant appliqué doit être inférieure à la densité de courant critique J_c .

2.1. Effet Meissner et classification

2.1.1. Effet Meissner

En 1933, W. Meissner et R. Ochsenfeld [2] découvrirent que lorsque un supraconducteur est refroidi au-dessous de la température critique T_c dans un champ magnétique \vec{H} , les lignes d'induction magnétique \vec{B} sont brutalement expulsées de l'échantillon (figure I. 3(b)). Ce phénomène est appelé effet Meissner. Cet effet remarquable disparaît pour des champs magnétiques suffisamment élevés et il se manifeste de manière différente selon les supraconducteurs, on distingue alors deux types : les supraconducteurs de type I et les supraconducteurs de type II.

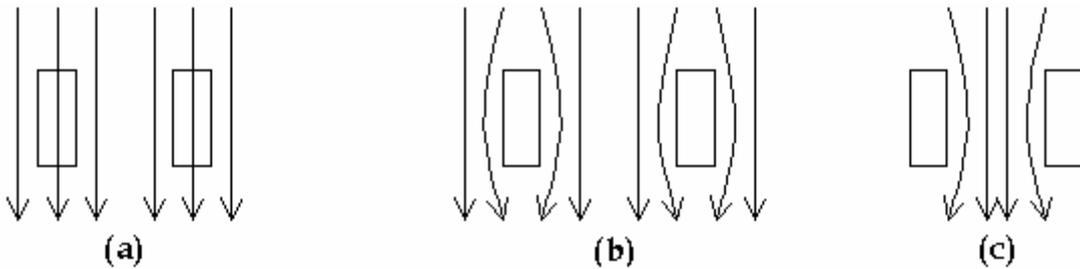


Figure I. 3 : **(a)** à $T > T_c$ et $H \neq 0$, les lignes d'induction magnétique pénètrent l'échantillon. **(b)** à $T < T_c$ et $H \neq 0$, les lignes d'induction magnétique sont exclues de l'échantillon. **(c)** à $T < T_c$ lorsqu'on supprime le champ appliqué, les lignes d'induction magnétique restent embrassées par l'échantillon.

2.1.2. Supraconducteurs de type I

Ce sont généralement des éléments purs. Ils sont caractérisés par un seuil de champs critique $H_c(T)$. La supraconductivité disparaît complètement dès qu'on applique un champ magnétique supérieur à H_c (figure I. 4(a)). En effet à $T < T_c$ on a

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = 0 \quad \Rightarrow \quad \vec{M} = -\vec{H}, \quad (\text{I-1})$$

où \vec{M} est l'aimantation et μ_0 la perméabilité du vide. Ces supraconducteurs sont donc des diamagnétiques parfaits ($\chi = -1$) lorsque $H < H_c$. L'échantillon revient à sa phase normale lorsque $H > H_c$, il y a disparition de l'effet Meissner, le champ magnétique appliqué pénètre entièrement dans l'échantillon.

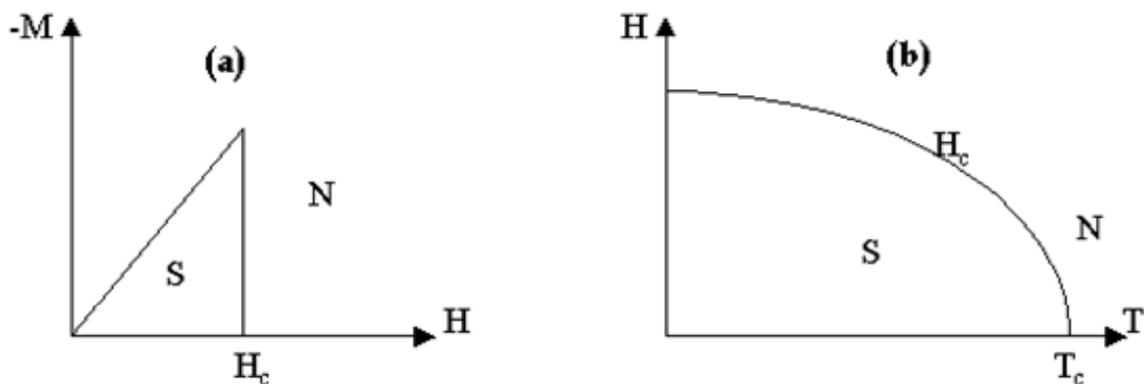


Figure I. 4 : Supraconducteur de type I [15, 16] (S : l'état supraconducteur et N : l'état normal). **(a)** courbe d'aimantation M en fonction du champ magnétique appliqué H à une température donnée. **(b)** variation du champ critique H_c en fonction de la température.

De plus la variation du champ magnétique critique en fonction de la température vérifie la relation

$$H_c = H_0 \left(1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right), \quad (\text{I-2})$$

où H_0 correspond au champ critique à température nulle. On obtient alors le diagramme de phase de la figure I. 4(b). La valeur de champ critique H_c est toujours très faible pour ce type I. De ce fait ces matériaux sont impropres à une utilisation pratique.

2.1.3. Supraconducteurs de type II

Dans un supraconducteur de type II, les phénomènes sont identiques à ceux qui se produisent dans un supraconducteur de type I, tant que H reste inférieur à un champ critique inférieur appelé H_{c1} . Lorsque H est compris entre H_{c1} et H_{c2} ($H_{c1} < H < H_{c2}$, H_{c2} est le champ critique supérieur), l'échantillon conserve ses propriétés supraconductrices, mais les lignes d'induction magnétique pénètrent progressivement le matériau. Dans cet état on obtient $B \neq 0$ mais $\rho = 0$ (figure I. 5(a)). Lorsque $H > H_{c2}$ la supraconductivité est totalement détruite et le champ magnétique appliqué pénètre complètement dans le matériau.

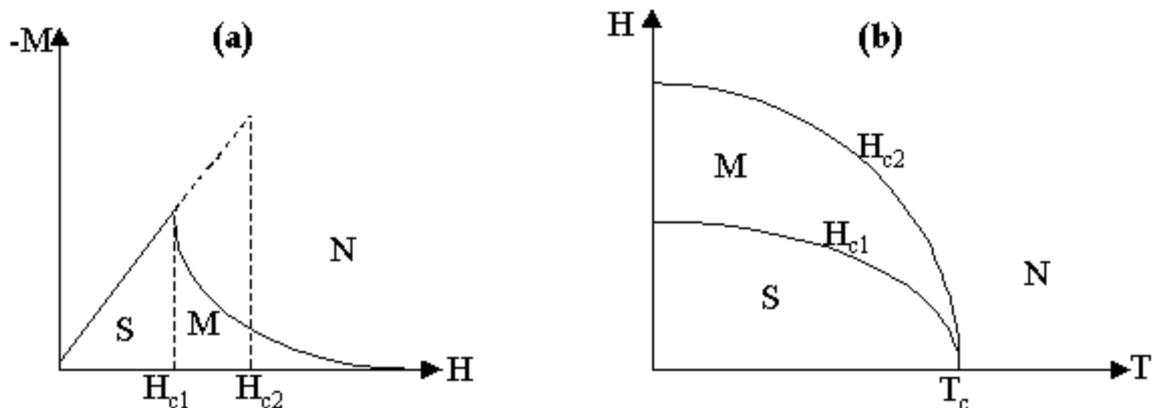


Figure I. 5 : Supraconducteur de type II [15, 16]. (S : l'état supraconducteur, N : l'état normal, et M : L'état mixte). **(a)** variation de l'aimantation M en fonction du champ H . **(b)** variation des champs critiques H_{c1} et H_{c2} en fonction de la température.

Le diagramme de phase des supraconducteurs est représenté dans la figure I. 5(b). Les supraconducteurs de ce type sont principalement des alliages ou métaux ayant une forte résistivité à l'état normal et des champs critiques H_{c2} élevés. Ces deux propriétés leur autorisent des utilisations pratiques.

2.2. Effet isotopique

Les mesures des températures critiques montrent que celles-ci dépendent de la masse isotopique. Pour chaque série d'isotope dans un même matériau, les résultats peuvent être mis sous la forme [17] :

$$M^{\beta}T_c = \text{constante}, \quad (\text{I-3})$$

M étant la masse de l'isotope et β une constante voisine de 0.5.

L'effet isotope nous apprend que les vibrations du réseau, et par conséquent l'interaction électron-phonon, intervient beaucoup dans la supraconductivité. Il n'y a aucune raison pour que la température de transition supraconductrice dépende du nombre de neutrons dans le noyau.

3. Modèles phénoménologiques

3.1. Modèle de Ginzburg-Landau

Ginzburg et Landau [4] présentèrent une théorie phénoménologique de la supraconductivité basée sur la théorie générale des transitions de phase du second ordre développé par Landau, et qui repose sur les hypothèses fondamentales suivantes :

- i. L'existence d'un paramètre d'ordre ψ nul dans la phase normale, non nul dans la phase supraconductrice et qui s'annule de façon continue à la transition ;
- ii. L'énergie libre du matériau peut être développée sous forme de série en puissance de ψ ;
- iii. Les coefficients de ce développement sont des fonctions régulières de la température ;
- iv. Si ψ possède des variations spatiales, alors ses dérivées doivent aussi avoir une contribution à l'énergie libre.

Au voisinage de T_c la formule de l'énergie libre donnée par Landau à la forme :

$$F = \int_V F_s(\vec{r}) dV \quad (\text{I-4})$$

avec

$$F_s(\vec{r}) = F_n + \alpha(T)|\psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi|^4 + \gamma|\vec{\nabla}\psi|^2 \quad (\text{I-5})$$

$F_s(\vec{r})$ et F_n sont respectivement la densité de l'énergie libre à l'état supraconducteur et à l'état normal, V le volume de l'échantillon, $\alpha(T)$, β et γ sont les coefficients de développement de

$F_s(\vec{r})$ en fonction des puissances de ψ et de ses dérivées. En négligeant les variations spatiales du paramètre d'ordre ($|\vec{\nabla}\psi| \approx 0$), l'état d'équilibre est obtenu $F_s(\vec{r})$ en minimisant par rapport à $|\psi|^2$. Cet état dépend de signe de $\alpha(T)$ (figure I. 6).

- i. Si $\alpha(T) > 0$, $|\psi| = 0$ et $F_s = F_n$: Le système est dans l'état normal.
- ii. Si $\alpha(T) < 0$, le minimum de F_s est réalisé pour une valeur ψ_0 non nulle :

$$|\psi| = \psi_0 = \left(\frac{|\alpha(T)|}{\beta} \right)^{1/2}, \quad (\text{I-6})$$

le système est dans l'état supraconducteur.

Pour des températures très proches et inférieures à T_c , le développement du premier ordre de $\alpha(T)$ s'écrit :

$$\alpha(T) = \alpha_0(T - T_c), \quad (\text{I-7})$$

où $\alpha_0 > 0$ et $\alpha(T)$ s'annule à T_c .

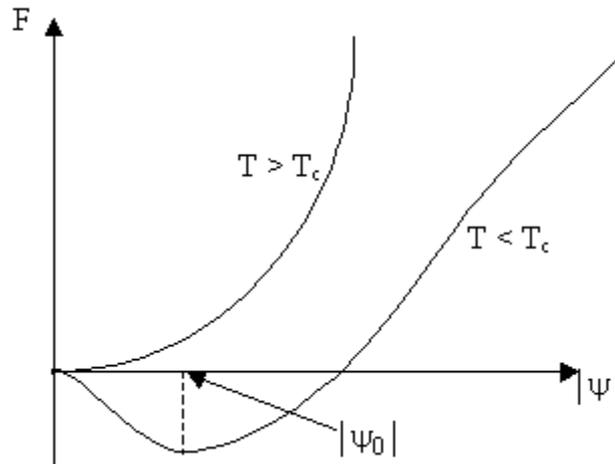


Figure I. 6 : Energie libre en fonction de $|\psi|$ pour $T < T_c$ et $T > T_c$.

Dans l'état supraconducteur, le système gagne une énergie appelée énergie de condensation du supraconducteur, représentée par la forme suivante :

$$F_n - F_s = \frac{\alpha^2(T)}{2\beta} \quad (\text{I-8})$$

Les équations (I-4) et (I-5) de l'énergie libre de Landau n'auraient pas été d'une grande utilité pour l'étude et la compréhension des propriétés physiques des supraconducteurs si Ginzburg et Landau n'eurent l'idée de l'étendre à la situation où le supraconducteur est plongé dans un champ magnétique, alors l'énergie libre devient

$$F_s = F_n + \int_V \left\{ \alpha(T) |\psi|^2 + \frac{\beta(T)}{2} |\psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} - \frac{e^*}{c} \vec{A} \right) \psi \right|^2 + \frac{(\text{rot } \vec{A})^2}{8\pi} \right\} dV \quad (\text{I-9})$$

e^* , m^* sont respectivement la charge et la masse d'une particule supraconductrice (paire de Cooper). $\left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} - \frac{e^*}{c} \vec{A} \right)$ est l'opérateur impulsion en présence d'un sous champ magnétique.

La minimisation de F_s par rapport à ψ et à \vec{A} donne les équations de Ginzburg-Landau

$$\vec{\text{rot}}(\vec{h}) = \frac{4\pi}{c} \vec{j} = \frac{4\pi i e^* \hbar}{2m^* c} (\psi \vec{\nabla} \psi^* - \psi^* \vec{\nabla} \psi) - \frac{e^{*2}}{m^* c^2} |\psi|^2 \vec{A} \quad (\text{I-10})$$

$$\frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} - \frac{e^*}{c} \vec{A} \right)^2 \psi + \alpha(T) \psi + \beta(T) |\psi|^2 \psi = 0 \quad (\text{I-11})$$

L'équation (I-10) n'est pas autre chose que l'expression en mécanique quantique du courant engendré par le mouvement de la particule de charge e^* .

Maintenant (I-11) avec $\beta = 0$ se réduit à une équation de Schrödinger pour une particule de masse m^* et de charge e^* placée dans un champ magnétique.

$-\alpha(T)$ jouant le rôle de la valeur propre de l'énergie. Le terme $\beta(T) |\psi|^2 \psi$ apparaît comme un terme de potentiel de ψ .

3.1.1. Longueurs caractéristiques

3.1.1.a. Longueur de pénétration $\lambda(T)$

Dans l'équation (I-10), on peut remplacer $|\psi|^2$ par la valeur à champ nul $|\psi_0|^2$ pour un champ faible. En prenant le rotationnel des deux membres de l'équation obtenue, on a :

$$\vec{\text{rot}}(\vec{\text{rot}} \vec{h}) = \frac{4\pi}{c} \vec{\text{rot}} \vec{j} = -\frac{4\pi e^{*2} \psi_0^2}{m^* c^2} \vec{h} \quad (\text{I-12})$$

dont la solution à une dimension est

$$\vec{h}(x) = \vec{h}(0) e^{(-x/\lambda)}, \quad (\text{I-13})$$

où
$$\lambda(T) = \left(\frac{m^* c^2}{4 \pi e^{*2} \psi_0^2(T)} \right)^{1/2} = \frac{\lambda(0)}{\sqrt{1 - T/T_C}} \quad (\text{I-14})$$

avec
$$\lambda(0) = \left(\frac{\beta m^* c^2}{4 \pi e^{*2} \alpha_0 T_C} \right)^{1/2} .$$

Donc le champ magnétique décroît dans le supraconducteur à partir de la surface sur une longueur caractéristique $\lambda(T)$ (figure I. 7), appelée longueur de pénétration. Cette longueur représente la réponse d'un système au champ magnétique appliqué, elle varie en fonction de la température et de l'induction magnétique.

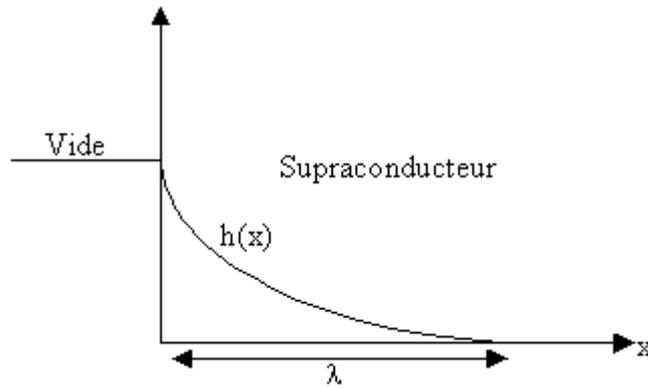


Figure I. 7 : Variation de champ magnétique dans un supraconducteur dans l'état Meissner.

3.1.1.b. Longueur de cohérence $\xi(T)$

En champ nul ($\vec{A} = \vec{0}$) et si ψ varie spatialement, l'équation (I-11) peut être écrite en fonction des quantités sans dimension $\vec{r}' = \vec{r}(\hbar^2 / 2 m^* |\alpha|)^{-1/2}$ et $f = \psi / \psi_0$ sous la forme

$$-\nabla'^2 f + f - f^3 = 0 \quad (\text{I-15})$$

où $\vec{\nabla}' = \partial / \partial \vec{r}'$. Cette forme montre que les variations de ψ se font sur la longueur caractéristique

$$\xi(T) = \left(\frac{\hbar}{\sqrt{2 m^* |\alpha(T)|}} \right)^{1/2} = \frac{\xi(0)}{\sqrt{1 - T/T_C}} \quad (\text{II-16})$$

avec
$$\xi(0) = \left(\frac{\hbar}{2 m^* \alpha_0 T_C} \right)^{1/2} ,$$

$\xi(T)$ appelée la longueur de cohérence du paramètre d'ordre. Cette longueur dépend du degré d'impureté du matériau.

3.1.2. Tension de surface entre les phases supraconductrice et normale

Dans un champ magnétique uniforme $H < H_c$, l'échantillon va expulser ce champ, déformant les lignes d'induction dans son voisinage (figure I. 3). Il en résulte que le champ magnétique, près de la surface de l'échantillon, n'est plus uniforme. Il va donc détruire la supraconductivité dans cette région. La tension de surface σ_{ns} qui sépare les deux phases joue un rôle fondamental dans la physique des supraconducteurs. On montre que cette énergie de surface n'est pas toujours positive et que le signe de σ_{ns} est relié à la constante $K = \lambda/\xi$ de Ginzburg-Landau, on a deux classes :

$$K < \frac{1}{\sqrt{2}}, \quad \sigma_{ns} > 0 \quad \text{supraconducteurs de type I (figure I. 4);}$$

$$K > \frac{1}{\sqrt{2}}, \quad \sigma_{ns} < 0 \quad \text{supraconducteurs de type II (figure I. 5);}$$

3.2. Théorie d'Abrikosov de l'état mixte des SHTC

Le modèle le plus adapté pour décrire la pénétration de régions normales dans l'état mixte des supraconducteurs de type II est celui dû à A.A. Abrikosov [5]. Ce modèle considère que le flux magnétique pénètre dans le supraconducteur sous forme d'entités élémentaires appelée vortex, portant chacune un flux Φ quantifié en multiples entiers du quantum de flux $\Phi = n\phi_0$ avec $\phi_0 = hc/2e \approx 2.10^{-5} \text{ T.m}^2$ (expérimentalement $\Phi = \phi_0$: chaque vortex porte un seul quantum de flux). Ces vortex, de forme cylindrique, sont formés de deux zones principales (figure I. 8(a)) :

- i. Une zone centrale appelée cœur du vortex, dont le rayon est de l'ordre de ξ (longueur de cohérence). Dans cette région la supraconductivité est détruite.
- ii. Une zone électromagnétique de rayon λ (longueur de pénétration) entourant la première, dans laquelle circulent des courants supraconducteurs permettant l'écrantage du champ magnétique $\vec{h}(\vec{r})$ siégeant au centre du cœur de vortex.

Quand $K \gg 1$ le paramètre d'ordre s'annule au centre du vortex ($\psi = 0$) et tend vers sa valeur d'équilibre ψ_0 sur une distance de l'ordre de ξ du centre. En particulier, si l'on note $f(r) = \psi(r)/\psi_0$ la valeur normalisée du paramètre d'ordre au point $\vec{r}(x, y)$ (repéré par rapport au centre du vortex), on montre que $f(r)$ a les comportements asymptotiques suivants (figure I. 8(b)) :

$$f(r) \approx 0 \quad \text{pour} \quad r \rightarrow 0 ; \quad (\text{I-17})$$

$$f(r) \approx 1 \quad \text{dés que} \quad r \approx \xi . \quad (\text{I-18})$$

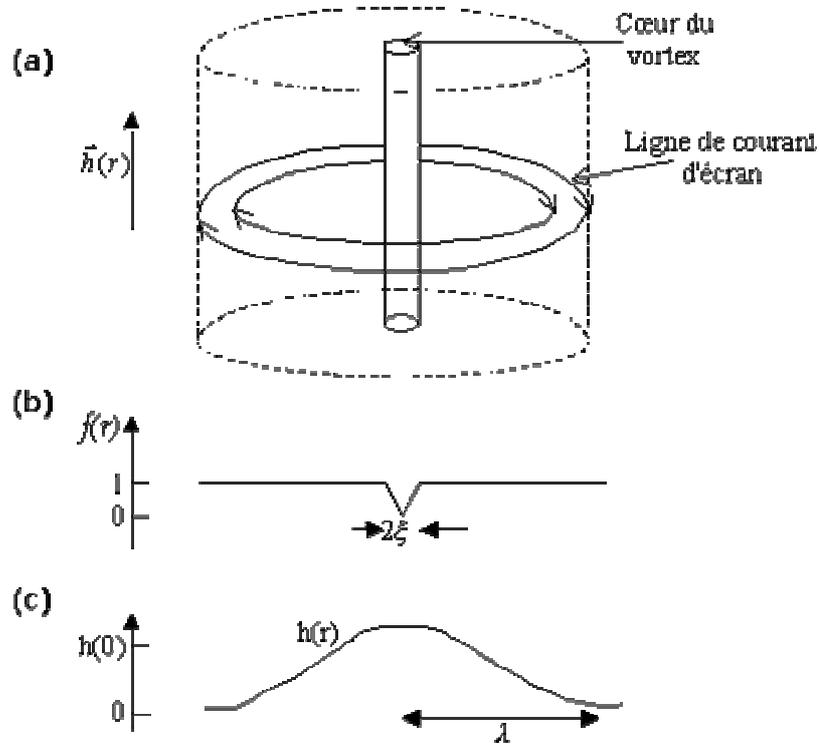


Figure I. 8 : (a) cœur normal et région électromagnétique autour d'un vortex. (b) profil schématique du paramètre d'ordre supraconducteur au sein d'un vortex. (c) profil du champ magnétique.

Le champ magnétique microscopique $\vec{h}(\vec{r})$ d'un vortex isolé atteint sa valeur maximale au centre de vortex et décroît exponentiellement à grande distance sur une échelle de λ (figure I. 8(c)).

La pénétration d'un vortex coûte au système une énergie appelée "énergie de ligne" calculée par la théorie de Ginzburg-Landau :

$$\varepsilon_1 = \left(\frac{\phi_0}{4\pi\lambda} \right)^2 (\ln(K) + \alpha_c). \quad (\text{I-19})$$

Cette énergie laisse apparaître deux termes. Le terme dominant est le terme logarithmique, $\ln(K)$, qui représente l'énergie du champ magnétique élémentaire \vec{h} et des courants

supraconducteurs circulant autour du vortex (courants d'écrantage). Le second est un terme constant dans lequel α_c ($\alpha_c = 0.48$ [18]) représente l'énergie du cœur du vortex.

Au champ critique inférieur $H_{c1}(T)$, délimitant la frontière entre l'état Meissner et l'état mixte dans un supraconducteur de type II, les potentiels de Gibbs des deux phases sont égaux, c'est à dire :

$$\varepsilon_1 - \int H_{c1} \frac{h(r)}{4\pi} d^2r = 0, \quad (\text{I-20})$$

où $\int h(r) d^2r = \phi_0$ est la relation qui exprime que le vortex porte un flux total égal à ϕ_0 , alors la relation entre H_{c1} et l'énergie de ligne ε_1 du vortex s'écrit :

$$H_{c1} = \frac{4\pi\varepsilon_1}{\phi_0} \quad (\text{I-21})$$

Le champ critique supérieur $H_{c2}(T)$ délimitant la frontière entre l'état mixte et l'état normal est donné qualitativement par la compacité maximale des vortex dans les supraconducteurs. Les vortex sont considérés en gros comme des cylindres de métal normal de rayon ξ et occupent tout le volume de l'échantillon. Le champ correspondant à cette situation est de l'ordre de $\phi_0/\pi\xi^2$. L'expression qualitative du champ critique H_{c2} est :

$$H_{c2} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2}, \quad (\text{I-22})$$

le facteur 2 au dénominateur provient essentiellement du fait que les cœurs des vortex ont une structure un peu plus compliquée que de simples cylindres de phase normale.

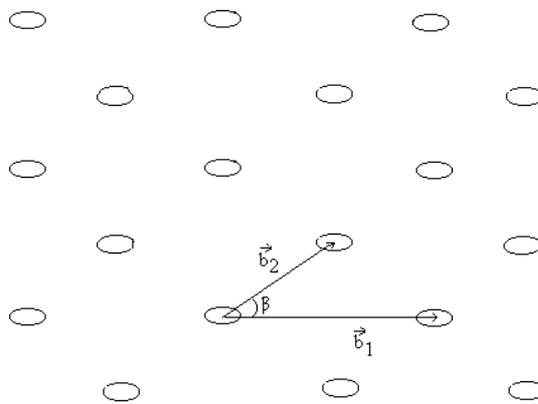


Figure I. 9 : Symétrie hexagonale du réseau d'Abrikosov de vortex dans un supraconducteur isotrope.

$H_{c1}/H_{c2} \approx K^2$, la phase mixte de Shubnikov située entre H_{c1} et H_{c2} peut représenter un domaine très large en champ si $K \gg 1$. Dans cette phase, le champ magnétique pénètre dans le supraconducteur sous forme d'un réseau triangulaire de vortex appelé réseau d'Abrikosov (figure I. 9).

Ce type de réseau a été observé expérimentalement dans les supraconducteurs, par des expériences de décoration ou de diffusion de neutrons, apportant ainsi la preuve de l'existence du réseau d'Abrikosov dans les supraconducteurs de type II.

3.3. Modèle de London

Bien avant la théorie de Ginzburg et Landau, F. et H. London [3] avaient proposé en 1935 un modèle simple qui expliquait les principales propriétés électrodynamiques de l'état supraconducteur, en se basant sur le principe fondamental de la dynamique d'un électron dans un conducteur parfait,

$$m \frac{d\vec{\mathcal{G}}_s}{dt} = e \vec{E} \quad (\text{I-23})$$

où m , e , $\vec{\mathcal{G}}_s$ et \vec{E} sont respectivement la masse, la charge, la vitesse d'un électron supraconducteur et le champ électrique. Ce champ est relié au supercourant $\vec{j} = n_s e \vec{\mathcal{G}}_s$ par

$$\vec{E} = \frac{4\pi \lambda_L^2}{c^2} \frac{\partial \vec{j}}{\partial t}, \quad (\text{I-24})$$

avec

$$\lambda_L(T) = \left(\frac{mc^2}{4\pi n_s e^2} \right)^{1/2}, \quad (\text{I-25})$$

ayant la dimension d'une longueur et où n_s est la densité des électrons. D'après la relation de Maxwell $\text{rot } \vec{E} = -\partial \vec{h} / c \partial t$, l'équation (I-24) devient

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\vec{h} + \frac{4\pi \lambda_L^2}{c} \text{rot } \vec{j} \right) = 0 \quad (\text{I-26})$$

L'effet Meissner interdit la présence des courants et des champs magnétiques à l'intérieur des supraconducteurs. Le comportement est compatible avec (I-26) si l'on en restreint les solutions à celles qui vérifient

$$\vec{h} + \frac{4\pi \lambda_L^2}{c} \text{rot } \vec{j} = 0. \quad (\text{I-27})$$

Cette équation montre que le champ et les courants sont effectivement nuls à l'intérieur des supraconducteurs et décroissent à partir de la surface sur la longueur $\lambda_L(T)$ appelée longueur de pénétration de London.

Pour des raisons de commodité des calculs, l'équation de London (I-27) est généralement écrite sous la forme équivalente

$$\vec{j} = -\frac{c}{4\pi\lambda_L^2}\vec{A} \quad (\text{I-28})$$

avec $\overrightarrow{\text{rot}}\vec{A} = \vec{h}$, où la variable est plutôt \vec{A} .

Le modèle original de London s'arrête bien ici : il est incapable de traiter correctement les supraconducteurs de type II et notamment la quantification du flux dans un vortex.

La solution à ces problèmes sera fournie par la théorie de Ginzburg-Landau. En négligeant les variations de l'amplitude du paramètre d'ordre ($\psi = \psi_0 e^{i\varphi}$) dans l'énergie libre de Ginzburg-Landau, l'équation (I-10) s'écrit sous la forme

$$\vec{j} = \frac{c}{4\pi\lambda^2} \left(\frac{\phi_0}{2\pi} \vec{\nabla}\varphi - \vec{A} \right) \quad (\text{I-29})$$

avec

$$\lambda = \left(\frac{m^* c^2}{4\pi e^{*2} \psi_0^2} \right)^{1/2} .$$

Nous retrouvons la même longueur de pénétration London que précédemment (équation (I-14)) si on identifie $m^* / e^{*2} \psi_0^2$ à $m / n_s e^2$.

C'est Abrikosov qui, dans son article fondateur en 1957, a introduit cette version élaborée du modèle de London d'après les équations de Ginzburg-Landau. Cette approche a été ensuite utilisée de manière extensive par de Gennes [19] pour étudier les propriétés d'équilibre des réseaux de vortex. Le résultat final est l'équation

$$\vec{h} + \lambda^2 \overrightarrow{\text{rot}}(\overrightarrow{\text{rot}}\vec{h}) = \phi_0 \delta(\vec{r}) \quad (\text{I-30})$$

$\delta(\vec{r})$ est la distribution de Dirac. L'équation décrit bien la quantification du flux dans un vortex et plus généralement les propriétés électrodynamiques des supraconducteurs de type II. Le second membre apparaît comme une condition aux limites à imposer sur le champ microscopique \vec{h} lors de la minimisation de l'énergie libre de London

$$E_L = \frac{1}{8\pi} \int_V \left(\vec{h}^2(r) + \lambda^2 (\overrightarrow{\text{rot}}\vec{h})^2 \right) dV . \quad (\text{I-31})$$

L'approximation de base de l'approche London, qui ne tient pas compte des variations de $|\psi|$, n'est valable qu'en dehors des cœurs de vortex. L'énergie de ligne d'un vortex dans le modèle généralisé de London est

$$\varepsilon_1 = \left(\frac{\phi_0}{4\pi\lambda} \right)^2 \text{Ln} \left(\frac{\lambda}{\xi} \right), \quad (\text{I-32})$$

diffère de l'énergie obtenue dans le cadre du modèle de Ginzburg-Landau par la constante α_c qui représente la contribution du cœur du vortex à l'énergie de ligne.

La simplicité de l'approche de London en fait un outil extrêmement précieux pour étudier les supraconducteurs et spécialement les supraconducteurs de type II extrêmes, dont les SHTC sont d'excellents représentants.

3.4. Théorie de BCS

J. Bardeen s'intéressait à l'interaction entre les électrons et les vibrations d'ion du réseau cristallin. Il avait observé qu'elle peut conduire indirectement à une attraction entre électrons. Le passage d'un électron déforme le réseau cristallin, à cause des forces coulombiennes classiques, il repousse alors les charges négatives et attire les charges positives. Le passage d'un deuxième électron dans son sillage est facilité par ce déplacement des ions. D'où la création de paires d'électrons appelées les paires de Cooper (figure I. 10) [6].

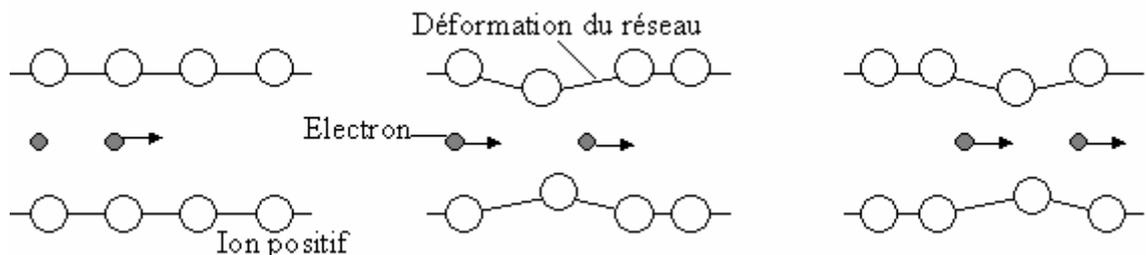


Figure I. 10 : Mécanisme de la théorie BCS, qui explique parfaitement la supraconduction des matériaux classiques.

Cette faible attraction a bouleversé totalement les états électroniques d'un métal. L'effet de condensation à basse température, introduit par J.R. Schieffer, a permis d'expliquer le rassemblement des paires de Cooper dans un même état et leur comportement comme une seule onde collective.

La théorie BCS donne la T_c limite de 25 K des supraconducteurs conventionnels. Aussi, à la vue des dernières T_c obtenues depuis 1987, on suppose maintenant que le couplage électron-phonon ne joue plus un rôle aussi exclusif dans les nouveaux supraconducteurs.

4. Supraconducteurs anisotropes

4.1. Modèle de Ginzburg-Landau anisotrope

Dans les supraconducteurs anisotropes, les différentes quantités physiques et notamment la masse électronique sont tensorielles. Ainsi m^* dans l'équation (I-9) est remplacée par la masse effective m_{ij} décrivant l'anisotropie électronique du matériau. En tenant compte de la symétrie uni-axiale des supraconducteurs de haute T_c , nous pouvons écrire le tenseur des masses comme une matrice diagonale dans un système orthogonal d'axes (Oxyz) où (Oz) est parallèle à l'axe cristallographique \vec{c} ,

$$m_{ij} = \begin{vmatrix} m & 0 & 0 \\ 0 & m & 0 \\ 0 & 0 & M \end{vmatrix}$$

L'élément de matrice m est la masse effective des paires de Cooper dans les plans supraconducteurs CuO_2 . Alors que M est leur masse effective dans la direction normale aux plans supraconducteurs.

Dans ce cas l'énergie libre s'écrit :

$$F_s = F_n + \int_V \left\{ \alpha(T) |\psi|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi|^4 + \frac{\hbar^2}{2m} \left| \left(\vec{\nabla}_{ab} - \frac{2i\pi}{\phi_0} \vec{A}_{ab} \right) \psi \right|^2 + \frac{\hbar^2}{2M} \left| \left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{2i\pi}{\phi_0} A_z \right) \psi \right|^2 \right\} dV + \int \frac{(\text{rot} \vec{A})^2}{8\pi} dV \quad (\text{I-33})$$

$$\text{ici } \vec{A}_{ab} = (A_x, A_y, 0), \vec{\nabla}_{ab} = \left(\frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y}, 0 \right), \vec{A}_c = (0, 0, A_z), \vec{\nabla}_c = \left(0, 0, \frac{\partial}{\partial z} \right) \text{ et } \text{rot}(\vec{A}) = \vec{h}.$$

L'anisotropie de la masse effective entraîne aussi l'anisotropie des longueurs caractéristique λ et ξ ainsi que les champs critiques H_{c1} et H_{c2} .

4.2. Anisotropie des longueurs caractéristiques

L'équation (I-33) nous amène à définir les longueurs de cohérence parallèlement et perpendiculaire aux plans supraconducteurs, qui sont (figure I. 11)

$$\xi_{ab}(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2m|\alpha(T)|} \right)^{1/2}, \quad (\text{I-34})$$

$$\xi_c(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2M|\alpha(T)|} \right)^{1/2}. \quad (\text{I-35})$$

Leurs rapport définit le paramètre d'anisotropie $\Gamma = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \sqrt{\frac{M}{m}} \geq 1$.

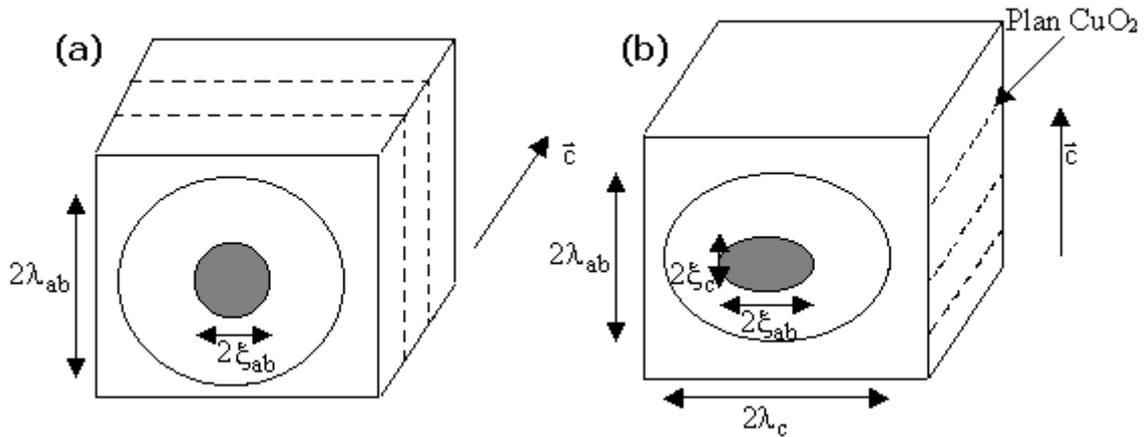


Figure I. 11 : Anisotropie des Longueurs de cohérence et de pénétration dans un supraconducteur à symétrie uni-axiale. Les traits en pointillés représentent les couches supraconductrices. **(a)** Le système étant isotrope parallèlement aux couche, un vortex suivant l'axe \vec{c} sera isotrope (longueurs caractéristiques ξ_{ab} et λ_{ab}). **(b)** Un vortex parallèle aux couches sera anisotrope, ayant la forme d'une ellipse dont le rapport des axes est proportionnel à Γ . En général, les vortex présentent une structure anisotrope dès que le champ magnétique fait un angle non nul avec l'axe \vec{c} du cristal.

Dans le régime London, c.à-d. pour des champs H tels que $H_{c1} \ll H \ll H_{c2}$, on peut écrire $|\psi(\vec{r})| = \psi_0$ pour obtenir l'énergie de London

$$F_L = \frac{1}{8\pi} \int_V \left\{ \hbar^2 + \lambda_{ab}^2 (\overrightarrow{\text{rot}} \vec{h})_{ab}^2 + \lambda_c^2 (\overrightarrow{\text{rot}} \vec{h})_z^2 \right\} dV \quad (\text{I-36})$$

où les longueurs de pénétration dans la direction parallèle et perpendiculaire aux plans supraconducteurs sont

$$\lambda_{ab}(T) = \left(\frac{mc^2}{4\pi e^{*2} \psi_0^2(T)} \right)^{1/2} \quad (\text{I-37})$$

$$\lambda_c(T) = \left(\frac{Mc^2}{4\pi e^* \psi_0^2(T)} \right)^{1/2} \quad (\text{I-38})$$

on voit que $\Gamma = \lambda_c / \lambda_{ab}$, ce qui indique que l'écrantage d'un champ magnétique parallèle aux couche supraconductrices se fait sur une distance beaucoup plus grande que pour un champ perpendiculaire aux couches. Autrement dit, les courants interplans écrantent moins bien le champ magnétique que les courants dans les plans.

4.3. Anisotropie des champs critiques H_{c1} et H_{c2}

L'anisotropie des propriétés supraconductrices se reflète directement sur les champs critiques H_{c1} et H_{c2} qui vont maintenant dépendre de l'orientation du champ appliqué par rapport aux axes cristallographiques. Les dépendances angulaires $H_{c1}(\theta_H)$ et $H_{c2}(\theta_H)$, où θ_H est l'angle entre le champ magnétique appliqué et l'axe \vec{c} données respectivement par

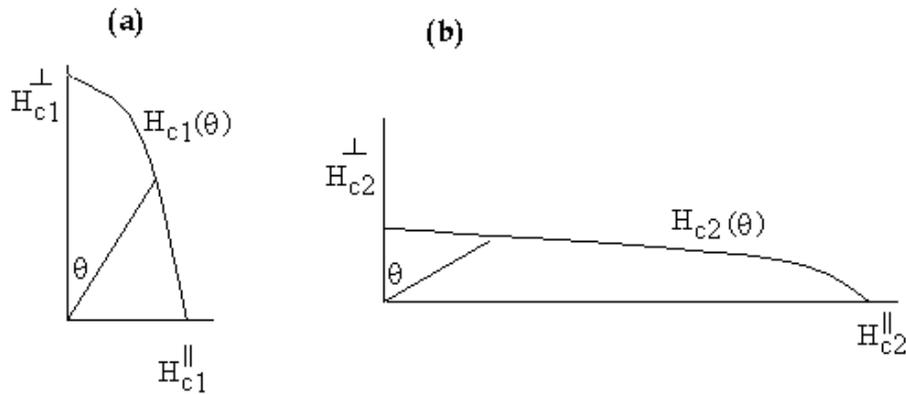


Figure I. 12 : (a) Anisotropie des champs critiques inférieur $H_{c1}(\theta_H)$ et (b) supérieur $H_{c2}(\theta_H)$. Pour $\Gamma = 5$, les deux figures ne sont pas à la même échelle : H_{c2} est plus grand que H_{c1} (de plusieurs ordres de grandeur) dans les supraconducteurs de type II extrêmes.

$$H_{c1}(\theta_H) = \left(\frac{\phi_0}{4\pi\lambda_{ab}} \right)^2 \frac{\ln(K/\varepsilon(\theta_H))}{\sqrt{\cos^2\theta_H + \Gamma^2 \sin^2\theta_H}} \quad \text{avec } K = \lambda_{ab} / \xi_{ab} \quad (\text{I-39})$$

$$H_{c2}(\theta_H) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{ab}\varepsilon(\theta_H)} \quad (\text{I-40})$$

où $\varepsilon(\theta_H) = (\cos^2\theta_H + \Gamma^{-2}\sin^2\theta_H)^{1/2}$. Les champs sont représentés schématiquement sur la figure I. 12.

5. Supraconducteurs en couches

5.1. Effet Josephson

Considérons deux supraconducteurs séparés par une mince couche de matériau normal, comme il est montré sur la figure I. 13. Pour les électrons supraconducteurs cette couche constitue une barrière de potentiel. Si la barrière est suffisamment mince les électrons peuvent la traverser par effet tunnel quantique. Les deux supraconducteurs constituent alors un système unique qui peut être décrit par la même fonction d'onde macroscopique : c'est l'effet Josephson [7]. Cet effet est la base d'un certain nombre de phénomènes d'une grande richesse physique et d'une grande importance pour les applications.

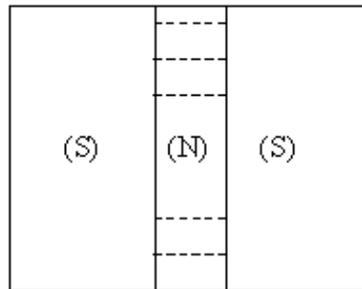


Figure I. 13 : Représentation d'une jonction Josephson S/N/S, (supraconducteur / couche normale / supraconducteur).

De la même façon que le gradient de la phase du paramètre d'ordre ($\psi = \psi_0 e^{i\varphi}$) génère un courant supraconducteur (formule (I-29)), une différence de phase finie $\Delta\phi = \phi_2 - \phi_1$ entre les deux supraconducteurs de part et d'autre de la jonction donne lieu à un courant de paires à travers la barrière, appelé courant Josephson qui s'écrit sous la forme :

$$I = I_0 \sin \Delta\phi . \quad (\text{I-41})$$

Quand le matériau normal formant la jonction est un isolant et dans le cas où les deux supraconducteurs de part et d'autre de la jonction sont identiques, le courant critique I_0 est donné par la formule d'Ambegaokar-Baratoff [20] :

$$I_0 = \frac{\pi\Delta(T)}{2eR} \text{th} \left(\frac{\Delta(T)}{2k_B T} \right) \quad (\text{I-42})$$

où k_B est la constante de Boltzmann, R est la résistance de la jonction à l'état normal $\Delta(T)$ est la largeur de la bande interdite à la température T . Au voisinage de T_c , on a $\Delta(T) \ll 2Tk_B$ et alors

$$I_0 \approx \frac{\pi\Delta^2(T)}{2T}. \quad (\text{I.43})$$

Nous remarquons donc que le courant critique Josephson à travers une jonction Supraconducteur/Isolant/Supraconducteur (S/I/S) tend vers 0 à T_c comme $(T_c - T)$ ($\Delta^2(T)$ étant proportionnel à $|\psi|^2$ de Ginzburg-Landau, lui-même proportionnel à $\alpha(T) = \alpha_0(T_c - T)$). Par contre lorsque la jonction est un métal normal (N), de Gennes [19] a en effet montré que I_0 tend vers 0 à T_c comme $(T_c - T)^2$. En étudiant le contact entre une pointe réalisée dans un métal normal et une céramique $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, Esteve et al [21] ont mis en évidence l'existence de jonctions Josephson à l'intérieur des céramiques supraconducteurs à haute T_c .

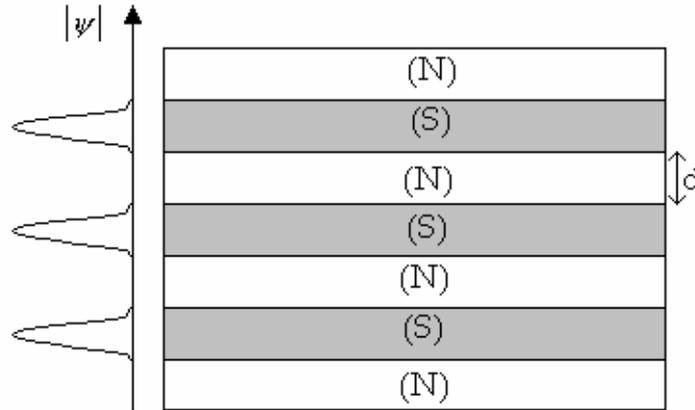


Figure I. 14 : Variation schématique de l'amplitude du paramètre d'ordre dans un supraconducteur en couches formé par un empilement de plans supraconducteurs (S) séparés par des couches (N) qui peuvent être isolantes ou métalliques normales.

5.2. Modèle de Lawrence-Doniach

La généralisation du modèle de Ginzburg-Landau pour l'étude d'un supraconducteur formé d'un empilement de couches supraconductrices et de couches normales (ou isolantes) a été proposée par W. Lawrence et S. Doniach (figure I. 14) [22].

La fonctionnelle de l'énergie libre est de la forme [23] :

$$F_{LD} = d \sum_n \int d^2\vec{r} \left\{ \alpha(T) |\psi_n|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi_n|^4 + \frac{\hbar^2}{2m} \left| \left(\vec{\nabla}_{ab} - \frac{2i\pi}{\phi_0} \vec{A}_{ab} \right) \psi_n \right|^2 + f_J \left| \psi_n - \psi_{n+1} \exp \left(-\frac{2i\pi}{\phi_0} \int_{nd}^{(n+1)d} A_z dz \right) \right|^2 \right\} + \int \frac{(\text{rot}\vec{A})^2}{8\pi} d^3\vec{r} \quad (\text{I} - 44)$$

où f_J représente le couplage de Josephson. Les plans d'indice n sont supposés suffisamment minces pour que le paramètre d'ordre $\psi_n(x, y)$ puisse être considéré constant dans la

direction \vec{z} . Dans ce cas $\psi_n(x, y)$ varie de façon continue sur chaque plan supraconducteur tout en restant discontinu dans la direction \vec{z} .

Un peu de la même façon que pour le modèle de Ginzburg-Landau anisotrope, on définit les longueurs de cohérence et de pénétration suivant les plans supraconducteurs et perpendiculairement à ces derniers respectivement par

$$\xi_{ab}(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2m|\alpha(T)|} \right)^{1/2} ; \quad \xi_c(T) = \left(\frac{f_J d^2}{|\alpha(T)|} \right)^{1/2} ; \quad (\text{I-45})$$

$$\lambda_{ab}(T) = \left(\frac{mc^2}{4\pi n_s e^2} \right)^{1/2} ; \quad \lambda_c = \Gamma \lambda_{ab} ; \quad (\text{I-46})$$

le rapport d'anisotropie Γ dans ce modèle est définie par

$$\Gamma^2 = \frac{\hbar^2}{2m f_J d^2}, \quad (\text{I-47})$$

en posant formellement $f_J = \frac{\hbar^2}{2Md^2}$ on trouve $\Gamma = \sqrt{\frac{M}{m}}$,

la quantité M ainsi définie apparaît comme une masse effective des électrons passant d'un plan à l'autre par effet tunnel.

Les supraconducteurs lamellaires présentent une physique très particulière surtout lorsque leur longueur de cohérence ξ_c est d'ordre de la distance d entre les plans supraconducteurs.

5.3. Description du réseau de vortex

La longueur caractérisant la jonction Josephson est appelée longueur de pénétration Josephson définie par $\lambda_J = \Gamma d$ [24] ($\lambda_J = 60 - 80 \text{ \AA}$ pour les composés YBaCuO et LaSrCuO). Lorsque $\lambda_J < \xi_{ab}(T)$, le système est dans un état où le paramètre d'ordre est quasiment invariant d'un plan à l'autre. Alors λ_J n'est plus une caractéristique. Dans ce cas, le quatrième terme de la première intégrale dans l'équation (I-44) peut être linéarisé et on retrouve la description 3D. Cette description est basée sur la théorie de Ginzburg-Landau ou de London anisotropie (figure I. 11). Par contre si $\lambda_J > \xi_{ab}(T)$, l'approche basée sur une description 3D n'est plus applicable et devrait être remplacée par celle de Lawrence-Doniach tenant compte du couplage de Josephson entre les plans ab . Le passage d'un régime 2D vers un régime 3D a lieu à une température T^* définie par $\xi_c(T^*) = \frac{d}{\sqrt{2}}$.

