



HAL
open science

Transport d'entropie, thermoélectricité dans les supraconducteurs non conventionnels

Romain Bel

► **To cite this version:**

Romain Bel. Transport d'entropie, thermoélectricité dans les supraconducteurs non conventionnels. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2004. Français. NNT: . tel-00007955

HAL Id: tel-00007955

<https://theses.hal.science/tel-00007955>

Submitted on 7 Jan 2005

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

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

Transport d'entropie, thermoélectricité dans les supraconducteurs non conventionnels

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 11 octobre 2004

pour l'obtention du

Doctorat de l'université Denis Diderot – Paris 7

(spécialité physique de la matière condensée)

par

Romain BEL

Composition du jury

| | | |
|-----------------------------|-----------------|--|
| <i>Président :</i> | J. Klein | |
| <i>Rapporteurs :</i> | J.-P. Brison | Centre de Recherche sur les Très Basses Températures, Grenoble, France |
| | P. Fournier | Département de physique de l'Université de Sherbrooke, Sherbrooke, Canada |
| <i>Examineurs :</i> | N. Hussey | Department of Physics, University of Bristol, Bristol, Angleterre |
| | J. Klein | Groupe de Physique des Solides, Université Paris 7, Paris, France |
| <i>Directeur de thèse :</i> | K. Behnia | Laboratoire de Physique quantique, ESPCI, Paris, France |

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu Laëtitia, qui m'a soutenu durant toute la période de ma rédaction avec une infinie patience, et qui a accepté de relire et de corriger un ouvrage pourtant hermétique pour elle ; bien évidemment, Kamran Behnia, mon directeur de thèse, dont la sympathie et la compétence ont d'une part largement contribué à me former en tant que physicien accompli et d'autre part été des éléments essentiels de la richesse de cette thèse. Cyril Proust, dont les avis et conseils ont beaucoup fait avancer le processus de rédaction ; Hao Jin, qui m'a secondé très efficacement dans les mesures d'effet Nernst ; toute l'équipe du LCMI, et en particulier Peter Van der Linden et Duncan Maude, dont l'efficacité et le sérieux ont été des atouts majeurs dans les mesures de conductivité thermique à haut champ ; Jacques Flouquet, avec qui j'ai beaucoup appris lors de nos diverses conversations ; et enfin Manuel Moragues, qui a été un compagnon de route extrêmement sympathique au cours de ces années.

Je dédie cette thèse à mon grand-père, qui le premier m'a fait découvrir les joies des mathématiques et de la physique.

Table des matières

| | |
|---|-----------|
| Introduction générale | 7 |
| I Quelques questions sur les systèmes d'électrons fortement corrélés | 11 |
| 1 Les cuprates : une supraconductivité non conventionnelle dans une phase normale inconnue | 13 |
| 1.1 Généralités et données immédiates | 13 |
| 1.2 La phase supraconductrice | 15 |
| 1.3 La phase normale | 16 |
| 1.3.1 Propriétés de transport | 16 |
| 1.3.2 Le pseudogap | 17 |
| 1.4 Quelques modèles théoriques | 18 |
| 1.4.1 Fractionalisation | 18 |
| 1.4.2 Paires préformées | 18 |
| 1.4.3 Point critique quantique | 19 |
| 1.4.4 Stripes | 19 |
| 2 Fermions lourds | 21 |
| 2.1 Introduction | 21 |
| 2.2 Quelques problématiques des fermions lourds | 22 |
| 2.2.1 Mécanisme de formation des fermions lourds | 22 |
| 2.2.2 Supraconductivité non conventionnelle | 24 |
| 2.2.3 Criticalité quantique | 27 |