Dans le cas où le couplage est faible (ou nul). Les interactions entre vortex 2D (ou "vortex crêpe") présents dans deux plans voisins sont faible et peuvent créer des chaînes dans lesquelles ils sont reliés par des vortex Josephson (sans cœurs d'électrons normaux). Dans le cas d'un champ incliné par rapport aux plans, les lignes de flux forment des coudes (Kink), comme sur la figure I. 15.

En général les dans SHTC, la description des propriétés physiques du réseau de vortex est plus aisée dans les cas bidimensionnel ou tridimensionnel (2D ou 3D) selon la gamme de champ ou de température dans laquelle on se trouve ou même selon la caractéristique physique étudiée.

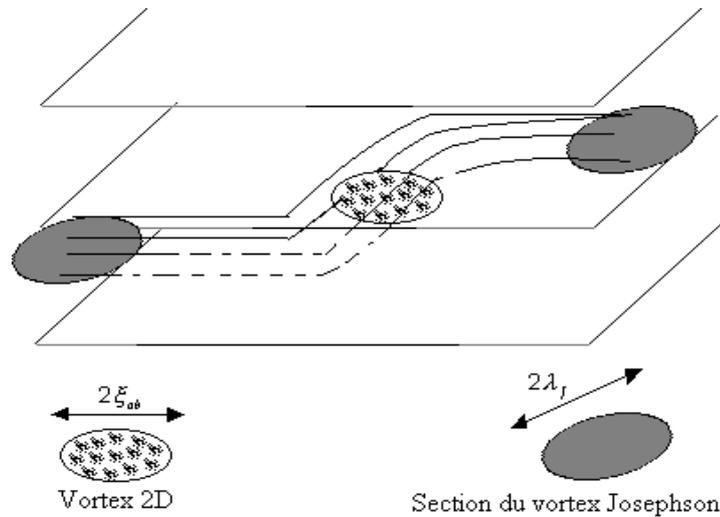


Figure I. 15 : structure d'un vortex coudé dans un supraconducteur bidimensionnel : deux portions de vortex de Josephson sont couplées par un vortex 2D (vortex crêpe).

6. Dynamique des vortex

6.1. Force de Lorentz et écoulement du flux

La force de Lorentz agissant sur les vortex provient de l'interaction entre le courant extérieur et les courant d'écran des vortex, et non pas de l'interaction entre un courant (courant extérieur) et un champ magnétique (celui du vortex). La force par unité de longueur agissant sur un vortex en présence d'un courant de transport \vec{j}_{ext} est donnée par :

$$\vec{f} = \frac{\phi_0}{c} \vec{j}_{ext} \wedge \vec{z}. \quad (I-48)$$

En multipliant \vec{f} par la densité de vortex par unité de surface $n_v = B/\phi_0$, on déduit la densité de force volumique qui s'exerce sur l'échantillon :

$$\vec{F} = n_v \vec{f} = \frac{1}{c} \vec{j}_{ext} \wedge \vec{B}. \quad (I-49)$$

Cette expression a exactement la forme d'une force de Lorentz (force agissant sur un courant en présence d'un champ magnétique), notée généralement par F_L . Sous l'action de cette force, le réseau se met en mouvement et on parle d'écoulement de flux (en anglais "flux flow"), ce mouvement de flux magnétique entraîne l'apparition d'un champ électrique

$$\vec{E} = \frac{1}{c} \vec{B} \wedge \vec{v}, \quad (I-50)$$

Cela signifie que la résistivité non nulle : on ne pourrait pas bénéficier des propriétés supraconductrices de type II dans l'état mixte. Heureusement un autre mécanisme, le piégeage des vortex, permet d'arrêter le mouvement de ces derniers ($(\vec{v} = 0)$), ce qui rétablit une résistivité nulle en présence du courant \vec{j}_{ext} .

6.2. Force de piégeage et fluage du flux

Les courants d'écrantage dans un vortex nécessitent de l'énergie. L'état supraconducteur a une énergie plus basse que l'état normal, car le cœur normal du vortex coûte une énergie de l'ordre de $\xi^2(H_c/8\pi)$ par unité de longueur. Dans un supraconducteur il existe des régions non supraconductrices qui peuvent être des impuretés, des précipités, des sites vacants, ...etc. Si le vortex traverse ces régions, il économisera une énergie de condensation de l'ordre de $(H_c^2/8\pi)\tau$, où τ est le volume de la région du cœur qui s'est mise sur le défaut. Cette diminution de l'énergie libre du supraconducteur donne lieu à un processus où les vortex cherchent à rencontrer le maximum de défauts et à s'y accrocher afin de gagner l'énergie de condensation : on dit que les vortex sont ancrés ou piégés par les défauts. On parle alors d'ancrage ou de piégeage du réseau de vortex. Considérons le cas d'un vortex piégé par un défaut de taille $R > \xi$ transversalement au vortex et de longueur L parallèlement à ce dernier (figure I. 16). L'énergie de condensation gagnée grâce à l'ancrage du cœur de vortex est de l'ordre de $\varepsilon_p \approx L\xi^2(H_c^2/8\pi)$. La force d'attraction que le défaut exerce sur le vortex, qui n'est autre que le gradient de cette énergie de piégeage, peut être estimée comme étant le rapport de ε_p à la longueur caractéristique mise en jeu, en l'occurrence ξ . Il vient donc que la force de piégeage est de l'ordre de :

$$f_p \approx L\xi H_c^2. \quad (I-51)$$

D'autre part, un courant extérieur qui passe dans l'échantillon exerce sur le vortex une force de Lorentz (qu'on obtient à partir de la force par unité de longueur (I-48) en multipliant par la longueur piégée L) :

$$f_L \approx \frac{\phi_0}{c} j_{ext} L \approx H_c j_{ext} \lambda \xi \frac{L}{c} \quad (\text{I-52})$$

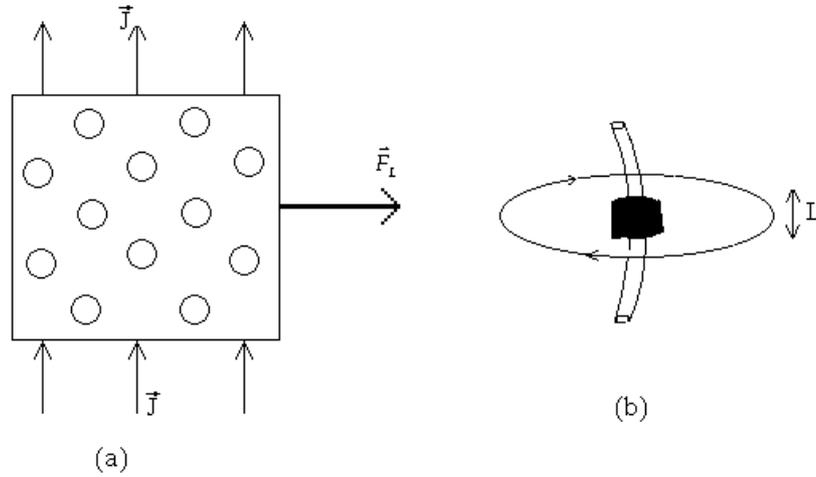


Figure I. 16 : (a) Force de Lorentz sur les vortex en présence d'un courant de transport \vec{j} . (b) Schéma d'un vortex ancré par un défaut de longueur L parallèlement à la ligne de flux.

Le vortex reste piégé tant que la force de Lorentz est inférieure à la force de piégeage ($f_L < f_p$). Ce phénomène est appelé fluage ou réparation de flux (en anglais "flux creep"). Nous obtenons la valeur maximale J_c du courant extérieur pouvant circuler sans dissipation :

$$j_c \approx c \frac{H_c}{\lambda} \quad (\text{I-53})$$

qui est de l'ordre de grandeur du courant de brisure des paires de Cooper.

7. Conclusion

Nous avons brièvement passé en revue les modèles phénoménologiques de la supraconducteurs, puis les propriétés physiques des supraconducteurs anisotropes et en couches, et enfin la dynamique des vortex. Ces modèles sont couramment utilisés pour décrire la supraconductivité. Nous les utilisons par la suite.

Références

- [1] H. Kamerlingh Onnes, *Leiden comm.*, **122** (1911) 124 c.
- [2] W. Meissner, R. Ochsenfeld, *Naturwiss*, **21** (1933) 787.
- [3] F. London, N. London, *Proc. Roy. Soc. A*, **149** (1935) 71.
- [4] V.L. Ginsburg, D. Landau, *Zh. Eks. i Teor. Fiz.*, **20** (1950) 1064.
- [5] A.A. Abrikosov, *Sov. Phys. JETP*, **5** (1957) 1174.
- [6] J. Bardeen, L. Cooper, J.R. Schneiffner, *Phys. Rev.*, **108** (1957) 1175.
- [7] B.D. Josephson, *Phys. Lett.*, **1** (1962) 251.
- [8] J.G. Bednorz, K.A. Müller, *Z. Phys. B*, **84** (1986) 189.
- [9] M.K. Wu, J. R. Ashburn, C.J. Torng, P.H. Hor, R.L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, Y.Q. Wang, C.W. Chu, *Phys. Rev. Lett.*, **58** (1987) 908.
- [10] C.W. Chu, J. Bechtold, L. Gao, P.H. Hor, Z.J. Huang, R.L. Meng, Y.Y. Sun, Y.Q. Wang, Y.Y. Xue, *Phys. Rev. Lett.*, **60** (1988) 941.
- [11] S.S.P. Parkin, Y.V. Lee, E.M. Engler, A.I. Nazzal, T.C. Hunag, G. Gorman, R. Savoy, R. Beyers, *Phys. Rev. Lett.*, **60** (1988) 2539.
- [12] J.T.S. Irvine, *Insights Into Speciality Inorganic Chemical* (edited by David Thompson) (1995).
- [13] J. Nagamatsu, N. NaKagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, J. Akimitsu, *Nature*, **63-64** (2001) 412.
- [14] D. Djurek, Z. Medunic, A. Tonejc, M. Paljevic, *Physica C*, **341-348** (2000) 723.
- [15] Kittel, « physique de l'état solide », *édition VII, chapitre 12* (1997)
- [16] J.P. Burger, « La supraconductivité des Métaux, des alliages et des films minces », Masson et Cie (1974).
- [17] E. Maxwell, *Phys. Rev*, **78** (1950) 477.
- [18] C.R. Hu, *Phys. Rev. B*, **6** (1972) 1756.
- [19] P.G. De Gennes, *Reviews of mod. Phys.*, **36** (1964) 225.
- [20] V. Ambegaokar, A. Baratoff, *Phys. Rev. Lett.*, **10** (1963) 486.
- [21] D. Esteve J.M. Martinis, C. Vrbina, M.H. Devoret, *Europhys. Lett.*, **3** (1987) 1237.
- [22] W. Lawrence, S. Doniach, *Proc. Of the 12th conf. on Low-Temperature Phys.*, Kyoto, Ed. Kanda (1970) 361.
- [23] D. Feinberg, *J. Phys. France III*, **4** (1994) 169.
- [24] L.N. Bulaevskii, M. Ledvij, V.G. Kogan, *Phys. Rev. B*, **46** (1992) 366.

Chapitre II

Appareillage et techniques expérimentales

1. Introduction

Les mesures de la densité de courant critique J_c des supraconducteurs à haute température critique (SHTC) représentent un intérêt capital dans leur développement pour les futures applications. Au cours de ce travail, nous avons utilisé deux méthodes de mesures pour déterminer J_c : les mesures des courbes d'aimantation et les mesures des caractéristiques courant-tension ($V-I$).

Les mesures d'aimantation ont été faites avec un magnétomètre à échantillon vibrant (Vibrating Sample Magnetometer (V.S.M.) en anglais), au laboratoire de Physique des Solides de l'Université Paris-Sud au sein du groupe de S. Senoussi. Ceci requiert un appareillage assez lourd et une mise au point délicate. Nous devons faire des mesures dans un champ magnétique pouvant atteindre 16 T et à des températures allant de 4.2 K (température de l'hélium liquide) jusqu'à environ 150 K (au-dessus de la température maximale de transition des nouveaux supraconducteurs). Le champ magnétique est produit par une bobine supraconductrice qui doit être immergée dans de l'hélium liquide. Le dispositif qui permet cette opération est un cryostat à bain d'hélium liquide avec une garde d'azote liquide. Pour faire varier la température de l'échantillon nous avons choisi de faire circuler du gaz d'hélium chaud dans une enceinte isolée du cryostat, appelée anticryostat. Le dispositif de production des vibrations de l'échantillon, dans le champ magnétique, est formé d'une tête placée en haut du cryostat et d'une canne porte-échantillon. La mesure se fait par l'intermédiaire de bobines "pick-up" placées de part et d'autre de la position de repos de l'échantillon. L'intérêt de cette technique est qu'elle n'est pas destructive et qu'elle permet d'étudier des échantillons massifs.

Par contre les mesures de transport nécessitent la réalisation de contacts électrique sur l'échantillon ; de ce fait elles sont plus destructives. Les mesures des caractéristiques $V-I$ des SHTC en courant continu sont très souvent affectées par l'échauffement au niveau des contacts électriques. La chaleur ainsi diffusée dans l'échantillon entraîne une variation non négligeable, en fonction du temps, de la température de l'échantillon et de fortes instabilités thermiques peuvent se produire à hautes densités de courant. Les valeurs de la densité de courant critique, qu'on peut pratiquement mesurer, s'en trouvent ainsi limitées. Pour surmonter ce problème, une méthode de mesure des caractéristiques $V-I$ a été mise au point. Elle consiste à appliquer le courant de transport pendant une courte durée (de 10 à 20 ms) avec un faible taux de récurrence (2 s). La puissance moyenne dissipée au niveau des

contacts électriques est donc fortement diminuée et les problèmes d'échauffement sont minimisés.

En plus du magnétomètre à échantillon vibrant, nous avons utilisé un magnétomètre à SQUID pour mesurer l'aimantation et la susceptibilité magnétique alternative dans les composés organiques supraconducteurs. Le SQUID utilisé peut atteindre un champ magnétique de 5 T et une température aussi basse que 2 K

2. Mesures Magnétique

2.1. Cryostat

Le schéma du cryostat utilisé est représenté sur la figure II. 1. Il s'agit d'un cryostat à double paroi. Son rôle principal de maintenir la bobine supraconductrice à la température de 4.2 K et de constituer une réserve d'hélium liquide pour refroidir l'échantillon aux températures de mesure. Sa capacité utile est de 35 litres, assurant une autonomie pouvant atteindre quatre jours dans des conditions particulières (maintenir le vide séparant les différentes enceintes à un niveau optimal...). Dans sa partie supérieure se trouve une garde d'azote liquide qui permet de maintenir l'écran de radiations à la température de l'azote liquide (77 K). Le niveau de l'hélium liquide est constamment contrôlé par une sonde-tige vibrante. La bobine supraconductrice est placée au fond du cryostat. Elle est maintenue par des tiges sur lesquelles sont fixés, espacés régulièrement, des disques en cuivre qui jouent le rôle d'écrans de radiations. Pour un bon fonctionnement du cryostat, le vide du cryostat est contrôlé régulièrement et la garde d'azote est maintenue remplie pendant les périodes des mesures.

2.2. Anticryostat

L'anticryostat (figure II. 2) est l'enceinte où se trouve l'échantillon. Tout comme le cryostat, il est à double paroi avec des couches de super isolant sur la paroi intérieure. Alors que le rôle de cryostat est de maintenir la bobine supraconductrice à la température de 4.2 K et de constituer une réserve d'hélium liquide, celui de l'anticryostat est de maintenir l'échantillon à une température différente et stable. Le flux d'hélium liquide, issu du cryostat, passe par un capillaire puis arrive à l'enceinte où vibre l'échantillon par l'intermédiaire d'une vanne froide contrôlée de l'extérieur. Là, l'hélium liquide est vaporisé, chauffé à la température désirée et pompé pour chauffer, plus haut, l'échantillon qui se trouve au centre de la bobine supraconductrice. Entre les deux parois où est maintenu un

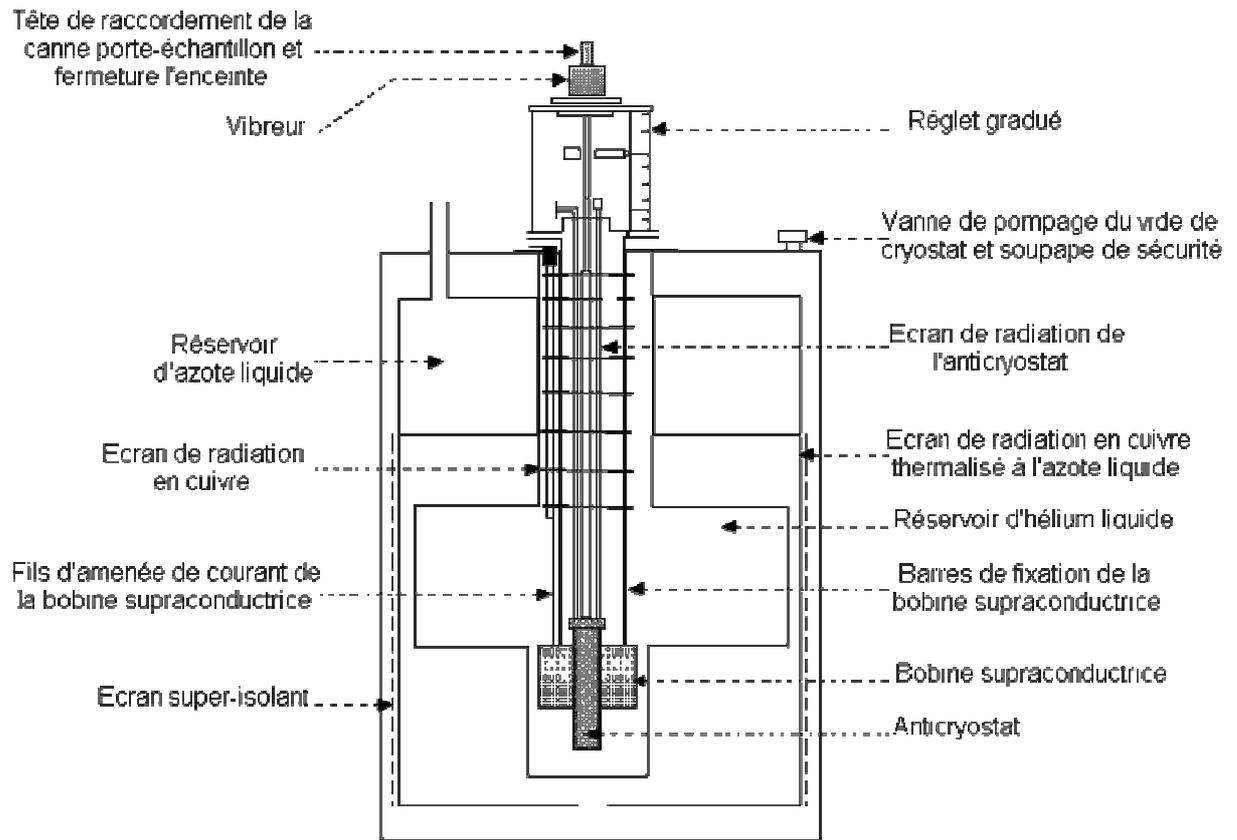


Figure II. 1 : Schéma du cryostat [1].

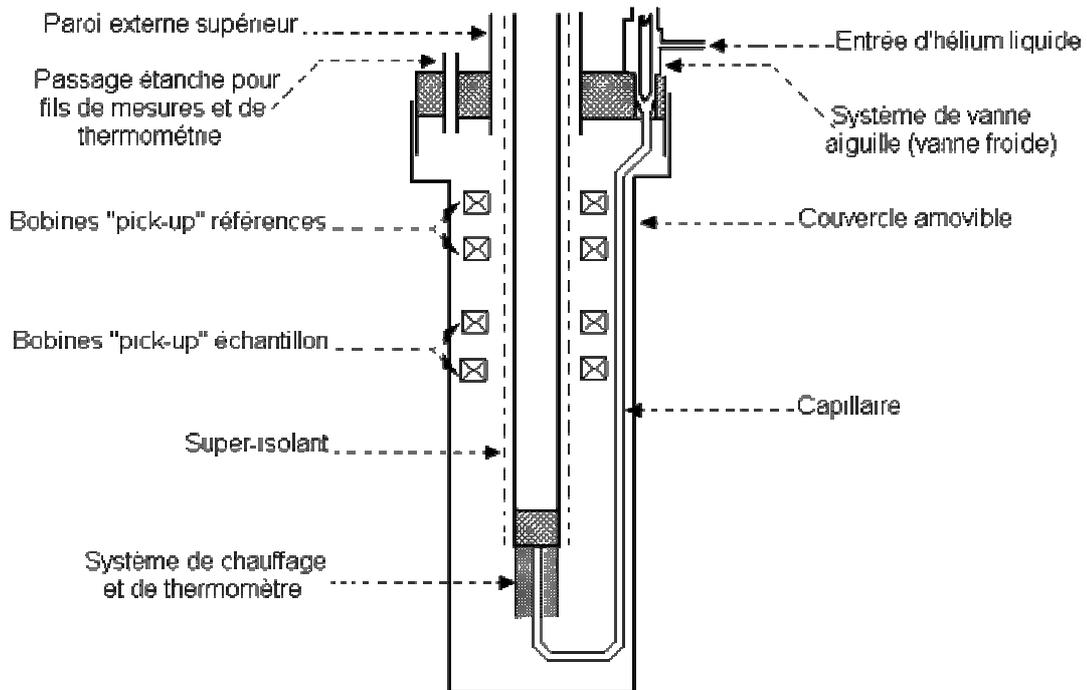


Figure II. 2 : Schéma de l'anticryostat [1]

vide cryogénique, en contact avec le fond de l'enceinte, sont disposés au fond de l'anticryostat le système de chauffage de l'hélium liquide avec deux thermomètres, une résistance au carbone-glass et une résistance de platine (100 Ω à la température ambiante) pour la régulation de température. Toujours dans le même espace sont disposées aussi les bobines de détection ou "pick-up" du V.S.M. ainsi qu'une sonde de Hall pour la mesure du champ magnétique de la bobine supraconductrice.

2.3. Bobines de détection (ou "pick-up")

Ce sont deux bobines identiques montées en opposition concentriques sur l'axe z et disposées symétriquement de part et d'autre de la position de repos de l'échantillon (figure II. 3). De cette manière elles sont insensibles aux perturbations environnantes, en particulier au champ magnétique produit par la bobine supraconductrice. La différence de potentiel entre ces deux bobines, est directement liée à l'aimantation de l'échantillon $M(H)$. En effet, l'échantillon supraconducteur, en réponse à un champ magnétique extérieur, génère une aimantation. Pour mesurer cette aimantation, nous faisons varier le flux magnétique détecté par les bobines de mesure en faisant vibrer l'échantillon autour de sa position de repos. Le signal, induit dans les bobines "pick-up" par ces vibrations est mesuré par l'intermédiaire d'une détection synchrone, est dû à la variation de flux de l'aimantation du même échantillon. Cette variation de flux est proportionnelle au déplacement de l'échantillon de la façon suivante.

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{Cdz}{dt} \quad (\text{II-1})$$

où z exprime le déplacement de l'échantillon dans l'axe des bobines "pick-up" et C une constante. Comme les deux bobines sont disposées de part et d'autre de l'échantillon, l'une voit un déplacement z tandis que l'autre voit un déplacement $-z$. Le signal mesuré est alors:

$$e = e_1 - e_2 = -2 \frac{d\phi}{dt} = -2 \frac{Cdz}{dt} \quad (\text{II-2})$$

où e_1 et e_2 représentent les tensions vues séparément par chaque bobine "pick-up". La sensibilité de ces bobines dépend du nombre de tours des bobines, à leur position relative et surtout de la qualité de leur compensation. Pour tester cette compensation, nous injectons un courant alternatif, de même fréquence que les vibrations de l'échantillon, dans la bobine supraconductrice et nous mesurons le signal de ces bobines. Une compensation idéale donnerait un signal nul. Cependant, dans le cas réel, ce signal est non nul et le rapport de ce signal sur la somme des tensions mesurées séparément aux bornes de chaque bobine est proportionnel à leur sensibilité.

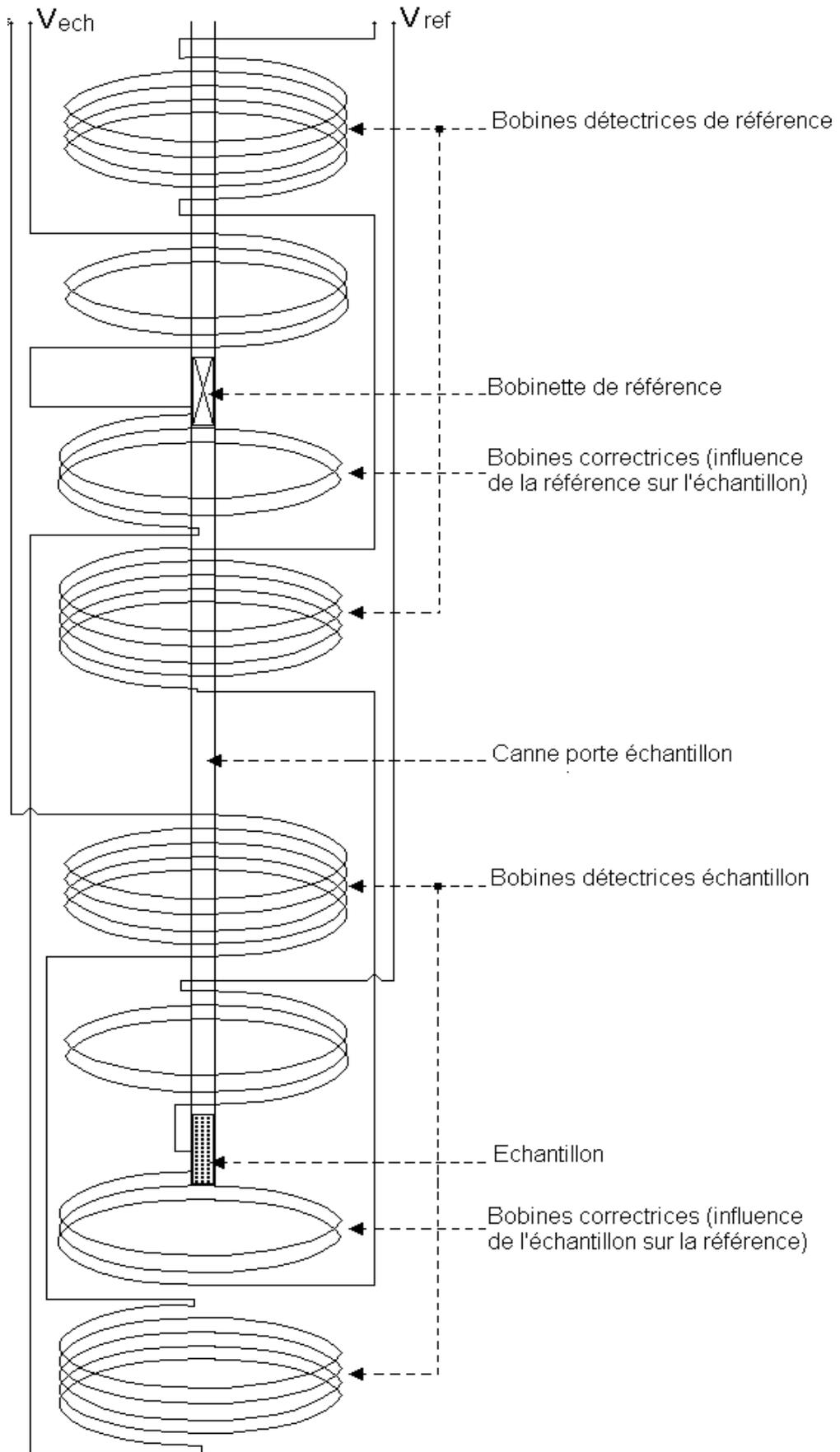


Figure II. 3 : schéma de principe des bobines "pick-up" [2]

D'autres paramètres interviennent sur les performances. Le signal mesuré dépend aussi de la distance entre les "pick-up". Pour cela, il faut réaliser des supports de bobines dont l'un se visse dans l'autre de façon à pouvoir régler la distance entre les deux bobines. Le réglage pour une détection optimale a été fait à l'ambiante en dehors du cryostat et de la bobine supraconductrice. Le signal dû au flux généré par l'aimantation de l'échantillon dépend aussi de la surface moyenne des spires des bobines et de ce qu'on appelle le facteur de remplissage, c'est-à-dire le rapport entre la section de l'échantillon et celui de la section interne des bobines. En réalité un compromis doit être recherché puisque l'échantillon se trouve entre les deux bobines. Il faut, en d'autres termes, que le maximum de lignes de flux générées par l'aimantation de l'échantillon traverse les spires des bobines. Dans le cas du VSM, cela veut dire que le diamètre intérieur du support des bobines "pick-up" doit être le plus proche de celui de l'enceinte. On pourrait aussi mettre les bobines "pick-up" dans cette même enceinte à condition de pouvoir les isoler thermiquement de l'échantillon dont, en général, on fait varier la température. Il faut, en effet, que la température des bobines "pick-up" reste stable (généralement à 4.2 K). Dans notre cas, les bobines "pick-up" sont placées dans le vide de l'anticryostat. Ainsi, d'une part le coefficient de remplissage est important, d'autre part les bobines "pick-up" sont thermalisées par l'intermédiaire de leurs fils à 4,2 K. Cette thermalisation intervient après environ deux heures lorsque le remplissage du cryostat est fait à partir de la température de l'azote liquide. Dans le cas où le remplissage serait fait alors que la bobine principale est encore supraconductrice, la température des bobines "pick-up" varie peu.

Un facteur très important intervient dans la qualité des bobines "pick-up". Il s'agit de la qualité du bobinage. Si par hasard les spires ne sont pas fixes, elles peuvent vibrer dans le champ magnétique de la bobine supraconductrice et générer ainsi un bruit qui peut être gênant pour les mesures de bas niveau. Pour éviter cela, les bobines "pick-up" sont imprégnées ou bien enduites de vernis (dans ce cas, le vernis est appliqué à chaque couche). Il est évidemment essentiel que les bobines "pick-up" soient bien fixées et bien centrées par rapport à la bobine supraconductrice.

Les vibrations de l'échantillon, dans les mesures par VSM, sont entretenues par un système électromécanique, semblable à celui d'un haut-parleur, composé d'un aimant permanent, d'une bobine et de lames élastiques de rappel. La bobine, solidaire du porte-échantillon, alimentée par un courant alternatif a un déplacement alternatif proportionnel au même courant. Ce système de vibration peut être influencé par le fort champ magnétique produit par la bobine supraconductrice (dans notre cas jusqu'à 7 T). D'autre part, il peut aussi induire un signal parasite dans les bobines "pick-up" mesurant l'aimantation de l'échantillon. Pour ces raisons, le système d'entretien des vibrations (que nous appelons vibreur) est placé à une distance assez grande du centre de la bobine supraconductrice. Le porte-échantillon est alors constitué d'une canne avec éventuellement des thermomètres et

un chauffage d'appoint. La canne est assez longue et doit concilier plusieurs qualités dont la robustesse, la légèreté, la précision géométrique et un signal magnétique faible. L'amplitude de la vibration peut subir des variations dans le temps à cause, en particulier, des frottements que fait la canne avec les parois de l'enceinte. Ces frottements sont la conséquence soit d'une mauvaise précision de la canne, soit de la glace qui peut se former sur la canne, lorsque étant à température ambiante. Elle est plongée dans l'anticryostat (on réduit au maximum cette formation de glace en mettant l'enceinte sous pression d'hélium). Toutes les précautions prises, aussi bien dans la réalisation, que dans la manipulation, ne font que minimiser les causes de variation de l'amplitude des vibrations. Pour palier à ce problème, une deuxième paire de bobines "pick-up" est ajoutée pour détecter le signal d'une petite bobine fixée sur la canne porte-échantillon et alimentée par un courant constant. Cette bobinette, appelée de référence, permet de s'affranchir des frottements de la canne soit en calibrant le signal de l'aimantation qu'elle génère, soit en mesurant en mode ratio, c'est-à-dire le rapport du signal échantillon sur celui de cette même bobinette. Les bobines "pick-up" détectant le signal de la bobinette de référence, appelés eux-aussi de référence, peuvent être soit placées proches des bobines "pick-up" de l'échantillon, soit proches du vibreur. L'essentiel est d'avoir un signal peu influencé par le bruit environnant. Dans ce cas, l'emplacement des bobines "pick-up" de références sont proches des bobines "pick-up" de l'échantillon dans le vide d'isolement de l'anticryostat. Cette solution entraîne un petit inconvénient. Aussi bien l'échantillon que la bobinette induisent des signaux parasites, le premier sur les bobines "pick-up" de référence, la seconde sur les bobines "pick-up" de l'échantillon. Pour corriger ce défaut, un bobinage supplémentaire de quelques spires est réalisé sur chaque paire de bobines "pick-up". Ce bobinage prend une partie du signal de la bobinette de référence (de l'échantillon) et l'oppose à celui de l'échantillon (de la bobinette de référence). Cette correction a été faite à température ambiante, les bobines "pick-up" hors de l'anticryostat.

2.4. Vibreur

Nous appelons ainsi le système électromécanique qui permet l'entretien des vibrations de la canne porte-échantillon. C'est un dispositif de marque PAR (Princeton Applied Research, U.S.), constitué d'un aimant permanent en forme de cylindre troué le long de son axe et d'une bobine solidaire de deux lames élastiques placées de part et d'autre de cette même bobine. La bobine, alimentée par un courant alternatif d'amplitude constante, subit une force proportionnelle à la valeur instantanée de ce courant qui s'oppose à la force de rappel des deux lames élastiques. Il en résulte des oscillations entretenues du système. La canne porte-échantillon est solidaire de la bobine vibrante. Ainsi le système en vibration est constitué par la bobine, les deux lames élastiques et la canne porte-échantillon. Le poids de cette même canne et surtout les frottements qu'elle peut subir influent beaucoup sur la

régularité des vibrations. On peut ainsi observer un déphasage entre le signal d'excitation de la bobine vibrante et celui détecté sur les bobines "pick-up" de référence différent de 90° (l'équation (II-2) montre que dans le cas idéal et pour un courant dans la bobinette de référence créant une aimantation positive suivant z , le signal détecté doit être déphasé de 90°). Le vibreur doit avoir une bonne étanchéité puisque la canne porte-échantillon doit vibrer dans l'enceinte où circule le gaz d'hélium qui assure le chauffage de l'échantillon. Le pompage du gaz d'hélium est fait en dessous du vibreur au niveau du raccordement avec l'anticryostat. Au niveau du vibreur une vanne permet de mettre l'enceinte en contact soit avec la ligne de récupération d'hélium, soit avec une bouteille d'hélium liquide. Cette dernière permet de créer une petite surpression de gaz d'hélium pour la mise en position ou l'enlèvement de la canne porte-échantillon. Cette précaution permet d'éviter que la canne porte-échantillon se givre.

Le vibreur est muni, sur sa base, de deux mollettes qui permettent de régler son axe sur celui du cryostat. Les mollettes sont décalées de 90° . Leur réglage est très laborieux et intervient de manière très sensible sur le signal donné par les bobines "pick-up". Un mauvais réglage de l'axe du vibreur peut provoquer des frottements sur la canne porte-échantillon et le signal recueilli sur les bobines "pick-up" est d'une part réduit et surtout entaché de bruit important. L'amplitude de la vibration provoquée par le vibreur n'est plus constante.

Le vibreur peut aussi faire des rotations autour de son axe. Ce dernier système permet de faire tourner l'échantillon, mais est très peu utilisé dans le cas d'une vibration parallèle au champ magnétique parce que l'angle avec le champ magnétique appliqué reste constant. Le vibreur est aussi muni d'un système permettant de déplacer la canne le long de son axe. Ce dernier système permet de faire un réglage fin de la position de l'échantillon.

2.5. Canne porte-échantillon

C'est l'élément (figure II. 4) le plus délicat et le plus sensible de l'ensemble de mesure en VSM. Cette canne permet de placer l'échantillon au centre de la bobine supraconductrice, d'assurer la transmission des vibrations produites par le vibreur et, éventuellement, mesurer la température. Elle peut aussi comporter un chauffage d'appoint proche de l'échantillon. Elle doit avoir deux caractéristiques difficiles à concilier du fait de sa longueur, de son diamètre imposé et des conditions de fonctionnement: la solidité et un faible signal magnétique. La canne doit être solide parce qu'elle est souvent enlevée et remise en place soit pour changer l'échantillon, soit, comme nous le verrons, pour modifier l'orientation de l'échantillon par rapport au champ magnétique. L'extrémité inférieure de la canne passe alors de la température régnant dans l'enceinte de l'anticryostat (entre 4 K et 100 K le plus

souvent) à la température ambiante. La longueur de la canne est imposée par la position du vibreur par rapport au cryostat (Figure II. 1). Cette position est imposée par les dimensions du vibreur et de tout l'appareillage de sortie du cryostat et de l'anticryostat (vannes de pompage et sortie des fils de mesure). Il y a aussi un impératif de maniabilité parce qu'il faut tenir compte du fait que la canne doit être fixée au vibreur chaque fois qu'elle est mise en place. Si le blocage de la canne est manuel, comme c'est notre cas, il faut que le dispositif de blocage soit accessible. Toutes ces considérations font que la longueur de la canne, que nous utilisons, soit d'environ 1.5 m avec un diamètre de 6 mm sur sa partie la plus longue. Le diamètre de la canne est surtout imposé par le diamètre intérieur de l'anticryostat où doit vibrer le porte-échantillon.

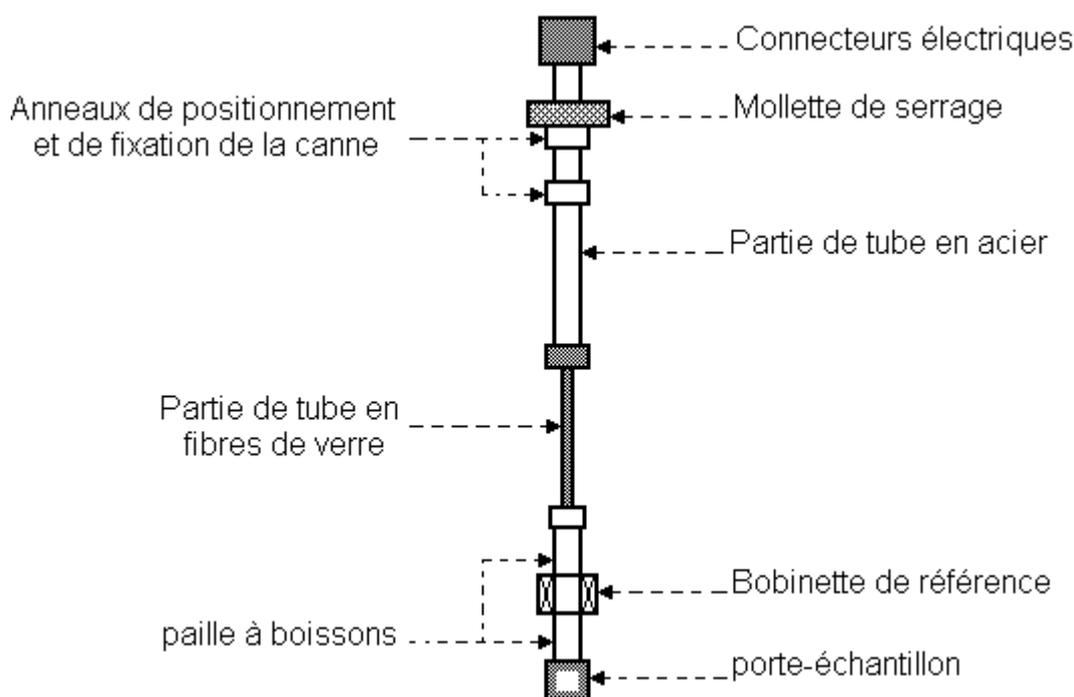


Figure II. 4 : Schéma de la canne porte-échantillon [3]

Le problème du signal magnétique de la canne est plus délicat. Il influe sur sa réalisation finale. Les matériaux constituant la canne doivent avoir la susceptibilité magnétique la plus faible possible. Etant donné les conditions de fonctionnement, c.-à-d. une température variant de 4.2 K à environ 150 K et un champ magnétique appliqué variant de 0 à 7 T, c'est une condition difficile à concilier avec la condition de solidité. Dans ce cas, les matériaux utilisés ont une faible susceptibilité magnétique pour la partie inférieure de la canne, qui est près de la bobine supraconductrice, et sont l'acier pour la partie supérieure de la canne (figure II. 4).

La partie inférieure est constituée d'un morceau en fibre de verre et d'une partie terminale faite de deux morceaux de chalumeaux en matière plastique (ceux utilisés comme paille pour les boissons). Les différents morceaux sont joints par du KLF, la jointure entre les deux morceaux de paille constituant le support de la petite bobine de référence. Au bout de la canne se trouve le porte-échantillon qui peut être, soit en KLF, soit en araldite. Il peut être de fabrication plus ou moins compliquée suivant la géométrie de l'échantillon à étudier et le type de mesures à réaliser. Ainsi pour des mesures où l'angle entre un des axes de l'échantillon et le champ magnétique varie, le porte-échantillon est constitué de deux parties, l'une se vissant sur la canne et l'autre, supportant l'échantillon, pouvant pivoter par rapport à l'axe de la canne.

2.6. Chaîne de mesure

Notre étude sur les matériaux supraconducteurs à haute température critique est basée essentiellement sur l'interprétation de leurs courbes d'aimantation et en particulier leurs cycles d'hystérésis. Les mesures des cycles exigent un appareillage particulier et complexe. Il s'agit de faire varier continûment le courant continu alimentant la bobine supraconductrice tout en enregistrant les valeurs de l'aimantation de l'échantillon et celles du champ appliqué.

2.6.1. Alimentation de la bobine supraconductrice

Cette alimentation capable de délivrer 100 A sous une tension maximum de 15 V est de type bipolaire. La vitesse de balayage de ce courant (3 mA/s - 0.8 A/s) est limitée essentiellement par le fait que la bobine supraconductrice présente à ses bornes une tension égale à

$$Ri + L \frac{di}{dt}, \quad (\text{II-3})$$

où L est le coefficient d'auto-induction de la bobine et R la résistance des fils de connexion à l'alimentation. Avec les caractéristiques nominales de cette alimentation une pente de 0.8 A/s peut être appliquée à la bobine. Cela permet d'atteindre le champ maximum en moins d'une minute et demi.

2.6.2. Détection synchrone

La détection synchrone est l'élément essentiel avec les bobines "pick-up" de la chaîne de mesures en VSM. La détection synchrone est l'opération effectuée par un appareil, dont c'est devenu le nom consacré. Dans la littérature on trouve plusieurs noms dont

amplificateur à détection synchrone et amplificatrice à verrouillage de phase à côté des noms consacrés de la littérature anglaise tel que lock-in amplifier (parfois lock-in est utilisé simplement) et phase sensitive détecteur dont l'abréviation *PSD* est souvent utilisée. Nous utiliserons le plus souvent le terme détection synchrone pour désigner soit l'appareil, soit l'opération qu'il effectue.

En général, l'appareil intègre deux opérations essentielles dans la mesure des signaux de faible niveau : une amplification, c.-à-d. une adaptation d'impédance entre la source produisant le signal et l'appareil de mesure, et une détection synchrone qui consiste à multiplier le signal à mesurer avec un signal de référence de même fréquence (d'où le terme synchrone) pour l'extraire du bruit. L'amplification peut être très sélective si le mode bande-passante est choisi.

L'appareil donne la valeur de deux composantes par rapport à la référence choisie. La première est ce qui est appelé communément la phase et c'est la composante en phase du signal ou, si on considère une représentation vectorielle, la projection du vecteur signal sur le vecteur référence. L'autre composante est appelée quadrature et c'est la composante en quadrature de phase avec la phase ou la projection du vecteur signal sur un axe orthogonal au vecteur référence. En général la détection synchrone est munie d'un dispositif qui permet de changer le déphasage entre le signal et la référence. Ceci permet de mesurer directement l'amplitude du signal en changeant le déphasage de façon à annuler la quadrature.

L'appareil donne, en sortie, une tension continue qui est la valeur efficace du signal mesuré. Cette tension peut présenter des fluctuations qui peuvent être gênantes et plus ou moins importantes suivant les conditions de mesure. A cet effet un filtre est disposé en sortie de l'appareil. Ce filtre constitue la constante de temps de l'appareil et, en général, ce sont les valeurs en secondes (et millisecondes) qui sont utilisées pour le régler. Ainsi le temps nécessaire à l'appareil pour donner la valeur du signal mesuré est égal à deux fois la période plus la constante de temps. Ce paramètre que nous appelons temps de mesure est très important pour certains types de mesures que nous effectuons.

Il nous paraît essentiel de faire la remarque que la mesure avec une détection synchrone n'est possible que s'il y a une relation physique entre la source produisant le signal à mesurer et celle produisant le signal de référence.

Les détections synchrones que nous utilisons sont de marque *EG&G*, modèles *PAR 5209* et *PAR 5210*. Elles sont entièrement programmable par une liaison de type *IEEE 488*. La même liaison permet de transmettre la valeur de la mesure avec ses différents paramètres sur ordinateur. Les deux appareils disposent de la possibilité de effectuer une mesure en mode ratio, c.-à-d. de mesurer le rapport entre le signal et une tension continue de référence.

2.6.3. Régulation de température

Cette régulation est du type *PID*, c.-à-d. régulation par action proportionnelle, intégrale et dérivée de l'écart de température. Elle est effectuée par un appareil de marque Oxford, type *ITC 4*. Cet appareil est entièrement automatique et peut être commandé par ordinateur à travers une liaison de type *RS 232* ou série. Les constantes *P*, *I* ou *D*, à fixer avant le démarrage d'une régulation en température, caractérisent la réponse, à une perturbation, du système à réguler. Le système est constitué par le chauffage (source chaude), la vanne permettant de laisser entrer l'hélium liquide (source froide) dans l'anticryostat, la vanne permettant de régler le débit du pompage, la pompe, la ligne de pompage et l'enceinte de l'anticryostat (élément à réguler en température). Les constantes doivent être déterminées en faisant des essais après avoir fixé le paramètre *P* et en enregistrant la réponse du système, c.-à-d. la variation de sa température en fonction du temps. La période de cette réponse, qui est en général de type oscillatoire, permet de se faire une idée de la valeur du paramètre *I*. Le paramètre *P* fixe le gain de la puissance à donner au chauffage en fonction de l'écart en température par rapport à la température de consigne. Le paramètre *I* prend compte l'évolution passée du système. En pratique l'ajustage des paramètres *P* et *I* permet de faire disparaître les oscillations et d'atteindre la température de consigne en un temps minimum. Le paramètre *D* permet de régler le système pour que, lors d'un échelon de température, il atteigne la valeur demandée sans la dépasser.

Cette description d'une régulation de type *PID* est trop sommaire. En réalité les différents paramètres sont liés les uns aux autres, c.-à-d. la variation d'un paramètre entraîne celles des deux autres. Ces paramètres dépendent beaucoup de l'ouverture de la vanne de pompage (c.-à-d. du débit de pompage) et du thermomètre utilisé, donc de la constante de temps du système et de la température que l'on veut lui imposer.

2.6.4. Enregistrement d'un cycle

L'enregistrement d'un cycle tel que celui de la figure II.5 nécessite une certaine procédure bien particulière. Il s'agit de faire varier le champ continûment de zéro vers sa valeur maximum positive, puis vers sa valeur minimum négative, puis de nouveau vers sa valeur maximum positive. Pendant cette variation du champ, deux grandeurs doivent être mesurées simultanément: le champ *H* et l'aimantation *M*. La mesure du champ permet d'une part d'enregistrer le cycle d'hystérésis et d'autre part de commander l'alimentation de la bobine supraconductrice. En effet, il nous faut connaître ce paramètre pour pouvoir commander le courant de l'alimentation de manière adéquate.

La mesure de l'aimantation est donnée par la détection synchrone avec la technique que nous avons décrite plus haut. La mesure du champ peut se faire soit de manière directe (par

exemple avec une sonde de Hall placée dans le champ de la bobine supraconductrice), soit par une mesure indirecte qui consiste à mesurer le courant dans la bobine supraconductrice. C'est la méthode que nous utilisons en mesurant la tension aux bornes d'une résistance étalon insérée en série avec la bobine supraconductrice.

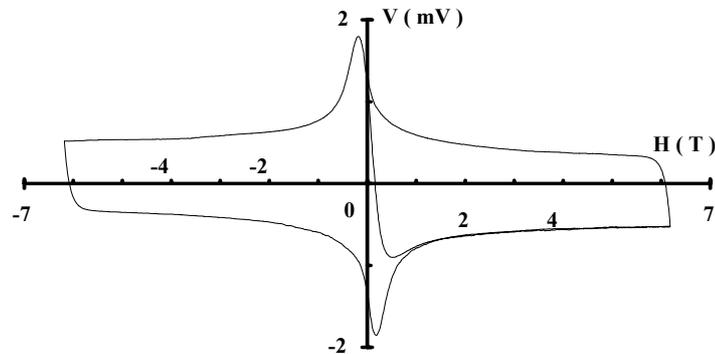
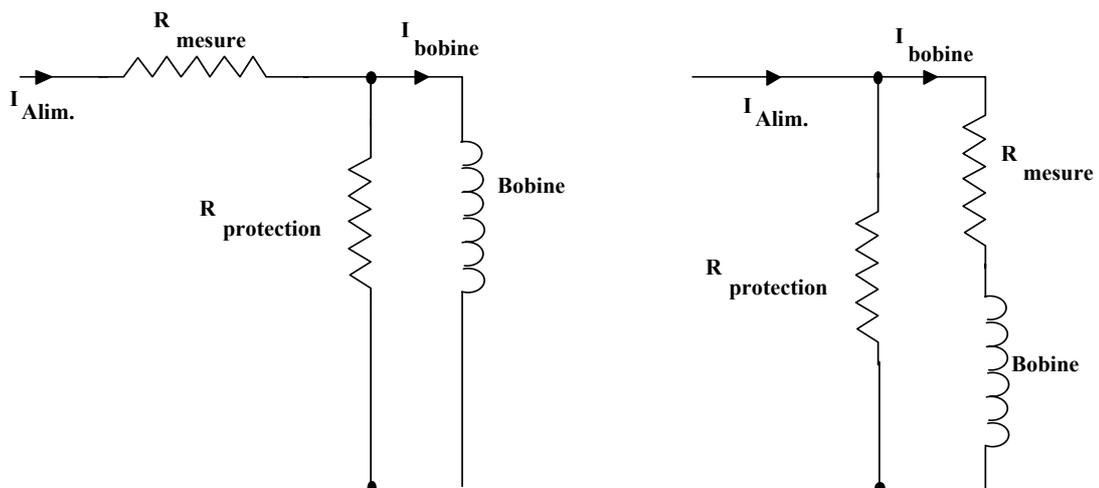


Figure II. 5 : Exemple de cycle enregistré en utilisant l'alimentation Cryogenics. Dans l'encadré on remarque la forme de l'aimantation due à une relaxation pendant le temps d'attente lors du passage à zéro.



(a) Montage incorrect

(b) Montage correct

Figure II. 6 : Montage de la résistance de mesure du courant de la bobine supraconductrice.(a) on ne mesure pas le courant de la bobine; (b) on mesure le courant de la bobine [3].

Comme la bobine supraconductrice comporte généralement une résistance de protection, le montage de la résistance de mesure peut induire des erreurs comme le montre la figure II. 6. Ce problème peut parfois ne pas être évité, la bobine supraconductrice ayant soit des résistances de protection montées à l'intérieur du cryostat (sur le passage du gaz froid d'hélium pour leur refroidissement), soit un shunt supraconducteur pour le

fonctionnement en mode permanent qui a une résistance lorsqu'il est normal. On doit alors apporter des corrections au courant mesuré. Dans notre cas, la résistance de protection est extérieure au cryostat, ce qui nous a permis de fixer sa valeur de façon adéquate (le problème est discuté dans le prochain paragraphe) et de faire le montage correct pour avoir le champ de la bobine en lisant seulement son courant.

La figure II. 7 montre comment est déformée l'enregistrement d'un cycle d'hystérésis lorsque le montage n'est pas correct. La constante de temps L/R du circuit constitué par la bobine et les différentes résistances (la résistance de mesure, la résistance de protection, la résistance des fils d'amenée de courant) est la cause du retard de l'établissement du courant dans la bobine par rapport au courant de l'alimentation. C'est ce qui explique la forme du cycle de la figure II. 7 à ses extrémités et à champ nul.

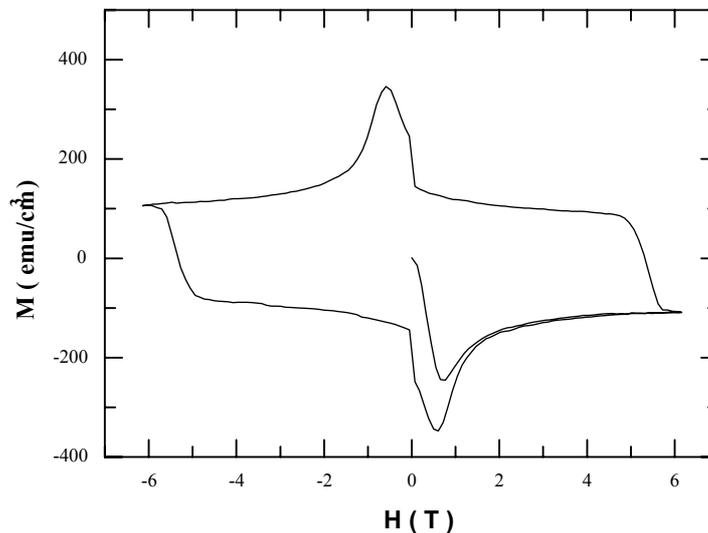


Figure II. 7 : Cycle d'hystérésis enregistré avec une mauvaise lecture du courant de la bobine supraconductrice. Le retard dans l'établissement du courant dans la bobine à cause de la constante de temps L/R fait que l'aimantation n'est pas corrélée à la bonne valeur de champ. Dans le cycle est montrée la courbe de première aimantation qui part avec une tangente presque nulle, ce qui montre bien que l'enregistrement n'est pas correct.

2.6.5. Dispositif d'enregistrement

Le schéma de la chaîne de mesure qui comprend les différents appareils cités plus hauts, est décrit en figure II. 8.

Avant chaque séquence de mesure, on fixe la température de l'échantillon et on lance le programme de sa régulation. Une fois que la température de l'échantillon est stable, on

échantillon est de 55 emu/g. connaissant la masse de l'échantillon (217.7 mg), on peut facilement déduire le facteur de conversion entre les moments magnétiques en mV et en emu. Dans cet exemple, ce facteur est égal à 1.385 emu/mV.

La calibration peut aussi se faire à partir de la courbe d'aimantation d'un supraconducteur de type I tel que le plomb. On déduit la sensibilité de la mesure en tenant compte qu'on alors $H = -4\mu M$.

Le calibrage de la mesure est fait à chaque fois qu'un paramètre des vibrations de l'échantillon est modifié (amplitude, la fréquence des vibrations...).

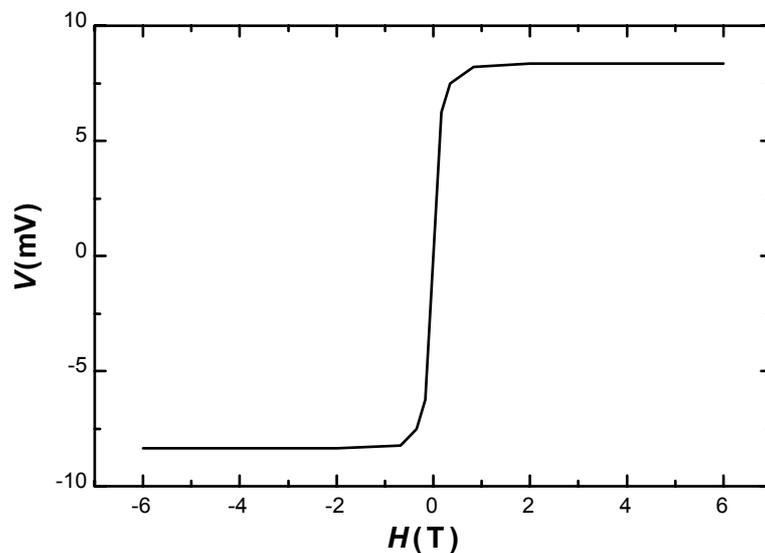


Figure II. 9 : Exemple de signal d'un échantillon de nickel à 4.2 K permettant de déduire le facteur de conversion pour passer d'un moment magnétique mesuré en mV à un moment en emu.

3. Mesures de transport

Dans cette section, nous allons limiter à la description de la méthode de mesure des caractéristiques $V-I$ en courants pulsés, sans revenir sur les détails de quelques parties de l'appareillage expérimental, déjà vu dans la deuxième partie de ce chapitre.

L'alimentation de courant peut délivrer des courants pulsés rectangulaires (figure II. 10) d'intensité variable de 1 nA à 100 mA et de durée $\tau \geq 5$ ms. L'intensité de courant est lue directement à la sortie du générateur par l'ordinateur, la tension aux bords de la région centrale de l'échantillon passe à travers un transformateur de bas bruit de rapport $n = 100$, puis dans un préamplificateur de gain égal à 100 et finalement dans un filtre RC

pour éliminer les bruits à haute fréquence. L'oscilloscope, grâce à un échantillonnage numérique, permet de déterminer le signal moyen pour minimiser le bruit.

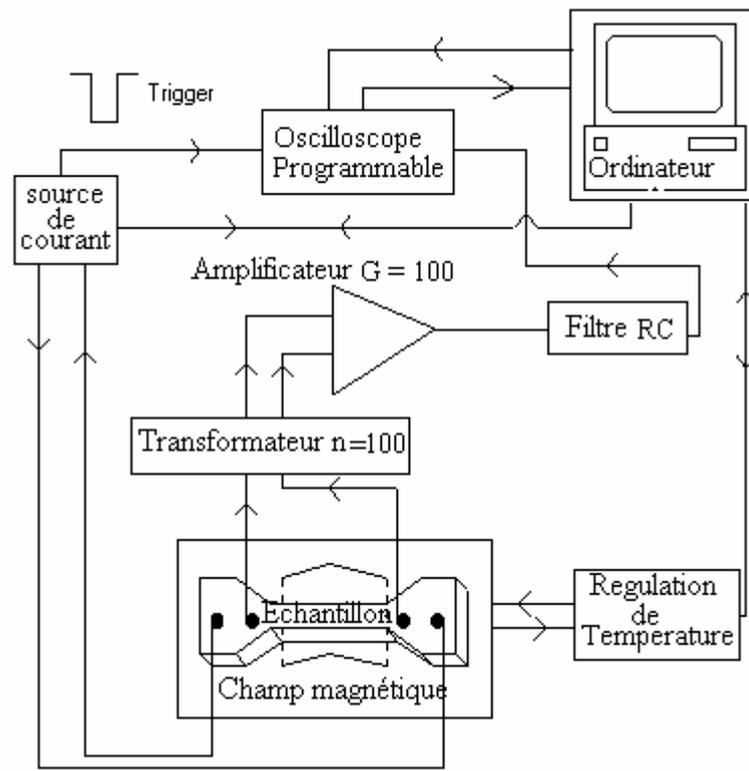


Figure II. 10 : Schéma de principe des mesures de transport à courant pulsé [1, 2].

La figure II. 11 montre deux réponses à un courant de durée 10 ms, avec et sans filtre. En absence du filtre, le pulse à une forme rectangulaire parfaite mais polluée par beaucoup de bruit.

La figure II. 12 représente un exemple de signaux obtenu aux bornes de l'échantillon, montrant un pic transitoire au début et à la fin de l'impulsion, ce pic est probablement dû aux inductances propres des boucles formées par le circuit de mesure. Des courants transitoires induits dans les conducteurs proches de l'échantillon produisent des champs magnétiques et peuvent modifier la caractéristique $V(I)$. Par conséquent, il est nécessaire de torsader les fils pour éliminer les influences mutuelles, de coller tous les fils de mesure sur le support de l'échantillon, afin d'éviter leurs vibrations, d'éliminer toutes les boucles (spires) pouvant exister sur ces fils, et d'utiliser des appareils d'amplification de bonne qualité.

Notons enfin que le relevé d'une courbe $V(I)$ dans ces conditions prend beaucoup de temps (environ 1 heure pour une courbe de 60 points).

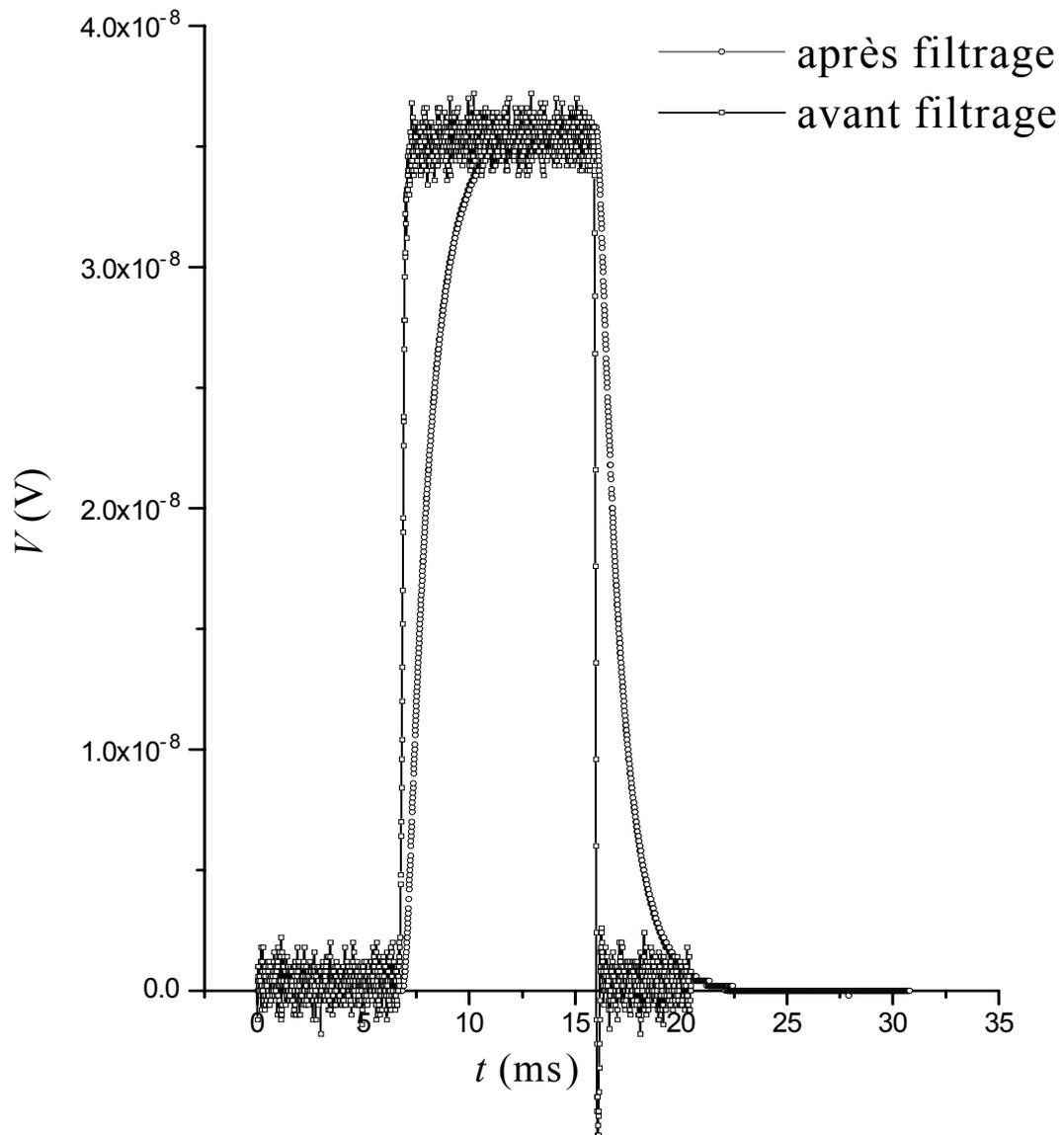


Figure II. 11 : Pulse de tension détecté au bord de l'échantillon avec et sans filtre.

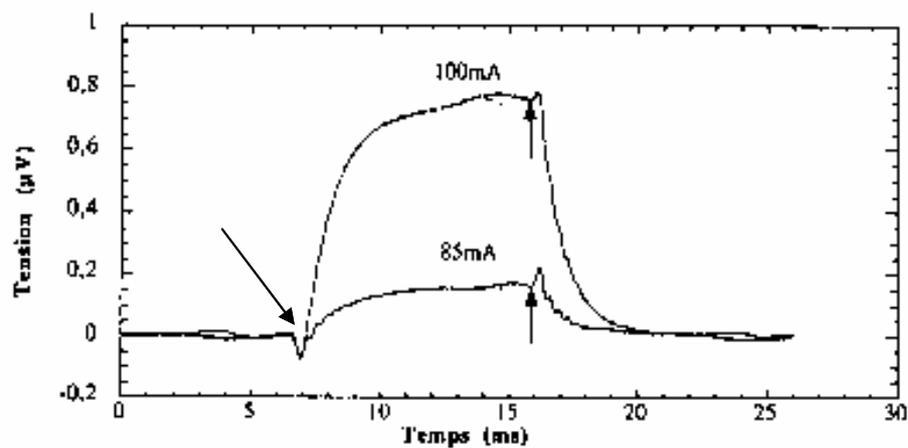


Figure II. 12 : Exemples de signaux d'un film mince d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ en réponse à deux impulsions de courant $I_m = 85 \text{ mA}$ et 100 mA ($T = 75 \text{ K}$, $H = 0 \text{ T}$).

4. Magnétomètres à SQUID

4.1. Jonction Josephson et magnétisme

B.D. Josephson a imaginé dès 1962 [6] qu'un supra-courant pouvait intervenir entre deux supraconducteurs séparés par une fine couche isolante (cf. parag. 5 chap. I), et depuis l'on a montré que l'amplitude de ce courant était affectée par un champ magnétique. Ainsi la jonction Josephson est elle devenue la structure de base du magnétomètre à SQUID.

La figure II. 13 représente une telle jonction dans laquelle à 4.2 K un courant supraconducteur I_c (dit courant critique) traverse la jonction d'alumine avec une chute de tension de 0 V dans la jonction. L'amplitude de ce courant est une fonction périodique du flux magnétique dans la jonction.

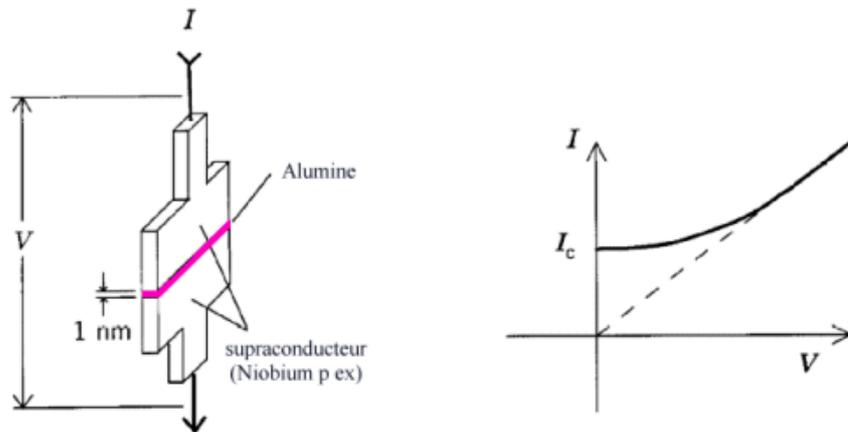


Figure II. 13 : Jonction Josephson

4.2. SQUID

Les magnétomètres à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) sont parmi les dispositifs les plus sensibles pour la mesure des champs magnétiques, en fait ils ne permettent pas de mesurer un champ mais plutôt sa variation. Les gradiomètres vont mesurer la variation spatiale d'un champ magnétique aussi faible que ceux générés par le corps humain.

La figure II. 14 montre un magnétomètre à SQUID en continu, utilisant 2 jonctions Josephson insérées dans un tore tel celui figuré ci-dessus. Quand le flux ϕ_n traversant le tore est un multiple de ϕ_0 la tension entre les deux jonctions est déterminée par et de la courbe $n\phi_0$ (point A). Si le flux s'accroît alors le courant critique décroît et le point d'intersection se déplace vers la droite. Le courant critique atteint une valeur minimale quand le flux s'est accru de $1/2\phi_0$, alors la chute de tension est maximale (point B), si le flux continue à croître

alors le courant critique croît à nouveau et la tension décroît, etc. Ainsi la période du cycle est ϕ_0 .

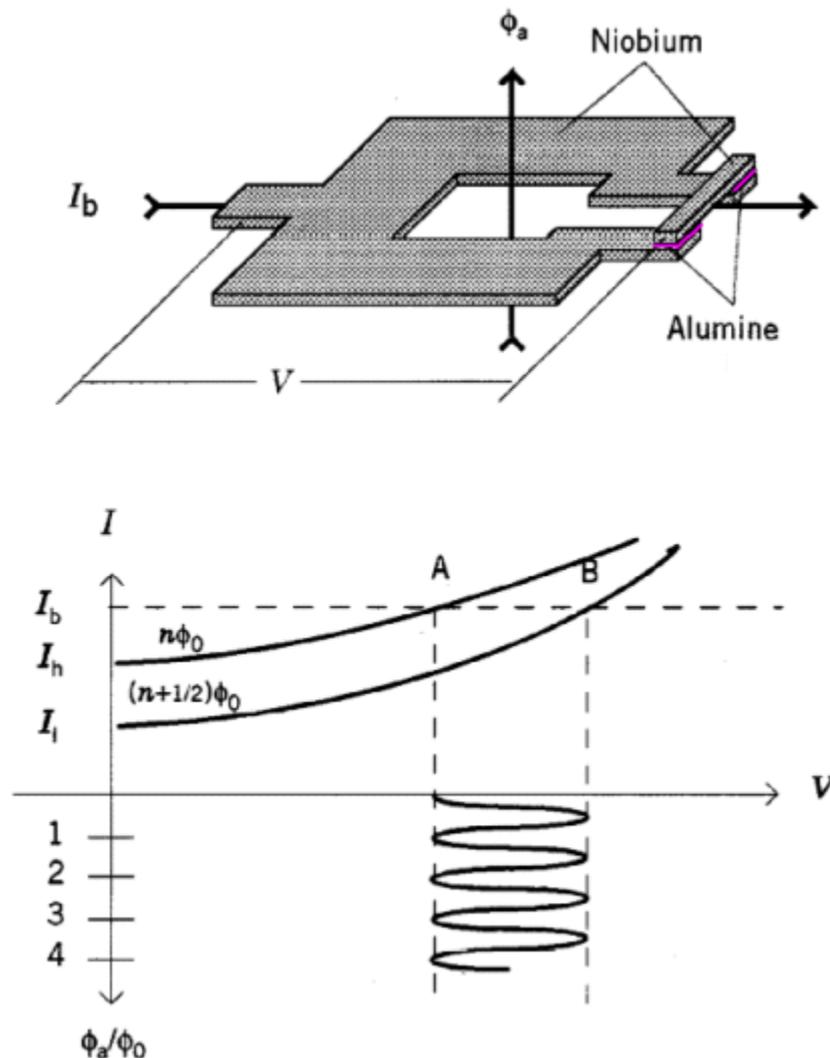


Figure II. 14 : Magnétomètre à SQUID

4.3. Dispositif de mesure

La figure II. 15 représente un dispositif complet de magnétomètre à SQUID. Un champ magnétique produit, via la résistance R_f dans la bobine $Fdbk$, permet de maintenir le champ dans le SQUID dans un quantum de flux au dessus de sa plage de travail, ce qui permet d'obtenir une plage dynamique de mesure très étendue [7].

Une large boucle supraconductrice, soumise au champ à mesurer, est directement connectée à un bobinage couplé magnétiquement au SQUID. Tout flux extérieur va générer un courant dans la boucle qui va faire en sorte que le flux global dans la boucle reste constant. Le bobinage "signal" va amplifier le flux appliqué au SQUID lequel est maintenu dans les conditions optimales de sensibilité. Un faible champ alternatif, d'une fréquence

Référence

- [1] A. Taoufik, Thèse d'état, université Ibn Zohr, Agadir, (1995).
- [2] A. Tirbiyine, Thèse National, université Ibn Zohr, Agadir, (2002).
- [3] F. Mosbah, Thèse Institut de Physique, Département d'Energétique, Université de Constantine, Algérie (1995).
- [4] K. Frikach, Thèse de Doctorat, Université de Paris-sud, Orsay, France (1995).
- [5] A. Taoufik, **A. Ramzi**, S. Senoussi, A. Labrag, *J. Phys. IV France* **123** (2005) 401.
- [6] B.D. Josephson, *Phys. Lett.*, **1** (1962) 251.
- [7] F. Wellstood, C. Heiden, J. Clark, *Integrated dc SQUID magnetometer with high slew rate*, *Rev. Sci. Instrum.*, **66** (1984) 952,

Chapitre III

Matériaux étudiés

5. Introduction

La compréhension des propriétés physiques des supraconducteurs à haute température critique (noté SHTC) nécessite une connaissance précise de la structure de ces composés. Il ressort des études expérimentales que le trait commun à la structure des supraconducteurs à base d'oxyde de cuivre, auxquels nous nous intéresserons particulièrement, est la présence d'un ou de plusieurs plans où des atomes de cuivre sont liés à quatre atomes d'oxygène disposés en carré à des distances de 1.9 Å : ce sont les fameux plans CuO_2 qui sont le support de la supraconductivité dans ces composés. Nos expériences ont été effectuées sur des films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et des monocristaux d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

En plus des supraconducteurs à haute température critique à base d'oxyde de cuivre, nos expériences ont été aussi effectuées sur des supraconducteurs organiques de type κ - $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$.

6. Structure cristallographique des composés YBaCuO

Le composé d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ est l'un des SHTC les plus intéressants. Il a fait l'objet de milliers de publications dans différentes domaines. Ce composé peut être facilement synthétisé à l'état pur ou presque pur sous forme de céramique. Par contre, pour les couches minces épitaxiales et les monocristaux, cela s'est avéré délicat.

De nombreuses expériences de diffraction de neutrons et de rayons X [1-4] ont permis de déterminer les caractéristiques cristallines de la phase supraconductrice d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Les résultats s'accordent pour la décrire comme une structure dérivée d'une structure pérovskite déficiente en oxygène (un déficit de 2 atomes d'oxygène sur 9 sites pour le composé limite $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et de 3 atomes d'oxygène sur 9 sites pour $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ par rapport à une pérovskite normale). On admet aujourd'hui deux formes cristallines bien distinctes d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$: l'une est de structure orthorhombique, l'autre de structure quadratique (figure III. 1). L'existence de ces structures est régie par la concentration en oxygène qui contrôle la quantité de lacunes. Le passage d'une structure à l'autre se produit lorsque la déficience en oxygène est de $\delta = 0.6$ (figure III. 2) [5]. Ainsi, pour $\delta < 0.6$ la structure est orthorhombique de groupe d'espace (Pmmm), pour $\delta \geq 0.6$ la structure est quadratique de groupe (P4/mmm). Lors de cette transition de phase, la relaxation des contraintes mécaniques se traduit par la formation de macles dans la phase orthorhombique $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$.

La dépendance de la structure en fonction du taux d'oxygène consiste à considérer comme non équivalents les différents sites d'oxygène dans la maille élémentaire et en

conséquence, il en est de même pour les sites occupés par les ions de cuivre. La structure particulière de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ nous amène à distinguer deux types d'atomes de cuivre :

- ✓ Le cuivre Cu(1) se positionne entre deux plans Ba-O. Il forme une structure avec les ions d'oxygène, dont la coordinence varie entre 2 (linéaire) dans le composé isolant $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ et 4 (plan carré) dans le composé supraconducteur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. On appelle ces atomes Cu(1) « cuivre des chaînes » à cause de la structure en chaîne Cu-O dans le plan.
- ✓ Le cuivre Cu(2), se positionne de part et d'autre de l'yttrium. Il forme une coordinence pyramidale à base carrée avec les atomes d'oxygène. Le cuivre noté Cu(2) appelé « cuivre des plans CuO_2 ».

Ces deux types de sites de cuivre présentent une grande différence. Les interprétations postulent que la supraconductivité se produit dans les plans CuO_2 et que les chaînes constituent un réservoir d'électrons qui injectent des porteurs de charges dans les plans CuO_2 .

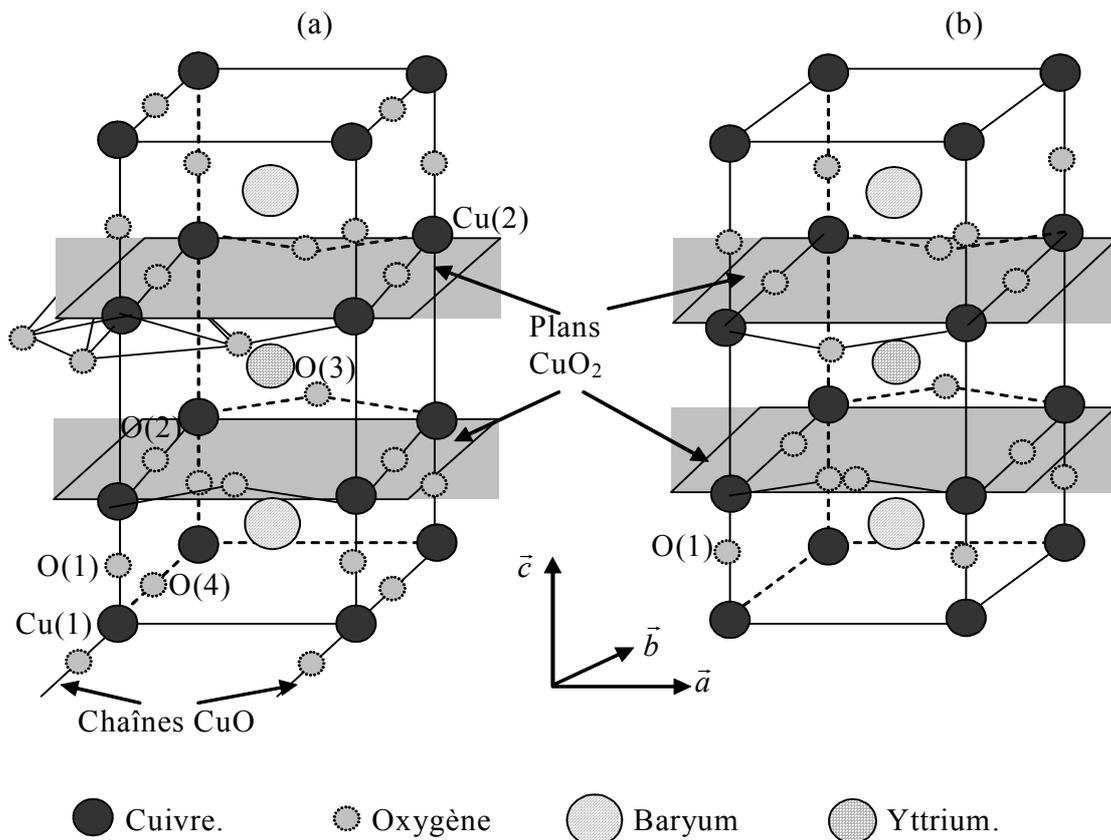


Figure III. 1 : Schéma des structures des composés **(a)** $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ et **(b)** $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$.

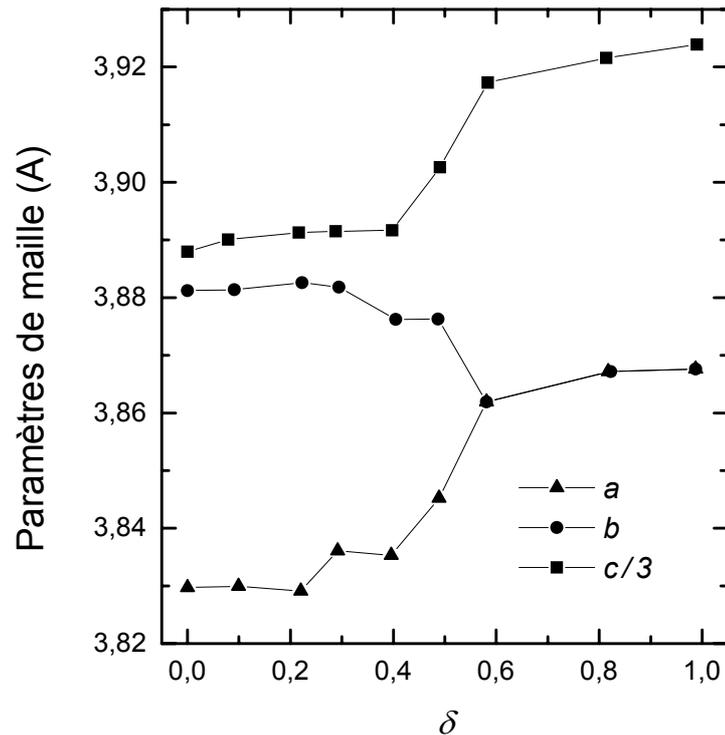


Figure III. 2 : Variation, en fonction de la déficience en oxygène δ , des paramètres de la maille unitaire du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [5].

6.1. Structure Orthorhombique

La maille élémentaire peut être décrite schématiquement par une séquence de couches successives perpendiculaire à l'axe \vec{c} (figure III. 3) :

- ✓ Une couche Cu-O qui présente deux lacunes en oxygène par rapport à la structure pérovskite normale dans laquelle le cuivre Cu(1) est entouré de quatre ions d'oxygène ;
- ✓ Une couche Ba-O ;
- ✓ Une couche Cu-O₂ où le cuivre Cu(2) est entouré de cinq ions d'oxygène.

La seconde partie de la maille est symétrique par rapport au plan yttrium, de la partie décrite précédemment. On peut ainsi observer la présence :

- i. de plans totalement lacunaires en oxygène (plan de l'yttrium) et demi-lacunaires en oxygène (plan Cu(1)) ;
- ii. d'atome de cuivre de coordination 4 rectangulaire (Cu(1)) et de cuivre de coordination 5 pyramidale à base rectangulaire (Cu(2)) ;
- iii. d'une structure unidimensionnelle formée par les chaînes linéaires Cu(1)-O(4) suivant l'axe \vec{b} ;

iv. d'une structure bidirectionnelle formée par les plans O(2)-Cu(2)-O(3) parallèle au plan ab .

A la température ambiante, les paramètres de la maille pris comme une moyenne des résultats des différents auteurs [6, 7] sont :

$$a = 3.821 \pm 0.05 \text{ \AA} \quad b = 3.885 \pm 0.03 \text{ \AA} \quad c = 11.679 \pm 0.009 \text{ \AA}$$

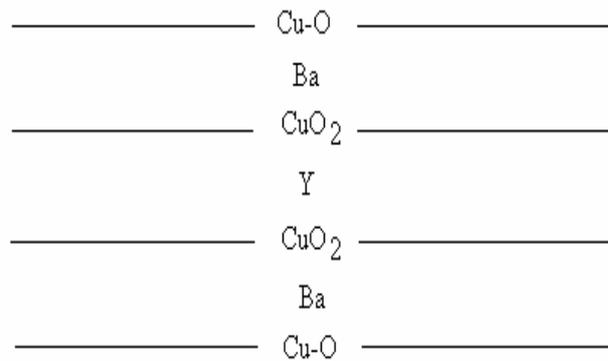


Figure III. 3 : Structure schématique d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (système 1,2,3).

6.2. Structure quadratique

La maille élémentaire de cette structure est identique à celle de la structure orthorhombique, sauf qu'elle ne possède pas d'oxygène dans le plan Cu(1) et que les atomes de Cu(1) sont seulement liés à travers les oxygène O(1) suivant l'axe \vec{a} (figure III. 3(b)).

Pour le composé limite $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$, les paramètres de maille d'après J.J. Capponi et al [8] sont :

$$a = b = 3.896 \text{ \AA} \quad \text{et } c = 11.895 \text{ \AA}$$

Deux remarques liées à cette structure de YBCuO nous semblent intéressantes :

- i. L'absence des chaînes Cu(1)-O(4) suivant l'axe \vec{b} dans la structure quadratique et associés à la disparition de la supraconductivité. En effet, étant électronégatifs, les oxygènes de ces chaînes créent des trous dans les plans supraconducteurs en y pompant les électrons, et assurent le caractère supraconducteur aux températures inférieures à T_c du composé.
- ii. Il y aurait une relation physique entre la température critique T_c des nouveaux supraconducteurs et la présence des plans CuO_2 . en effet, les diverses familles de composés à structure de base du type pérovskite, découvertes à ce jour, possèdent un feuillet CuO_2 dans $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_2$ ($T_c = 40 \text{ K}$) deux feuillets CuO_2 dans : $\text{Bi}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_8$ ($T_c = 85 \text{ K}$) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

($T_c = 92$ K) et $\text{Tl}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_2\text{O}_8$ ($T_c = 100$ K), et trois feuillets CuO_2 dans $\text{Tl}_2\text{CaSr}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ ($T_c = 125$ K).

Enfin, la température critique du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ dépend de sa teneur en oxygène. Elle passe de 90 K pour $\delta = 0$ à environ 40 K pour $\delta = 0.5$ avec un maximum (92 K) à $\delta = 0.15$ comme le montre la figure III. 4 [5].

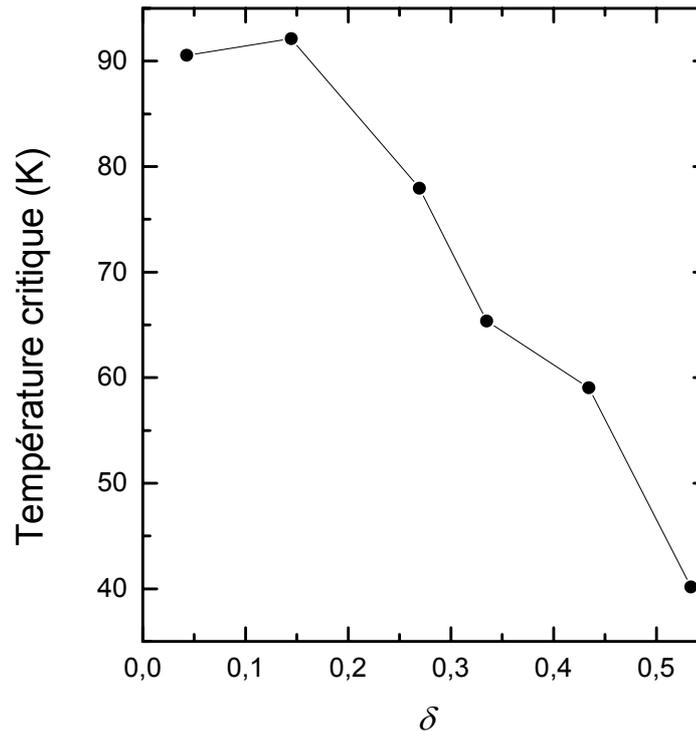


Figure III. 4 : Variation, en fonction de la déficience en oxygène δ , de la température critique du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [5].

7. Structure cristallographique des composés LaSrCuO

Le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.15$) cristallise dans la structure quadratique. Son groupe d'espace à l'ambiante est $I4/mmm$ avec $a = 3.779$ Å et $c = 13.226$ Å [9]. Cependant ce composé peut subir la transition de phase "quadratique-orthorhombique" à des températures qui diminuent lorsque x augmente. Ainsi pour $x \approx 0.16$, la transition de phase a lieu à environ 170 K et pour $x \geq 0.19$, seule la phase quadratique est observée quelle que soit la température [10]. La substitution du lanthane par le strontium provoque l'injection de trous dans les plans supraconducteurs (CuO_2) du fait de la différence de valence entre les deux atomes. Les propriétés supraconductrices de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ dépendent alors du degré de dopage x : les expériences montrent que la phase supraconductrice apparaît dans une large gamme de concentration en strontium ($0.05 \leq x \leq 0.25$) [10], avec une température critique

maximale ($T_c = 40$ K) pour $x = 0.15$. La figure III. 5 représente la structure cristalline de $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ [4, 9]. On distingue deux types d'atome d'oxygène (figure III. 5(b)) :

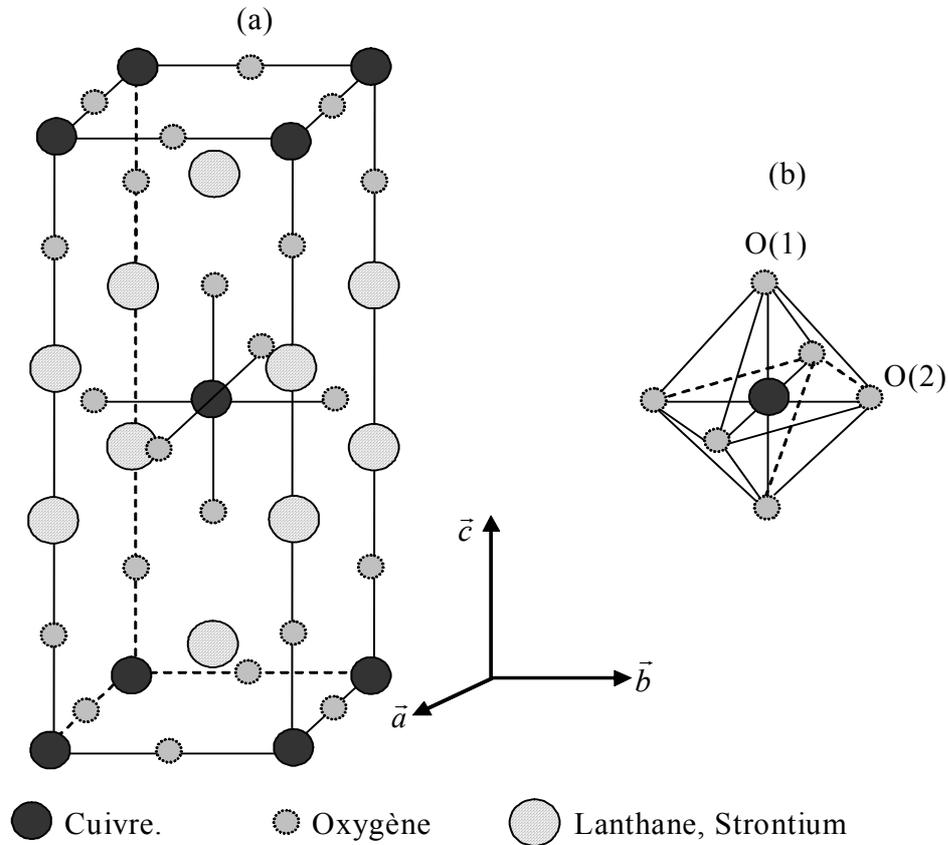


Figure III. 5 : (a) Représentation schématique de la maille cristalline de $(\text{LaSr})_2\text{CuO}_4$, montrant une structure bidimensionnelle des plans CuO_2 . (b) position des atomes d'oxygène par rapport au cuivre : les oxygène O(2) se positionnent sur les sommets de l'octaèdre CuO_6 en commun avec les plans CuO_2 , les oxygène O(1) se placent entre ces plans.

- i. les atomes O(1) qui forment des plans (Sr et La)-O(1) dans lesquels, les atomes La et Sr sont distribués aléatoirement ;
- ii. les atomes O(2) qui forment avec ceux de cuivre des plans supraconducteurs CuO_2 .

L'aspect pérovskite des plans CuO_2 des octaèdres CuO_6 illustre une structure en couche de ce composé. Les atomes de cuivre d'un plan CuO_2 ne partagent pas les oxygènes des autres plans. Notons enfin que la distance Cu-O(1) est supérieure à Cu-O(2).

8. Structure cristallographique des composés organiques κ -(BEDT-TTF)₂X

La découverte de la supraconductivité organique a été faite dans le sel de Bechgaard (TMTSF)₂PF₆. TMTSF est la molécule TetraMéthyl-TetraSélène-Fulvalène qui contient 4 atomes de sélénium, 10 atomes de carbone et 12 d'hydrogène. Des nombreux conducteurs moléculaires ont été synthétisés dans le but notamment d'explorer de nouvelles propriétés supraconductrices. Une molécule voisine découverte à Montpellier par J.M. Fabre, TMTTF (TétraMéthyl-TétraThia-Fulvalène) qui est l'équivalent soufré de la molécule de Bechgaard, a permis d'élargir le spectre des propriétés physiques cette série. Ainsi, les modifications apportées à la molécule d'origine TMTSF (figure III. 6 de droite) ont conduit à la synthèse de la molécule de BisEthylèneDiThio-TétraThiaFulvalène ou BEDT-TTF représentée sur la figure III. 6 de gauche.

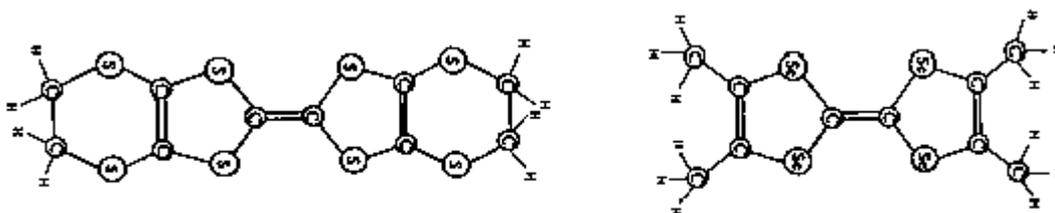


Figure III. 6 : Molécules de BEDT-TTF à gauche et TMTSF à droite.

La différence principale est que les sels à transferts de charge à base de BEDT-TTF cristallisent sous différentes formes : α , β , κ ,... chaque type correspondant à un type d'arrangement différent. L'arrangement α ressemble à l'empilement dans les systèmes unidimensionnels. L'arrangement β aussi mais on a une structure en "chevrons". Enfin, l'arrangement κ correspond à une structure bidimensionnelle marquée proche des systèmes à haute température critique. Cette dernière regroupe les composés du type κ -(BEDT-TTF)₂X (X = Cu[N(CN)₂]Cl, Cu[N(CN)₂]Br ou Cu(SCN)₂...), où X est un anion acceptant la charge transférée par la molécule de BEDT-TTF. Ainsi, les molécules de BEDT-TTF s'organisent en dimère selon des plans, du fait du recouvrement orbital latéral (figure de gauche III. 7) ce qui confère aux composés- κ -(BEDT-TTF)₂X des propriétés électroniques bidimensionnelles.

Le caractère bidimensionnel est de surcroît renforcé par l'alternance de plans de BEDT-TTF et de plans anioniques isolants (figure de droite III. 7) constitués de chaînes polymérisées.

Cette juxtaposition de plans conduit avec la plupart des anions à une structure orthorhombique représentée sur la figure III. 8.

Ainsi, la conduction électronique se produira dans les plans constitués des molécules de BEDT-TTF, perpendiculairement à leur axe.

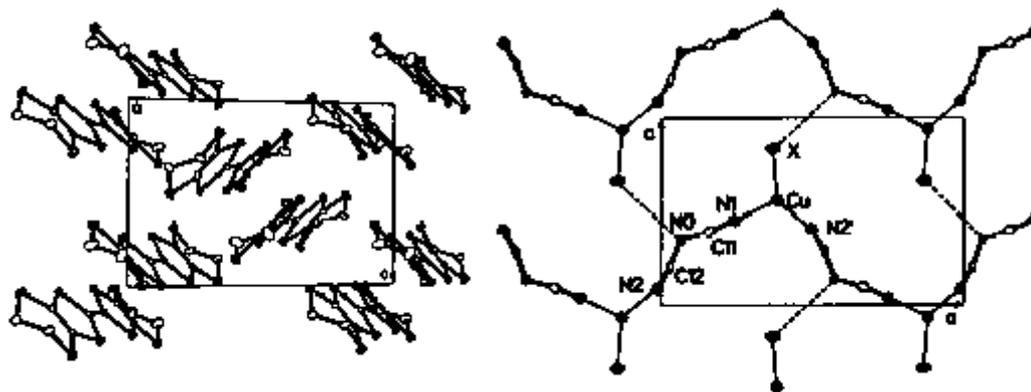


Figure III. 7 : la figure de gauche montre la répartition des molécules de BEDT dans les plans et la figure de droite représente les chaînes anioniques polymérisées [11].

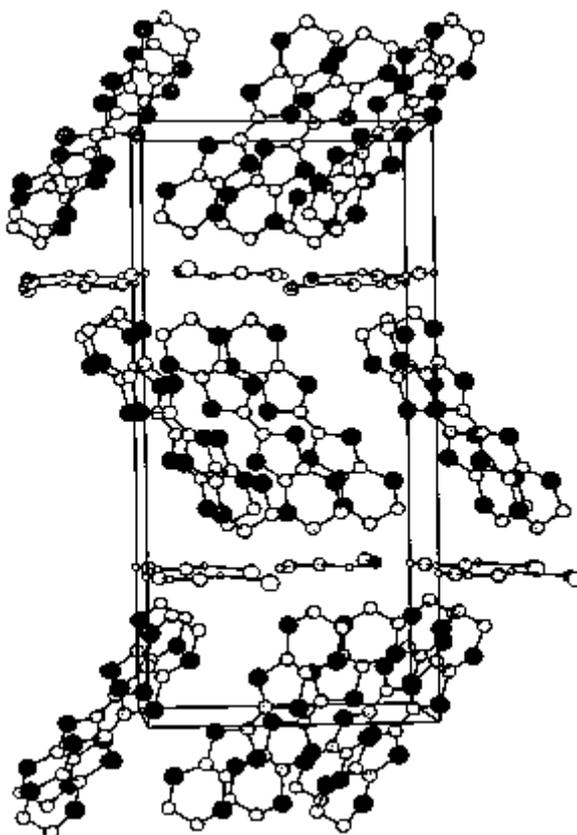


Figure III. 8 : Maille cristallographique orthorhombique des composés κ -(BEDT-TTF)₂X.