| | | |
|------------|---|-----------|
| II | Mesures de conductivité thermique dans les phases normale et supraconductrice d'un cuprate optimalement dopé | 31 |
| 3 | La conductivité thermique comme sonde expérimentale | 33 |
| 3.1 | Conductivité thermique de la phase supraconductrice | 33 |
| 3.2 | Conductivité thermique de la phase normale à $T = 0$ | 34 |
| 3.3 | Conductivité thermique dans les cuprates : l'état de l'art | 35 |
| 3.3.1 | Phase supraconductrice | 36 |
| 3.3.2 | Phase normale | 37 |
| 4 | Mesurer la conductivité thermique à haut champ et basse température : un défi technologique | 41 |
| 4.1 | Dispositif expérimental | 41 |
| 4.2 | Thermométrie à haut champ magnétique : thermométrie à blocage de Coulomb | 42 |
| 4.2.1 | Principe de fonctionnement | 43 |
| 4.3 | Procédure de calibration : principe et validation | 44 |
| 4.4 | Echantillons | 44 |
| 4.5 | Estimation des barres d'erreur | 46 |
| 5 | Résultats et discussion | 49 |
| 5.1 | Terme linéaire de la phase supraconductrice | 49 |
| 5.2 | Phase normale et vérification de la loi de Wiedemann-Franz | 52 |
| 5.2.1 | Echantillon surdopé | 52 |
| 5.2.2 | Echantillon au dopage optimal | 53 |
| 5.3 | Discussion et perspectives | 54 |
| III | Thermoélectricité expérimentale - Rappels et mise en œuvre | 57 |
| 6 | Le tenseur thermoélectrique | 59 |
| 6.1 | Définitions | 59 |
| 6.2 | Problèmes de signe | 60 |
| 6.3 | Les sources "identifiées" d'effet Nernst | 60 |

| | | |
|-----------|---|-----------|
| 6.3.1 | Le gaz d'électrons, compensation de Sondheimer | 60 |
| 6.3.2 | Les métaux multibandes - Effet Nernst ambipolaire | 62 |
| 6.3.3 | Phase mixte des supraconducteurs de type II - Effet Nernst des vortex | 63 |
| 6.3.4 | Visions de l'effet Nernst | 64 |
| 6.4 | L'effet Nernst dans les cuprates : résultats et interprétations | 65 |
| 6.4.1 | Cuprates dopés aux électrons | 66 |
| 6.4.2 | Cuprates dopés aux trous | 67 |
| 6.4.3 | D'autres scénarios | 68 |
| 7 | La mesure de l'effet Nernst | 71 |
| 7.1 | Dispositif expérimental | 71 |
| 7.1.1 | Description et spécifications du dispositif | 71 |
| 7.1.2 | Procédure expérimentale | 73 |
| 7.2 | Adiabatique ou isotherme ? | 75 |
| IV | Résultats de thermoélectricité | 77 |
| 8 | Supraconducteurs métalliques "conventionnels" : le cas de NbSe₂ | 79 |
| 8.1 | 2H-NbSe ₂ : un métal simple ? | 81 |
| 8.2 | Effet Nernst dans NbSe ₂ | 82 |
| 8.2.1 | Signal vortex dans la phase mixte | 82 |
| 8.2.2 | Un effet Nernst anormal (?) dans la phase métallique | 82 |
| 8.3 | Autres propriétés de transport | 83 |
| 8.4 | Discussion préliminaire sur NbSe ₂ | 85 |
| 9 | Fermions lourds supraconducteurs : les cas de CeCoIn₅ et de URu₂Si₂ | 89 |
| 9.1 | Mesures thermoélectriques dans CeCoIn ₅ | 89 |
| 9.1.1 | CeCoIn ₅ , criticalité quantique et supraconductivité | 89 |
| 9.1.2 | Résultats de thermoélectricité | 92 |
| 9.2 | Première discussion sur CeCoIn ₅ | 99 |
| 9.3 | Mesures thermoélectriques dans URu ₂ Si ₂ | 103 |
| 9.3.1 | URu ₂ Si ₂ : magnétisme et ordre caché | 103 |
| 9.3.2 | Résultats de thermoélectricité dans la phase <i>ordre caché</i> | 105 |