9. Caractéristiques des échantillons étudiés

9.1. Filmes minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Le film mince d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ a été élaboré à Siemens en Allemagne. L'échantillon a été déposé par la méthode de l'ablation laser sur la face (100) d'un substrat monocristal de SrTiO_3 . L'axe \bar{c} d'échantillon $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ est perpendiculaire à la surface du film mince. L'épaisseur du film est de 400 nm. Pour diminuer le courant nécessaire à la transition, un étranglement d'une largeur de $7.53 \mu\text{m}$ a été réalisé sur l'échantillon (figure III. 9) [12, 13]. La distance entre les électrodes de mesure de la tension est de $135 \mu\text{m}$. Les électrodes de mesures sont en or et sont déposées sur la surface de l'échantillon par évaporation. Les fils de mesures sont soudés par micro-onde. La température critique est de l'ordre 90 K.

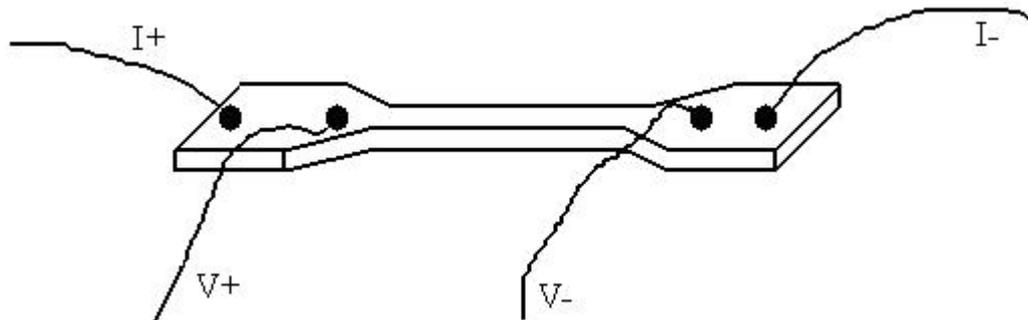


Figure III. 9 : représentation schématique de l'échantillon avec les contacts électriques de mesure de transport.

Nous avons utilisé une alimentation de courant électrique pulsé (cf. parag. 3 chap. II) capable de délivrer des courants électriques de 1 nA à 100 mA. Toutes nos expériences ont été faites dans la configuration où la direction du courant électrique est perpendiculaire au champ d'induction magnétique appliqué. La résistivité de l'échantillon à la température ambiante est de l'ordre de $200 \mu\Omega\text{cm}$.

La morphologie, la structure et la chimie locale de ce film mince d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ont été étudiées par la microscopie électronique en transmission ainsi que par analyse de spectroscopie d'émission X et par l'analyse de spectroscopie de pertes d'énergie. Le microscope électronique utilisé est équipé d'un détecteur Northern Tracor avec une fenêtre mince pour l'analyse X et d'un spectromètre parallèle EELS pour l'analyse de pertes d'énergie [14].

9.2. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Il s'agit d'un monocristal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ extraits d'un lot de cristaux élaborés au laboratoire de chimie minérale B à Rennes. Il est préparé par la méthode de flux standard. Cet échantillon présente des dislocations et des nodules de phases parasites.

Ce cristal a été choisi parmi tout le lot suivant le critère de la largeur de la transition de la susceptibilité en champ alternatif. Le cristal a pour dimensions $a = 2$ mm, $b = 1.7$ mm et $c = 0.8$ mm, les plus grandes dimensions étant suivant les axes a et b [15]. Du fait de la grosseur de cet échantillon, leur cœur est probablement mal oxygéné. Pour les mesures de susceptibilité, l'échantillon est refroidi dans un champ magnétique nul à une température inférieure à T_c . Un champ de $4 \cdot 10^{-4}$ T est ensuite appliqué parallèlement à l'axe \vec{c} . La température critique est de l'ordre de 91 K.

9.3. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 15\%$)

Ce gros cristal a été élaboré, dans l'Institut de synthèse inorganique au Japon, suivant la procédure de croissance par déplacement de solvant à zone flottante (the travelling-solvent floating-zone method) [16]. Sa forme est parallélépipédique de dimensions $a = 1.4$ mm, $b = 0.9$ mm et $c = 2$ mm. Sa température critique déterminée, au début de la transition, par susceptibilité en champ alternatif est de l'ordre de 35 K.

9.4. Monocristal $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$

le conducteur organique $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ (ici, BEDT-TTF est Bis(EthylèneDiThio) Tetra ThiaFulvalène alors que $\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ est un anion du monovalent) a été élaboré par C. Lenoir dans l'équipe de P. Batail à l'Institut des Matériaux Jean Roussel, à Nantes. Ce monocristal de dimension $\sim 1 \times 1 \times 0.25$ mm³ subit une transition structurelle (aussi appelé la transition vitreuse) à une température au voisinage de (70-80 K) : devient supraconducteur au-dessous de 12 K. De plus, dans quelques circonstances ce matériau subit une transition magnétique autour de 10-20 K précédé par le début de la fluctuation magnétique autour de 50 K. Nous avons étudiés la susceptibilité magnétique ac et l'aimantation dc de la phase supraconducteur après avoir exécuté une série de traitements thermiques sur le monocristal [17].

Références

- [1] M.A. Beno, L. Soderholm, D.W. Capone, D.G. Hinks, J.D. Jorgensen, J.D. Grace, I.K. Schuller, C.U. Serge, K. Zhang, *Appl. Phys. Lett.*, **51** (1987) 57.
- [2] G.J. McIntyre, A. Renault, G. Collin, *Phys. Rev. B*, **37** (1988) 5148.
- [3] T. Siegrist, S. Sunshine, D.W. Murphy, R.J. Cava, S.M. Zahurak, *Phys. Rev. B*, **35** (1987) 7137.
- [4] M.A.G. Aranda, *Adv. Mater.*, **6** (1994) 905.
- [5] M. Buchgeister, W. Hiller, S.M. Hosseini, K. Kopitzki, D. Wagener, *Proc. ICTPS'90 Inter. Conf. on Transport properties of Superconductors*, **Vol. 25** (April 29-May 4 1990, Rio de Janeiro, Brazil; World Scientific Edition).
- [6] K. Gallagher, H. M. O'Bryan, S. A. Sunshine, D. W. Murphy, *Mat. Res. Bull*, **22** (1987) 995.
- [7] J.D. Jorgensen, M.A. Beno, D.G. Hinks, L. Soderholm, K.J. Volin, R.L. Hitterman, J.D. Grace, Ivan K. Schuller, *Phys. Rev., B* **36** (1987) 3608.
- [8] J.J. Capponi, C. Chaillout, A.W. Hewatt, P. Lejay, M. Marezio, N. Nyguen, B. Raveau, C.L. Soubeyroux, L.J. Tholence, R. Tournier, *Europhys. Lett.*, **3** (1987) 1301.
- [9] R.J. Cava, A. Santoro, D.W. Johnson, W.W. Rhodes, *Phys. Rev. B*, **35** (1987) 6716.
- [10] J.B. Torrance, A. Bezing, A.I. Nazzal, T.C. Huang, S.S.P. Parkin, D.T. Krane, S.J. Laplace, P.M. Horn, G.A. Held, *Phys. Rev. B*, **40** (1989) 8872.
- [11] U. Geiser, A. J. Schultz, H. H. Wang, J. E. Schirber, D. Jung. *Physica C*, **174** (1991) 475
- [12] A. Taoufik, S. Senoussi, A. Tirbiyine, **A. Ramzi**, *Physica C*, **341-348** (2000) 1209.
- [13] **A. Ramzi**, A. Taoufik, S. Senoussi, A. Labrag, *Phys. Stat. Sol. (c)*, **1-4** (2004) 1908.
- [14] A. Taoufik, S. Senoussi, A. Tirbiyine, *Physica B*, **321** (2002) 332.
- [15] A. Taoufik, **A. Ramzi**, S. Senoussi, A. Labrag, *Phys. Stat. Sol. (c)*, **1-4** (2004) 1912.
- [16] M.J.V. Menken, A.J.M. Winkelman, A.A. Menovsky, *J. Cryst. Growth*, **113** (1991) 9.
- [17] S. Senoussi, F. Pesty, **A. Ramzi**, A. Tirbiyine, A. Haouam, A. Taoufik, C.R. Pasquier, soumis au *Phys. Stat. Sol. (c)*,

Chapitre IV

Densité de courant critique par les mesures magnétiques

1. Introduction

L'objectif de ce chapitre est d'étudier les distributions du champ magnétique et de la densité de courant critique, J_c , dans des échantillons de matériaux supraconducteurs à haute température critique, déduites à partir des mesures de cycles d'hystérésis magnétique. Les échantillons étudiés sont des monocristaux de type d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

Nous allons décrire et analyser les cycles d'hystérésis obtenus à différentes températures et champs magnétiques. Le champ magnétique a été appliqué parallèlement soit à l'axe \vec{c} soit aux plans ab . Nous exposerons le modèle de Bean qui nous permet de relier l'aimantation mesurée à la densité de courant critique. Nous verrons ensuite comment adapter ce modèle de façon à ce qu'il tienne compte de la géométrie et de l'anisotropie de la densité de courant critique dans le cas où le champ est parallèle aux plans ab . Enfin, nous analysons la dépendance de J_c en fonction du champ magnétique et de la température et nous ferons quelques remarques sur la comparaison de nos résultats avec les différents modèles existants.

2. Les cycles d'hystérésis

2.1. Trace d'un cycle d'hystérésis

La marche à suivre pour tracer un cycle consiste à mettre en consigne la température T_0 à laquelle le cycle doit être tracé. Comme nous l'avons exposé en détail au chapitre II, la régulation en température se fait automatiquement avec l'appareillage. Nous attendons quelques minutes supplémentaires après que T_0 soit atteinte, pour assurer une bonne stabilisation et une bonne homogénéité de la température de l'échantillon. En effet les échantillons testés de SHTC ont une faible conductivité thermique et un grand volume. Nous commençons ensuite le balayage du champ magnétique cyclique à une vitesse donnée (de l'ordre 40 mT/s) durant lequel nous relevons la courbe d'aimantation $M(H)$. La figure IV. 1 montre un cycle d'hystérésis typique des SHTC contenant cinq branches dont la description est la suivante.

✓ La première branche est obtenue en augmentant le champ magnétique de 0 à H_{max} ($H_{max} = 6,22$ T pour la plupart des cycles d'hystérésis que nous exposerons par la suite). Cette branche contient la courbe de première aimantation $M_{vg}(H)$ décrivant la pénétration des courants supraconducteurs à l'intérieur de l'échantillon.

- ✓ La deuxième branche est obtenue en faisant diminuer le champ de H_{max} à 0. Elle contient la courbe de début de diminution du champ, $M_{r1}(H)$, décrivant la pénétration des courants supraconducteurs dont le sens est opposé à celui des courants correspondant à la courbe de première aimantation.
- ✓ La troisième branche est une continuité de la seconde en faisant varier le champ de 0 à $-H_{max}$.
- ✓ La quatrième et la cinquième branche sont symétriques par rapport à l'origine ($H = 0, M = 0$) respectivement aux deuxième et troisième branches.

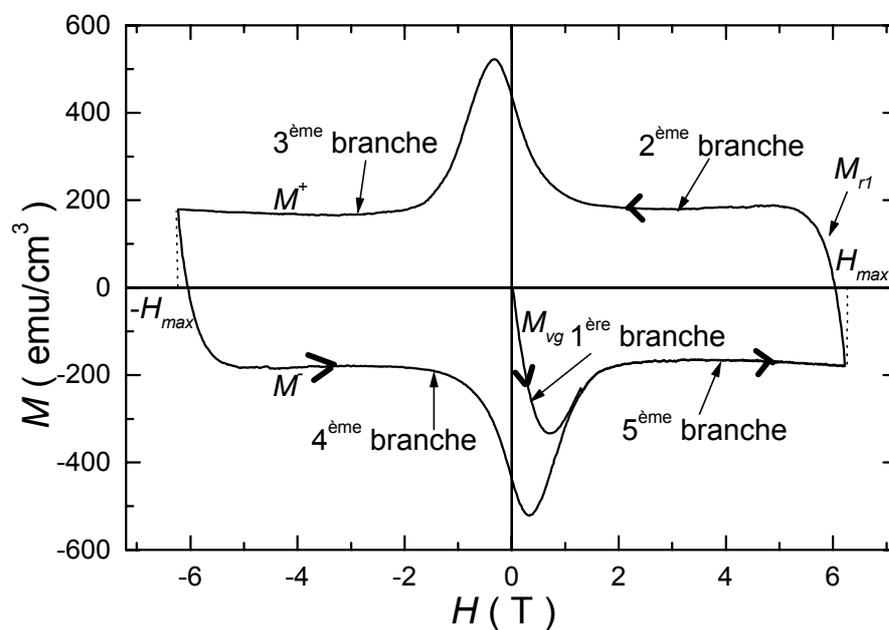


Figure IV. 1 : Les différentes branches d'un cycle d'aimantation $M(H)$ d'un SHTC. M^+ et M^- sont les branches du cycle obtenu respectivement en champ décroissant et en champ croissant.

2.2. Qu'est-ce qu'un cycle d'aimantation ?

Dans les supraconducteurs de type II, tels que les SHTC, qui présentent des inhomogénéités, en général, l'induction magnétique B est non uniforme. En effet, la présence des sites d'ancrage (défauts structuraux) empêche les vortex de se déplacer librement : le vortex préfère se loger dans un puits de potentiel, localisé autour des défauts où son énergie sera minimale. Cette situation provoque un comportement irréversible : En augmentant le champ magnétique appliqué, les vortex pénètrent dans l'échantillon et se logent dans les premiers puits de potentiel près de la surface. Si on augmente davantage le champ, les vortex continuent d'entrer dans l'échantillon en occupant d'autres sites d'ancrage. Lorsqu'on

diminue le champ, les vortex doivent d'abord se dépiéger avant d'être expulsés hors du matériau : les pièges voisins de la surface se dépeuplent en premier. Ce processus, piégeage et dépiégeage des vortex, est irréversible et se traduit par un phénomène d'hystérésis sur les courbes d'aimantation. Cette aimantation est la somme de l'aimantation réversible M_{rev} (appelée aussi aimantation d'équilibre) et de l'aimantation irréversible M_{irr} . M_{rev} varie peu en température sauf près de T_c et est en première approximation indépendante du rayon du cristal. Par contre, M_{irr} , due à l'ancrage des vortex dans le matériau, diminue très fortement avec la température, même loin de T_c , comme nous allons le voir. M_{irr} augmente également avec la taille du cristal.

Les expressions de deux aimantations sont données par les équations suivantes [1] :

$$M_{rev} = \frac{M^+ + M^-}{2} \quad (IV-1)$$

$$M_{irr} = \frac{M^+ - M^-}{2} \quad (IV-2)$$

où M^+ et M^- correspondent à l'aimantation mesurée respectivement en champ décroissant et en champ croissant (cf. figure IV. 1). M_{rev} est d'autant plus faible devant M_{irr} que le cycle d'hystérésis est symétrique par rapport à l'axe des champs (axe des abscisses) d'après la figure VI. 1.

3. Modèle de Bean

Nous allons maintenant exposer un modèle phénoménologique développé par Bean, qui décrit les propriétés magnétiques des supraconducteurs de type II [2].

3.1. Hypothèse du modèle

Dans le cas d'un matériau aux propriétés supraconductrices isotropes, le modèle de Bean considère les hypothèses suivantes :

- ✓ L'échantillon de Bean peut être un cylindre de rayon R et de longueur infinie ou une plaquette d'épaisseur négligeable devant sa longueur et sa largeur, placée dans un champ magnétique axial, de telle sorte que les effets du champ démagnétisant soient négligeables.
- ✓ On suppose que l'aimantation réversible est négligeable devant l'aimantation irréversible.
- ✓ L'ancrage des vortex dans le matériau a pour effet important l'instauration d'un gradient de flux (ou du vecteur champ magnétique H), entre la surface de l'échantillon, source de

vortex, et son centre. L'équation de Maxwell-Ampère relie en outre un tel gradient à l'existence d'une densité de courant, exprimée en unité CGS pratiques :

$$\vec{\text{rot}} H = \frac{4\pi}{10} \vec{J} \quad (\text{IV-3})$$

Le modèle phénoménologique de Bean propose une connexion entre les forces microscopiques de piégeage, le courant critique et le comportement magnétique macroscopique.

L'hypothèse fondamentale est la suivante :

Si on modifie le courant ou le champ vu par l'échantillon, des courants d'écrans sont induits à la surface jusqu'à une valeur maximale de la densité de courant critique J_c . Quand cette valeur est atteinte, la densité de courant critique reste constante et le flux pénètre plus profondément dans l'échantillon où d'autres courants sont induits.

3.2. Densité de courant critique

D'après ce qui est énoncé ci-dessus, il existe trois valeurs possibles pour la densité de courant critique : 0, $+J_c$ et $-J_c$ nous rappelons que J_c est la densité de courant pour laquelle la force de Lorentz est égale à la force d'ancrage d'un vortex (cf. parag. 6 chap. I).

En outre le modèle de Bean suppose que la densité de courant critique est indépendante du champ magnétique.

3.3. Equations du cycle d'hystérésis

Dans le cas d'une symétrie cylindrique, la figure IV. 2 montre le lien entre le gradient de la composante axiale du vecteur champ et la densité de courant. Dans le cas d'un échantillon cylindrique d'axe z , sans champ démagnétisant, l'équation (IV-3) relie la densité de courant et le champ magnétique.

3.3.1. Etat critique

L'échantillon se trouve dans l'état dit "critique" lorsque le flux est entré jusqu'au cœur de l'échantillon. Les modules des forces de Lorentz et de piégeage des vortex sont alors égaux et la valeur absolue de la densité de courant critique est alors en tout point J_c . On appelle H_p la plus petite valeur du champ magnétique pour laquelle le flux pénètre jusqu'au

centre de l'échantillon (cf. figure IV. 2 (phase II)). Il est donné par l'équation suivante (en unité CGS pratiques) :

$$H_p = \frac{4\pi}{10} J_c R \tag{IV-4}$$

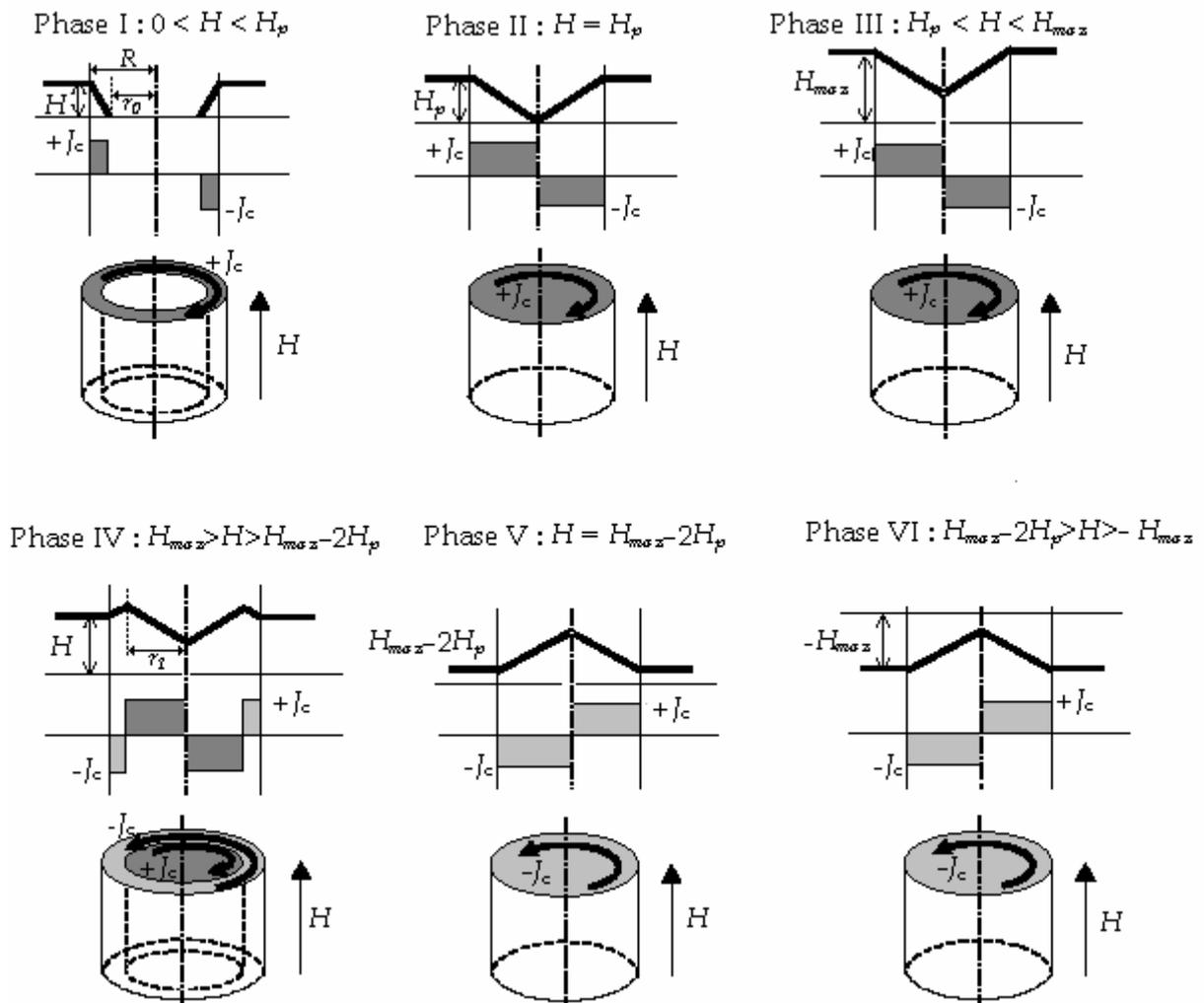


Figure IV. 2 : Profils du champ magnétique H et du courant critique J_c à l'intérieur d'un échantillon supraconducteur de forme cylindrique pour un champ appliqué variant de zéro au maximum puis du maximum à zéro. L'aimantation d'équilibre M_{rev} est considérée comme nulle.

3.3.2. Première aimantation M_{vg}

De manière générale, l'aimantation d'un supraconducteur M est reliée à la distribution de courant, ou de manière équivalente à la densité de courant locale $J(r)$, circulant dans le matériau. Dans le cas d'un échantillon à symétrie de révolution, nous obtenons la forme simple suivante [3] (en unité CGS pratiques) :

$$M = -\frac{1}{10R^2} \int J(r)r^2 dr \quad (\text{IV-5})$$

Le modèle de Bean ignore les effets de relaxation : on se place à température nulle. D'autre part la densité de courant critique, supposée constante par rapport au champ magnétique, l'est également à l'intérieur de l'échantillon.

La valeur de la première aimantation, M_{vg} , correspondant à une pénétration partielle du flux dans l'échantillon, qui circule sur une zone d'épaisseur $(R-r_0)$, est décrit par l'équation (IV-5) en intégrant de r_0 à R . r_0 est la valeur de la zone cylindrique centrale où le champ H et la densité de courant critique J_c sont nuls (cf. figure IV. 2 (phase I)). D'après l'équation de Maxwell-Ampère, le champ magnétique local $H_i(r)$ vérifie

$$H_i(r) = \frac{4\pi}{10} J_c r + C \quad (\text{IV-6})$$

où C est une constante d'intégration que l'on peut déterminer à partir des conditions aux limites : si H est le champ magnétique appliqué, alors on a $H_i(R) = H$; soit donc $C = H - \frac{4\pi}{10} J_c R$ ou d'après l'équation (IV-4), $C = H - H_p$. L'équation (IV-6) devient alors :

$$H_i(r) = H - H_p \left(1 - \frac{r}{R}\right) \quad (\text{IV-7})$$

A $r = r_0$ on a :

$$r_0 = R \left(1 - \frac{H}{H_p}\right) \quad (\text{IV-8})$$

La courbe de première aimantation, M_{vg} , décrit par l'équation (IV-5) en intégrant de r_0 à R est la suivante :

$$M_{vg} = -\frac{H}{4\pi} \left[1 - \frac{H}{H_p} + \frac{1}{3} \left(\frac{H}{H_p}\right)^2\right] \quad (\text{IV-9})$$

3.3.3. Les branches M^\pm du cycle

Les courants supraconducteurs de même signe circulent sur l'ensemble du volume de l'échantillon. L'aimantation s'obtient en intégrant l'équation (IV-5) de 0 à R dans le cas $H_p \leq H \leq H_{max}$, et de R à 0 dans le cas $H_{max} - 2H_p \geq H \geq -H_{max}$ (cf. Figure IV. 2 (phase III) et (phase VI)). Alors l'équation s'écrit :

$$M = M^{\pm} = \pm \frac{J_c R}{30} \quad (\text{IV-10})$$

Ceci décrit les branches du cycle sur lesquelles l'échantillon est dans l'état critique : M^{\pm} (le signe + (resp. -) désigne la branche supérieure du cycle (resp. inférieure). L'équation (IV-1) devient :

$$M_{irr} = \frac{J_c R}{30} \quad (\text{IV-11})$$

3.3.4. Courbe de renversement du champ M_{r1}

Les courants supraconducteurs circulent près de la surface sur une largeur $R-r_1$ (Figure IV. 2 (phase IV)), avec $r_1 = R \left(1 - \frac{\Delta H}{2H_p} \right)$ où $\Delta H = H_{\max} - H$, changent de signe. La courbe correspondant au renversement du champ, M_{r1} , peut donc être obtenue, en définissant convenablement les conditions aux limites, en intégrant l'équation (IV-5) :

$$M_{r1} = -\frac{J_c R}{30} + \frac{\Delta H}{4\pi} \left[1 - \frac{\Delta H}{2H_p} + \frac{1}{3} \left(\frac{\Delta H}{2H_p} \right)^2 \right] \quad (\text{IV-12})$$

3.3.5. Cycle d'hystérésis de Bean

Un exemple de cycle d'hystérésis calculé à partir des équations de modèle de Bean est représenté sur la figure IV. 3. La courbe de première aimantation M_{vg} rejoint la courbe M^- à H_p . la courbe correspondant au renversement du champ, M_{r1} , relie les courbe M^+ et M^- . Elle s'étend sur $2H_p$.

Le modèle de Bean est d'une grande utilité pour déterminer les densités de courants critiques des supraconducteurs classiques à basse T_c , grâce à la formule (IV-10). Ce n'est pas tout à fait le cas pour les supraconducteurs à haute T_c .

Si on compare le cycle d'hystérésis de la figure IV. 1 d'un SHTC à celui de Bean (figure IV. 3), on constate quelques traits communs mais de nombreux points de désaccord apparaissent : le cycle d'aimantation d'un SHTC présente presque toujours une bosse à bas champ qui n'existe pas dans le cycle de Bean. Les courbes M^+ et M^- du cycle d'hystérésis d'un SHTC, contrairement au cycle de Bean, dépendent du champ magnétique. Cela est dû au fait que dans le modèle de Bean, la variation de J_c en fonction de H et les effets d'anisotropie sont négligées. Une prise en compte de modèles plus élaborés s'avère nécessaire.

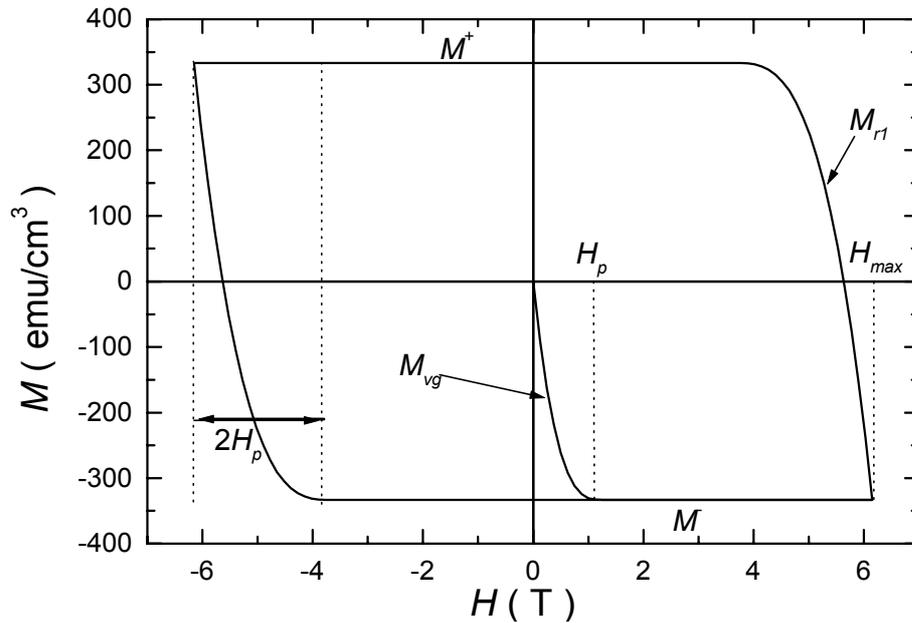


Figure IV. 3 : cycle d'hystérésis obtenu dans le cadre du modèle de Bean. Avec $J_c = 10^5 \text{ A/cm}^2$, $R = 1 \text{ mm}$ et $H_{max} = 6.15 \text{ T}$

4. Modèle de Bean étendu

4.1. Définitions des différentes densités de courant critique

Le module de la force de Lorentz nécessaire pour dépiéger le vortex varie selon l'orientation du vortex par rapport aux plans supraconducteurs (figure IV. 4) combinée à la direction du mouvement des vortex.

Le vortex est représenté par le vecteur ϕ_0 parallèle au champ magnétique appliqué \vec{H} . La force de Lorentz s'exerçant sur ce vortex est donnée par l'équation (I-48).

Lorsqu'un champ magnétique est appliqué parallèlement aux axes cristallographiques (l'axe \vec{c} ou les plans ab) d'un supraconducteur anisotrope, on peut définir trois types de densités de courant critique [4]:

✓ $\vec{J}_{ab,c}$: le courant et la force de Lorentz, $\vec{F}_{ab,c}$, sont parallèles aux plans ab alors que le champ magnétique est suivant l'axe \vec{c} (figure IV.4 (a,1)). Les vortex dans cette configuration sont piégés par les défauts parallèles à l'axe \vec{c} (ancrage extrinsèque) et peuvent se déplacer dans le sens perpendiculaire à l'axe \vec{c} tout en restant parallèles à celui-ci.

✓ $\vec{J}_{c,ab}$: c'est la densité de courant critique parallèle à l'axe \vec{c} lorsque le champ magnétique et la force de Lorentz, $\vec{F}_{ab,ab}$, sont parallèles aux plans ab (figure IV.4 (b,1)). Dans cette configuration, Les vortex sont toujours entre les plans supraconducteurs et peuvent glisser facilement le long de ceux-ci.

✓ $\vec{J}_{ab,ab}$: le courant et le champ magnétique sont parallèles aux plans ab tandis que la force de Lorentz, $\vec{F}_{c,ab}$, est parallèle à l'axe \vec{c} (figure IV.4 (b,2)). Pour se dépiéger, les vortex doivent traverser des plans de forte supraconductivité. Une grande énergie sera dépensée lors de la traversée de ces plans.

Les vortex, dans la configuration où le champ magnétique est parallèle aux plans ab , sont soumis à un ancrage intrinsèque, faisant intervenir la structure lamellaire du matériau, et à un ancrage extrinsèque, assuré par les défauts cristallins ou liés aux impuretés.

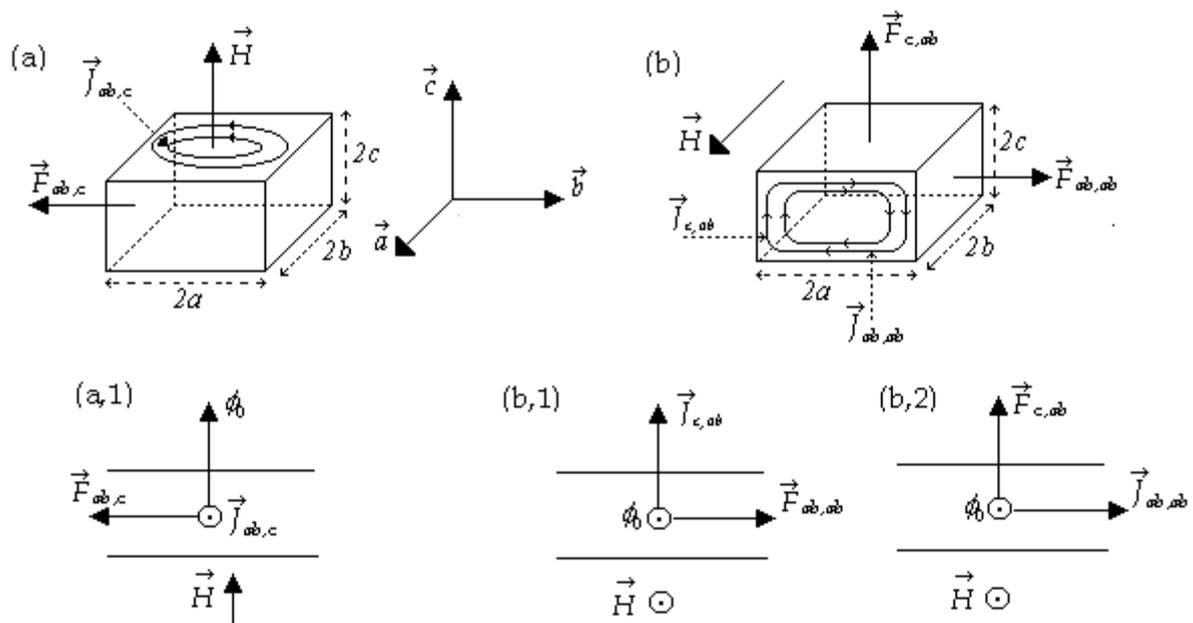


Figure IV. 4 : Représentation schématique du champ magnétique appliqué \vec{H} parallèlement à l'axe \vec{c} (a) et aux plans ab (b), du vortex ϕ_0 , de la densité de courant critique $\vec{J}_{i,j}$ et de la force de Lorentz $\vec{F}_{i,j}$ à l'intérieur d'un monocristal. La premier indice $i = ab$ ou c donne la direction du vecteur concerné, le second indice donne la direction de \vec{H} . Cette représentation est plutôt valable lorsque $H \gg H_{c1}$ (H_{c1} est le premier champ critique parallèle à l'axe c) [5].

Compte tenu de la barrière d'énergie qu'imposent les plans supraconducteurs aux vortex, lors de leur déplacement sous l'action de $\vec{F}_{c,ab}$, $J_{ab,ab}$ est la densité de courant critique la plus élevée des trois. Comme on vient de le signaler, le vortex parallèle aux plans

ab peut facilement glisser le long de ceux-ci sous l'action $\vec{F}_{ab,ab}$ et de ce fait $J_{c,ab}$ est la densité de courant la plus faible.

4.2. Effet couplé de l'anisotropie et de la forme de l'échantillon

La plupart des cristaux SHTC ont une forme de plaquette avec l'axe \vec{c} parallèle à la plus courte arête. Lorsque le champ est appliqué parallèlement à \vec{c} , les courants supraconducteurs se développent dans les plans ab . L'anisotropie dans ces plans est très faible dans la majorité des cas : nous la négligerons donc. L'influence de la forme de l'échantillon à l'aide de la figure IV. 4 (a). Si l'on suppose que la densité de courant critique $\vec{J}_{ab,c}$ circulant dans les plans ab est indépendante du champ \vec{H} , l'aimantation irréversible mesurée lorsque l'échantillon est dans cet état s'écrit [5, 6].

$$M_{irr}^c = \frac{J_{ab,c}}{20} \inf(a, b) \left[1 - \frac{\inf(a, b)}{3 \sup(a, b)} \right] \quad (IV-13)$$

$2a$ et $2b$ sont les dimensions de l'échantillon suivant les plans ab . L'exposant c de l'aimantation irréversible donne la direction du champ magnétique. On retrouve ainsi pour $a = b$ l'équation de Bean (IV-11). On constate que dans le cas d'une géométrie ruban ($b \ll a$), l'équation (IV-13) est donnée par :

$$M_{irr}^c = \frac{J_{ab,c}}{20} b \quad (IV-14)$$

Considérons maintenant un champ magnétique contenu dans le plan ab (figure IV. 4 (b)). Dans ce cas, non seulement l'anisotropie de forme est à prendre en compte, mais l'anisotropie des courants joue maintenant un rôle essentiel. En effet, comme on l'a vu, lorsque le champ magnétique est parallèle aux plans ab , on a deux composantes de la densité de courant critique : $J_{ab,ab}$ et $J_{c,ab}$. Gyorgy et al. [4] ont étendu le modèle de Bean de manière à ce qu'il tienne compte de cette anisotropie. Une analyse de ce modèle permet d'établir une relation entre $J_{ab,ab}$ et $J_{c,ab}$ qui s'écrit :

$$M_{irr}^{ab} = \frac{\inf(cJ_{ab,ab}, aJ_{c,ab})}{20} \left[1 - \frac{\inf(cJ_{ab,ab}, aJ_{c,ab})}{3 \sup(cJ_{ab,ab}, aJ_{c,ab})} \right] \quad (IV-15)$$

l'exposant ab de l'aimantation irréversible donne la direction du champ magnétique. c et a les dimensions de l'échantillon perpendiculaire au champ magnétique. Notons que si $J_{ab,ab} = J_{c,ab}$ et $a = c$, on trouve l'équation de Bean (IV-11).

Pour la plupart des échantillons testés en aimantation, les dimensions $2a$ et $2c$ sont du même ordre, la relation se réduit à :

$$M_{irr}^{ab} = \frac{aJ_{c,ab}}{20} \left[1 - \frac{aJ_{c,ab}}{3cJ_{ab,ab}} \right] \quad (IV-16)$$

Il est clair qu'à partir de l'équation (IV-16), une mesure de l'aimantation ne permet pas de séparer les deux contributions, $J_{ab,ab}$ et $J_{c,ab}$. Afin de remédier à ce problème, Cronmeyer et al. [6] ont procédé à la mesure de l'aimantation d'une série de plusieurs monocristaux d'YBaCuO préparés selon une même technique de croissance mais avec différents rapports a/c . L'ajustement de leurs résultats avec l'équation (IV-16) aboutit à un rapport $J_{ab,ab} / J_{c,ab}$ de l'ordre de 121 à 5 K et à champ nul. Par ailleurs, loin de la région des champs faibles (bosse centrale), le rapport est environ 20 à 30 pour YBaCuO, il est proche de 200 pour LaSrCuO [7] et il peut largement excéder ces valeurs pour les composés BiCaSrCuO et TiBaCaCuO. Ceci veut dire qu'en champ parallèle aux plans ab , l'aimantation mesurée est régie par $J_{c,ab}$. Ces constatations permettent donc de réécrire l'équation (IV-16) sous la forme :

$$M_{irr}^{ab} = \frac{J_{c,ab}}{20} a \quad (IV-17)$$

Les équations (IV-13) et (IV-17) ne sont cependant valables que si les branches M^+ et M^- des cycles d'hystérésis sont indépendantes du champ magnétique appliqué, autrement dit si la densité de courant critique est indépendante du champ ; ce qui n'est pas le cas pour nos échantillons.

4.3. Prise en compte de la variation de la densité de courant en fonction du champ magnétique.

Plusieurs lois de variation de $J_c(H_i)$ ont été considérées pour reproduire la forme des cycles d'hystérésis des SHTC. Chen et al. [8] ont utilisé la loi

$$J_c(H_i) = \frac{J_c(0)}{1 + \frac{H_i}{H_0}} \quad (IV-18)$$

proposée par Kim et al. [9]. Senoussi et al [3] ont considéré la somme de deux décroissances exponentielles de J_c en fonction de H_i dans un modèle à trois courants.

Pour illustrer la différence entre le cycle d'hystérésis calculé à l'aide du modèle de Bean et celui calculé à l'aide d'un modèle tenant compte d'une décroissance monotone de J_c en fonction de H_i , nous avons tracé sur la figure V. 5 trois cycles d'hystérésis calculés, pour un échantillon en forme de plaquette semi-infinie d'épaisseur $2a$, en utilisant l'expression [10] :

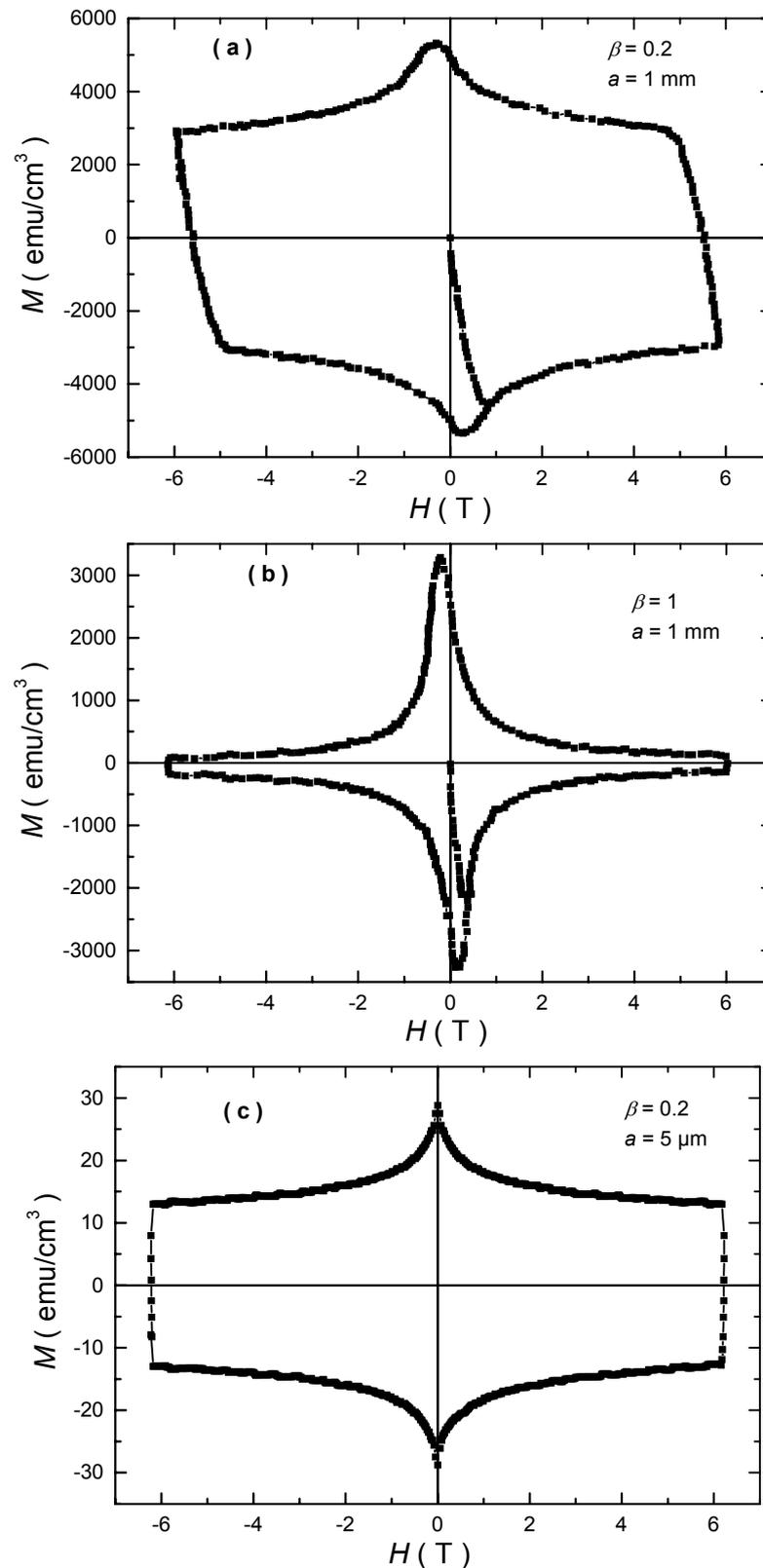


Figure IV. 5 : Cycles d'hystérésis calculés en utilisant la loi de variation $J_c(H)$ donnée par l'équation (IV. 19) avec $H_0 = 125$ mT et $J_c = 10^9$ A/m²

$$J_c(H_i) = \frac{J_c(0)}{\left[\frac{H_i}{H_0} + 1 \right]^\beta} \quad (\text{IV-19})$$

$J_c(0)$ est la densité de courant critique à $H_i = 0$, elle dépend de la température. β est un paramètre qui caractérise l'ancrage des vortex, L'aimantation irréversible diminue lorsque β augmente comme le montrent les cycles (a) et (b) de la figure IV. 5. Nous constatons que la forme de cycles obtenus est semblable à celle des monocristaux supraconducteurs dans certaines conditions. Le cycle (c) est tracé dans les mêmes conditions que le cycle (a) sauf que $a = 5 \mu\text{m}$. Il peut correspondre à un film mince soumis à un champ parallèle à sa surface. On constate que le pic central dépend des dimensions transverses de l'échantillon. Il est pointu et proche de $H = 0$ pour un échantillon micrométrique et plus large et décalé de $H = 0$ pour un monocristal de taille millimétrique. Ce comportement est en fait lié à la dépendance de H_p (champ de complète pénétration du flux) en fonction de a .

On voit bien que H_p augmente lorsque a augmente et de ce fait l'abscisse du pic se déplace vers les champs forts.

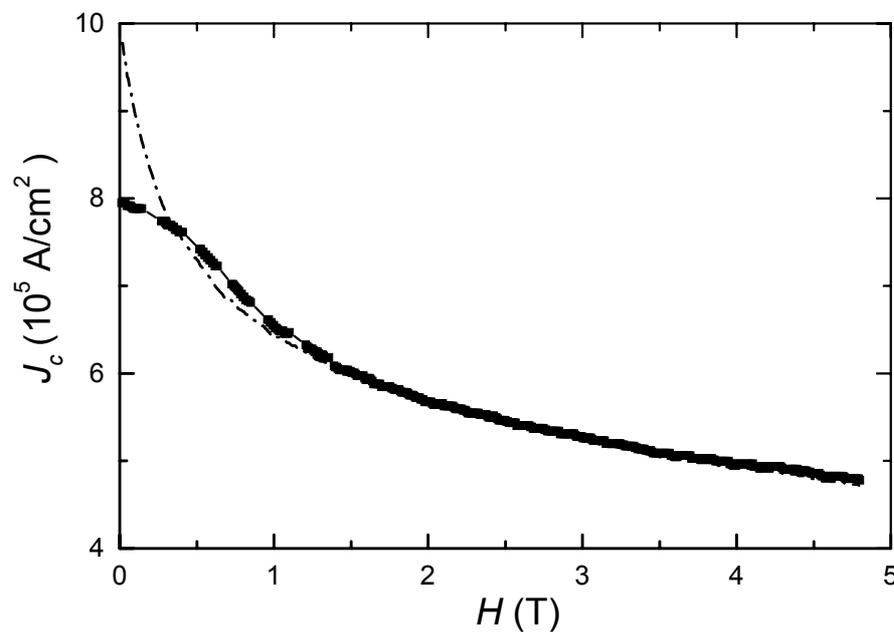


Figure IV. 6 : comparaison de J_c donnée par la formule (IV-14) (carrés plein) et J_c donnée par (IV-19) (trait hachuré) ayant servi pour calculer le cycle d'hystérésis ; ici, on a utilisé les mêmes valeurs des paramètres $J_c(0)$, β , H_0 et a que le cycle (a) de la figure IV. 5 où $H_{max} \approx 6.5 H_p$. On note l'accord parfait entre ces deux grandeurs pour $H > 1 \text{ T}$ qui est un ordre de grandeur de H_p , champ de complète pénétration de flux.

Nous allons montrer que les équations (IV-13) et (IV-17) peuvent servir, dans certains cas que nous allons discuter par la suite, pour déduire la densité de courant critique à partir des cycles d'hystérésis dans lesquels M^+ et M^- dépendent du champ.

Pour cela, nous considérons les cycles d'hystérésis de la figure IV. 5 calculés en considérant $J_c(H_i)$ donnée par (IV-19). La figure IV. 6 montre une comparaison de la densité de courant critique donnée par (IV-14), dans laquelle l'aimantation irréversible dépend du champ, et $J_c(H_i = H)$ donnée par (IV-19) dans laquelle on a remplacé H_i par H .

On constate que l'accord entre ces deux grandeurs est quasi-parfait pour $H > 1$ T qui correspond à H_p .

Le désaccord à faible champ entre J_c donnée par (IV-14) et $J_c(H_i = H)$ donnée par (IV-19) est dû au fait que $J_c(H)$ varie à l'intérieur de l'échantillon. Pour illustrer ceci, nous avons retracé la figure IV. 6 en considérant une loi de variation $J_c(H_i)$ plus uniforme en faisant par exemple augmenter H_0 (figure IV. 7).

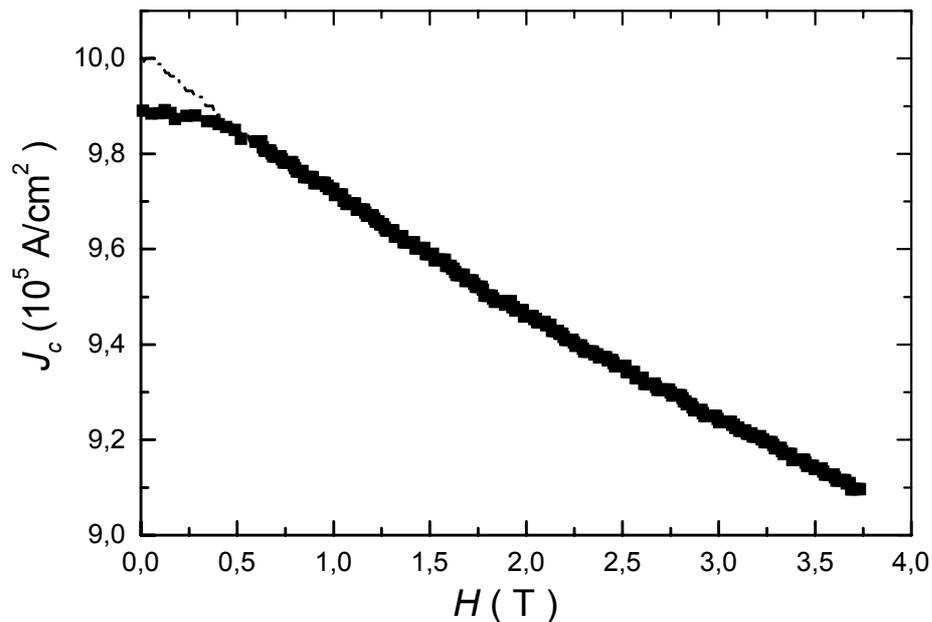


Figure IV. 7 : même chose que la figure IV. 6 sauf que ici $H_0 = 6.25$ T afin de rendre plus uniforme $J_c(H_i)$. On constate que le désaccord entre $J_c(H_i = H)$ (trait hachuré) et J_c de l'expression (IV-14) (carrés plein) est réduit.

Ceci revient à dire que la densité de courant critique J_c donnée par les expressions (IV-13) et (IV-17) est une bonne approximation de la valeur réelle de J_c d'un supraconducteur entièrement pénétré par le flux, même s'il ne vérifie pas l'hypothèse de Bean ($J_c(H_i) = \text{constante}$) ; et dans lequel circulent des courants de même signe. Autrement dit pour $H_p < H < H_{r1}$, H_{r1} est de l'ordre $H_{max} - 2 H_p$ (environ 4.5 T pour l'exemple de la figure IV. 6).

C'est-à-dire qu'on peut utiliser les expressions (IV-13) et (IV-17) pour déterminer la densité de courant critique à partir des cycles d'hystérésis LaSrCuO et de YBaCuO.

5. Résultats expérimentaux

5.1. Cyclographie

Nous intéressons, dans cette partie, à l'évolution des cycles d'hystérésis des SHTC en fonction de la température en champ magnétique appliqué parallèle aux axes cristallographiques.

5.1.1. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

5.1.1.a. Champ parallèle à l'axe c

Les cycles d'hystérésis de ces monocristaux ont été tracés en champ parallèle à \vec{c} . Les figures IV. 8 et IV. 9 montrent les cycles obtenus à des températures allant de 4.2 K à 90 K pour une valeur maximale du champ magnétique de 6.2 T.

Les différentes températures sont imposées les unes à la suite des autres sans enlever l'échantillon de l'anticryostat. Il en résulte une aimantation rémanente à la fin de chaque cycle. L'enregistrement du cycle suivant se fait alors à partir de cette aimantation rémanente. La courbe de première aimantation M_{vg} (Virgin curve) n'est pas visible dans ce cas (même le cycle à 4.2 K présente cette caractéristique). Le champ H_p de pénétration complète ne peut pas être déterminé à moins d'utiliser les extrêmes du cycle (partie de renversement du champ) où la précision est réduite. La détermination du courant critique peut aussi se faire avec l'équation (IV-13).

A 4.2 K : Le cycle de la figure IV. 8 présente la forme très caractéristique lorsque le champ appliqué ne sature pas l'échantillon. Dans ce cas le champ n'a pas pénétré jusqu'au centre de l'échantillon, c.-à-d. que le champ maximum appliqué est inférieur au champ H_p de l'échantillon. Ce cycle présente une particularité que l'on peut remarquer sur sa troisième et cinquième branche. Cette particularité est propre aux cycles d'hystérésis des cristaux de taille importante. On remarque comme une dent de scie ou saut très important dans le cycle. Ce saut est l'effet du réchauffement interne de l'échantillon qui abaisse le champ critique à l'intérieur et diminue ainsi son aimantation. Ce réchauffement est proportionnel à la vitesse de balayage du champ (dH/dt) et aux dimensions de l'échantillon perpendiculaires au vecteur aimantation. Après ce réchauffement, l'échantillon retrouve son équilibre et le cycle

reprend avec l'aimantation rémanente qu'il a à la fin de cette espèce de transition. Ces dents de scie peuvent être plus ou moins répétées suivant les dimensions de l'échantillon et le champ maximum appliqué [11]. A plus haute température le phénomène disparaît. Le réchauffement interne est alors le même que celui en surface et l'échantillon est en équilibre.

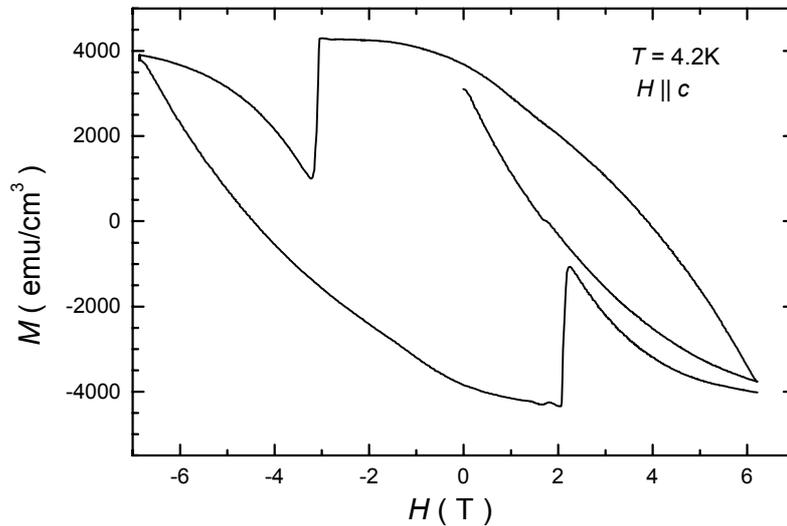


Figure IV. 8 : Cycle d'hystérésis du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ en champ parallèle à \vec{c} à $T = 4.2 \text{ K}$

A 15 K et 20K : (figure IV. 9) Nous retrouvons la forme habituelle de cycle d'hystérésis précédent par l'absence de pic à bas champ et la décroissance de l'aimantation irréversible en fonction du champ. A noter le rapport de l'aimantation irréversible à bas champ sur celle à champ maximum qui est ici plus important.

De 30 K à 60 K : lorsque la température augmente les courbes $M(H)$ changent de forme. Ainsi on constate la présence d'un minimum de l'aimantation à $H = 0 \text{ T}$ suivi d'un maximum très marqué alentour de $H = 2 \text{ T}$. Plusieurs interprétations ont été avancées pour expliquer ce maximum : certains [12] disent qu'il est probablement dû à la présence de zones caractérisées par des couplages faibles entre les gains, agissant ainsi comme des centres d'ancrage dans cette gamme de champ et de température ; d'autres [13] pensent qu'il est dû à une certaine interaction entre le réseau de vortex et les défauts de structure et d'autres encore [14] ont montré que les lacunes d'oxygène peuvent en être responsable. Cette anomalie est appelée aussi « effet papillon » (souvent désignée dans la littérature par « fishtail » ou « butterfly »).

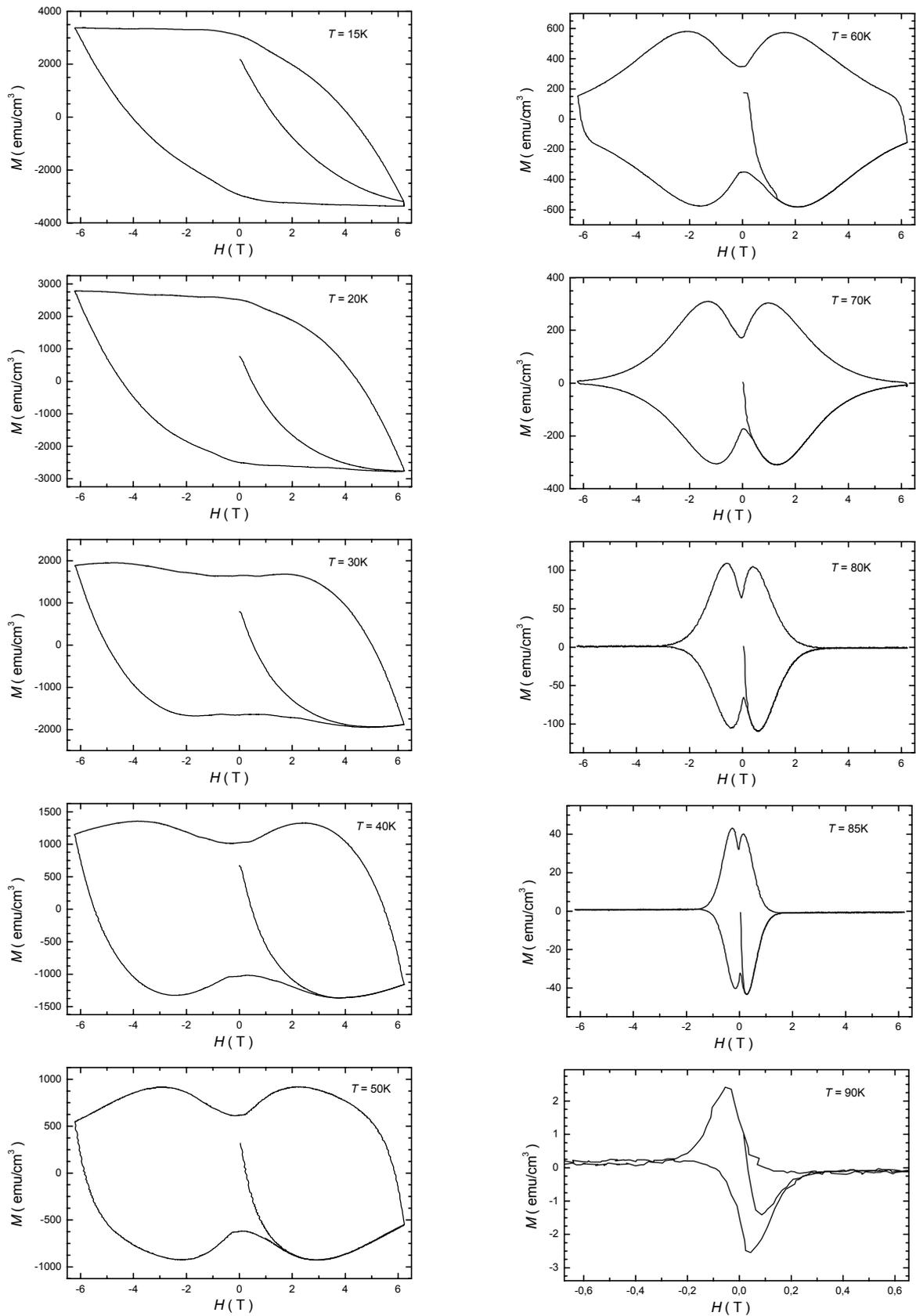


Figure IV. 9 : Cycles d'hystérésis à différentes températures en fonction de champ parallèle à \vec{c} du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

De 70 K à 90 K : Au-delà de ces maxima, l'aimantation décroît lorsque le champ augmente, d'autant plus rapidement que la température augmente. Les branches du cycle d'hystérésis M^+ et M^- se rejoignent pour un champ irréversible H_{irr} , qui dépend de la température, à laquelle il n'y a plus d'hystérésis. L'aimantation irréversible devient alors nulle et les vortex ne sont plus ancrés : Ils peuvent donc bouger librement en réponse à une augmentation du champ ou de la température.

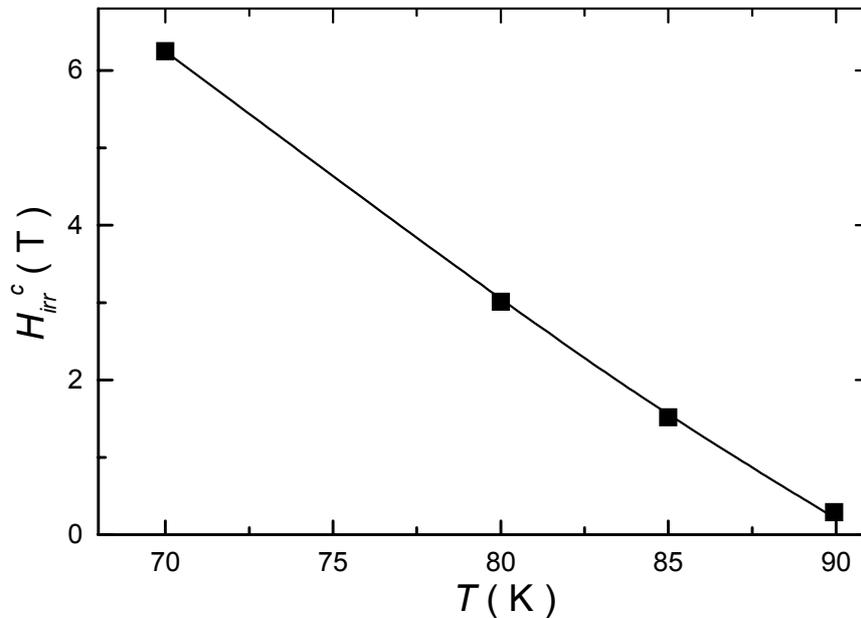


Figure IV. 10 : La variation de champ irréversible H_{irr} en fonction de la température pour un champ parallèle à l'axe \vec{c} , les carrés présentent les données expérimentales et la ligne présente l'équation (IV-20).

La courbe $H_{irr}^c(T)$ (figure IV. 10) représente la ligne d'irréversibilité en champ parallèle à l'axe \vec{c} , Les carrés représentent les données expérimentales et la ligne continue représente la loi de puissance suivante :

$$H_{irr}^c = H_0 \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^\alpha, \quad (\text{IV-20})$$

où $H_0 = 32 \pm 2$ T, $T_c = 91$ K et $\alpha = 1.12 \pm 0.05$. On constate que la loi proposée par L. Fàbraga et al [15] est en bon accord avec l'expérience. La courbe de la figure IV. 10 sépare le domaine où les vortex sont susceptibles d'être ancrés par les défauts du domaine où ils sont libres. La densité de courant critique est nulle le long de cette ligne. Dans les autres supraconducteurs granulaire, plusieurs régimes différents sont clairement apparents [16, 17].

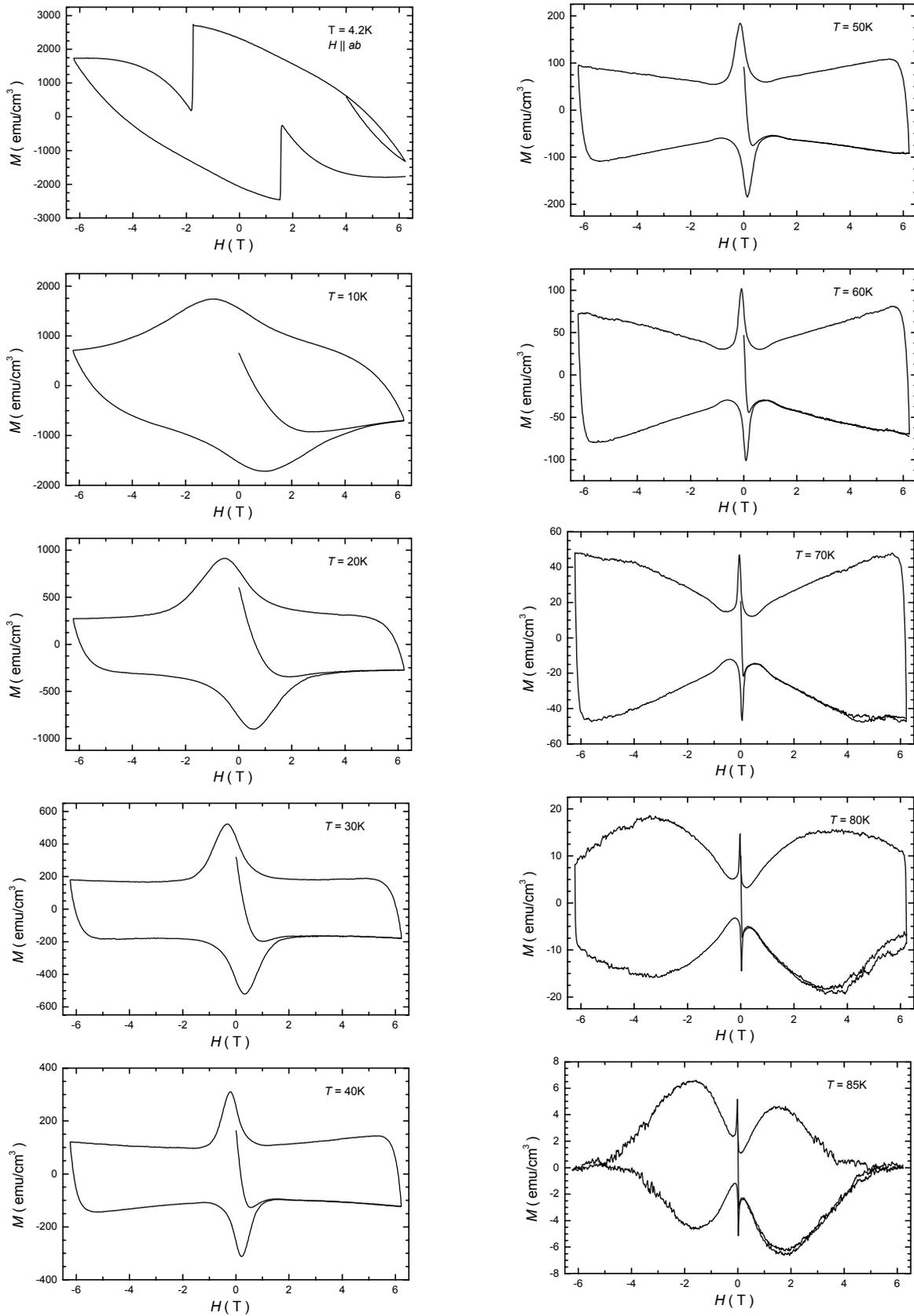


Figure IV. 11 : Cycles d'hystérésis à différentes températures en fonction de champ parallèle aux plans ab du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

5.1.1.b. Champ parallèle aux plans ab

Les cycles d'hystérésis en champ parallèle aux plans ab de cet échantillon sont reportés dans les figures IV. 11.

A 4.2K : Là aussi les sauts de l'aimantation apparaissent ici aussi. Le comportement de l'aimantation est différent de celui l'aimantation parallèle à l'axe \vec{c} par l'existence d'un pic à bas champ qui apparaît à partir de 10 K. Ce pic est déjà évoqué précédemment et qui d'ailleurs observé sur les cycles d'hystérésis calculés en utilisant une loi de variation $J_c(H_i)$.

A 20 K et 30 K : Nous retrouvons la forme habituelle du cycle d'hystérésis avec la présence de pic à bas champ. Loin des champs faibles l'aimantation est presque constante.

A 40 K et 50 K: Les cycles d'hystérésis ont pratiquement la même forme. Après le pic à bas champ, l'aimantation irréversible présente un creux puis augmente avec le champ. C'est le comportement caractéristique de l'effet papillon.

A des températures supérieures à 50 K, les cycles présentent la forme bien connue de l'effet papillon avec une contribution de l'aimantation irréversible beaucoup plus importante. Le rapport de M_{irr} à bas champs sur celle à champ maximum diminue et devient même inférieur à l'unité. A 80 K le maximum de l'aimantation irréversible devient visible alentour de 4 T.

L'aimantation irréversible ne commence à s'annuler qu'à partir de 85 K. Par contre, en champ parallèle à l'axe \vec{c} , l'aimantation irréversible commence à s'annuler à 70 K. Ceci veut dire que le domaine du processus irréversible est plus large en champ parallèle aux plans ab qu'en champ parallèle à l'axe \vec{c} , autrement dit $H_{irr}^{ab}(T) > H_{irr}^c(T)$ ($H_{irr}^{ab}(T)$ représente la ligne de l'irréversibilité, en champ magnétique parallèle aux plans ab).

5.1.2. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Nous présentant maintenant les cycles d'aimantation obtenus pour le monocristal de taille millimétrique de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x \approx 15\%$) à des températures allant de 4.2 K à 27 K pour une valeur maximale du champ magnétique de 6.2 T.

5.1.2.a. Champ parallèle à l'axe c

La figure IV. 12 représente les cycles d'hystérésis en champ parallèle à l'axe \vec{c} .

A 4.2 K : Le champ magnétique appliqué semble avoir saturé l'échantillon puisque la courbe de première aimantation rejoint la courbe enveloppe. Le pic à bas champ est ici une bosse difficile à mettre en évidence. L'intérêt d'un tel échantillon est sa T_c qui fait qu'à 4.2 K le

rapport T/T_c est beaucoup plus important que dans le cas de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ à la même température. La température équivalente de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ serait alors d'environ 10 K où pour un cristal de mêmes dimensions le cycle devrait être semblable.

A 10 K : après le pic à bas champ on observe une chute brutale de l'aimantation mais on ne remarque pas l'apparition de second maximum de l'effet papillon.

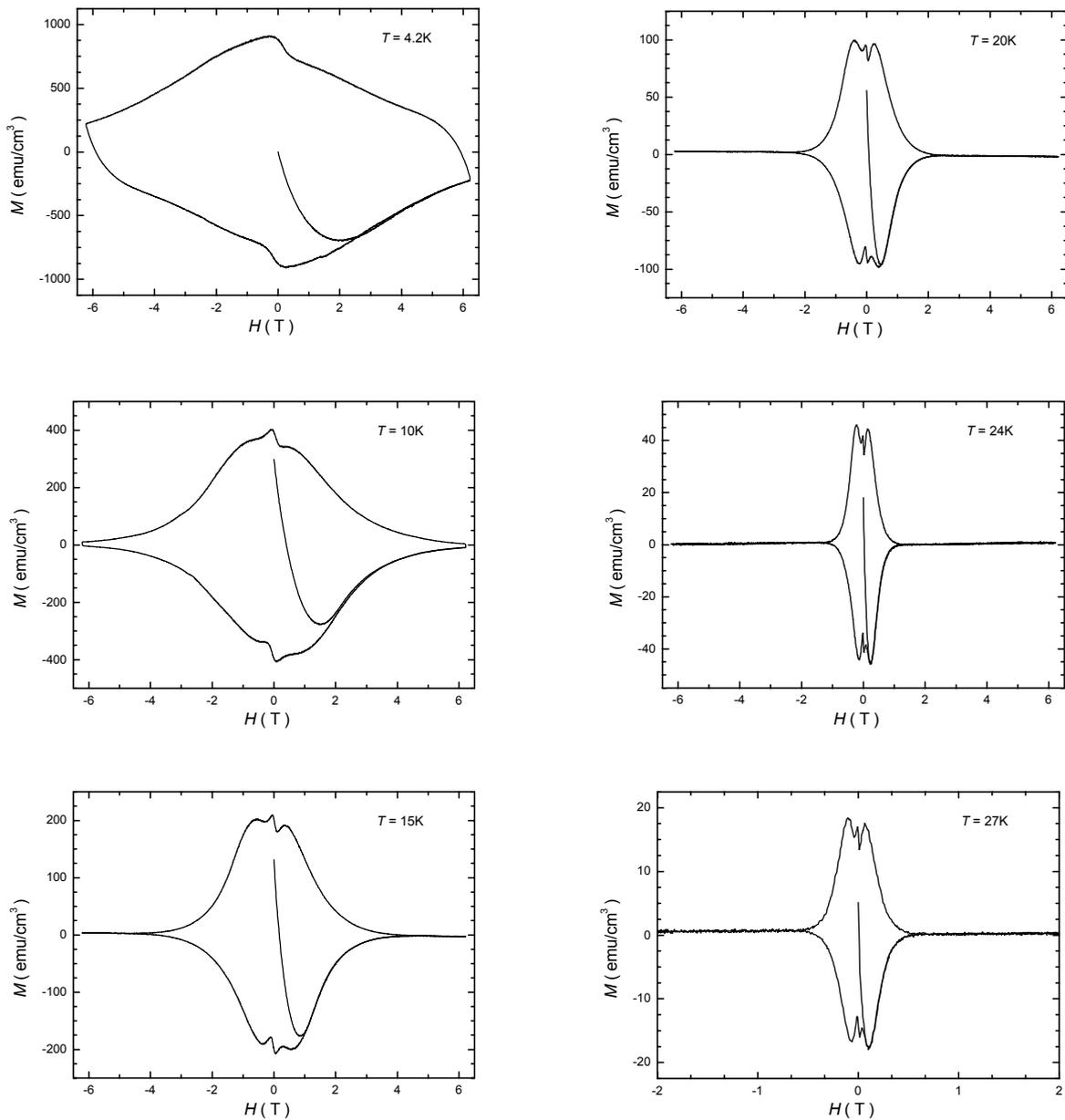


Figure IV. 12 : Evolution en fonction de la température des Cycles d'hystérésis, la température est indiquée dans la figure, en champ parallèle à \vec{c} du monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

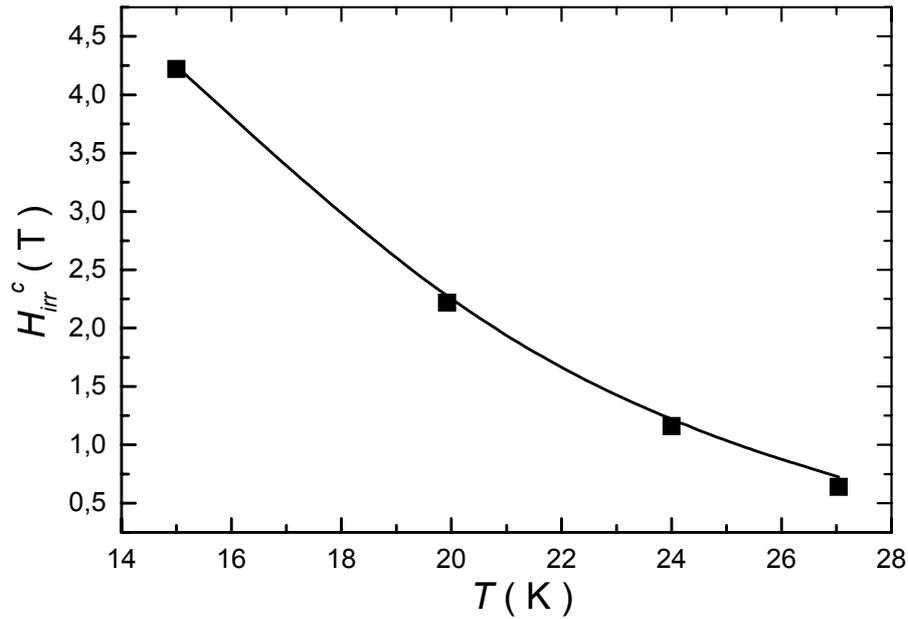


Figure IV. 13 : Variation du champ irréversible H_{irr}^c en fonction de la température pour un champ parallèle à \vec{c} du monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Les carrés présentent les données expérimentales et la ligne présente l'équation (IV-20).

De 15 K à 27 K : On constate la présence d'un second maximum qui apparaît à partir de 15 K. Ce maximum a lieu à un champ d'environ dix fois celui du pic, suivi également d'une chute brutale de l'hystérésis. Bien que le champ magnétique, lieu de ces maxima, diminue quand la température augmente. La ligne d'irréversibilité, $H_{irr}^c(T)$, est aussi bien visible dans cette gamme de température. La figure IV. 13 représente cette ligne, elle varie de la même façon que la ligne d'irréversibilité d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ parallèle à l'axe \vec{c} avec $H_0 = 27 \pm 2$ T et $\alpha = 10.3 \pm 0.4$.

5.1.2.b. Champ parallèle aux plans ab

Les cycles d'hystérésis en champ parallèle aux plans ab de l'échantillon $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ sont reportés dans les figures IV. 14.

A 4.2 K : Le cycle présente aussi un pic à bas champ caractéristique de ces matériaux. Ce pic s'étale sur un domaine de champ de l'ordre de 2 T. Si on néglige la région de bas champ on peut considérer que l'aimantation irréversible est dans une certaine mesure constante et appliquer le modèle de Bean.

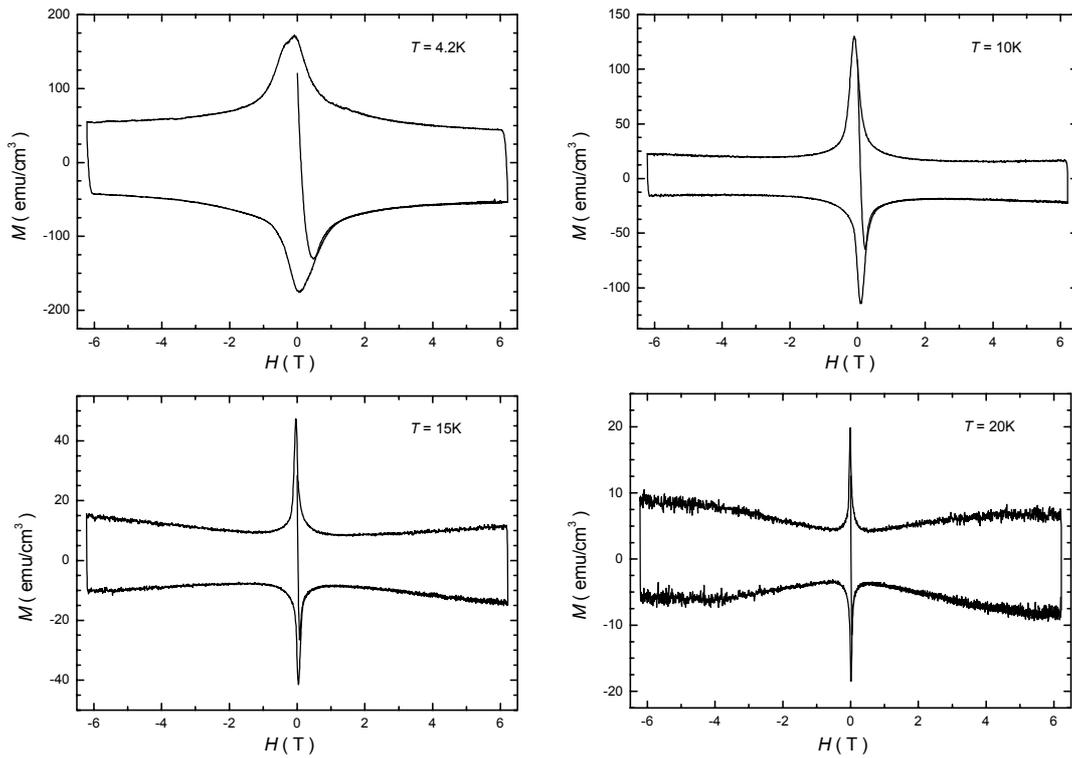


Figure IV. 14 : Evolution en fonction de la température des cycles d'hystérésis, la température est indiquée dans la figure, en champ parallèle aux plans ab du monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

A des températures supérieures ou égale à 10 K commence à apparaître un effet papillon qui devient plus prononcé avec l'augmentation de la température. Le pic à bas champ a une forme plus pointue. C'est le cas en particulier pour le cycle à 20 K où on remarque que l'effet de l'aimantation réversible est très visible (décalage du cycle de part et d'autre de l'axe du champ).

A 20 K, La ligne d'irréversibilité, $H_{irr}^{ab}(T)$, n'a pas commencé à apparaître, dans la limite des champs explorés. Par contre, en champ parallèle à l'axe \vec{c} , La ligne d'irréversibilité commence à apparaître à partir de 15 K. C'est le même processus que dans le monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, ce qui nous permet de dire aussi que $H_{irr}^{ab}(T) > H_{irr}^c(T)$ pour le monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

5.2. Densité de courant critique

L'analyse du comportement en champ et en température de la densité de courant critique peut fournir une indication supplémentaire sur l'origine et le mécanisme d'ancrage des vortex. Les densités de courants critiques sont déduites des cycles d'hystérésis en

appliquant les équations (IV-13) et (IV-17) lorsque $a > b$, nous réécrivons ces équations sous la forme [18]:

$$J_{ab,c} = 20 \frac{M_{irr}^c}{b \left[1 - \frac{b}{3a} \right]} \quad (IV-21)$$

$$J_{c,ab} = 20 \frac{M_{irr}^{ab}}{a} \quad (IV-22)$$

$J_{ab,c}$ et $J_{c,ab}$ sont les densités de courants critique pour des champs respectivement parallèle à l'axe \vec{c} et parallèle aux plans ab .

5.2.1. Dépendance en champ de la densité de courant critique

Dans la littérature, les lois décrivant la variation de la densité de courant critique en fonction du champ magnétique ont un domaine de validité très restreint et sont quasiment spécifiques aux types de composés étudiés. Comme nous l'avons vu, Bean considère une densité de courant critique indépendante du champ :

$$J_c(H_i) = const \quad (IV-23)$$

Kim et al [9] ont proposé une loi de variation de J_c en fonction de H pour les supraconducteurs conventionnels (l'équation (IV-18)). La décroissance exponentielle de J_c en fonction de H est de la forme :

$$J_c = J_0 \exp\left(-\frac{H_i}{H}\right) \quad (IV-24)$$

a été considérée par Fietz et al. [19] pour interpréter les résultats d'aimantation de Nb-Zr, puis par Senoussi et al [3, 20], qui ont développé un modèle reproduisant la forme du pic à bas champ des courbes $M(H)$ des SHTC en utilisant une superposition de deux décroissances exponentielles de J_c en H et en tenant compte de l'aimantation réversible. Toutes ces expressions peuvent être retrouvées à partir de la formule (IV-19) correspondant au modèle de l'état critique généralisé [10].

Dans toutes ces expressions, H_i désigne le champ local dans l'échantillon. Comme nous l'avons vu, on ne peut pas reproduire les anomalies, qui apparaissent surtout à haute température sur les courbes $M(H)$ des SHTC, en s'inspirant de ces modèles dans le calcul des cycles d'hystérésis. Autrement dit, si on connaît la loi de variation de la densité de courant critique J_c en fonction du champ local H_i , on peut calculer numériquement l'aimantation de l'échantillon au cours d'un cycle d'hystérésis. En revanche la procédure inverse, à savoir la

détermination de la loi de variation de J_c en fonction du champ à partir des courbes $M(H)$ mesurées, est de loin plus compliquée.

5.2.1.a. Monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

La figure IV. 15 représente la variation de densité de courant critique, $J_{ab,c}$, en fonction du champ magnétique appliqué parallèle à l'axe \vec{c} pour des différentes températures ($15 \text{ K} < T < 90 \text{ K}$), déterminée à l'aide de la formule (IV-21).

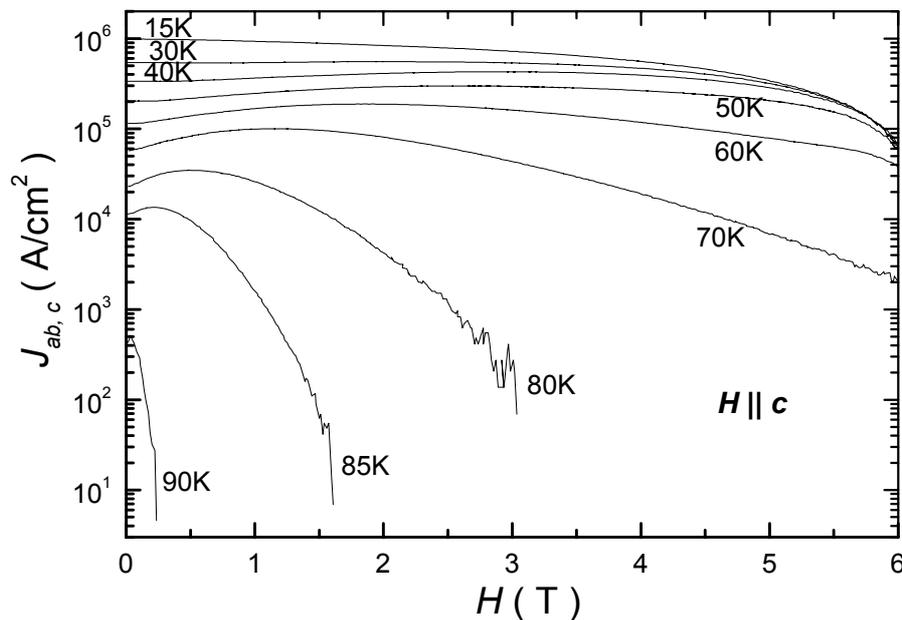


Figure IV. 15 : Variation de la densité de courant critique $J_{ab,c}$ en fonction du champ magnétique appliqué parallèle à l'axe \vec{c} à différentes températures du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

L'aimantation de l'échantillon est caractérisée par un minimum de $J_{ab,c}$ à $H = 0$ dans tout le domaine de température observé. Loin de la région des champs faibles, on constate que $J_{ab,c}$ décroît lorsque le champ augmente. Cette décroissance, plus au moins exponentielle, est d'autant plus rapide que la température augmente. Rappelons que $J_{ab,c}$ est due à l'ancrage des vortex par les défauts parallèle à l'axe \vec{c} . Pour des champs magnétique parallèle à l'axe \vec{c} , les vortex interagissent avec les défauts parallèles à l'axe \vec{c} . L'examen microscopique montre que cet échantillon contient des plans de macles et des structures "tweed" (ligne d'intersection entre deux plans de macles perpendiculaires).

La figure IV. 16 montre la variation de la densité de courant critique, $J_{c,ab}$, en fonction du champ magnétique appliqué parallèle aux plans ab pour quelques valeurs de la température, déterminée à l'aide de la formule (IV-22).

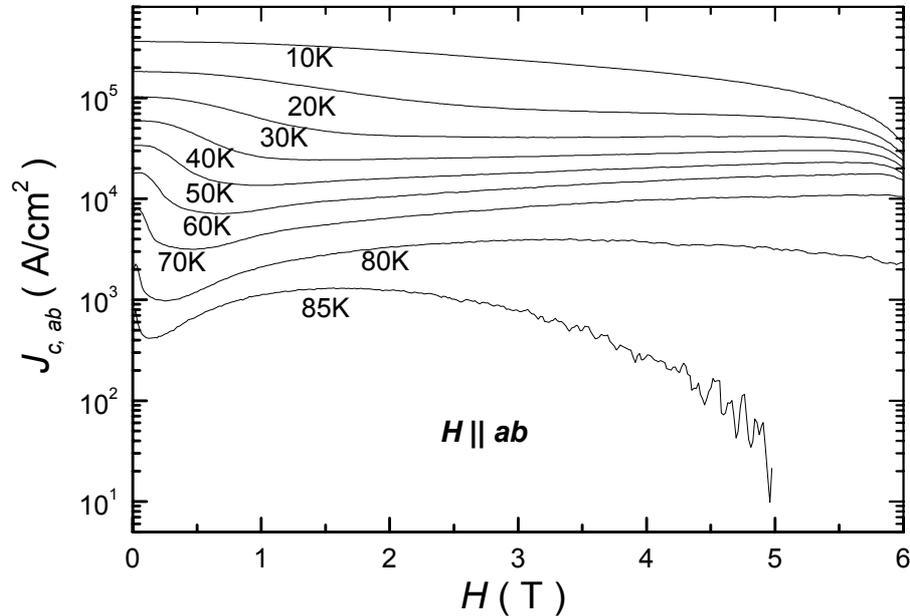


Figure IV. 16 : Variation de la densité de courant critique $J_{c,ab}$ en fonction du champ magnétique appliqué parallèle aux plans ab à différentes températures du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Contrairement à $J_{ab,c}$, $J_{c,ab}$ présente un pic central suivi d'une décroissance puis d'un creux, près de 0.5 T qui est relativement visible à partir de 30 K. Au delà de ce creux, $J_{c,ab}$ subit un croissance très légère à des températures qui varient de 30 K jusqu'à 70 K. Pour des hautes températures (80 K et 85 K), à haut champ magnétique appliqué, on constate que la densité de courant, $J_{c,ab}$, décroît lorsque le champ augmente. Cette décroissance est plus rapide pour $T = 85$ K.

5.2.1.b. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

La figure IV. 17 illustre la variation de la densité de courant critique, $J_{ab,c}$, en fonction du champ magnétique appliqué parallèle à l'axe \vec{c} pour différentes températures ($4.2 \text{ K} < T < 27 \text{ K}$), déterminée à l'aide de la formule (IV-21). Loin des champs faibles, la densité de courant critique, $J_{ab,c}$, a le même comportement que $J_{ab,c}$ de monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pour des températures entre 60 K et 85 K.

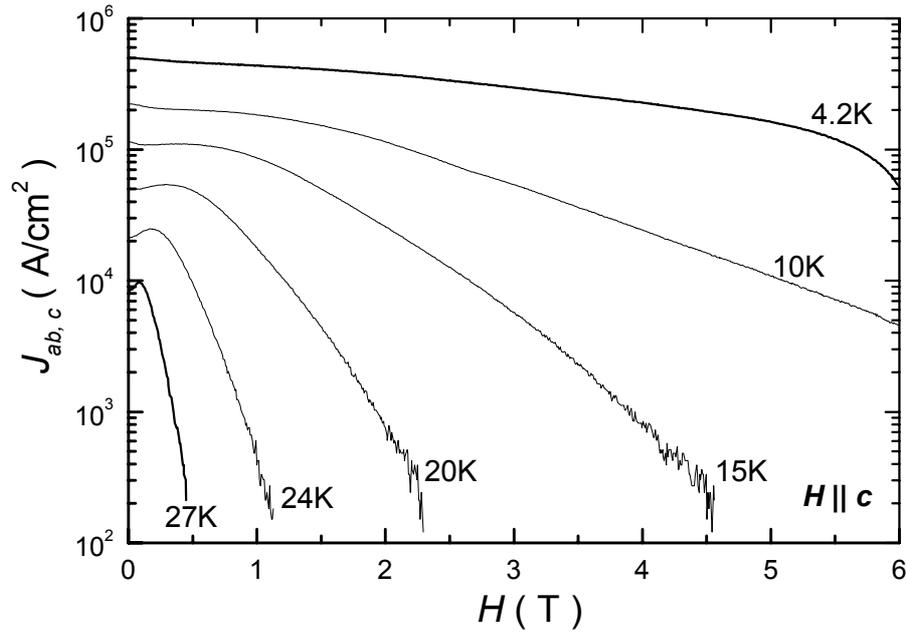


Figure IV. 17 : Variation de la densité de courant critique $J_{ab,c}$ en fonction du champ magnétique appliqué parallèle à l'axe \vec{c} à différentes températures, du monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

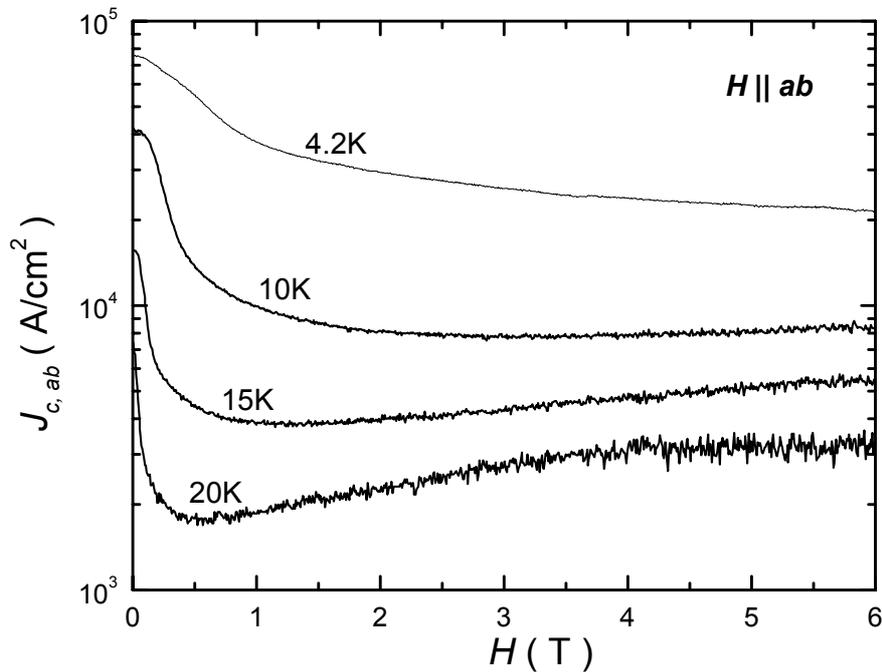


Figure IV. 18 : Variation de la densité de courant critique $J_{c,ab}$ en fonction du champ magnétique appliquée parallèle aux plans ab à différentes températures du monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

La figure IV. 18 montre la variation de $J_{c,ab}$ déterminée à l'aide de la formule (IV-22). C'est la même allure que la variation de la densité de courant $J_{c,ab}$ de monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pour des températures entre 30 K et 60 K.

5.2.2. Dépendance en température de la densité de courant critique

5.2.2.a. Limite théorique : courant de dépairage

La densité de courant critique est très souvent associée à la notion d'ancrage en volume. Aussi fort que soit cet ancrage, le courant critique ne peut excéder la valeur du courant de dépairage, qui constitue une limite thermodynamique. Dans le cas d'un matériau isotrope, le courant de dépairage des paires d'électrons supraconducteurs corrélés est donné par :

$$J_D = \frac{10\phi_0}{12\pi^2 \sqrt{3} \lambda^2 \xi} \quad (\text{IV-25})$$

(en champ parallèle à \vec{c} , à température nulle, on calcule $J_D \approx 10^9$ A/cm² pour $\lambda = 1400$ Å et $\xi = 10$ Å). L'énergie cinétique correspondante est l'énergie nécessaire pour briser une paire d'électrons supraconducteurs : elle varie donc près de T_c en $(T_c - T)^{3/2}$. Cette décroissance, relativement lente en température, n'est pas observée expérimentalement. En fait la limite J_D ne peut être approchée s'il y a des vortex dans l'échantillon.

Par ailleurs le courant critique est déterminé par des phénomènes d'ancrage, que nous détaillons dans la suite.

5.2.2.b. Cas des supraconducteurs classiques

Dans les supraconducteurs conventionnels (basse température critique (SBTC)), la variation de la densité de courant en fonction de la température suit la loi de puissance donnée par l'équation suivante [21]

$$J_c(T) = J_0 \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^n \quad (\text{IV-26})$$

où J_0 est la densité de courant critique à $T = 0$ K et n varie entre 1 et 5/2. Dans le cas de Nb_3Sn et NbTi , la décroissance observée de J_c en température est linéaire.

5.2.2.c. Cas des SHTC

Dans les SHTC, du fait de la relaxation géante de l'aimantation, nous mesurons en réalité une densité de courant à un instant τ (dans notre cas τ est de l'ordre de la constante de temps de l'appareillage de mesure). Selon Feigel'man et al [22]. $J_c(T)$ est donnée par :

$$J_c(T) = J_0 \left[1 + \mu \frac{k_B T}{U} \text{Ln} \left(\frac{\tau}{\tau_0} \right) \right]^{-\frac{1}{\mu}} \quad (\text{IV-27})$$

où J_0 est la densité de courant critique avant la relaxation, U étant le puits de potentiel dans lequel le vortex est piégé, k_B est la constante de Boltzmann, μ ($1/7 \leq \mu \leq 1.5$) un paramètre qui dépend du régime de la relaxation et τ_0 un temps caractéristique.

A faible champ et à basse température, la relaxation est dominée par les mouvements individuels des vortex. Ce régime est caractérisé par $\mu \ll 1$ ($\mu \approx 1/7$) et avec la condition $\frac{1}{\mu} \gg \frac{k_B T}{U} \text{Ln} \left(\frac{\tau}{\tau_0} \right)$, l'expression ci-dessus de $J_c(T)$ peut être approximée par :

$$J_c(T) = J_0 \exp \left(-\frac{T}{T_0} \right) \quad (\text{IV-28})$$

$$\text{avec } k_B T_0 = \frac{U}{\text{Ln} \left(\frac{\tau}{\tau_0} \right)}.$$

Nous présenterons maintenant les principales caractéristiques.