| | | |
|-----------|--|------------|
| 9.3.3 | Autres propriétés de transport | 109 |
| 9.3.4 | Extraction du signal vortex | 111 |
| 9.4 | Première discussion sur URu ₂ Si ₂ | 112 |
| 9.4.1 | Pouvoir thermoélectrique | 112 |
| 9.4.2 | Effet Nernst | 113 |
| 10 | Effet Nernst et métamagnétisme : le réseau Kondo CeRu₂Si₂ | 115 |
| 10.1 | Introduction | 115 |
| 10.2 | Résultats de thermoélectricité | 117 |
| 10.3 | Autres propriétés de transport | 121 |
| 10.4 | Première discussion sur CeRu ₂ Si ₂ | 121 |
| V | Discussion des résultats | 125 |
| 11 | Thermoélectricité des fermions lourds : vers de nouvelles sources d'effet Nernst ? | 127 |
| 11.1 | De nouvelles sources d'effet Nernst | 127 |
| 11.2 | Un effet Nernst géant corrélé à un effet Seebeck réduit | 128 |
| 11.3 | Une deuxième corrélation : l'effet Nernst et l'effet Hall | 130 |
| 11.4 | L'effet Nernst, une manifestation de la physique des fermions lourds ? | 131 |
| 11.5 | Un terme $\left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon}\right)_{\epsilon_F}$ fortement dépendant de l'énergie. | 133 |
| 12 | Quelques conjectures sur les sources d'effet Nernst - Perspectives | 135 |
| 12.1 | Proximité d'un point critique quantique | 135 |
| 12.1.1 | Point critique quantique en pression | 135 |
| 12.1.2 | Metamagnétisme et criticalité induite sous champ | 136 |
| 12.2 | Signe de l'effet Nernst et degré de localisation des électrons f | 136 |
| 12.3 | Présence d'une onde de densité de charge non-conventionnelle | 137 |
| 12.4 | Connection avec le problème des cuprates | 138 |
| 12.5 | Perspectives | 139 |
| | Conclusion | 141 |
| | <hr/> | |
| | Bibliographie | 143 |

Table des figures

| | | |
|-----|--|----|
| 1.1 | Structure atomique de quelques cuprates. | 14 |
| 1.2 | Diagramme de phase générique des cuprates. | 15 |
| 2.1 | Structure cristallographique des fermions lourds au cérium. | 25 |
| 2.2 | Diagramme de phase autour d'un point critique quantique. | 28 |
| 3.1 | Conductivité thermique dans la phase normale des cuprates. | 37 |
| 4.1 | Schéma d'un thermomètre à blocage de Coulomb(CBT). | 42 |
| 4.2 | Caractéristique I-V d'un CBT. | 43 |
| 4.3 | Schéma de la mesure du CBT. | 44 |
| 4.4 | Vérification de la loi de WF dans un fil d'or. | 45 |
| 4.5 | Coefficient Hall renormalisé dans Bi-2201 | 46 |
| 5.1 | Résistivité et transition des trois échantillons de Bi-2201 | 49 |
| 5.2 | Conductivité thermique de Bi-2201 pour plusieurs dopages autour du do- page optimal | 50 |
| 5.3 | Variations du terme linéaire et du gap supraconducteur avec le dopage dans Bi-2201. | 51 |
| 5.4 | Vérification de la loi de Wiedemann-Franz dans deux échantillons de Bi-2201. | 52 |
| 5.5 | Résistivité des deux échantillons de Bi-2201. | 53 |
| 6.1 | Compensation de Sondheimer. | 61 |
| 6.2 | Effet Nernst et effet Hall ambipolaires. | 62 |
| 6.3 | Tension Nernst dans la phase mixte du Niobium en fonction du champ. . . | 64 |
| 6.4 | Coefficient Nernst dans NCCO. | 66 |
| 6.5 | Effet Nernst dans les cuprates dopés aux trous. | 68 |
| 7.1 | Photo et schéma de l'échantillon et du porte échantillon | 72 |
| 7.2 | Parties paire et impaire du signal Nernst. | 73 |
| 8.1 | Mesures électriques dans un échantillon d'or. | 79 |
| 8.2 | Effet Nernst isotherme dans un échantillon d'or. | 80 |
| 8.3 | Coefficient Nernst dans NbSe ₂ | 82 |
| 8.4 | Dépendance en champ de l'effet Nernst dans NbSe ₂ | 83 |
| 8.5 | Résistivité et pouvoir thermoélectrique de NbSe ₂ | 84 |
| 8.6 | Transport électrique à la transition CDW. | 85 |