5.2.2.c.i. Monocristal d'YBa₂Cu₃O_{7- δ}

La figure IV.19 présente la variation en température de la densité de courant critique extrapolée à partir de l'aimantation des cycles d'hystérésis d'un monocristal d'YBa₂Cu₃O_{7- δ} en champ parallèle à l'axe \vec{c} (symboles pleins) et au plan ab (symboles vides) [23]. Notons que les valeurs à basse température ne nous sont pas accessibles car l'échantillon n'est pas dans l'état critique (H_p (4.2 K) \gg 6 T) ; cf. section 5.1). On constate que $J_{c,ab}$ décroît légèrement moins vite avec la température que $J_{ab,c}$ (nous rappelons que $J_{x,y}$ est la densité de courant critique circulant suivant la direction x lorsque l'induction magnétique est parallèle à la direction y). On peut remarquer que $J_{c,ab}$ reste inférieur à $J_{ab,c}$ et ce jusqu'à une température $T_1(H)$ qui décroît lorsque le champ augmente et au-delà de laquelle $J_{ab,c}$ devient inférieur à $J_{c,ab}$ (figure IV. 19(b)). Il convient donc de comparer les trois densités de courant critiques de la manière suivante :

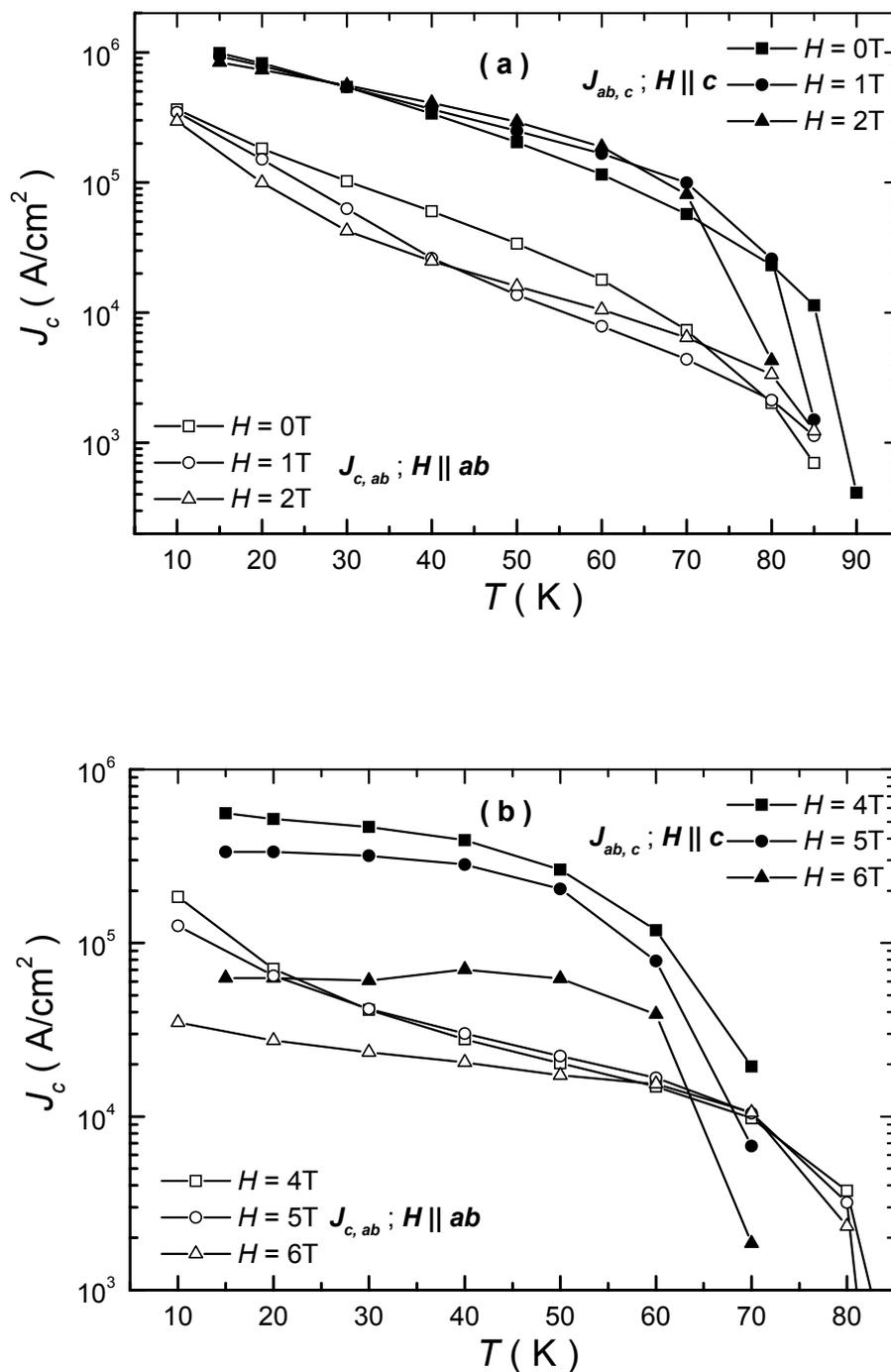


Figure IV. 19 : Dépendances en température des densités de courant critique extrapolées de l'aimantation rémanente en champ appliqué parallèle à \bar{c} et ab pour le monocristal d'YBa₂Cu₃O_{7- δ} , à différentes valeurs (a) $H = 0, 1$ et 2 T et (b) $H = 4, 5$ et 6 T.

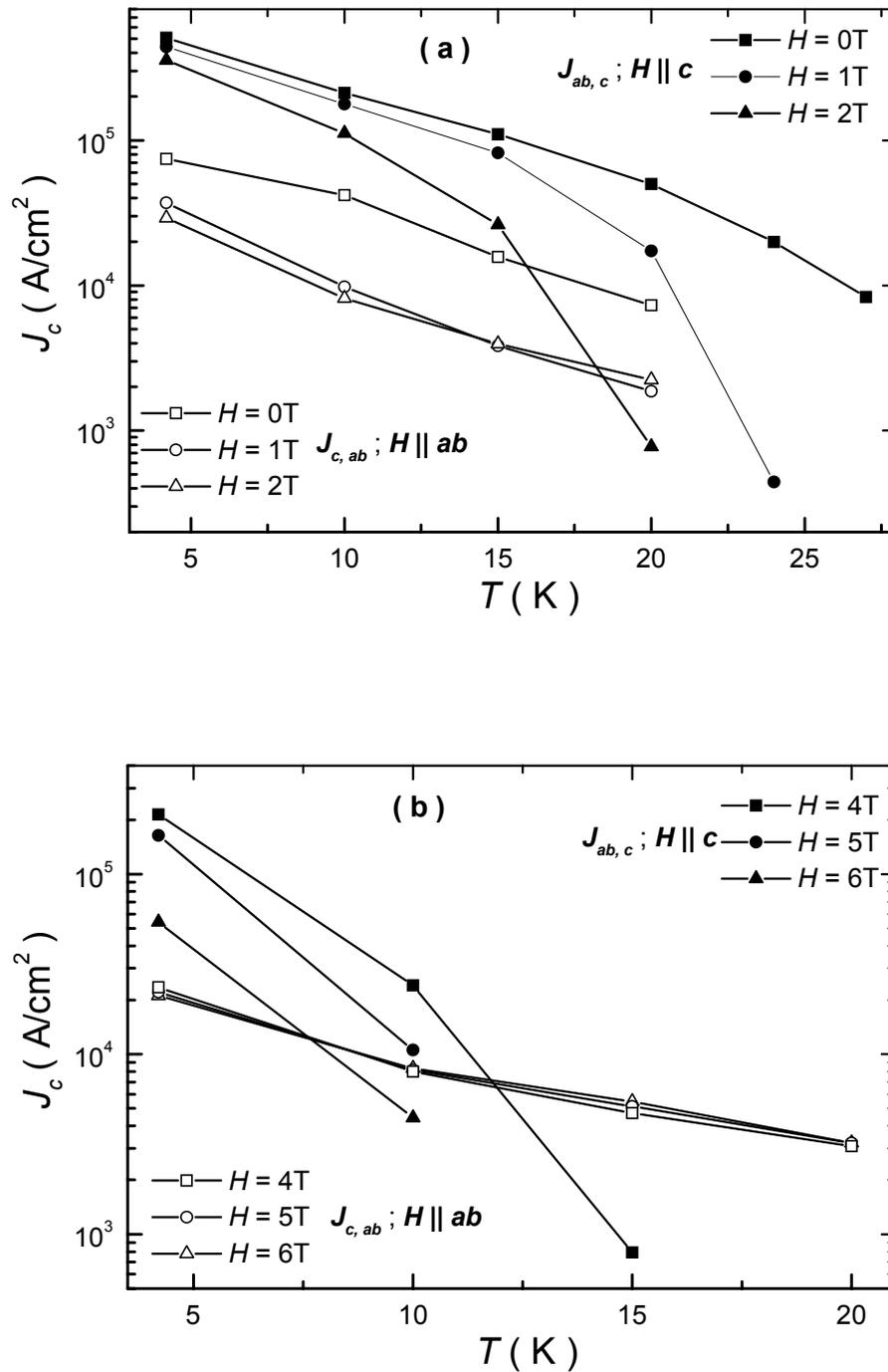


Figure IV. 20 : Dépendances en température des densités de courant critique extrapolées de l'aimantation rémanente en champ appliqué parallèle à \vec{c} et ab pour le monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, à différentes valeurs (a) $H = 0, 1$ et 2 T et (b) $H = 4, 5$ et 6 T .

$$J_{c,ab} < J_{ab,c} < J_{ab,ab} \quad \text{pour } H \ll H_{irr}^c \quad (IV-29)$$

$$J_{ab,c} < J_{c,ab} < J_{ab,ab} \quad \text{pour } H \gg H_{irr}^c \quad (IV-30)$$

Les densités de courant critique $J_{c,ab}$ et $J_{ab,c}$ dans la figure IV.19 (a) suivent approximativement une décroissance exponentielle en fonction de la température entre 20 K et 70 K de la forme (IV-28). Cette forme de variation de la densité de courant critique avec la température caractérise les mouvements des vortex ancrés individuellement ; elle est donc valable surtout à faible champ.

A $H = 6$ T (figure IV. 19(b)), on constate que $J_{ab,c}$ présente une légère augmentation en fonction de la température, passant par un maximum à $T = 50$ K alors que $J_{c,ab}$ présente une décroissance continue. Ce comportement de $J_{ab,c}(T)$ ne peut être expliqué par les modèles classiques qui supposent que les forces d'ancrage s'exercent sur les coeurs des vortex, car dans ce cas la densité de courant critique diminue toujours lorsque la température augmente.

5.2.2.c.ii. Monocristal de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

La figure IV. 20 montre la variation de la densité de courant critique de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ en fonction de la température pour quelques valeurs de champ appliqué. On constate là aussi que $J_{c,ab}$ décroît légèrement moins vite avec la température que $J_{ab,c}$. On peut remarquer aussi que $J_{c,ab}$ reste inférieur à $J_{ab,c}$ et ce jusqu'à une température $T_2(H)$ qui décroît lorsque le champ augmente et au-delà de laquelle $J_{ab,c}$ devient inférieur à $J_{c,ab}$ (figure IV. 20(a)).

Pour des champs élevés parallèles aux plans ab (figure IV. 20(b)), les courbes $J_{c,ab}(T)$ sont très peu dépendantes du champ magnétique appliqué et manifestent un caractère exponentiel pour des températures comprises entre 4 et 20 K.

5.3. Conclusion

Nos résultats de mesures de l'aimantation nous ont permis de déduire la densité de courant critique en fonction de la température et du champ, celui-ci étant parallèle aux axes cristallographiques. Nous avons constaté que les grandeurs macroscopiques des échantillons étudiés manifestent une variation différente en fonction de la température et du champ magnétique appliqué selon que celui-ci est parallèle ou perpendiculaire aux plans supraconducteurs.

Ainsi, pour $H // \vec{c}$, les vortex sont soumis à l'ancrage extrinsèque assuré par les défauts parallèles à l'axe \vec{c} . Nous avons trouvé que la densité de courant critique résultant de ce piégeage décroît de façon monotone en fonction aussi bien de la température que du champ magnétique.

En champ parallèle aux plans ab , la densité de courant critique déduite des cycles d'aimantation $M(H)$ présente un comportement différent de celui correspondant au champ parallèle à l'axe \bar{c} : elle est très peu sensible au champ magnétique appliqué. C'est une caractéristique de l'ancrage intrinsèque dû à la structure lamellaire de ces matériaux. L'étude en fonction de la température de J_c du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ montre un comportement inhabituel à fort champ ($H \approx 5 \text{ T}$) : J_c présente un maximum plus au moins large aux alentours de 40 K. Les modèles théoriques d'ancrage des vortex considérant des profils de potentiel de piégeage de formes diverses, prédisent une décroissance continue de J_c lorsque la température augmente et ne peuvent donc pas expliquer ce résultat.

Références

- [1] W.A. Fietz, W. Webb, *Phys. Rev.*, **178** (1969) 657.
- [2] C.P. Bean, *Phys. Rev. Lett.*, **8** (1962) 250; *Rev. Mod. Phys.*, **36** (1964) 31.
- [3] S. Senoussi, C. Aguillon, P. Manuel, *Physica C*, **175** (1991) 202.
- [4] E.M. Gyorgy, R.B. Van Dover, K.A. Jackson, L.F. Schneemeyer, J.V. Waszczak, *Appl. Phys. Lett.*, **55** (1989) 283.
- [5] S. Senoussi, C. Aguillon, *ICMAS 17-19 octobre Grenoble, Ed. IITT* (1990) 159.
- [6] D.C. Cronemeyer, T.R. Mc Guire, A.P. Malozemoff, F. Holtzberg, R.J. Gambino, L.W. conner M.W. Mc Elfresh, *Proc. Int. Conf. on Transport Properties of Superconductors, Ed. R. Nicolisky (world Scientific, Singapore, 1990)*.
- [7] S. Senoussi, F. Mosbah, O. Sarrhini, S. Hammond, *Physica C*, **221** (1993) 288.
- [8] D.X. Chen, R.B. Goldfarb, *J. Appl. Phys.*, **66** (1989) 2489.
- [9] Y.B. Kim, C.F. Hempstead, A.R. Strnad, *Phys. Rev. Lett.*, **9** (1962) 306.
- [10] Xu Ming, Donglu Shi, Ronald F. Fox, *Phys. Rev. B*, **42** (1990) 10773.
- [11] A. Taoufik, **A. Ramzi**, S. Senoussi, A. Labrag, *Phys. State. sol.(c)* **1**, N° 7 (2004) 1912 ;
A S. Senoussi, S. Mammond, M.F. Mosbah, *Studies of HTs, Edited by A. Narlikar, Nova Sciences, Commack, NY*, **14** (1995) 107.
- [12] K. Kishio, Y. Nakayama, N. Motohira, T. Noda, T.Kobayashi, K. Kitazawa, K. Yamafuji, I. Tanaka, H. Kojima, *Supercond. Sci. Technol.*, **5** (1992) S69.
- [13] M. Werner, F.M. Sauerzopf, H.W. Weber, B.D. Veal, F. Licci, K. Winzer, M.R. Koblischka, *Physica C*, **235-240** (1994) 2893.
- [14] A. Fert, J.P. Redoulès, Ph. Odier, N. Pellerin, *Physica C*, **235-240** (1994) 2809.
- [15] L. Fabrega, B. Martýnez, J. Fontcuberta, A. Sin, S. Pinol, X. Obradors, *Physica C*, **296** (1998) 29.
- [16] V.N. Vieira, J.P. da Silva, J. Schaf, *Physica C*, **341-348** (2000) 1155.
- [17] X.J. Fan, X.F. Sun, J. Zhang, X. Zhao, X.-G. Li, *Physica C*, **341-348** (2000) 1161.
- [18] **A. Ramzi**, A. Taoufik, S. Senoussi, A. Labrag, *J. Phys. IV France* **123** (2005) 409.
- [19] W.A. Fietz, M. R. Beasley, J. Silcox, W. Webb, *Phys. Rev.* **136** (1964) A335.
- [20] S. Senoussi, *journal de physique III*, **2** (1992) 1041.
- [21] Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, *J. Appl. Phys.*, **64** (1988) 5797.
- [22] M.V. Feigel'man, V.B. Geshkenbien, A.I. Lakin, V.M. Vinokur, *Phys. Rev. B*, **43** (1991) 6263.
- [23] c. Aguillon, D.G. Mc Cartney, P. Regnier, S. Senoussi, G.J. Tatlock, *J. Appl. Phys.*, **69** (1991) 8261.

Chapitre V

Densité de courant critique par les mesures de transport

1. Introduction

Le but de ce chapitre est de caractériser les films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, par la méthode de mesure du courant pulsé, décrite au chapitre II, qui permet d'éviter tout échauffement de la résistance au niveau des contacts des points de mesures. Cette méthode nous permet de déterminer la caractéristique tension-courant et de déduire la densité de courant critique sur une large gamme de températures et de champs magnétiques parallèles et perpendiculaires de l'axe \bar{c} .

2. Caractéristiques $E(J)$

Une des plus remarquables propriétés des supraconducteurs de type II est leur capacité de transporter de très grandes densités de courants en présence d'un champ magnétique. La valeur limite de la densité de courant critique est donnée par l'égalité des deux forces opposées agissant sur les lignes de flux (vortex). Ces forces sont la force d'ancrage due à l'évolution spatiale de l'énergie de condensation et la force de Lorentz exercée par le courant de transport. L'énergie est dissipée quand les lignes de flux bougent. Traditionnellement, on distingue deux régimes de dissipation : "flux creep" où la force d'ancrage est la plus dominante et "flux flow" où la force de Lorentz est dominante [1-3].

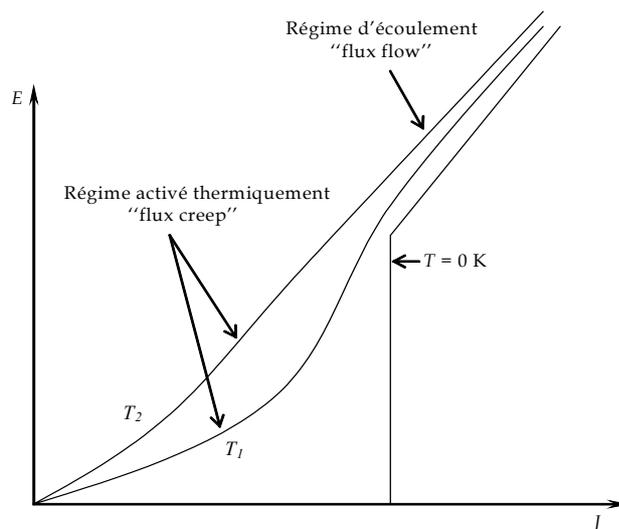


Figure V. 1 : Forme schématique des caractéristiques $E(J)$ ($T_2 > T_1$ et $J_c(T_2) < J_c(T_1)$)

A $T = 0$ K, la tension aux bornes de l'échantillon est théoriquement nulle pour un courant $J \leq J_{c0}$, où J_{c0} est la densité de courant critique à champ magnétique appliqué nul. Lorsque le supraconducteur est parcouru par J_{c0} à $T = 0$ K, il transite vers un état dit dissipé ou ohmique (cf. la figure V. 1).

Lorsque la densité de courant est égale à J_{c0} , les vortex se dépiègent et ont un mouvement d'ensemble dissipatif : le "flux flow". A une température T non nulle, la tension aux bornes de l'échantillon n'est plus rigoureusement nulle. Il apparaît une dissipation engendrée par le mouvement des vortex lors de la relaxation des vortex ou "flux creep".

3. Modèle de flux creep dans SHTC

3.1. Formulation générale

On montre que plusieurs entités, les atomes diffusés, la dislocation dans les cristaux, ou encore, dans notre cas, les lignes de flux (vortex), situés dans un puits de potentiel de profondeur U et en absence de toute contrainte, peuvent par activation thermique, sauter pour sortir ou entrer dans le puits avec une fréquence donnée par :

$$f = \Omega_0 \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \quad (\text{V-1})$$

Ω_0 est la fréquence de vibration des entités. Dans le cas de la diffusion, cette fréquence sera la fréquence de vibration du réseau ($= 10^{13}$ Hz). Comme les chances de saut sont les mêmes dans l'une ou l'autre des directions, aucun mouvement de l'entité n'est observé.

Quand une contrainte extérieure est imposée pour favoriser les sauts dans une direction donnée, qu'on peut qualifier de direction d'avancement, par opposition à la direction de recul, les fréquences de sauts deviennent :

$$f_a = \Omega_0 \exp\left(-\frac{U - \Delta W}{k_B T}\right) \quad (\text{V-2})$$

$$f_r = \Omega_0 \exp\left(-\frac{U + \Delta W}{k_B T}\right) \quad (\text{V-3})$$

où f_a et f_r sont respectivement la fréquence d'essai d'avancement et de recul. ΔW est le travail accompli par la contrainte en déplaçant l'entité de sa position d'équilibre en bas de puits à sa prochaine position d'équilibre. Par conséquent, la fréquence nette d'avancement est donnée par la différence entre les équations (V-2) et (V-3) :

$$f_{net} = f_a - f_r = 2\Omega_0 \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right) \quad (V-4)$$

Deux cas sont possibles:

Quand $\Delta W \gg k_B T$, qui est le cas de forte contrainte imposée ou de faibles températures,

$$\sinh\left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right) \approx \frac{1}{2} \exp\left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right),$$

ainsi la fréquence nette de saut devient :

$$f_{net} \approx \Omega_0 \exp\left(-\frac{U - \Delta W}{k_B T}\right) \quad (V-5)$$

Quand $\Delta W \ll k_B T$, qui est le cas de faible contrainte imposée ou de hautes températures,

$$\sinh\left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right) \approx \frac{\Delta W}{k_B T},$$

ainsi la fréquence nette de saut devient :

$$f_{net} = 2\Omega_0 \left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right) \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \quad (V-6)$$

3.2. Application au flux creep

Tout d'abord, il est nécessaire de définir U et ΔW . Supposant que dans le supraconducteur, les vortex ou les lignes de flux sont piégés par des particules non supraconductrices dont la densité par unité de volume est N_p .

La grandeur U est la différence de l'énergie de Gibbs quand la ligne de flux est en intersection avec la particule et quand elle est en dehors de la particule. En réalité, U est fonction de l'induction magnétique B et de la température T .

Quand le champ d'induction magnétique est assez intense pour que chaque particule soit le siège d'une ligne de flux, l'énergie d'ancrage par unité de volume est égale UN_p .

D'autre part, la distance de déplacement de la ligne de flux est l'espace interligne,

$$a_0 = 1.07 \left(\sqrt{\frac{\phi_0}{B}} \right)$$

ainsi, la force de piégeage par unité de volume est

$$J_0 B = \frac{UN_p}{a_0}, \quad (\text{V-7})$$

où J_0 est la densité de courant critique en absence de flux creep.

Le passage du courant exerce une force de Lorentz sur le réseau de ligne de flux; cette force par unité de volume est donnée par

$$\vec{F} = \vec{J} \wedge \vec{B} \quad (\text{V-8})$$

où J est la densité de courant.

Le travail effectué par le déplacement d'une distance δy d'un volume δV de réseau de vortex est :

$$\delta W = JB \delta y \delta V \quad (\text{V-9})$$

En raison de l'interaction avec les autres lignes de flux, quand une ligne de flux (vortex) n'est pas ancrée, elle ne bougera pas toute seule mais d'autres lignes de flux se déplaceront avec elle. Il est donc raisonnable de supposer que le volume entier de réseau de vortex est associé à un centre de piégeage. Ce volume de réseaux, qui est équivalent à la bande de lignes de flux d'Anderson, bougera vers la prochaine position d'équilibre, qui sera la nouvelle particule d'intersection, quand la ligne du flux se déplace.

Donc la distance de mouvement δy est égale à l'espace interligne de flux a_0 , et l'on a :

$$\Delta W = \frac{JBa_0}{N_p} = \frac{JU}{J_0} \quad (\text{V-10})$$

on peut remarquer qu'on retrouve $\Delta W = U$, quand $J = J_0$.

Le mouvement des lignes de flux génère un champ électrique E , donné par $\vec{E} = \vec{V} \wedge \vec{B}$, où V est la vitesse moyenne de réseau de ligne de flux, qui vaut $a_0 f_{net}$. Le champ électrique est alors donné par :

$$E = f_{net} a_0 B = 2a_0 B \Omega_0 \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{\Delta W}{k_B T}\right) \quad (\text{V-11})$$

Quand le premier cas du paragraphe (3.1.) est satisfait, c'est-à-dire $\Delta W \gg k_B T$,

$$E = a_0 B \Omega_0 \exp\left(\frac{\Delta W - U}{k_B T}\right) = a_0 B \Omega_0 \exp\left(\frac{U(J - J_0)}{J_0 k_B T}\right) \quad (\text{V-12})$$

$$\text{et} \quad J = J_0 \left[1 + \left(\frac{k_B T}{U} \right) \ln \left(\frac{E}{a_0 B \Omega_0} \right) \right] \quad (\text{V-13})$$

où Ω_0 est une fréquence caractéristique de vibration de réseau des lignes de flux qui varie entre 10^5 et 10^{11} Hz.

Quand un champ d'induction de 10 T est appliqué, on a $a_0 = 15$ nm. Le choix d'un champ électrique critique de 10^{-6} V/cm comme critère, qui est notre critère de travail (cf. section 3.3.), permet de voir que le terme en logarithme de l'équation (V-13) est petit et négatif. Par conséquent, la densité du courant critique correspondante J_c est inférieure à J_0 .

On peut également voir que J_c dépend faiblement de E critique utilisé pour définir l'état critique. La possibilité de flux creep activé thermiquement peut être ignoré dans ce cas.

Quand le deuxième cas du paragraphe (3.1.) est réalisé, c'est-à-dire $\Delta W \ll KT$, on a :

$$E = \left(\frac{2a_0 B \Omega_0 U J}{J_0 k_B T} \right) \exp \left(- \frac{U}{k_B T} \right) \quad (\text{V-14})$$

La résistivité électrique est donnée par :

$$\rho = \frac{E}{J} = \left(\frac{2a_0 B \Omega_0 U}{J_0 k_B T} \right) \exp \left(- \frac{U}{k_B T} \right) \quad (\text{V-15})$$

et en substituant U ainsi que pour a_0^2 ,

$$\rho = \left(\frac{2.3 \phi_0 B \Omega_0}{N_p k_B T} \right) \exp \left(- \frac{U}{k_B T} \right). \quad (\text{V-16})$$

Ceci est, le résultat de flux creep dans la résistivité flux flow qui semble être linéaire avec le champ d'induction magnétique \vec{B} . La variation de ρ en température est plutôt compliquée. Il faut se rappeler que U n'est pas constant mais varie avec T et H . Il tend vers zéro quand H s'approche de H_{c2} , ou quand T est proche de T_c .

D'après l'équation (V-16), à la limite, ρ peut devenir infinie. Ceci ne peut pas arriver car ρ a une limite supérieur qui est la résistivité flux flow ρ_f [4]. En l'absence totale d'ancrage, le flux coule avec une vitesse déterminée par l'entraînement visqueux dû à la dissipation dans les coeurs de vortex. La résistivité de flux flow résultant, ρ_f , peut être décrite par la résistivité de l'état normal, ρ_n , multiplié par le rapport du champ magnétique appliqué et du champ critique supérieur H_{c2} .

La densité du courant critique dans les conditions de flux creep est donnée par :

$$J = \left(\frac{EN_p k_B T}{2.3\phi_0 \Omega_0 B} \right) \exp\left(\frac{U}{k_B T} \right). \quad (\text{V-17})$$

On peut voir que J_c dépend directement du choix du champ électrique qui définit l'état critique.

3.3. Détermination de la densité de courant critique à partir des $E(J)$

A cause des différents régimes de $E(J)$ qu'on peut rencontrer dans les SHTC (Flux flow, Flux creep, TAFF), on ne peut pas obtenir une définition absolue de la densité de courant critique J_c . Néanmoins, J_c peut être définie comme la densité de courant maximale qu'un supraconducteur peut supporter avec une résistance nulle, à une température et champ magnétique donnés. Cette définition n'est cependant pas pratique au point de vue mesure, car elle exige qu'on soit capable de détecter une tension électrique infiniment petite. De plus en présence de « flux Creep », cette définition donne toujours $J_c = 0$ puisque l'exponentielle n'est jamais nulle.

En général, toute définition de J_c est basée sur un critère. A notre connaissance, il existe deux critères définissant J_c : Le critère de champ électrique et le critère de résistivité ; les deux critères sont basés sur la mesure de la tension aux bornes de l'échantillon. Le critère de champ électrique définit J_c comme la densité de courant traversant l'échantillon lorsque le champ électrique mesuré E (différence du potentiel divisée par la distance séparant les contacts de tension) est égal à la valeur choisie E_c . De la même façon, le critère de résistivité définit J_c comme la densité de courant nécessaire pour faire apparaître une résistivité ρ égale à celle choisie ρ_c .

Cependant quelques difficultés accompagnent ces définitions. Par exemple, la densité de courant critique définie à partir de critère du champ électrique n'est jamais nulle même si la caractéristique $E(J)$ est complètement ohmique et elle dépend beaucoup de (E_c) en champ magnétique proche de H_{c2} . De même, J_c définie à partir du critère de résistivité peut être nulle sans que la supraconductivité ait complètement disparu (c.à-d. $E(J)$ manifeste toujours une courbure). Pour minimiser ces problèmes, Ekin [4] a introduit un critère intermédiaire qui fait correspondre la densité de courant critique à l'abscisse de l'intersection entre la tangente à la courbe $E(J)$ en E_c et la droite $E = 0$.

La figure V. 2 illustre schématiquement ces différentes définitions. Dans nos études expérimentales, nous avons adopté un critère du champ de $E_c = 10^{-6}$ V/cm.

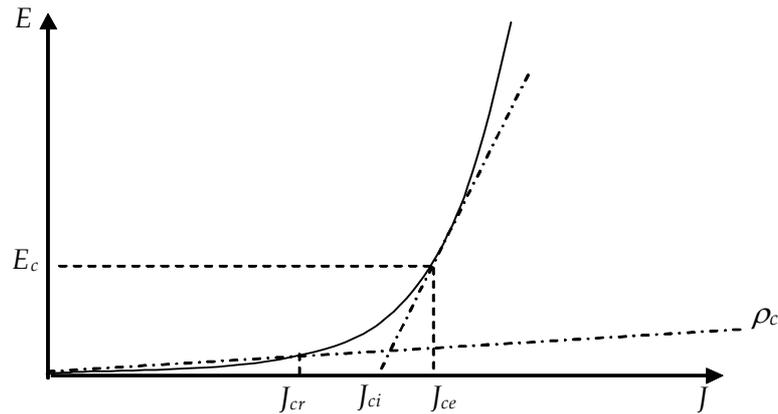


Figure V. 2 : Définition de la densité de courant à partir d'une courbe $E(J)$.

- ✓ J_{cr} est déduite de $E(J)$ par le critère de résistivité ; elle correspond à la densité de courant lorsque la résistivité mesurée est égale à la valeur choisie ρ_c . La droite (ρ_c) d'équation $E = J\rho_c$ coupe la courbe $E(J)$ en $(J = J_{cr}, E = J_{cr}\rho_c)$.
- ✓ Le critère de champ électrique donne J_{ce} ; c'est la densité de courant lorsque le champ électrique est égal à E_c .
- ✓ J_{ci} est déduite de $E(J)$ en extrapolant au champ nul la tangente en E_c à $E(J)$.

4. Résultats expérimentaux

4.1. Caractéristiques $E-J$ des films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Pour obtenir les courbes $E(J)$ des SHTC, il est particulièrement commode d'utiliser des échantillons sous forme de films minces afin de pouvoir explorer aisément de large gammes de courant et de tension. Nous avons ainsi mené une série de mesures des caractéristiques $V-I$ des films d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ en courant pulsés (cf. chapitre II) à différentes températures avec un pas de 0.2 K pour chaque champ magnétique appliqué. Le champ est parallèle soit à l'axe \vec{c} , soit aux plans ab . Le courant de transport est toujours perpendiculaire au champ magnétique appliqué.

Un exemple de ces caractéristiques $E(J)$ est montré sur les figures V. 3 et V. 4, ces courbes sont obtenus pour deux champs magnétiques ($H = 2.4$ T et 5 T) parallèlement à l'axe \vec{c} et deux autres champ ($H = 5$ T et 10 T) parallèlement aux plans ab à différentes températures allant de 71 K à 89 K. On constate que dans la région des faibles densités de courant et des températures voisines de la température de la transition, la caractéristique $E(J)$ montre un comportement ohmique et une transition rapide vers l'état normal. Par contre, la transition s'établit progressivement dans la gamme des hautes densités de courant et de basse température. Un tel comportement peut être interprété en terme du modèle de flux creep qui sera appliqué dans le paragraphe (4.2).

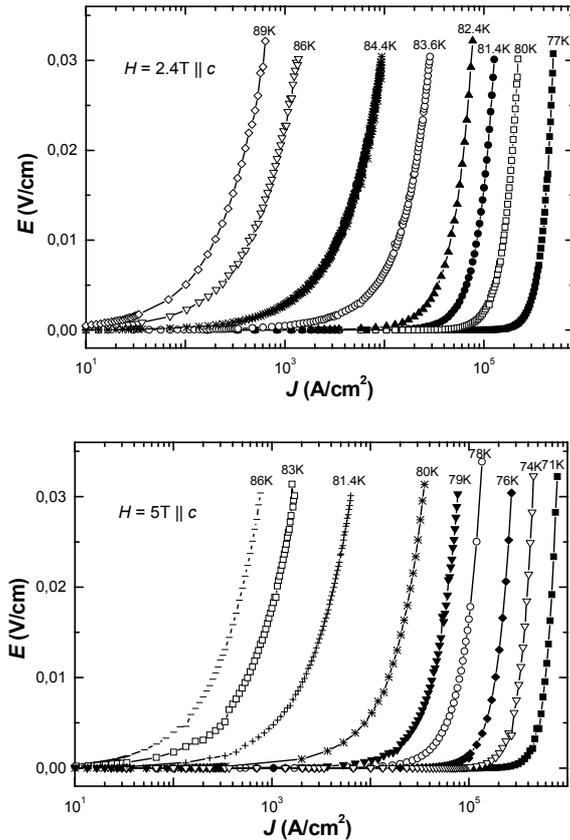


Figure V. 3 : Quelques caractéristiques $E(J)$ de films minces $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pour différentes températures, les valeurs sont représentées sur les courbes, à deux champs magnétiques extérieurs ($H = 2.4 \text{ T}$ et 5 T) parallèles à l'axe \vec{c} .

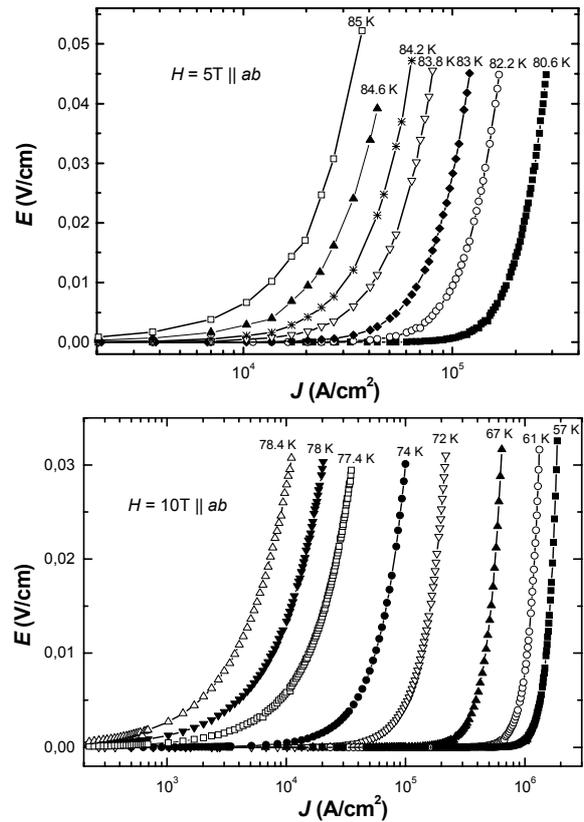


Figure V. 4 : Quelques caractéristiques $E(J)$ de films minces $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pour différentes températures, les valeurs sont représentées sur les courbes, à deux champs magnétiques extérieurs ($H = 5 \text{ T}$ et 10 T) parallèles aux plans ab .

4.2. Variations du produit de volume des bandes de vortex et leur longueur de saut

L'analyse dans le cadre de flux creep est basée sur l'équation de Kim et Anderson [1, 2] (cf. éq. (V-11))

$$E = E_0 \exp\left(\frac{-U_0}{k_B T}\right) \sinh\left(\frac{JBv_d l}{k_B T}\right) \quad (\text{V-18})$$

où E est le champ électrique dû à l'écoulement des bandes de vortex activées thermiquement, avec une énergie d'activation U_0 , v_d est le volume de la bande en mouvement, $JBv_d l$ la force de Lorentz agissant sur cette bande de vortex, l est la distance moyenne de déplacement de la bande par activation thermique. E_0 est proportionnel à la fréquence d'essai.

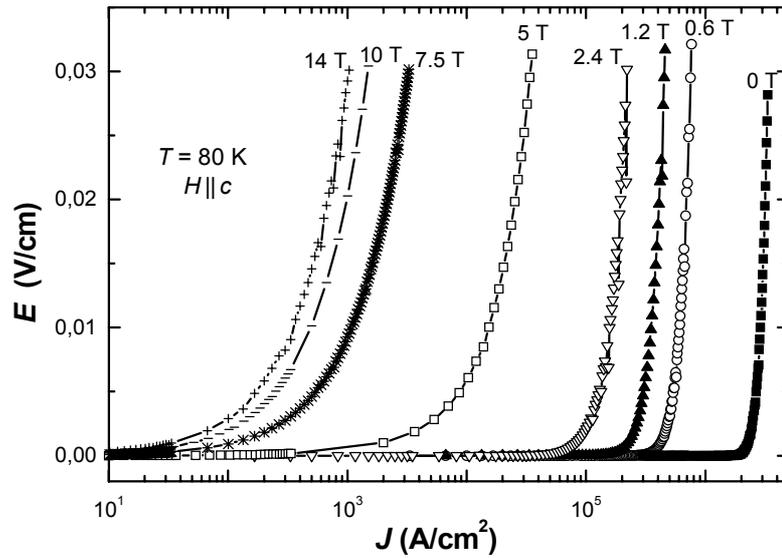


Figure V. 5 : Un exemple de caractéristiques $E(J)$ à 80 K et pour un champ magnétique de 0 à 14 T parallèle à l'axe \vec{c} du film mince, les symboles représentent les données expérimentales et les lignes continues représentent les courbes d'ajustement avec la formule de Kim-Anderson (éq. (V-18))

Par ajustement direct des caractéristiques $E(J)$ avec l'équation (V-18), nous pouvons obtenir la valeur de $v_d l$. Ici, nous ajustons avec la relation

$$E = C \sinh\left(\frac{v_d l B J}{k_B T}\right), \quad (\text{V-19})$$

$$\text{avec } C = E_0 \exp\left(-\frac{U_0}{k_B T}\right).$$

Nos données expérimentales en utilisant la méthode des moindres carrés et en choisissant $v_d l$ et C comme paramètres d'ajustement. Un exemple du résultat de cet ajustement est montré sur la figure V. 5. La ligne continue représente la courbe théorique et les symboles représentent les valeurs expérimentales. On constate que dans la région de faible densité de courant (forts champs magnétique appliqués) la transition est large et montre un comportement Ohmique. Par contre, la transition est rapide dans la gamme des hautes densités de courant (faibles champs magnétique appliqués). Un tel comportement peut être interprété en terme du modèle de flux creep, qui sera appliqué ici. On constate également un très bon accord entre les caractéristiques $E(J)$ expérimentales et les courbes théoriques pour tous les champs et les températures étudiés pour des champ électrique entre 0 et 1.2×10^{-4} V/cm.

Les variations des valeurs de v_{dl} , déduites de cet ajustement, en fonction du champ H , pour chaque température, sont représentées sur la figure V. 6. Toutes les courbes de v_{dl} en fonction de H ont un minimum à un champ noté H_1 , indiqué par une flèche sur la figure. Pour H inférieur à H_1 , v_{dl} décroît rapidement. Les variations de cette partie des courbes $v_{dl}(H)$ peuvent être approximées par :

$$v_{dl} \propto H^n, \quad \text{avec} \quad n \approx -1 \text{ pour } H \leq H_1 \quad (\text{V-20})$$

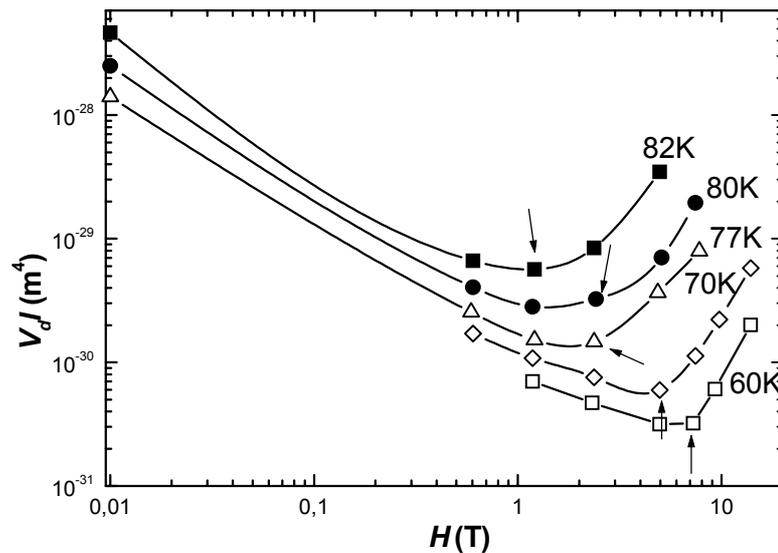


Figure V. 6 : Variation de v_{dl} en fonction du champ magnétique appliqué pour des températures 60, 70, 77, 80 et 82 K. La flèche indique la position du champ H_1 auquel v_{dl} présente un minimum.

Pour $H \leq H_1$, v_{dl} croît rapidement. Cependant, et à haute température en particulier, le changement de la pente des courbes v_{dl} en fonction de H n'est pas très rapide. Par conséquent, il existe une région intermédiaire au voisinage de H_1 , entre le régime des champs faibles et le régime des champs forts, où v_{dl} reste constant.

Le comportement v_{dl} en fonction de H dans la région des faibles champs ($H < H_1$), et qui est décrit par l'équation (V-20), peut être interprété comme suit :

Supposons que le volume de chaque bande de vortex ne change pas quand le champ magnétique augmente, la décroissance de v_{dl} avec H signifie que la distance du saut l varie en fonction de H comme H^{-1} . Par ailleurs, nous savons que le paramètre de réseau de vortex varie en fonction de H comme $H^{-1/2}$. Donc la variation de l en H^{-1} , ne semble pas raisonnable.

Par conséquent, comme il a été suggéré par Englande et al. [5], il est préférable de considérer, en plus de la variation de l , que le volume des bandes de vortex change aussi avec la croissance du champ dans cette région.

Dans la région des champs faibles, comme le paramètre du réseau est grand, l'interaction inter-vortex est faible et l'interaction entre les vortex et les centres d'ancrage doit être prédominante. Par conséquent, l'existence d'un réseau solide de vortex est attendue. On appelle cette région "la phase des vortex ordonnés".

Au voisinage de H_1 , $v_d l$ devient petit et indépendant de H , tandis que le paramètre du réseau L_1 continue à décroître quand le champ H croît. Comme dans cette région il y a un faible effet de la décroissance du paramètre de réseau dans $v_d l$, l'interaction entre les vortex commence à être prédominante. De plus, comme $\lambda(T)$ est à peu près indépendant de H , le diamètre des bandes de vortex d_d et la distance de saut peuvent être comparable à la profondeur de pénétration $\lambda(T)$, c'est à dire $d_d \approx l \approx \lambda(T)$, comme il a été suggéré par Englande et al [5]. Par conséquent, la surface de la bande et la distance de saut l peuvent être exprimées en fonction de $\lambda(T)$. Quand nous considérons que la longueur du saut de la bande est de l'ordre de la longueur de cohérence $\xi(T)$, nous trouvons que

$$v_d l \approx \lambda_{//ab}^3(0) \xi_{//c}(0) (1-t^2)^{-3/2} (1-t)^{-1/2} \quad (\text{V-21})$$

où $t = T/T_c$ est la température réduite. Ici, comme H est perpendiculaire aux plans ab , nous utilisons la profondeur de pénétration $\lambda_{//ab}(T)$ et la longueur de cohérence perpendiculaire $\xi_{//c}(T)$. La figure V. 7 représente les variations de $\log(1/v_d l)$ en fonction de la température T . Les points représentent les valeurs expérimentales. La ligne continue représente l'ajustement avec l'équation (V-21) où $\lambda_{//ab}^3(0) \xi_{//c}(0)$ est pris comme paramètre d'ajustement. On voit que cette équation donne un ajustement raisonnable avec $\lambda_{//ab}^3(0) \xi_{//c}(0) \approx 10^{-31} m^4$ qui est comparable aux valeurs de $\lambda_{//ab}(T) \approx 1000 \text{ \AA}$ et $\xi_{//c}(T) \approx 2.0 \text{ \AA}$ données par d'autres expériences [5].

Dans cette région, à cause de la réduction de la distance entre les coeurs de vortex quand le champ magnétique croît, l'interaction entre vortex-vortex est supérieure à l'interaction entre le vortex et les centres d'ancrage. Par conséquent, la stabilité du réseau de vortex doit décroître fortement quand le champ H augmente davantage dans cette région. Ceci est dû à la grande interaction entre les vortex et ce réseau perd son caractère d'ordre à long porté.

Dans la région des hauts champs supérieurs à H_1 , Le produit $v_d l$ croît rapidement avec H . Cependant, nous ne pouvons pas savoir définitivement, par cette seule expérience, qui de v_d , l ou tous les deux croissent dans cette région. Dans tous les cas, la grande croissance de $v_d l$ et la décroissance du paramètre du réseau l_L avec H ne concordent pas, et les lignes de flux

ne peuvent pas être dans l'état de réseau de vortex. Dans un tel régime, le concept de bande de vortex doit être changé. On utilise une longueur caractéristique $l_d(T, H)$ qui décrit la portée de l'interaction vortex-vortex. Quand nous utilisons un tel modèle, $v_d l$ dans l'équation (V-18) pourra être remplacé par

$$v_d l \approx l_d^3(T, H) \xi_{\perp}(T) \quad (\text{V-22})$$

Ainsi, la croissance de $v_d l$ pour H supérieur à H_1 est attribuée à la grande croissance de l_d . Comme $l_d \gg \lambda$ et $l_d \gg l_L$ dans cette région, plusieurs coeurs de vortex sont à l'intérieur du cercle de rayon l_d . Ainsi, la stabilité des réseaux de vortex devient extrêmement faible.

Par conséquent, la croissance rapide de l_d au-delà de H_1 met en évidence un changement de phase de réseau de vortex vers une phase de vortex désordonné.

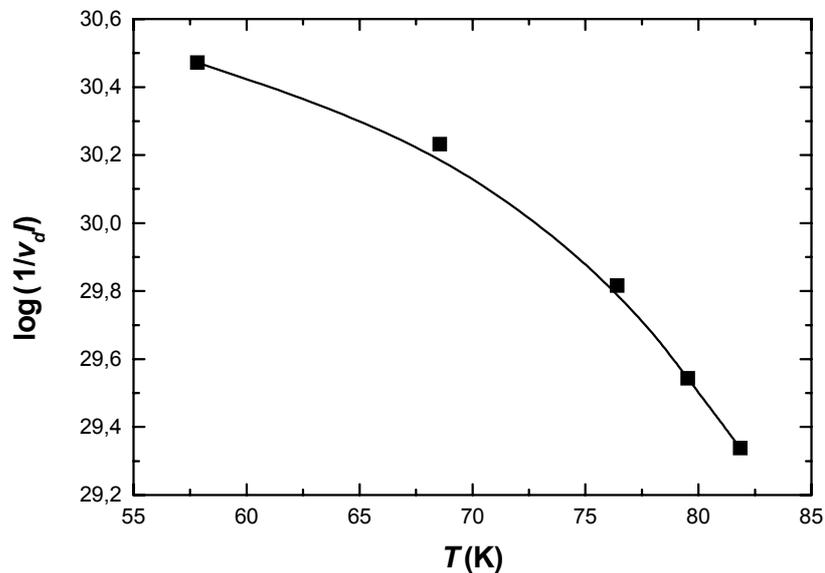


Figure V. 7 : Variation $\log(1/v_d l)$ en fonction de la température T . Les points représentent les valeurs expérimentales. La ligne continue représente l'ajustement (fit) avec la formule (V-21).

4.3. Diagramme de phase

Sur la figure V. 8 nous avons montré les variations de plusieurs champs magnétiques caractéristiques, obtenus dans l'analyse précédente, en fonction de la température. Ici, $H_0(T)$ est le champ auquel $J_c(H)$ change complètement de pente, $H_{c2}(T)$ est le deuxième champ critique déterminé à partir de courbes de la résistivité $\rho(T, H)$, $H_1(T)$ est déterminé par l'analyse des caractéristiques $E(J)$ en terme de Flux creep, c'est le point auquel les caractéristiques de mouvement de vortex changent.

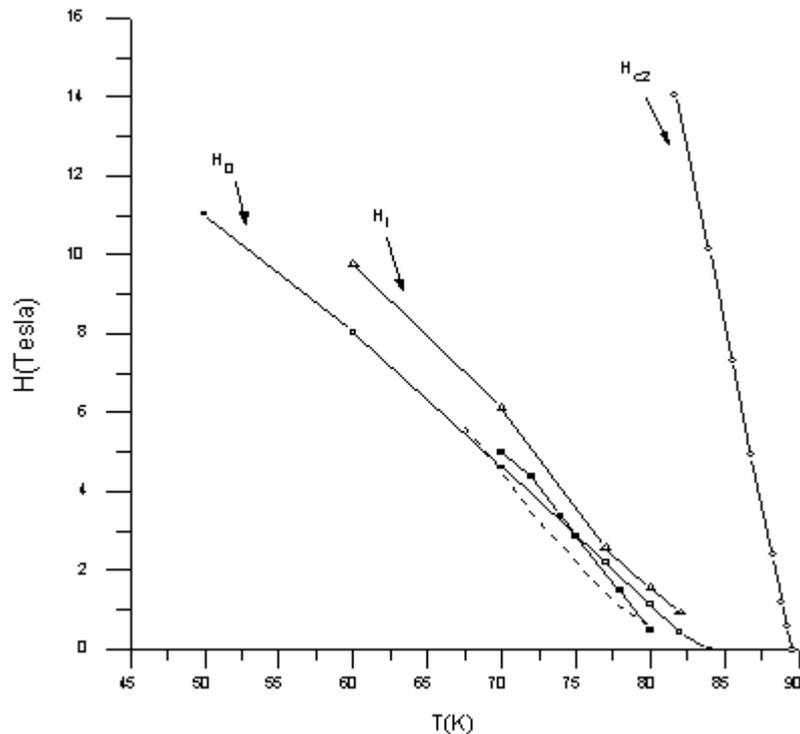


Figure V. 8 : Le diagramme de phases des propriétés de mouvement des vortex, pour H parallèle à l'axe \bar{c} . La courbe en pointillé est la ligne d'irréversibilité calculée par Worthington et al. [6], la courbe en carrés pleins est la courbe d'effondrement de réseau de vortex déterminé par Gammel et al [7]. Les autres points sont déterminés de l'analyse de nos données.

Comme on peut le voir sur la figure les courbes de $H_0(T)$ et de $H_1(T)$ sont proches les unes des autres. La partie de la surface du diagramme $H-T$ se trouvant au dessus de la ligne $H_1(T)$ peut être attribuée à la phase désordonnée où le réseau de vortex d'Abrikosov est considérablement détruit et où il perd sa propriété d'ordre à longue portée. La surface entre $H_{c1}(T)$ et $H_1(T)$ peut être appelée "la phase ordonnée".

Pour comparaison nous avons également représenté sur la figure V. 8 les points d'effondrement de réseau de vortex déterminés par Gammel et al. par la méthode vibratoire [7]. La ligne en pointillé est la ligne d'irréversibilité calculée par Worthington et al. [8]. On peut voir que nos résultats ainsi que ceux de Gammel et al. et les courbes théoriques de Worthington et al. sont proches les unes des autres. Mais les points d'irréversibilité de ces auteurs dépendent de la fréquence. Par conséquent, nos résultats sont en accord avec leurs résultats à basse fréquence.

Dans la région $H \geq H_1(T)$, l'interaction entre les vortex et les centres d'ancrages devient faible. Par conséquent, la force élémentaire de piégeage f_p associée à chaque centre de piégeage dans l'échantillon est considérablement affaiblie. Il est naturel que $J_c(H)$ décroisse très rapidement quand le champ magnétique est supérieur à H_1 .

Comme le montre la dépendance du produit v_{il} avec le champ magnétique, la transition de phase entre l'état ordonné et l'état désordonné du réseau de vortex est du second ordre.

Finalement, nous nous sommes basés sur le modèle classique de flux creep pour analyser nos résultats expérimentaux. Nous avons trouvé que ce modèle prévoit une transition de phase dans le réseau de vortex.

4.4. Transition de phase verre-liquide dans le réseau de vortex

4.4.1. Introduction

Dans le paragraphe précédent, la nature de l'état mixte a été discutée dans le modèle de flux creep d'Anderson et Kim qui inclue les effets de piégeage et les effets de la force de Lorentz. Mais ce modèle ignore complètement les importants effets des interactions collectives entre les vortex. Ce modèle prédit que la résistance linéaire

$$R = \lim_{J \rightarrow 0} \frac{E}{J}, \quad (\text{V-23})$$

est rapidement décroissante quand on refroidit l'échantillon et ne s'annule jamais sauf à $T = 0$ K.

De nombreuses études physiques, aussi bien fondamentales qu'appliquées, ont été réalisées sur les propriétés statiques et dynamiques des vortex dans les supraconducteurs à haute température critique. Un des plus intéressants phénomènes est la transition de phase de second ordre d'un état désordonné de type verre vers un état liquide de vortex [9, 10].

La première preuve de l'existence de cette transition a été présentée par Koch et al. [11] en analysant la non-linéarité des caractéristiques $V-I$ au voisinage de la température de transition verre de vortex, T_g , dans un film mince d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. L'existence de l'état verre de vortex a été ensuite confirmée par des mesures de résistivité au SQUID (picovoltmètre) dans d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ démaclé [12].

Actuellement, la transition de verre de vortex est un concept admis. Cependant, il y a encore beaucoup de controverses dans la littérature sur la nature de cette transition [12-15]. En outre, il y a peu d'études de ce phénomène aux champs soit très faibles soit très élevés.

Pour clarifier cette situation, nous avons étudié les caractéristiques $E-J$ d'un film mince $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ de haute qualité. Nous avons utilisé des courants pulsés dans la gamme de champ magnétique entre 0 et 14 T, de température entre 25 et 90 K et de densité de courant

entre 0 et 10^7 A/cm². Les résultats de cette partie sont analysés dans le cadre de la théorie de Fischer et al [10].

4.4.2. Théorie du verre de vortex

L'idée de base de cette théorie est que les qualités physiques peuvent être exprimées comme puissance appropriée de la longueur de corrélation divergente ξ et du temps de corrélation ξ^z où z est l'exposant dynamique. La longueur de corrélation diverge à la transition avec un exposant critique cinétique ν ,

$$\xi \propto |T - T_g|^{-\nu}, \quad (\text{V-24})$$

Dans un échantillon de dimensionnalité d , le champ électrique et la densité de courant sont liés par la relation générale suivante :

$$E(J) = J \xi^{d-2-z} F_{\pm} \left(J \xi^{d-1} \frac{\phi_0}{k_B T} \right) \quad (\text{V-25})$$

avec

$$J_0 = \frac{k_B T}{\phi_0 \xi^{d-1}}, \quad (\text{V-26})$$

ξ est une longueur de corrélation, d la dimensionnalité de l'échantillon égale à 3 dans la présente expérience, J la densité du courant, ϕ_0 le quantum de flux, k_B la constante de Boltzmann, T la température et T_g la température de la transition vers le verre de vortex. F_{\pm} est une fonction universelle qui a des expressions analytiques différentes pour $T > T_g$ et $T < T_g$. Elle prend les limites asymptotiques suivantes [16, 17]:

1) pour $T > T_g$ et $J \ll J_0$,

$$\rho_L = \frac{E}{J} = (T - T_g)^{\nu(z+2-d)} \quad (\text{V-27})$$

2) à la transition vers la phase liquide, $T \approx T_g$ et $J \ll J_0$,

$$E = J^{\frac{z+1}{d-1}} \quad (\text{V-28})$$

3) dans le régime de verre de vortex, $T < T_g$

$$E = J \exp \left(\frac{J_0}{J} \right)^{\mu} \quad (\text{V-29})$$

Ainsi, on voit que les courbes $E(J)$ sont représentées par une loi de puissance pour des températures très proche de T_g (éq. (V-28)) et par une loi exponentielle quand $T < T_g$ (éq. (V-29)). Ces lois sont générales et peuvent être utilisées pour analyser les données.

4.4.3. Résultats expérimentaux et discussions

La figure V.9 montre un exemple de caractéristiques $E(J)$ en log-log obtenues à un champ magnétique appliqué de 5 T parallèle à l'axe \vec{c} . On constate que :

La courbure de la caractéristique $E(J)$ est positive pour des températures supérieures au égale à 79 K.

A 78 K la courbe $E(J)$ est une droite parfaite sur tout l'intervalle de champ électrique. Cette température correspond à la température de la transition de verre de vortex pour cette valeur de champ magnétique.

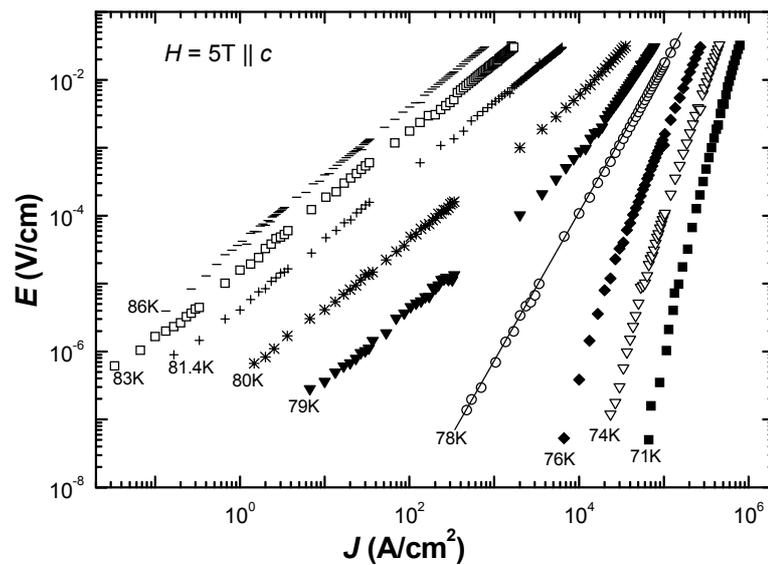


Figure V. 9 : Exemple de caractéristiques $E(J)$ tracées en échelle *log-log* pour différentes températures, à un champ magnétique appliqué de 5 T parallèle à l'axe \vec{c} .

Pour des températures inférieures à 76 K la courbure est négative.

Les figures V.10 et V.11 représentent trois séries de courbes $E(J)$ pour un champ magnétique ($H = 2.4$ T) parallèlement à l'axe \vec{c} et deux champs magnétiques ($H = 5$ T et 10 T) parallèlement au plan ab . Ces caractéristiques sont obtenues en descendant en température à partir de l'état normal. Pour chaque champ nous définissons une température T_g à laquelle a lieu la transition de verre de vortex. A une certaine température et une certaine densité de

courant, la résistivité est de type "flux flow" (ou Stephen-Bardeen). La dérivée $d\log(E)/d\log(J)$ change de signe à la température T_g . Selon Fisher et al. [10], celle-ci représenterait la température de la transition vers la phase de vortex liquides.

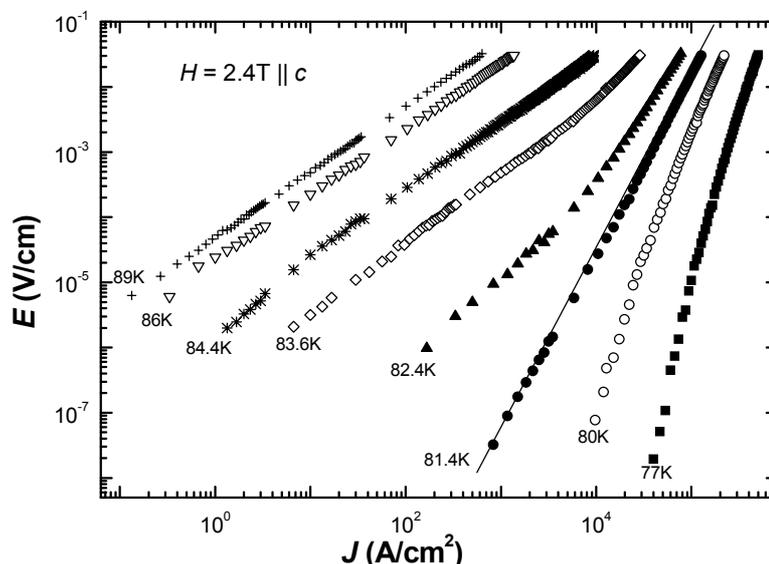


Figure V. 10 : Exemple de caractéristiques $E(J)$ en échelle $\log\text{-}\log$ pour huit valeurs de températures, à un champ magnétique appliqué de 2.4 T parallèle à l'axe \vec{c} .

Il est clair d'après ces figures qu'un comportement linéaire a lieu à $T_g \approx 81.4$ K pour un champ magnétique égale à 2.4 T parallèlement à l'axe \vec{c} . $T_g \approx 83$ K et $T_g \approx 72$ K respectivement, pour 5 T et 10 T parallèlement au plan ab . Cette linéarité se prolonge sur tout l'intervalle de E étudié. Pour des températures différentes de T_g , les isothermes changent de courbure. Elles deviennent positive pour $T > T_g$ et négative pour $T < T_g$, qui est la signature de la transition vers l'état de vortex liquide (éq. (V-28)).

Ce comportement est observé pour tous les champs sauf pour $H = 0$ T (Figure V. 12). Il est en effet difficile de définir une seule température T_g à $H = 0$ T à cause de l'anisotropie de ces matériaux et du champ propre H_{pr} (≈ 0.04 T quand on applique des courants de forte intensité) qui est supérieur au champ extérieur appliqué. Le problème provient du fait que la direction de H_{pr} n'est pas bien définie. C'est pourquoi nous n'arrivons pas à déterminer une seule courbe linéaire des caractéristiques $\log(E)\text{-}\log(J)$ et, ainsi, une seule température T_g .

La ligne de transition déduite de ces expériences est montrée sur la figure V. 13 (carrés solides). La courbe de $\log(1-T_g/T_c)$ en fonction de $\log(H)$ représente une ligne droite, qui nous permet de donner le rapport suivant :

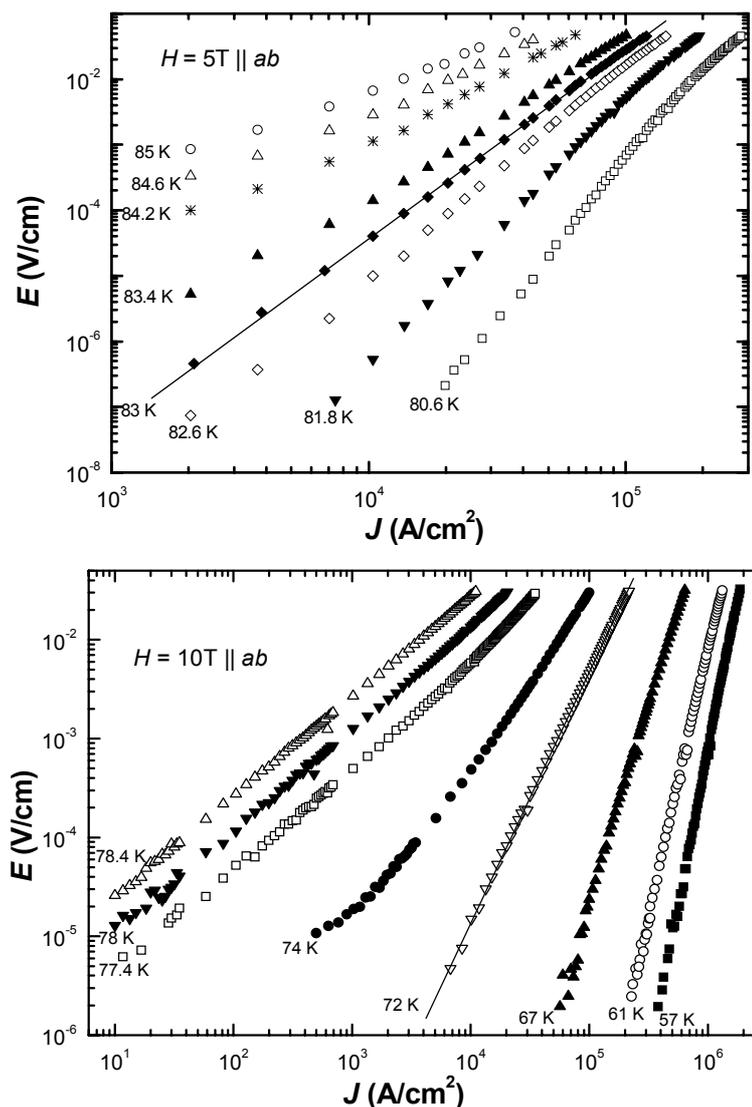


Figure V. 11 : Exemple de caractéristiques $E(J)$ tracées en échelle $\log\text{-}\log$ pour différentes valeurs de températures, à deux champs magnétiques appliqués de 5 T et 10 T parallèle au plan ab .

$$H \propto \left(1 - \frac{T_g}{T_c}\right)^{2\nu_0} \quad (\text{V-30})$$

Où $\nu_0 = 1.5 \pm 0.1$ est l'exposant critique cinétique [18] (la ligne solide dans la figure V. 13). Le comportement caractéristique dans la transition est compatible avec le modèle de verre de vortex. Cette dépendance de $T_g(H)$ est semblable à celle pour les films minces $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCuO}_8$ et les monocristaux $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [19].

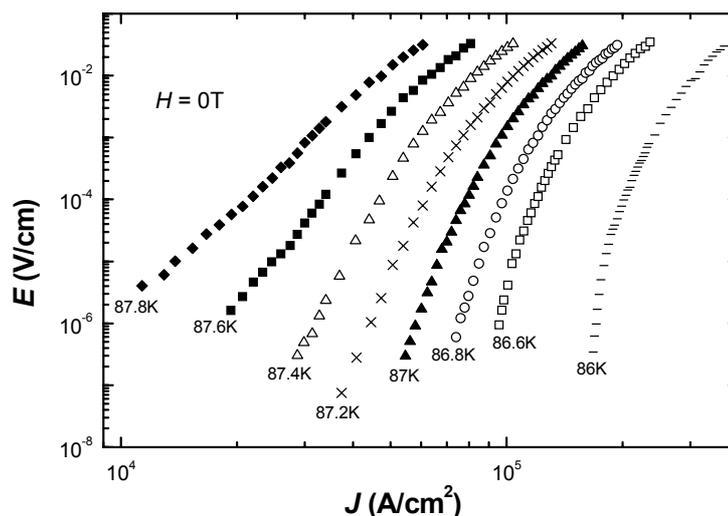


Figure V. 12 : Caractéristiques $E(J)$ en échelle log-log à champ nul et pour différentes valeurs de températures.

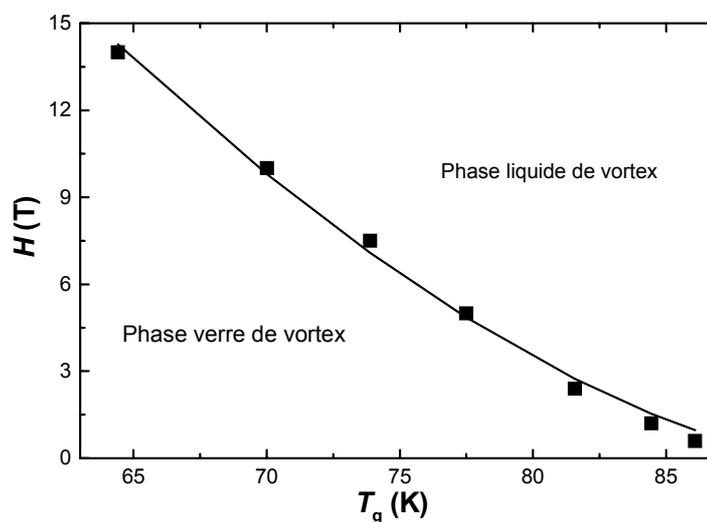


Figure V. 13 : la variation de H en fonction de T_g , les carrés solides représentent les valeurs expérimentales et la ligne solide représente la courbe théorique.

4.5. Densité de courant critique

4.5.1. Dépendance en champ de la densité de courant critique $J_c(H)$

Pour déterminer les densités de courant critique, nous avons adopté un critère correspondant à un champ électrique critique de $1 \mu\text{V}/\text{cm}$ (cf. le paragraphe 3.3). Les variations de cette densité $J_c(H)$ sont représentés sur la figure V. 14. Chaque courbe se compose de deux parties : une partie dite à champ faible ($H \leq H^*$) et une partie dite à champ

fort ($H \geq H^*$). La valeur de H^* est celle où les courbes $J_c(H)$ changent complètement de pente de décroissance. Elle est indiquée par une flèche sur les courbes. La décroissance est modérée pour $H \leq H^*$ et très rapide pour $H \geq H^*$. La relation entre J_c et H peut être écrite sous la forme suivante [20]:

$$J_c(H) \propto H^n$$

avec $n \approx -1/2$ pour $H < H^*$ et $n \leq -5$ pour $H > H^*$

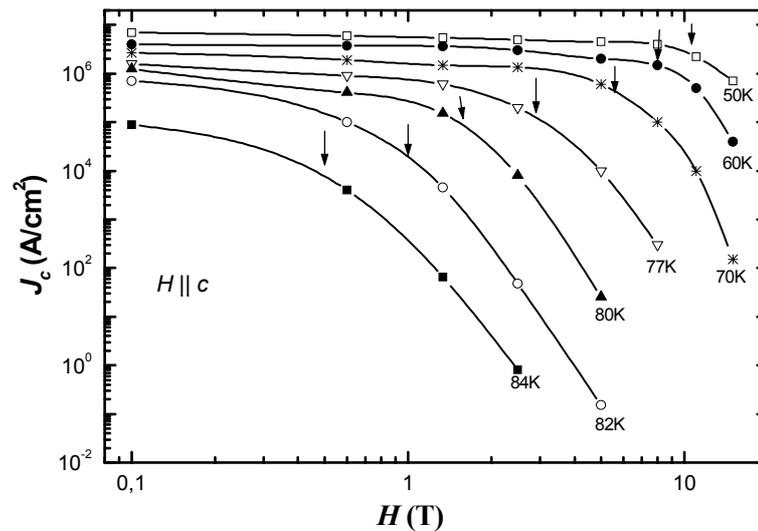


Figure V. 14 : Variation de la densité du courant en fonction du champ appliqué pour les températures de 50 à 84 K.

4.5.2. Dépendance en température de la densité de courant critique $J_c(T)$

La figure V. 15 montre les variations en température de la densité de courant critique pour différents champs magnétiques appliqués de 0 à 14 T. Cette densité est déduite de nos mesures des caractéristiques $E(J)$ en adoptant un critère de champ électrique de $1 \mu\text{V}/\text{cm}$. Notons que les valeurs de la densité de courant ne dépassent pas $6 \times 10^6 \text{ A}/\text{cm}$ à cause de la limitation de notre alimentation de courant qui délivre au maximum 100 mA.

La densité de courant critique est très souvent associée à la notion d'ancrage des vortex dans le volume. Aussi fort que soit cet ancrage, le courant critique ne peut excéder la valeur du courant de dépairage, qui constitue une limite thermodynamique. Dans ce qui suit nous allons passer en revue les mécanismes qui limitent la densité de courant critique dans les supraconducteurs à haute température critique [20].

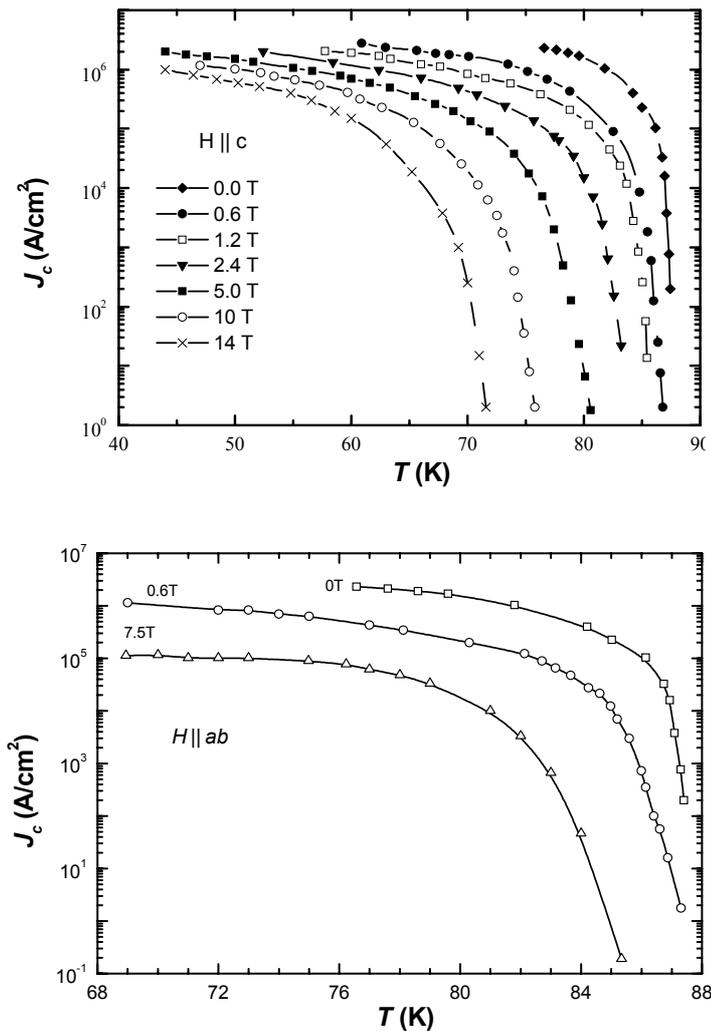


Figure V. 15 : les variations de la densité de courant critique en fonction de la température, pour des valeurs du champ magnétique de 0 à 14 T parallèles à l'axe \vec{c} et au plan ab .

4.5.3. Mécanismes limitant la densité du courant critique

La densité de courant critique dans les supraconducteur à haute température critique est contrôlée par trois mécanismes : Le dépairage, le désancrage et le découplage. Les deux derniers mécanismes sont usuellement activés dans la zone des éventuelles applications pratiques de ces matériaux. La limitation par dépairage agit seulement à l'extrême limite.

4.5.3.a. Mécanisme de dépairage

Dans le modèle de London, la densité de courant critique de dépairage J_c^{dp} peut être calculé comme la densité pour laquelle l'énergie cinétique des porteurs de charge est égale à l'énergie de condensation :

$$J_c^{dp} = \frac{H_c(T)}{\mu_0 \lambda(T)} \quad (\text{V-31})$$

où $H_c(T)$ est le champ thermodynamique critique et $\lambda(T)$ est la longueur de pénétration de London.

4.5.3.b. Mécanisme de désancrage

Au champ critique $H_{c1}(T)$, le champ magnétique pénètre dans les supraconducteurs de type-II comme des lignes de flux, qui portent un seul quantum de flux ϕ_0 chacune. Le champ magnétique peut être généré par une source extérieure ou par le courant de transport qui traverse l'échantillon ; on parle du champ propre. Le courant de transport exerce une force de Lorentz.

$$\vec{F}_L = \frac{1}{c} \vec{J} \wedge \vec{B} \quad (\text{V-32})$$

par unité de longueur pour chaque ligne de flux. Quand \vec{F}_L accélère la ligne de flux avec une vitesse \vec{V} , un champ électrique

$$\vec{E} = \vec{B} \wedge \vec{V} \quad (\text{V-33})$$

est induit dans le supraconducteur, qui devient résistive. Quand aucun champ extérieur n'est appliqué les lignes de flux sont créés par le champ propre à l'intérieur de l'échantillon et, lorsqu'elles ne sont pas ancrées la force de Lorentz les met en mouvement.

Pour atteindre des densités de courant critiques raisonnables, le mouvement des lignes de flux doit être bloqué. Ce blocage peut être fait par les défauts : Quand le centre de la ligne de flux (vortex) est localisé sur un défaut, son énergie de condensation est réduite de ΔE_{con} . Une force de piégeage résulte de cette différence d'énergie

$$F_p = \frac{\partial(\Delta E_{con})}{\partial x}. \quad (\text{V-34})$$

Ici, x est la position de la ligne de flux par rapport au défaut. La réduction de l'énergie de condensation peut être causée par la diminution de la température critique ou par la variation du paramètre de Ginzburg-London, κ , dans le défaut. T_c peut être réduite par la stoechiométrie du défaut, ou bien par le faible couplage électron-phonon, ou encore par un changement dans la densité ou élasticité du matériau [21]. La densité de courant est proportionnelle à la force de piégeage. Elle est donnée par l'égalité $F_L = F_p$, qui définit l'état critique et la densité du courant critique J_c .

Dans le cas d'un supraconducteur anisotrope, qui est le cas des composés au Bi, l'ancrage devient un problème plus compliqué [22]. En effet, le supraconducteur très anisotrope est formé d'un empilement de plans faiblement couplés. Ainsi la ligne de flux peut être remplacée par un empilement des disques [23] pouvant bouger presque indépendamment les uns des autres. La force de Lorentz et l'agitation thermique agissent sur ces disques de flux. Par conséquent, comme chaque disque est piégé individuellement, le supraconducteur aura une faible densité de courant critique J_c [24].

4.5.3.c. Mécanisme de découplage ou faible couplage

La densité de courant critique peut aussi être réduite dramatiquement par les couches non supraconductrices en bloquant le mouvement du super courant. Ces couches peuvent être isolantes, métalliques normales ou semiconductrice.

A l'opposé de la limitation la densité de courant limitée par dépiégeage, la limitation de la densité de courant par découplage est habituellement plus sensible aux champs magnétiques. Un champ magnétique de quelque milli-Tesla entraîne des conséquences néfastes sur la densité de courant.

4.6. Conclusion

Nous avons contribué à mettre au point la méthode pour réaliser des mesures de transport en courant pulsé, capable de mesurer les caractéristiques $E-J$ (champ électrique en fonction de la densité de courant) avec une très grande précision. Ce qui a conduit à une très grande précision sur la détermination de la densité de courant critique.

Nos données expérimentales montrent l'existence de la transition de verre de vortex dans les films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Ceci est en accord avec la théorie de verre de vortex de Fisher et al. [9] pour des champs magnétiques différents de zéro. Au voisinage d'un champ appliqué nul, l'isotherme de la transition de verre de vortex est plus difficile à déterminer à cause du champ propre et de l'anisotropie de ces matériaux.

Référence

- [1] P.W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.*, **9** (1962) 309.
- [2] C.F. Hempstead, Y.B. Kim, *Phys. Rev. Lett.* **12** (1964) 145.
- [3] M. Tinkham, *Phys. Rev. Lett.* **13** (1964) 804.
- [4] Y.B. Kim, C.F. Hempstead, A.R. Strnad, *Phys. Rev. Lett.* **139** (1965) A1163.
- [5] P. England, A. Inam, X.D. Wu, M.S. Hegde, B. Dutta, T. Venkatesan, *Phys. Rev. B* **41** (1990) 4834.
- [6] A. Houghton, R.A. Pelcovits, A. Sudb, *Phys. Rev. B* **40** (1989) 6763.
- [7] P.L. Gammel, L.F. Schneemeyer, J.V. Waszczak, D.J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* **61** (1988) 1666.
- [8] T.K. Worthington, Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, R. Yandrofski, F. Holzberg, T. Dinger, *J. Phys. Collq* **49** (1988) C8 2093.
- [9] M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 1415.
- [10] D.S. Fisher, M.P.A. Fisher, D.A. Huse, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 130.
- [11] R.H. Koch, V. Foglietti, W.J. Gallagher, G. Korner, A. Gupta, M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **63** (1989) 1511.
- [12] P.L. Gammel, L.F. Schneemeyer, D.J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991) 953.
- [13] D.G. Xenikos, J.T. Kim, T.R. Lenberger, *Phys. Rev. B* **48** (1993) 7742.
- [14] P.J.M. Wöltgens, C. Dekker, J. Swüte, H.W. Wijn, *Phys. Rev. B* **48** (1993) 16826.
- [15] D.R. Nelson and V.M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 2398.
- [16] A. Taoufik, A. Tirbiyine, El. Assif, **A. Ramzi**, S. Senoussi, *Inst. Phys. Conf. Ser.* N° **167** (1999) 887.
- [17] A. Tirbiyine, A. Taoufik, S. Senoussi, **A. Ramzi**, *Physica C* **341–348** (2000) 1333.
- [18] **A. Ramzi**, A. Taoufik, S. Senoussi, A. Labrag, *phys. stat. sol. (c)* **1**, N° 7 (2004) 1908.
- [19] N.-C. Yeh, W. Jiang, D.S. Reed, U. Kriplani, F. Holtzberg, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 6146.
- [20] **A. Ramzi**, A. Taoufik, S. Senoussi, A. Tirbiyine, A. Abaragh, *Physica A* **358** (2005) 119.
- [21] P. H Kes" Flux Pinning and critical current" in" concise encyclopedia of Magnetic and Superconducting Materials" ed. by J. E. Evetts (Pergmon, Oxford).
- [22] T.T. Palstra, B. Batlgg, L.F. Schneemeyer, J.V. Waszczak, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 3756.
- [23] J. R. Clem, *Phys. Rev. B* **43** (1991) 7837.
- [24] G. Deutscher, A. Kapitulnik, *Physica A* **168** (1990) 338.

Chapitre VI

Influence de la transition vitreuse sur la supraconductivité granulaire dans les matériaux organiques

1. Propriétés des κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br

Dans cette partie, nous avons réalisé l'étude systématique du rapport entre les propriétés de la supraconductivité ($T_c = 11.5$ K) et la transition structurale qui se produit au voisinage de 80 K dans le supraconducteur organique κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br. Il est connu que les conducteurs organiques de cette famille se comportent comme des semi-conducteurs à assez haute température. En revanche, ils subissent une transition vers un état métallique à des températures intermédiaire de 70-80 K [1-13]. D'autre part, à plus haute température, groupement éthylène des molécules BEDT-TTF oscillent rapidement et indépendamment entre deux formes géométriques équivalentes (cf. la figure VI. 1).

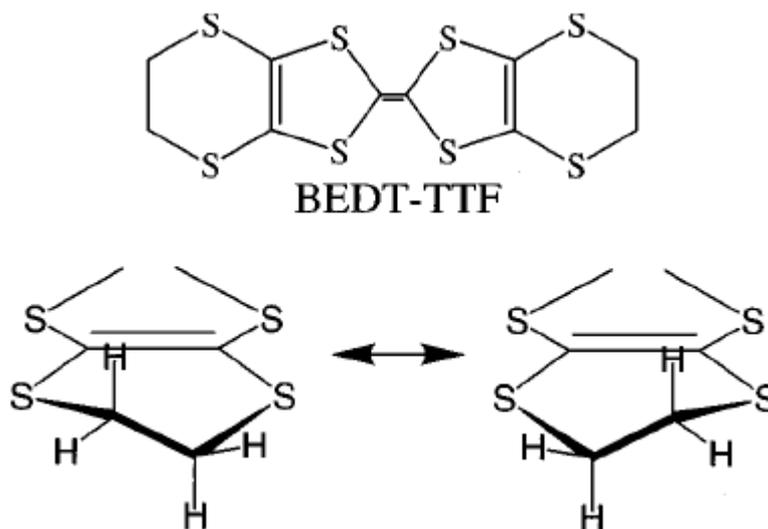


Figure VI. 1 : Molécule de BEDT-TTF et deux configurations possibles de l'éthylène.

Lors d'un refroidissement, la fluctuation thermique se manifeste par un maximum relatif traduisant une mise en ordre des groupements éthylène aux extrémités de la molécule de BEDT-TTF. Cette mise en ordre présente, de plus, une cinétique suffisamment lente pour être sensible à la vitesse de refroidissement. Cependant, ce qui est important de souligner est le fait que l'état à basse température ($T < 50$ K) n'est jamais complètement ordonné dans les conditions du laboratoire. En conséquence, le désordre persistant contrôle les propriétés magnétiques et les propriétés de transport. De plus, l'état de désordre dépend fortement selon que les groupes éthylène sont substitués par de l'hydrogène (dénote H8-Br) ou par du deutérium (dénote D8-Br). Pour clarifier cette situation, nous exploitons la sensibilité des propriétés supraconductrices à ces types de désordre. Pour exploiter ce désordre nous

devons identifier en premier sa nature exacte. Nous pouvons considérer, en effet, deux limites de désordre structural ayant de effets sur l'état supraconducteur :

1) La plus habituelle et la plus référencée dans la littérature des supraconducteurs est celle due au désordre des défauts précipités ou des défauts ponctuels dilués dans un cristal parfait. Ce genre de désordre a une faible influence sur la susceptibilité χ à bas champ magnétique ($H \ll H_{c1}$) mais améliore la densité de courant critique J_c (et l'aimantation irréversible associée M_i , $H \gg H_{c1}$) via l'ancrage des vortex. Nos résultats expérimentaux excluent ce type de défauts comme la source des effets physiques observés.

2) L'autre type de désordre est de type granulaire [14]. Contrairement au précédent, ce type de désordre structural change à la fois χ et M_i et engendre des effets Josephson suivant les rapports λ/r et ξ/d_0 , où λ et ξ sont la profondeur de pénétration de London et la longueur de la cohérence alors que r et d_0 sont le rayon moyen des grains et la limite d'épaisseur du grain, respectivement. En outre, si la dimension des grains supraconducteurs est beaucoup plus grande que ξ , ce désordre devrait avoir une faible influence sur T_c . Nous montrerons que nos résultats sont compatibles avec cette description granulaire. De plus, notre analyse prend en considération l'effet Josephson qui établit des jonctions entre les grains.

2. Modèle granulaire :

Puisque la granularité joue, comme nous allons le montrer, un rôle important dans nos résultats expérimentaux, nous rappelons brièvement quelques propriétés importantes du modèle granulaire. Ce modèle est caractérisé par au moins six longueurs physiques :

1. La longueur de cohérence ξ ,
2. La profondeur de pénétration de London λ ,
3. Le rayon moyen r des grains,
4. Le rayon macroscopique R de l'échantillon,
5. L'épaisseur moyenne d_0 des jonctions Josephson qui relient les grains,
6. La largeur Δd de la distribution spatiale de l'épaisseur de jonctions. Par simplicités dans un souci de clarté, la distribution peut être une distribution Gaussian

$$\psi(d) \propto \exp\left[-\frac{(d-d_0)^2}{\Delta d^2}\right]. \quad (\text{VI-1})$$

Pour l'interprétation des résultats expérimentaux, dans un premier temps nous rappelons comment ξ peut influencer ces résultats. Pour être un supraconducteur les grains

doivent avoir une taille beaucoup plus grande que ξ (dans notre cas $r \gg \xi = 5$ nm). Par conséquent, nous nous attendons à une forte baisse de T_c (c.-à-d. la suppression de la supraconductivité) quand le rayon du grain r devient comparable ou plus petit que ξ . En fait, nous estimons que dans les conditions expérimentales présentes, la dimension du grain minimale que nous pouvons détecter par notre SQUID est de l'ordre de $5 \times \xi$. En d'autres termes, tous les grains explorés par nos mesures devraient avoir la même T_c approximativement. Nous croyons que c'est un résultat très important qui est rarement considéré dans la littérature lors d'analyse des données magnétiques expérimentales. Nos résultats montrent également que la T_c n'est pas affectée par les traitements thermiques. Nous suggérons que les domaines de la supraconductivité sont beaucoup plus grand que ξ .

La susceptibilité diamagnétique (par unité de volume) d'un supraconducteur granulaire est donné par [15]

$$\chi = \frac{v_s}{4\pi} f\left(\frac{r}{\lambda}\right). \quad (\text{VI-2})$$

Ici v_s est la fraction volumique de l'état supraconducteur (par rapport à l'état normal), r est le rayon des grains (supposé uniforme) et $f(r/\lambda)$ est une fonction dont la forme géométrique dépend à la fois de la géométrie exacte des grains supraconducteurs et du facteur démagnétisant volumique [14]. Pour un grain sphérique cette fonction est donnée par

$$f(x) = -\frac{3}{8\pi} [1 - 3x * \coth(x) + 3x^2], \quad \text{avec } x = r/\lambda. \quad (\text{VI-3})$$

Après avoir remplacé λ par l'expression habituelle $\lambda_0 \times [1 - (T/T_c)]^{-1/2}$ dans cette formule [15], nous traçons dans la figure VI. 2, χ en fonction de T pour différents rapport r/λ_0 (nous avons estimé $T_c = 10.6$ K et $H < H_{c1}$). Nous trouvons pour un échantillon sphérique que χ tend vers la limite macroscopique pour $r/\lambda_0 = 100$ mais, pour $r \approx \lambda_0$, χ est pratiquement six fois plus petit.

3. Résultats expérimentaux

3.1. Céramiques frittées à haut T_c

Pour faciliter l'interprétation des données nous rappelons quelque comportement granulaire très typique dans les céramiques de SHTC [13, 16]. Ce qui est intéressant ici c'est que la distribution spatiale de l'épaisseur des jonctions est relativement étroite (c.-à-d., $\Delta d < d_0$). Cela donne un changement brusque dans la dépendance des paramètres Josephson

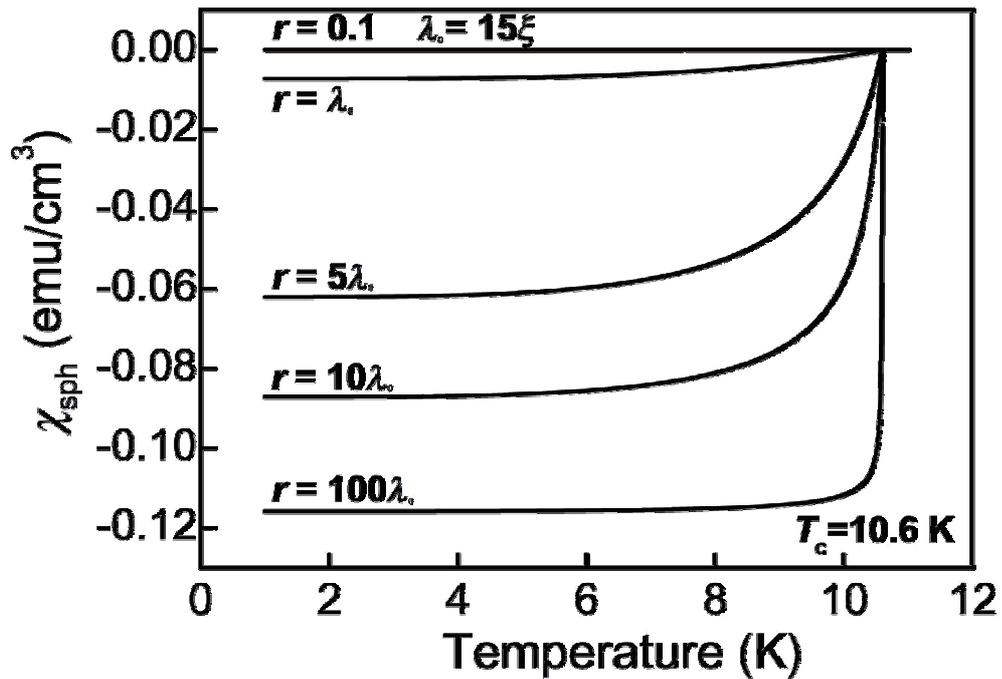


Figure VI. 2 : La susceptibilité magnétique calculée (par unité de volume) en fonction de la température pour 5 grains sphériques du rayon indiqué sur les courbes (voir l'équation dans le texte). Rappelons que pour D8-Br, $T_c \approx 10.6$ K, $\lambda_0 \approx 7$ μm et $\xi = 50$ nm. Notons que dans les supraconducteurs granulaires réels, la transition est élargie nécessairement par plusieurs effets, en particulier, les jonctions Josephson qui relient les grains et les champs démagnétisants.

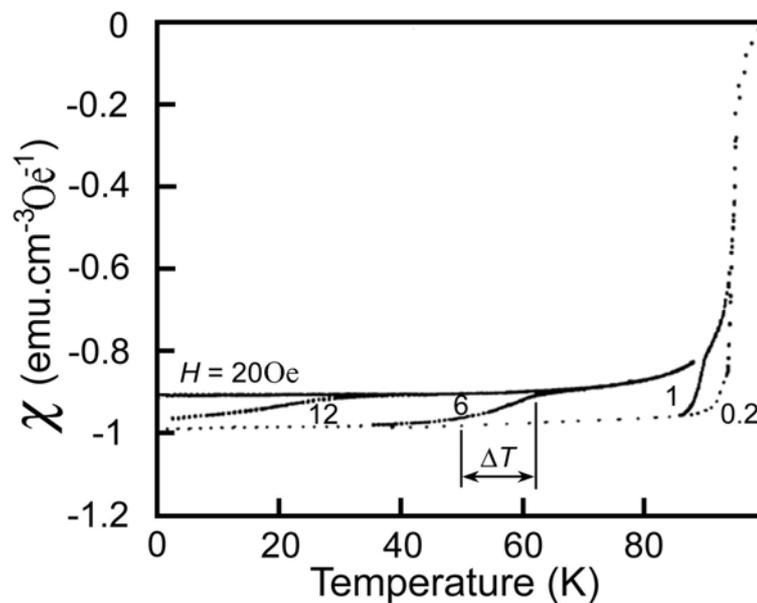


Figure VI. 3 : Susceptibilité magnétique χ (par unité de volume) en fonction de la température pour un $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ granulaire pour $r = 1-5$ μm à différents champs dc (0.2 à 20 Oe). Ici $\lambda_0 \approx 0.14$ μm . la partie inférieure représente la limite cohérente. La partie supérieure correspond à la limite complètement incohérente. Les pas indiquent la destruction graduelle des jonctions Josephson par la température.

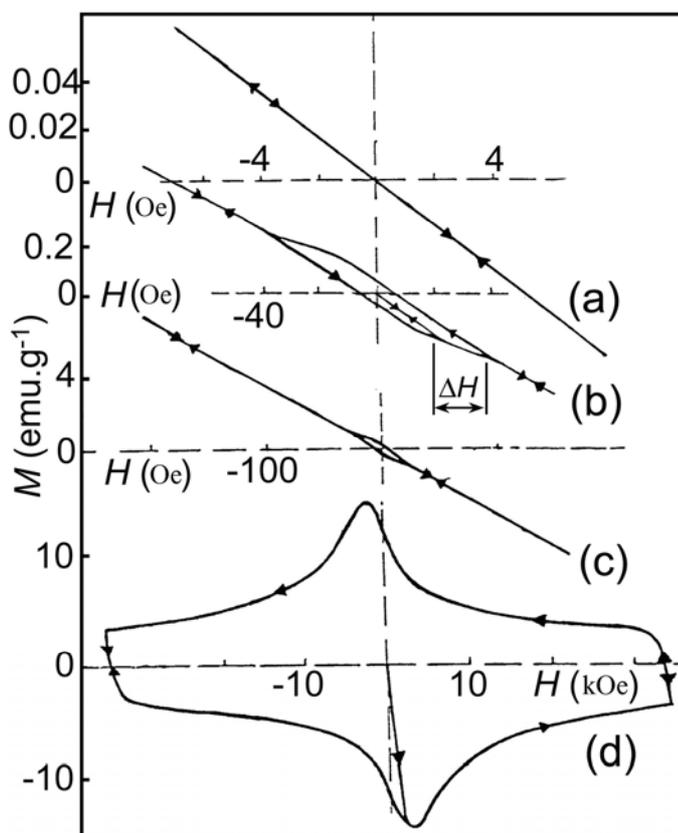


Figure VI. 4 : Cycle d'Hystérésis, $M(H)$, d'un $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ fritté à différentes valeurs de champ. **(a)** $H < 10$ Oe: $M(H)$ est linéaire et parfaitement réversible: $4\pi M/H = -1$ (état cohérent). **(b)** $H < 50$ Oe $< H_{c1}$: A bas champ, On observe le début d'un cycle minuscule attribué à l'ancrage des vortex de Josephson (ancrage inter-grains). **(c)** $H < 200$ Oe $\approx H_{c1}$: $M(H)$ devient de nouveau pratiquement linéaire et réversible et le cycle est réduit par approximativement de 10% (comportement complètement incohérent après la destruction complète des jonctions Josephson par le champ appliqué). **(d)** $H \gg H_{c1}$: Le début d'un régime d'irréversibilité forte associé à l'ancrage intra-grains.

(courant critique de Josephson, champs critiques de Josephson, énergie de liaison de Josephson,...) de la température et du champ magnétique. Pour YBCO, ce changement est illustré sur la figure VI. 3 pour la susceptibilité, $\chi(T)$, et sur la figure VI. 4 pour l'aimantation, $M_i(H)$, à plusieurs valeurs de champs.

Dans les deux figures, on observe que le changement de la susceptibilité et de l'aimantation se fait sur un intervalle ΔT et ΔH , figure VI. 3, figure VI. 4(b). ΔT et ΔH changent selon la valeur du champ appliqué. Ceci reflète la transition entre un état cohérent, où tous les grains sont couplés par effet Josephson, à un état incohérent, où les grains se comportent indépendamment. En fait, ΔT et ΔH indiquent la destruction rapide des jonctions

Josephson soit par la température (figure VI. 3) ou bien par le champ appliqué (figure VI. 4) : Dans les intervalles ΔT et ΔH la longueur de cohérence évolue de R à r .

Considérons encore la figure VI. 3. Nous pouvons voir deux limites : la partie inférieure ($H \rightarrow 0$, ligne pointillée) définit le domaine cohérent tandis que la partie supérieure ($H \geq 20$ Oe, ligne solide) correspond à l'état incohérent. Dans la figure VI. 4, l'état cohérent correspond à la courbe vierge initiale du petit cycle (figure VI. 4(a), (b)) tandis que le passage vers l'état incohérent a lieu à plus haute champ (autour de 40 Oe) quand M_i devient encore linéaire et réversible. Par conséquent, dans ces SHTC, $H_{c1,J}$ (le premier champ critique Josephson) est bien défini relativement. Il est typiquement de l'ordre de 5-10 Oe lorsque $T \rightarrow 0$.

La figure VI. 5 représente le cycle d'hystérésis à bas champ appliqué (c.-à-d., l'équivalent à la figure 4(b)) de quatre échantillons YBCO frittés [16]. Ces échantillons diffèrent par leur taille de grain moyenne: $r_g = 1, 3.5, 5$ et $10 \mu\text{m}$. Ce qui est remarquable ici est le fait que :

- i) L'aire du cycle croît avec $1/r_g$, Par conséquent elle croît en fonction du nombre de jonctions Josephson ;
- ii) La pente initiale est indépendante de r_g tandis que la dernière décroît en fonction $1/r_g$.