| | | |
|------|---|-----|
| 8.7 | Coefficient Nernst et coefficient de Hall dans NbSe ₂ | 86 |
| 8.8 | Angle Peltier et angle de Hall dans NbSe ₂ | 87 |
| 9.1 | Structure et diagramme de phase des Ce _n M _m In _{3n+2m} | 90 |
| 9.2 | Résistivité de CeCoIn ₅ | 91 |
| 9.3 | Pouvoir thermoélectrique de CeCoIn ₅ | 92 |
| 9.4 | Coefficient Nernst dans CeCoIn ₅ | 93 |
| 9.5 | Rapport S/T dans CeCoIn ₅ | 94 |
| 9.6 | Effet Nernst en fonction du champ dans CeCoIn ₅ | 95 |
| 9.7 | Rapport $\frac{N}{S}$, ou $\tan(\theta_{Th})$ et tangente de l'angle de Hall. | 96 |
| 9.8 | Effet Nernst lors de la transition supraconductrice à différents champs magnétiques dans CeCoIn ₅ | 97 |
| 9.9 | Rapports $\frac{N}{N_n}$ (carrés vides), $\frac{S}{S_n}$ (cercles vides) et $\frac{\rho}{\rho_n}$ (ligne). | 98 |
| 9.10 | Signal Nernst dû aux vortex à $B = 0, 5T$ | 99 |
| 9.11 | Surface de Fermi et masses effectives dans CeCoIn ₅ | 101 |
| 9.12 | Coefficient Nernst dans la phase <i>ordre caché</i> de URu ₂ Si ₂ | 106 |
| 9.13 | Pouvoir thermoélectrique dans la phase <i>ordre caché</i> de URu ₂ Si ₂ | 107 |
| 9.14 | Tangente des angles de Hall et de Nernst dans URu ₂ Si ₂ | 108 |
| 9.15 | Transport électrique dans URu ₂ Si ₂ | 109 |
| 9.16 | Conductivité thermique de URu ₂ Si ₂ de 0 à 12T. | 110 |
| 9.17 | Extraction du signal vortex dans URu ₂ Si ₂ | 111 |
| 9.18 | Rapport S/T dans URu ₂ Si ₂ | 112 |
| 10.1 | Résistivité de CeRu ₂ Si ₂ en fonction de la température. | 116 |
| 10.2 | Coefficients Nernst et Seebeck en fonction de la température dans CeRu ₂ Si ₂ | 117 |
| 10.3 | Signal Nernst en fonction du champ magnétique dans CeRu ₂ Si ₂ | 118 |
| 10.4 | Effets Nernst adiabatique N^a , contribution de l'effet Righi-Leduc Q^{RL} et effet Nernst dit isotherme N^i | 119 |
| 10.5 | Pouvoir thermoélectrique en fonction du champ magnétique dans CeRu ₂ Si ₂ | 120 |
| 10.6 | Effet Hall dans CeRu ₂ Si ₂ . <i>A gauche</i> : pour $T < 15K$. <i>A droite</i> : pour $T > 15K$ | 121 |
| 10.7 | Effet Nernst et chaleur spécifique dans CeRu ₂ Si ₂ | 122 |
| 11.1 | Rapport S/T dans CeCoIn ₅ et URu ₂ Si ₂ | 128 |
| 11.2 | Rapports $\frac{N}{S}$ dans CeCoIn ₅ et dans URu ₂ Si ₂ | 129 |
| 11.3 | Effets Nernst et Hall dans CeCoIn ₅ , URu ₂ Si ₂ et CeRu ₂ Si ₂ | 130 |
| 11.4 | Rapport N/T et angle de Hall dans les trois systèmes étudiés. | 132 |

Introduction générale

Un des grands paradigmes de la physique de la matière condensée de ces trente dernières années est l'émergence de la supraconductivité non conventionnelle. Classiquement, les comportements des métaux simples sont bien décrits par la théorie de Landau des liquides de Fermi, à laquelle viennent s'adjoindre un certain nombre d'instabilités, dont deux des plus prépondérantes sont la transition supraconductrice et la condensation en onde de densité de charge ou de spin.