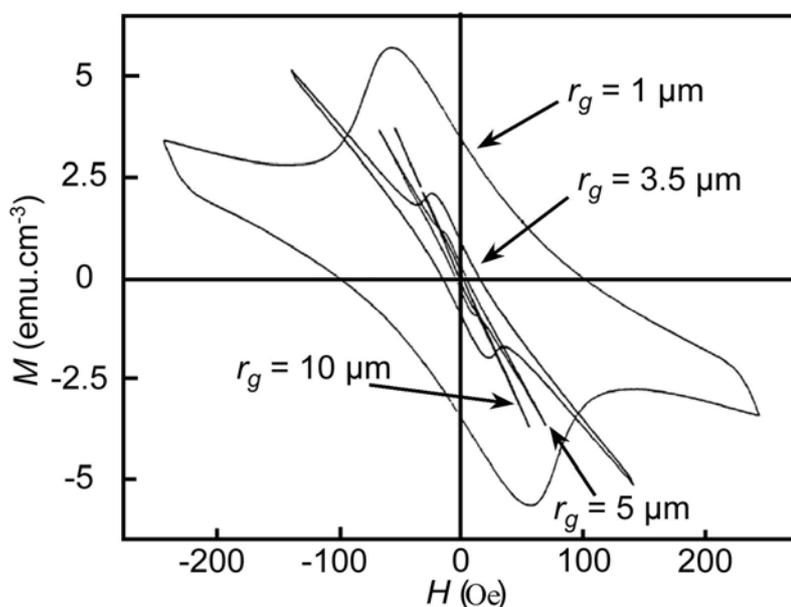


Figure VI. 5 : Influence de rayon des grains r_g sur le cycle d'hystérésis à bas champ pour l'échantillon d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ fritté [16]. Cette figure est équivalente à la figure VI. 4(b) mais ici la poudre initiale a été tamisée pour sélectionner les grains d'un rayon bien déterminé. Comme nous pouvons l'attendre, l'aire du cycle et la pente croient avec le nombre de jonctions Josephson. Le nombre de ces jonctions est proportionnel à $1/r_g$.

3.2. Supraconducteurs organiques

Nous allons étudier notre échantillon organique D8-Br. Nous avons étudiés la susceptibilité magnétique ac et l'aimantation dc de la phase supraconductrice après avoir exécuté une série de traitements thermiques sur un monocristal D8-Br de dimensions $\sim 1 \times 1 \times 0.25 \text{ mm}^3$. Pour ce faire, nous avons recuit l'échantillon à l'intérieur du cryostat du SQUID à différentes températures T_a fixes choisis entre 65 et 110 K. De plus, dans le but de contrôler soigneusement la mise en ordre des groupement éthylène en fonction de la température de recuit T_a donnée, nous avons fait varier le temps de recuit t_a accumulé entre environ 30 secondes à 100 K à environ $2 \times 10^6 \text{ sec}$ à 65 K. À chaque T_a le temps accumulé t_a a été divisé en une série d'intervalles (dite Δt_w) entre environ quelques secondes à 95 K et 12 heures à 65 K. À la fin de chaque intervalle Δt_w , l'échantillon a été refroidi rapidement (10 K/min) jusqu'à 2 K. La susceptibilité ac (le champ ac est 3 Oe) $\chi(T)$ et le cycle d'hystérésis magnétique $M_i(H)$ ($0 < H < 1000 \text{ Oe}$, typiquement) ont été mesurés, en utilisant le SQUID, (cf. section II.4) entre 2 et 15 K après le refroidissement. Ensuite, l'échantillon a été réchauffé rapidement (10 K/min) pour revenir à la même température de recuit T_a . La même procédure recuit-refroidissement-mesure a été répétée plusieurs fois. A noter que la vitesse de refroidissant la plus rapide a été limitée par la puissance de refroidissement du SQUID. Ceci conduit à une erreur systématique sur le temps de recuit. Nous avons négligé cette erreur pour des températures au-dessous 85 K.

La figure VI. 6 montre à la fois la partie réelle $4\pi\chi$ (les courbes inférieures) et la partie imaginaire normalisée χ''/χ (les courbes supérieures) de la susceptibilités ac en fonction de la température (2-15 K) pour des temps de recuit t_a entre 1 et 300 minutes pour $T_a = 75 \text{ K}$ et entre 1 et 7260 minutes pour 69 K. Le facteur démagnétisant pour cette géométrie (parallélépipède) est $N \approx 0.65$ [17, 18], ce qui donne $-4\pi\chi(1-N) \approx 0.84$ à $T_a = 69 \text{ K}$ pour le plus long temps de recuit. Cette valeur est encore au-dessous de la valeur maximale possible, donnée par $-4\pi\chi(1-N)=1$. Les 16% qui manquent sont attribués au fait que le rapport r/λ n'est pas infini. Contrairement à la figure VI. 3, nous observons un élargissement notable de la transition supraconductrice, surtout pour les temps de recuit courts. De plus, comme illustré par la susceptibilité imaginaire $\chi''(T)$ (courbes supérieures), cet élargissement est accompagné par des pertes magnétique considérables, en particulier pour les temps de recuit courts. Alors que pour les systèmes homogènes, nous nous attendons à des hystérésis négligeables pour des mesures à champs plus petit que le premier champ critique ($H_{c1}(2 \text{ K}) \approx 20 \text{ Oe}$) [12]. L'explication la plus plausible pour de tels effets d'hystérésis serait la présence de faibles liens entre les grains adjacents et l'ancrage de vortex Josephson associés.

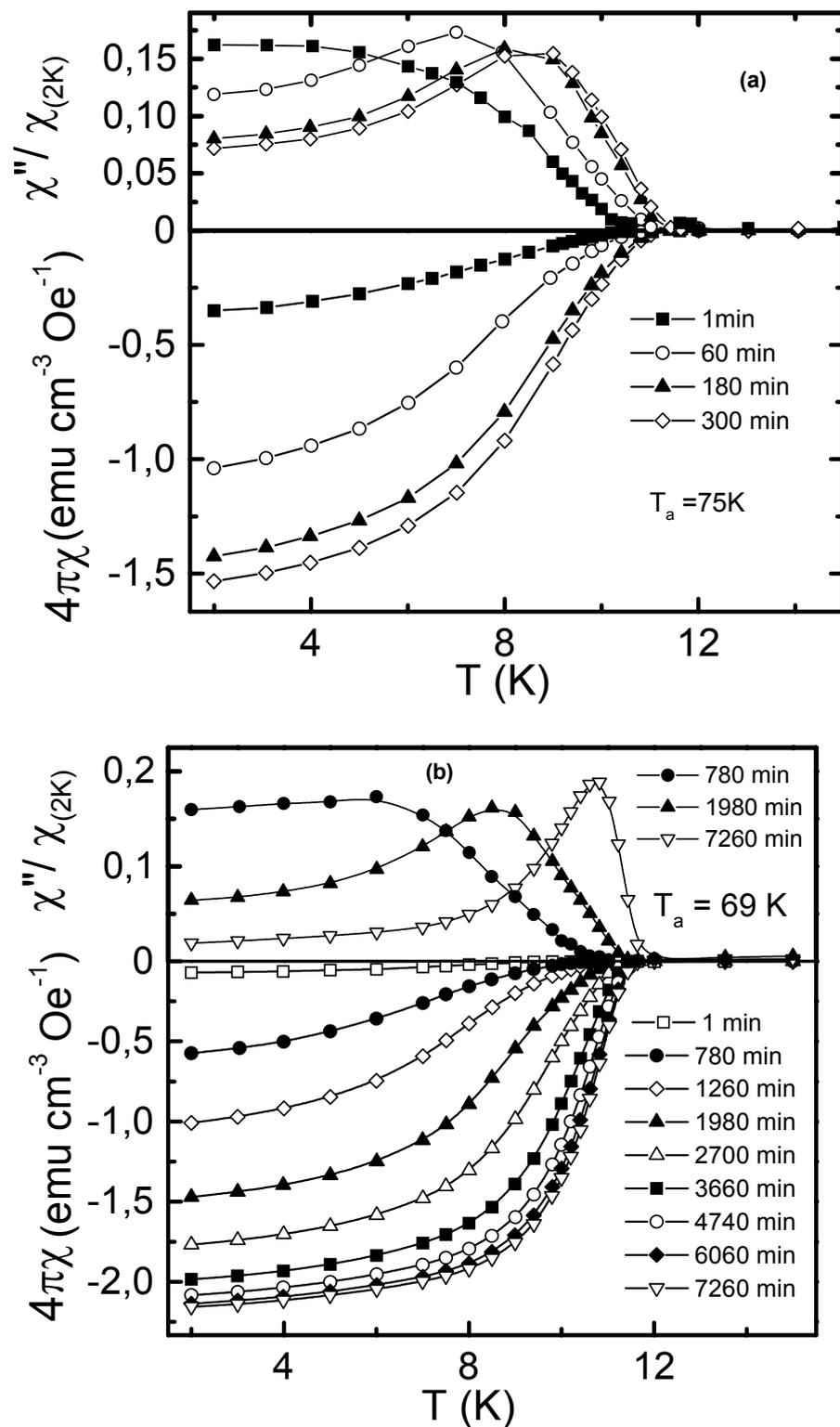


Figure VI. 6 : la partie réelle ($4\pi\chi$ en phase, partie inférieure) et la partie imaginaire (χ''/χ en quadrature, en valeurs relatives, partie supérieure) de la susceptibilités ac en fonction de la température ($h = 3$ Oe), tracées après avoir figé le recuit, **(a)** à $T_a = 75$ K et **(b)** à $T_a = 69$ K, comme décrit par la légende dans la figure. Les lignes pleines serrent de guides pour yeux.

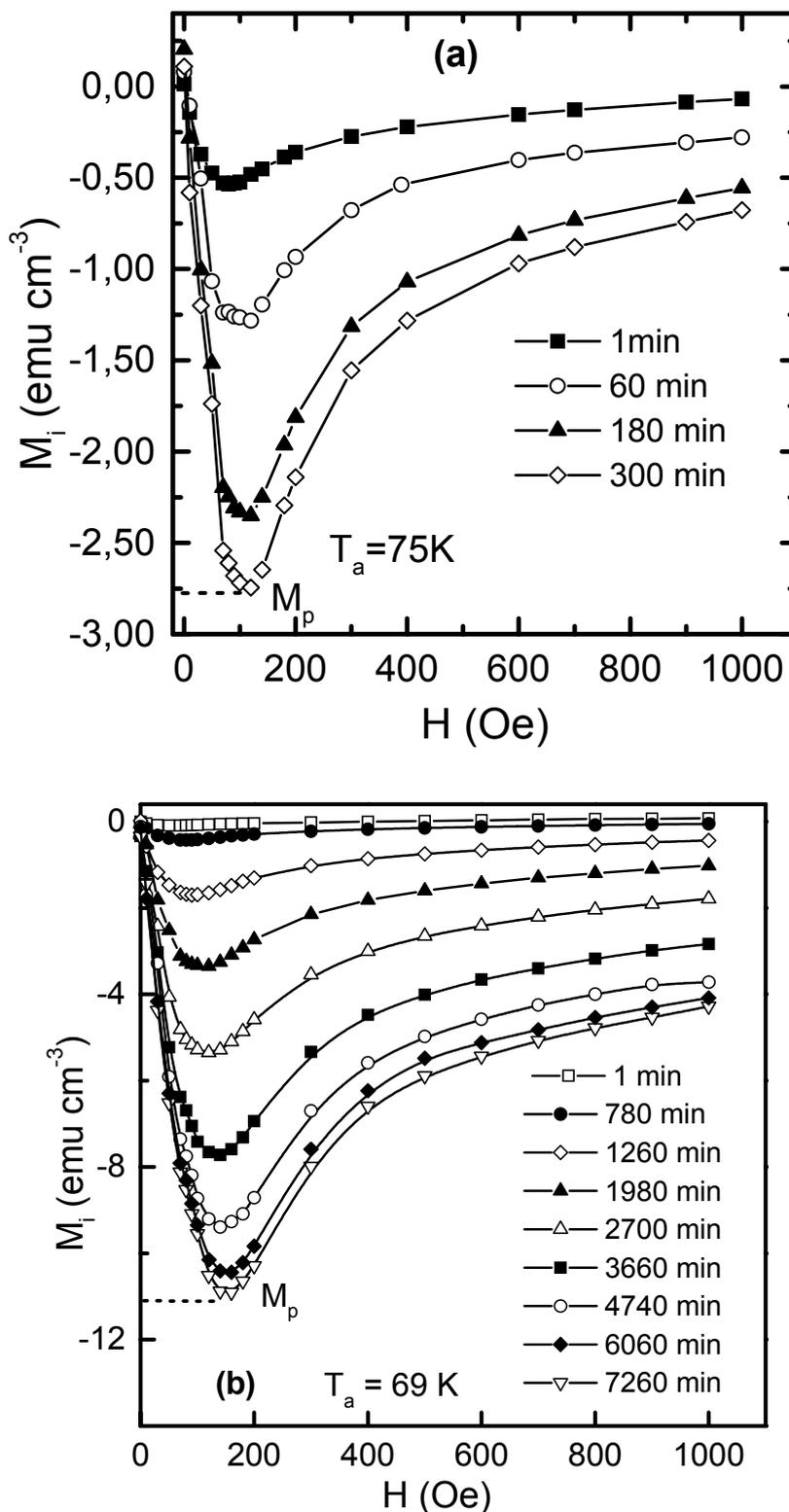


Figure VI. 7 : Aimantation M_i en fonction de H , mesuré à 2 K, après le même traitement thermique (et les mêmes symboles) que dans la figure VI. 6. La valeur au pic d'aimantation est notée M_p . Les lignes solides sont des guides aux yeux

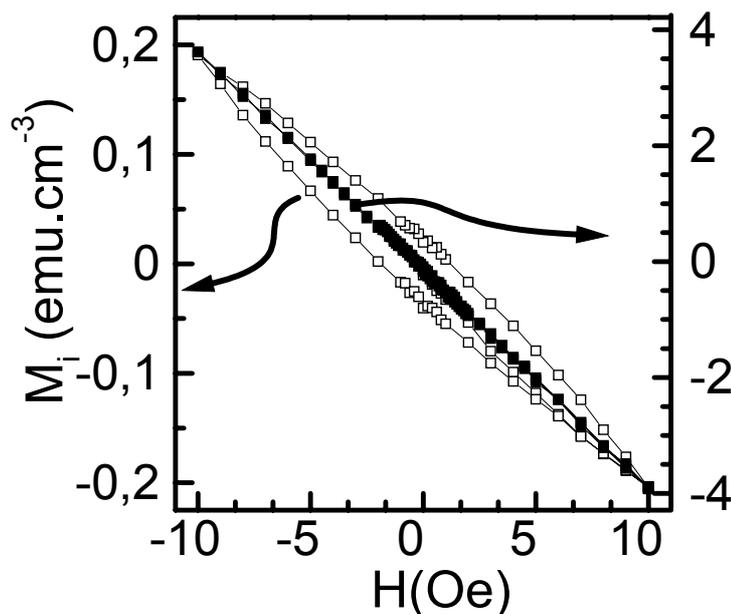


Figure VI. 7(C) : Cycle d'hystérésis complet au voisinage 0 Oe pour $t_a \approx 5$ sec (échelle de gauche) et $t_a = 7260$ min (échelle de droit) à $T_a = 69$ K. Noté que la différence entre les deux échelles verticales est d'ordre 18.

Comme discuté précédemment, l'élargissement observé ne peut pas être expliqué par des inhomogénéités dans la température critique T_c mais plutôt par la même origine physique que dans les matériaux SHTC (voir les changements des ΔT dans la figure VI. 3). Mais ici, r et d_o (aussi bien que les paramètres Josephson associés $J_{c,j}$ et $H_{c1,j}$) sont très distribués à travers l'échantillon. Au lieu du changement des ΔT observés dans la figure VI. 3, nous avons un élargissement continu de χ entre la température 0 et T_c . La figure VI. 6 montre aussi la croissance de la valeur absolue de χ lorsque t_a croît, ce qui signifie que le rayon moyen r des grains supraconducteurs croît aussi lorsque t_a augmente [17].

La figure VI. 7 représente la partie virginale du cycle d'hystérésis de M_i en fonction de H à 2 K pour deux températures $T_a = 75$ et 69 K et après avoir suivi les mêmes procédures de recuit que dans la figure VI. 6. M_p est l'aimantation au pic du cycle. Ici aussi, nous observons une augmentation graduelle de M_i lorsque t_a croît. De plus, de la dépendance de M_i avec H , nous déduisons que la force d'ancrage augmente aussi avec t_a .

La figure VI. 7(c) est un cycle d'hystérésis complet à bas champs magnétique appliqué pour deux recuit représentatifs: $t_a \approx 5$ et 7260 minutes à $T_a = 69$ K (la différence est d'environ 18 entre les échelles verticales correspondantes). Évidemment, le comportement à bas champ H de l'état le plus recuit (symboles pleins) est quasi réversible et linéaire (dans la limite expérimentale), alors que l'état trempé ($t_a \approx 5$, symboles ouverts) montre une forte irréversibilité à un champ magnétique appliqué aussi petit que 1 Oe. Pour les mêmes raisons

physiques que pour la susceptibilité, l'existence d'hystérésis reflète le rôle de l'accroissement des liens faibles dans le cas des temps de recuit courts. L'augmentation de M_i avec t_a peut aussi être expliquée par l'augmentation graduelle de r lorsque t_a croît. D'après le modèle de Bean, M_i est proportionnelle au rayon des grains. Finalement, tous nos résultats confirment que les grains supraconducteurs et les grains non supraconducteurs sont très enchevêtrés. Comme on l'a déjà mentionné, d'autres mesures analogues aux ns les figures VI. 6 et VI. 7 ont été réalisées à d'autres températures du recuit dans la gamme de $65 < T_a < 110$ K.

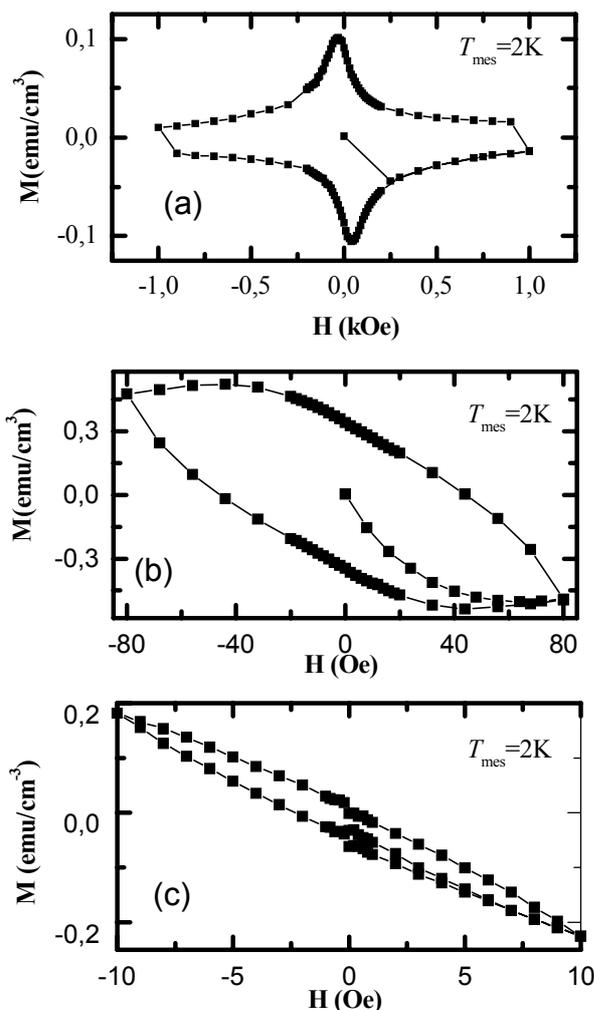


Figure VI. 8 : Cycle d'hystérésis de l'échantillon D8-Br à trois valeurs différentes du champ. Ici l'échantillon est refroidi à une vitesse d'environ 1 K/min. Ce qui est important est le fait que nous observons l'hystérésis à H aussi petit que 1 Oe (courbe (c)). C'est une forte indication de la présence des effets granulaire et Josephson.

Nous présentons maintenant dans la figure VI. 8 le cycle d'hystérésis à 2 K d'échantillon D8-Br à trois valeurs du champ (1 kOe, 80 Oe et 10 Oe) tracé après avoir refroidi directement de 120 K à 2 K avec une vitesse de refroidissement intermédiaire approximativement égale à 1 K/min. Contrairement au cas d'YBCO (cf. la figure VI. 4), ici on

trouve des cycles d'hystérésis, même à des champs magnétiques $H < 1$ Oe, dont l'aire augmentent progressivement jusqu'à notre plus haut champ de mesure. C'est une preuve supplémentaire que les jonctions Josephson sont très distribuées à travers l'échantillon.

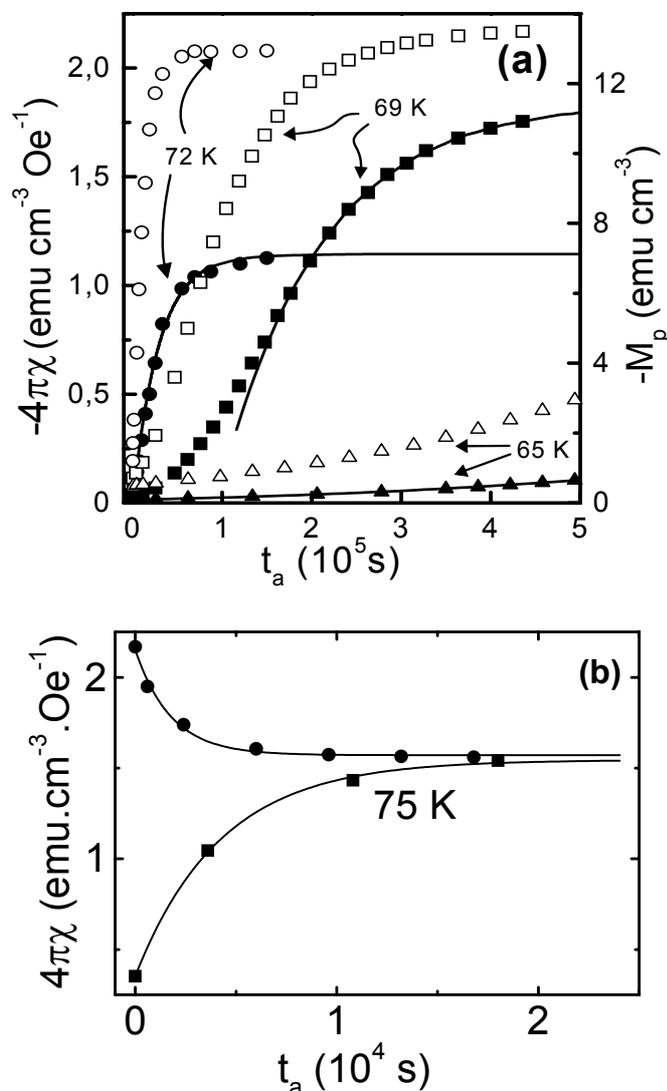


Figure VI. 9 : (a) Pic d'aimantation M_p (symboles plein, échelle de droite) et susceptibilité χ (symboles ouverts, échelle de gauche) à 2 K en fonction du temps de recuit à $T_a = 65$ (triangles), 69 (carrés) et 72 K (cercles). Notons que au-dessus de 69 K les deux quantités tendent vers une saturation mais plus rapidement pour χ . Les lignes représentent l'ajustement des courbes (cf. le texte). Les valeurs asymptotiques déduites par le fit sont appelées M_s et χ_s . (b) montre que l'état de relaxation ne dépend pas du fait que cet état soit atteint après un recuit à 69K suivi des recuits à 75 K ou par des recuits directement effectués à 75K.

La figure VI. 9 représente la susceptibilité ac, χ , (échelle de gauche, symboles ouverts) et le pic d'aimantation M_p (échelle de gauche, symboles pleins) en fonction du temps de

recuit aux températures 72, 69 et 65 K. A partir Des courbes de 69 et 72 K, nous déduirons les quatre propriétés suivantes :

- 1) La relaxation est plus rapide pour χ que pour M_p ;
- 2) χ et M_p tendent vers la saturation. Nous appellerons ces valeurs limites à la saturation χ_s et M_s , respectivement ;
- 3) χ_s est presque le même pour 72 et 69 K tandis que M_s change d'un facteur presque deux ;
- 4) Plus fondamentalement, ces valeurs à la saturation sont reproductibles et indépendantes de l'histoire thermique antérieure (cf. la figure VI. 9(b)). Cela suggère qu'ils correspondent à un état thermodynamique stable.

En analysant les courbes à 69 K, Nous avons trouvé que les deux quantités χ et M_p suivent deux régimes de relaxation en fonction de t_a . Premièrement, un régime décrit par une loi de puissance (c.-à-d., t^α) aux temps courts. Ce régime est dominant au-dessous de 66 K, mais devient pratiquement inaccessible au-dessus de $T_a = 72$ K (à cause de la vitesse de chauffage et de refroidissement). Il est, clairement, illustré par les courbes de 65 K, qui révèlent aussi un ralentissement considérable vers les basses vitesses de la relaxation au-dessous d'environ 69 K. Deuxièmement, un régime au temps long décrit par une loi d'exponentielle étirée $\propto (1 - \exp(-(t/\tau)^\beta))$ (représentée par les lignes solides sur les courbes M_p). Il correspond juste à la limite de la saturation discutée. Ce régime est dominant au-dessus de 72 K mais hors de portée expérimentalement au-dessous de 63-64 K (comme il nécessiterait un temps de recuit accumulé t_a de plusieurs années).

Un tel comportement est commun dans d'autres domaines de la physique. Il est connu sous le terme de "croissance et coalescence". Dans les verres de spin "Spin glasses" le régime de temps court est associé à une « structure granulaire fine » tandis que le régime de temps longs, appelé régime α , définit le régime exponentiel et le régime d'exponentiel étiré [19, 20]. En considérant le régime aux temps longs, nous trouvons un exposent $\beta \approx 1$ pour $T > 69$ K et $\beta \approx 0.5 \pm 0.1$ à 66 K.

La figure VI. 10 représente la variation de M_s et de χ_s calculés, en fonction de T_a , en extrapolant l'ajustement des courbes de la figure VI. 9. Nous voyons que les deux quantités varient tout à fait différemment en fonction de T_a : au-dessous de 70 K, χ_s tend vers un plateau lorsque T_a décroît alors que M_s croît de plus en plus rapidement. Cela reflète une croissance anormale de la taille des grains lorsque T_a croît. En effet, les échelles de longueur sont très différentes pour les deux quantités : la susceptibilité χ_s sature pour $r \gg \lambda \approx 0.7 \mu\text{m}$ alors que l'aimantation M_s continue à croître jusqu'à $r \approx R \approx 500 \mu\text{m}$ (modèle de Bean, voir en-dessous). De plus, on peut ajuster M_s avec une loi d'échelle de la forme

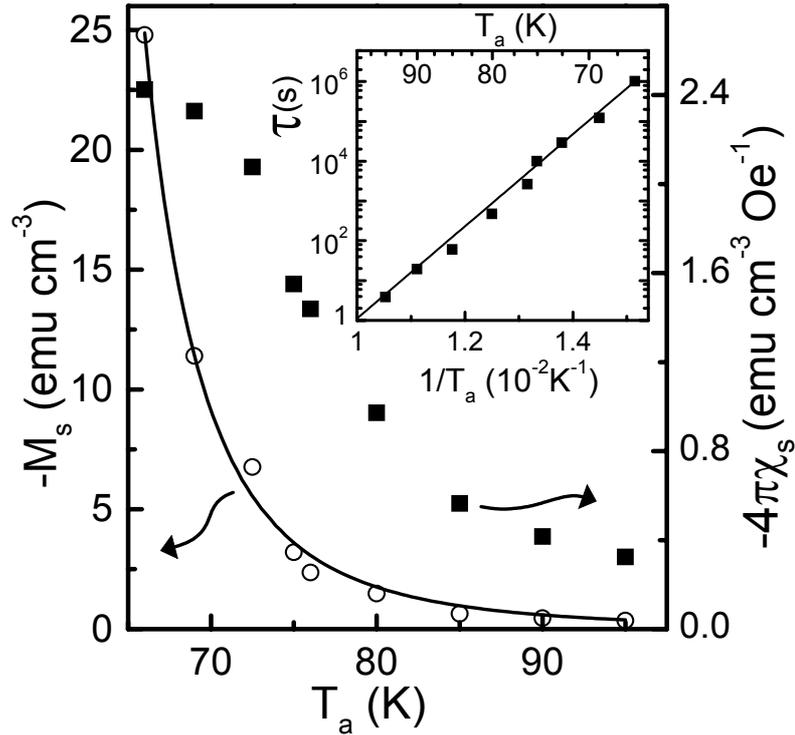


Figure VI. 10 : Valeurs de saturation M_s et χ_s en fonctions de la température de recuit T_a . Comme illustré par la ligne solide, M_s suit une loi d'échelle (équation (VI-4)). L'insert est un échelle semi-logarithmique de temps de la relaxation en fonction de $1/T_a$: Dédit de la fonction de fit, exponentiel étiré de la figure VI. 9, avec $\beta \approx 1$ pour $T_a > 69$ K et $\beta \approx 0.5 \pm 0.1$ pour 66 K. La ligne continue représente l'ajustement avec la fonction Arrhenius (VI-5).

$$M_s = M_0 \left(\frac{T}{T_g} - 1 \right)^{-n} \quad (\text{VI-4})$$

avec $T_g \approx 55$ K, $n \approx 3.2$ et $M_0 \approx 0.16$ emu.cm⁻³ (ligne continue dans la figure VI. 10). L'insert montre le temps de relaxation τ (associé avec M_i) en fonction de $1/T_a$ dans une échelle semi-logarithmique. La loi Arrhenius :

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{U}{T}\right), \quad (\text{VI-5})$$

ajuste remarquablement nos données, avec une énergie d'activation U d'environ 2660 K et une fréquence $1/\tau_0$ d'environ 2×10^{13} s⁻¹. Notre valeur de U est en excellent accord avec les données RMN [7, 8] entre 200 et 350 K.

4. Conclusion

Dans la plupart des publications sur le sujet, les interprétations des mesures de la susceptibilité sont basées sur la formule classique de Meissner $4\pi\chi = -v_s$ (où v_s est la fraction de volume supraconducteur). De la même façon, l'aimantation irréversible M_i et la densité de courant critique J_c sont supposés d'être reliées par le modèle de Bean $M_i = v_s \times R \times J_c / 30$ où R est le rayon macroscopique de l'échantillon. Ces formules négligent implicitement l'effet granulaire et tous les effets des liens faibles. Cependant, si on essaie d'interpréter nos données dans une telle représentation, on est amené à des valeurs non physiques de λ et de J_c (c.-à-d., λ pourrait être aussi grande que 1 cm et J_c aussi petite que 100 A/cm²). De plus, un tel modèle ne peut expliquer ni l'irréversibilité de champ faible ni l'élargissement de la transition.

Nos données sont cohérentes avec une interprétation granulaire où le rayon macroscopique R doit être substitué par quelque rayon des grains moyen r . De plus, la topographie des grains peut être décrite par un modèle de percolation [19] et/ou par un modèle de verre de spin d'Ising [20] d'après lequel la taille de grain croît comme

$$\langle r^2 \rangle \approx C \left(1 - \exp \left(- \left(\frac{t}{\tau} \right)^\beta \right) \right). \quad (\text{VI-6})$$

Ici τ et β dépendent de la dimension du matériau et de la température du traitement : Le modèle prédit que lorsque T diminue, β varierait entre une valeur ≤ 1 pour $T \geq T_p$ et $1/3$ à $T \ll T_p$ (exponentielle étirée) où $T_p > T_g$ est la température seuil de percolation. Nos données sont en accord avec $\beta \approx 1$ pour $T_a > 69$ K et $\beta \approx 0.5 \pm 0.1$ pour 66 K. En fait, nous observons un fort ralentissement vers les bas τ pour $T \leq 66$ K, qui suggère que T_p est près de cette température. De plus, comme prédit par le modèle de verre de spin [20] nous observons que ce ralentissement est accompagné par le début d'un des deux régimes de relaxation. En reprenant encore l'analogie avec les verres de spins, nos données suggèrent la présence de deux points critique T_p et T_g , correspondant à une percolation seuil et à une transition thermodynamique [21], respectivement.

Finalement, nos résultats présents établissent clairement que les propriétés supraconductrices sont déterminées par le désordre trempé crée en traversant la transition vitreuse et pas par un début possible d'effets magnétique au-dessous de cette transition. L'analogie avec les verres de spin est simple : comme dans le modèle de spins d'Ising, les groupements éthylène ont seulement deux états possible. Néanmoins, plusieurs développements théoriques sont exigés pour décrire mieux la transition vitreuse.

Référence

- [1] S. Senoussi, F. Pesty, "*Studies of high temperature superconductors*", **vol. 37**, edited by A. Narlikar (Nova Science, Huntington, USA, 2001) 205.
- [2] X. Su, F. Zuo, J.A. Schlueter, A.M. Kini et Jack M. Williams, *Phys. Rev. B* **58**, (1998) R2944.
- [3] M.A. Tanatar, T. Ishiguro, T. Kondo, G. Saito, *Phys. Rev. B* **59** (1999) 3841.
- [4] M.A. Tanatar, T. Ishiguro, H. Ito, M. Kubota, G. Saito, *Phys. Rev.* **55** (1997) 12529.
- [5] T.F. Stalcup, J.S. Brooks, R.C. Haddon, *Phys. Rev. B* **60** (1999) 9309.
- [6] Y. Watanabe, H. Sato, T. Sasaki, N. Toyota, *J. Phys. Soc. Jpn* **60** (1991) 3608.
- [7] P. Wzietek, H. Mayaffre, D. Jérôme, S. Brazovskii, *J. Phys. I (France)* **6** (1996) 2011.
- [8] A. Kawamoto K. Miyagawa, Y. Nakazawa, K. Kanoda, *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3455.
- [9] A. Kawamoto, K. Miyagawa, K. Kanoda, *Phys. Rev. B* **55** (1997) 14140.
- [10] M. Pinteric S. Tomic', M. Prester, Đ. Drobac, K. Maki, *Phys. Rev. B* **66** (2002) 174521.
- [11] H. Mayaffre, P. Wzietek, D. Jérôme, C. Lenoir, P. Batail, *Europhys. Lett.* **28** (1994) 205; S.M. De Soto, C.P. Slichter, C., Kini .H. Wang, U. Geiser, J.M. Williams, *Phys. Rev. B* **52** (1995) 10364.
- [12] T.M. Lang, N. Toyota, T. Sasaki, H. Sato, *Phys. Rev. B* **46** (1992) 5822.
- [13] P. Limelette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T.A. Costi, C. Pasquier, D. Jerome, C. Mézière, P. Batail, *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 016401.
- [14] S. Senoussi, *J. Phys. III France* **2**, (1992) 1041; S. Senoussi, M. Ousséna, S. Hadjoudj, *J. Appl. Phys.* **63** (1988) 4176.
- [15] F. London, in *Superfluids, Macroscopic Theory of Superconductivity Vol. I*, Edited by Dover Publications, INC New York (1950).
- [16] R. Maury, A. R. Fert, J. P. Redoulès, J. Ayache, J. Sabras, C. Monty, *Physica C* **167** (1990) 591.
- [17] S. Senoussi, F. Pesty, **A. Ramzi**, A. Tirbiyine, A. Haouam, A. Taoufik, C.R. Pasquier, *soumis au Phys. Stat. Sol. (a)*.
- [18] A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **87** (2000) 6564.
- [19] M.V. Feigel'man, A. S. Ioselevich, M. A. Skvortsov, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004) 136402.
- [20] R.M.C. De Almeida et al., *Eur. Phys. J. B* **18** (2000); 513. A. Fierro, A. De Candia, A. Coniglio, *Phys. Rev. E* **56** (1997) 4990.
- [21] E.A. Edwards, P.W. Anderson, *J. phys. F* **5** (1975) 965.
- [22] J.R. Clem, *Physica C* **153** (1988) 50.
- [23] J.R. Clem, B. Bumble, S.I. Raider, W.J. Gallagher, C. Shih, *Phys. Rev. B* **35** (1987) 6637.

Conclusion générale

Nous avons mesuré l'aimantation du monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ qui a été élaboré à Rennes au Laboratoire de Chimie Minérale B et du monocristal $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ qui a été élaboré à l'Institut de Synthèse Inorganique au Japon, à l'aide de la technique de magnétométrie à échantillon vibrant « VSM ». Les caractéristiques $E(J)$ des films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, qui ont été élaborés au Laboratoire de Siemens en Allemagne, ont été mesurées en utilisant la technique du courant pulsé. Enfin, nous avons mesuré aussi l'aimantation et la susceptibilité alternative du composé organique $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$, qui a été élaboré par C. Lenoir dans l'équipe de P. Batail à l'Institut des Matériaux Jean Roussel, à Nantes, en utilisant un magnétomètre à SQUID.

En effet, Nous avons utilisé les résultats de mesures de l'aimantation ou des caractéristiques $E-J$ pour déduire la densité de courant critique en fonction de la température et du champ, celui-ci étant parallèle aux axes cristallographiques. Nous avons constaté que les grandeurs macroscopiques des échantillons étudiés manifestent une variation différente en fonction de la température et du champ magnétique appliqué, selon que celui-ci est parallèle ou perpendiculaire aux plans supraconducteurs.

Ainsi, pour $H//\vec{c}$, les vortex sont soumis à l'ancrage extrinsèque assuré par les défauts parallèles à l'axe \vec{c} et on constate que la densité de courant critique résultant de ce piégeage décroît de façon monotone en fonction aussi bien de la température que du champ magnétique.

En champ parallèle aux plans ab , la densité de courant critique déduite des cycles d'aimantation $M(H)$ et des caractéristiques $E-J$ présentent un comportement différent de celui correspondant au champ parallèle à l'axe \vec{c} : elle est très peu sensible au champ magnétique appliqué. C'est une caractéristique de l'ancrage intrinsèque dû à la structure lamellaire de ces matériaux. L'étude de J_c en fonction de la température pour le monocristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, montre un comportement inhabituel à fort champ ($H \approx 5 \text{ T}$) : J_c présente un maximum plus au moins large aux alentours de 40 K. Les modèles théoriques d'ancrage des vortex considérant des profils de potentiel de piégeage de formes diverses, prédisent une décroissance continue de J_c lorsque la température augmente et ne peuvent donc pas expliquer ce résultat. Il semble que l'augmentation de J_c lorsque la température augmente soit due à une transformation des vortex de Josephson en vortex d'Abrikosov ayant lieu vers une température $T^* \approx 30 \text{ K}$.

La méthode du courant pulsé qui permet de mesurer les caractéristiques $E(J)$ avec précision dans une large gamme de température, conduit à une très grande précision sur la

détermination de la densité de courant. Nous nous sommes basés sur le modèle classique du flux creep pour analyser nos résultats expérimentaux. Nous avons montré que ce modèle prévoit une transition de phase dans le réseau de vortex.

Par l'analyse de nos résultats dans le cadre de la théorie du verre de vortex (vortex glass), nous avons montré l'existence de la transition de verre de vortex dans les films minces étudiés, pour des champs magnétiques entre 0 et 14 T. Nos résultats sont en accord avec les travaux de Fisher et al. Pour des champs magnétiques non nul, l'isotherme de la transition de verre de vortex est plus difficile à déterminer à cause du champ propre et de l'anisotropie de ces matériaux.

En étudiant les propriétés magnétiques de l'état supraconducteur des κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br au voisinage et en dessous de T_c (~12 K), en fonction de la température de recuit autour de 80 K (T_a) et du temps de recuit accumulé (t_a). Les résultats principaux sont les suivants. 1) Les données peuvent être décrites à l'aide d'un modèle de percolation de grains. 2) Les grains croissent avec t_a vers un état thermodynamique stable. 3) Cette croissance suit une loi d'exponentielle étirée, où le temps de relaxation suit une loi d'Arrhenius. Pour chaque température T_a , la taille finale des grains - pratiquement atteinte pour des t_a d'environ 5τ - est indépendante de l'histoire thermique antérieure de l'échantillon. 4) L'aimantation asymptotique suit une loi d'échelle où $T_g \sim 55$ K est la température de la transition vitreuse. Finalement, les présents résultats prouvent clairement que les propriétés de la supraconduction sont déterminées par le désordre trempé créé en traversant la transition de verre et non pas par un début possible d'effets magnétique au-dessous de cette transition. L'analogie avec les verres de spin est simple : comme pour les spins d'Ising, les molécules de l'éthylène ont seulement deux états possible.

Nos études devraient nous permettre d'obtenir de nouvelles informations sur : la nature de la transition ordre désordre au voisinage de 80 K (cas de κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br (soit D8-Br ou H8-Br), sur l'état à basse température ($T < 15$ K), à basse pression (P = pression atmosphérique) de κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl et peut être sur la raison pour laquelle certains de ces composés organiques deviennent supraconducteurs et d'autres non. Ceci pourrait être un sujet d'étude intéressant pour la suite.

Annexe :
Principaux systèmes
d'unité en magnétisme

Le système d'unités international rationalisé (MKS) est rarement utilisé en pratique dans le domaine du magnétisme. On préfère en général utiliser le système d'unités électromagnétiques (UEM), le système d'unités électrostatiques (dit 'Gaussien') ou plus communément encore le système d'unités pratique (CGS).

Comme chacun abordant le magnétisme, nous avons rencontré des problèmes d'unités triviaux mais handicapants. C'est pourquoi nous donnons ici une description des principaux systèmes, ainsi que des 'recettes' pratiques permettant à chacun d'évoluer sans problème d'un système à l'autre.

Trois systèmes d'unités principaux

Le système international (MKS) est connu de tous. Dans ce système, les unités mécaniques sont le mètre, le kilogramme et la seconde. De plus, l'équation de base de l'électrostatique (Loi de Coulomb) s'écrit à l'aide de la constante ε_0 :

$$F = \frac{q_1 q_2}{4\pi\varepsilon_0} \frac{r_{12}}{r_{12}^3} \quad (\text{A-1})$$

et celle de l'électrodynamique (Loi d'Ampère) à l'aide de μ_0 :

$$F = \frac{\mu_0}{4\pi} \iint \frac{j_1 \times (j_2 \times r_{12})}{r_{12}^3} dv_1 dv_2 \quad (\text{A-2})$$

Les autres systèmes sont obtenus par des choix différents des constantes figurant dans (A-1) et (A-2).

~ Système d'unités électrostatiques (CGS UES) adopte pour unités mécaniques le centimètre, le gramme et la seconde. On convient de plus d'écrire dans ce système la relation (A-1) avec $1/4\pi\varepsilon_0 = 1$. La valeur de μ_0 est ensuite imposée par la relation $\varepsilon_0 \mu_0 c^2 = 1$.

~ Système D'unités électromagnétiques (CGS UEM) adopte les mêmes unités mécaniques, mais convient d'écrire (A-2) avec $\mu_0/4\pi = 1$.

~ Système Gaussien pose $(1/4\pi\varepsilon_0)(\mu_0/4\pi) = 1$ d'où $1/4\pi\varepsilon_0 = c$ et $\mu_0/4\pi = 1/c$.

Unités CGS UEM pratiques

Le système CGS UES est aussi utilisé sous une forme un peu modifiée. En effet, dans ce système, l'unité de courant est l'Abampère. Cette unité diffère de l'Ampère (C/s) du système international qui fut choisi comme valant 1/10 de l'Abampère qui le précédait. Afin de pouvoir utiliser aussi l'unité internationale de courant dans le système CGS UEM, on a défini les unités CGS UEM *pratiques* différant simplement des précédentes par l'adoption de l'Ampère comme unité de courant. Ceci a néanmoins pour conséquence l'apparition d'un facteur 1/10 dans les équations de Maxwell en CGS UEM *pratiques* faisant intervenir une charge électrique (ou un courant, une résistance...).

Principales unités dans les différents systèmes et conversion des formules

Le tableau qui suit donne les unités des grandeurs les plus couramment utilisées en CGS UEM. Il indique aussi la correspondance avec les unités du système international. On obtiendra une formule en unités CGS UEM en multipliant, dans la formule en unités SI, chaque grandeur par le facteur donné dans la quatrième colonne. Ainsi :

$$B = \mu_0(H + M) \quad (\text{SI})$$

$$10^{-4} B = 4\pi 10^{-7} (10^3 / 4\pi H + 10^3 M) \quad (\text{CGS UEM})$$

$$B = H + 4\pi M \quad (\text{CGS UEM})$$

Le tableau (A-1) donne les principales formules de l'électromagnétisme dans les unités SI, Gaussienne, CGS UEM. On remarquera que, concrètement :

-Les formules en unités CGS UEM s'obtiennent à partir de celles en unités de Gauss en faisant $c = 1$

-Les formules en unités CGS UEM *pratiques* s'obtiennent en remplaçant les courants J par $J/10$ et les aimantations M par $M/10$ dans les équations en CGS UEM.

Grandeur	Symbole	Unité CGS UEM	Equivalent unité SI
Longueur	L	cm	10^{-2} m
Masse	M	g	10^{-3} kg
Charge	Q	-	10 coulomb
Courant	I	ampère	10 ampère
Résistance	R	-	10^{-9} ohm
Energie	W	erg	10^{-7} joule
Flux magnétique	Φ	maxwell	10^{-8} weber
Quantum de flux	Φ_0	$2 \cdot 10^{-7} \text{G.cm}^2$	$2 \cdot 10^{-15}$ weber
Force	F	dyne	10^{-5} newton
Champ magnétique	H	oersted*	$10^3/4\pi$ amp/m
Induction	B	gauss	10^{-4} weber/m ²
Aimantation	M	maxwell/cm ²	10^3 weber/m ²
Moment magnétique	m	maxwell.cm**	10^{-3} weber.m
Constante de Plank	h	Erg.s	J.s
Charge de l'électron	e		coulomb
Masse de l'électron	m		10^{-30} Kg

Tableau A-1 : Correspondance des grandeurs électromagnétiques entre les systèmes SI et CGS UEM

* Improprement confondu parfois avec le gauss

** plus souvent donnée en 'emu'

Résumé

Les mesures des cycles d'hystérésis des échantillons monocristaux d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ et de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, qui ont été effectués par le magnétomètre à échantillon vibrant à cause de leurs grandes tailles. Le champ magnétique a été appliqué parallèlement aux axes cristallographiques. A très basse température $T < 4.2$ K pour $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ et $T < 10$ K pour $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, les cycles présentent des formes très caractéristiques, des sauts très importants. Dans ce cas le champ n'a pas pénétré jusqu'au centre de l'échantillon. A plus haute température le phénomène disparaît. Un autre effet apparaît sur les deux monocristaux, cet effet est appelé l'effet papillon.

Nous avons exposé le modèle de Bean qui permet de relier l'aimantation magnétique mesurée et la densité de courant critique. Nous avons ensuite adapté ce modèle, une prise en compte d'une loi $J_c(H)$, de façon à ce qu'il tienne compte de la géométrie et de l'anisotropie des échantillons. Ainsi, pour $H // \vec{c}$, les vortex sont soumis à l'ancrage extrinsèque assuré par les défauts parallèles à l'axe \vec{c} et on constate que la densité de courant critique résultante de ce piégeage décroît de façon monotone en fonction aussi bien de la température que du champ magnétique. En champ parallèle aux plans ab , la densité de courant critique déduite des cycles d'aimantation $M(H)$ présentent un comportement différent de celui correspondant au champ parallèle à l'axe \vec{c} : elle est très peu sensible au champ magnétique appliqué. C'est une caractéristique de l'ancrage intrinsèque dû à la structure lamellaire de ces matériaux.

La méthode du courant pulsé qui permet de mesurer les caractéristiques $E(J)$ avec précision dans une large gamme des températures, conduit à une très grande précision sur la détermination de la densité de courant. Nous nous sommes basés sur le modèle classique du flux creep pour analyser nos résultats expérimentaux. Nous avons montré que ce modèle prévoit une transition de phase dans le réseau de vortex.

Nos données expérimentales montrent l'existence de la transition de verre vortex dans les films minces d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Ceci est en accord avec la théorie de verre de vortex de Fisher et al. pour des champs magnétiques différents de zéro. Au voisinage d'un champ appliqué nul, l'isotherme de la transition de verre de vortex est plus difficile à déterminer à cause du champ propre et de l'anisotropie de ces matériaux.

En étudiant les propriétés magnétiques de l'état supraconducteur des κ -(BEDT-TTF) $_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ au voisinage et en dessous de T_c (~ 11 K), en fonction de la température de recuit autour de 80 K (T_a) et du temps de recuit (t_a). Les résultats principaux sont les suivants. 1) Les données peuvent être décrites à l'aide d'un modèle de percolation de grains. 2) Les grains croissent avec t_a vers un état thermodynamique stable. 3) Cette croissance suit une loi d'exponentielle étirée, où le temps de relaxation suit une loi d'Arrhenius. Pour chaque température T_a , la taille finale des grains - pratiquement atteinte pour des t_a d'environ 5τ - est indépendante de l'histoire thermique antérieure de l'échantillon. 4) L'aimantation asymptotique suit une loi d'échelle où $T_g \sim 55$ K est la température de la transition vitreuse. Finalement, Les présents résultats prouvent clairement que les propriétés de la supraconduction sont déterminées par le désordre figé créé en traversant la transition de verre et pas par un début possible d'effets magnétique au-dessous de cette transition. L'analogie avec les verres de spin est simple : comme pour les spins d'Ising, les molécules de l'éthylène ont seulement deux états possible.