Depuis ces vingt-cinq dernières années, un certain nombre de composés présentant une supraconductivité ne correspondant pas à la théorie Bardeen Cooper Schrieffer / Ginzburg Landau (BCS/GL) ont été mis à jour. Cette supraconductivité non conventionnelle est désignée ainsi pour plusieurs raisons :

- le mécanisme d'appariement des quasi-particules est différent de la simple attraction entre électrons via l'interaction retardée entre les électrons et les phonons. L'identification de ce mécanisme constitue souvent une des questions centrales dans la compréhension de la supraconductivité non conventionnelle.
- le paramètre d'ordre exhibe une symétrie différente de celle observée dans les métaux simples supraconducteurs, où il est de symétrie s .

Un certain nombre de classes de composés exhibent cette supraconductivité non conventionnelle. On peut citer entre autres parmi les métaux d'oxydes de transition les cuprates, les cobaltites et les ruthénates, puis parmi les intermétalliques actinides et lanthanides les fermions lourds au cérium et à l'uranium, les borocarbides et les skutterudites, et enfin les composés organiques. Bien entendu mis à part l'observation phénoménologique d'une supraconductivité non conventionnelle, tous ces composés présentent des problématiques physiques fondamentalement différentes. Nous nous restreindrons ici aux deux familles des cuprates et des fermions lourds.

Les cuprates constituent probablement à eux seuls un paradigme de la physique de la fin du vingtième siècle. Leur état fondamental non dopé est un isolant de Mott, indiquant la présence de fortes corrélations électroniques. Leur physique procède des électrons d provenant des plans Cu-O dont ils tirent leur appellation. La première caractéristique frappante de ces composés est la valeur particulièrement élevée de leur température de transition supraconductrice, qui excède de quasiment un ordre de grandeur les valeurs usuelles des supraconducteurs conventionnels.

Cependant, en plus de cette valeur qui rend l'état supraconducteur accessible à l'azote liquide et qui bien entendu remet à l'ordre du jour le catalogue d'applications possibles disponible quasiment depuis la découverte des premiers supraconducteurs, c'est la richesse

du diagramme de phase en dopage et en température qui constitue une émulation tant expérimentale que théorique. En particulier, la compréhension de la phase *pseudogap* constitue un défi lancé à notre vision de la physique de la matière condensée.

Malgré vingt années de recherches intensives sur les cuprates depuis la découverte de LBCO par Bednorz et Müller, aucune image cohérente des cuprates n'est encore disponible. En ce qui concerne la phase supraconductrice, bien que la symétrie du paramètre d'ordre soit maintenant connue, le mécanisme d'appariement reste, lui, encore obscur. La phase normale, et en particulier sa partie pseudogap, reste également source d'âpres débats. La question de savoir si ce pseudogap provient de la supraconductivité ou est une réminiscence de l'isolant de Mott n'est toujours pas tranchée. Par ailleurs, les interactions entre ces diverses phases ne sont toujours pas élucidées : comment passe-t-on d'un isolant de Mott antiferromagnétique à la supraconductivité en introduisant un nombre de porteurs relativement faible ? Cette proximité est-elle un facteur favorisant l'émergence de la supraconductivité ou une coïncidence sans importance ?

Enfin, l'apparition de déviations par rapport aux comportements typiques du liquide de Fermi dans la phase pseudogap montre que les interactions fortes entre les électrons peuvent induire des comportements non conventionnels y compris dans la phase métallique. La question est alors de savoir dans quelle mesure la phase normale des cuprates peut être décrite par la théorie de Landau des liquides de Fermi.

Parmi ces questions générales, deux aspects particuliers ont amorcé le travail de cette thèse. Le premier est celui de savoir si l'état fondamental de la phase normale des cuprates au dopage optimal est proche d'un liquide de Fermi ou non. En effet, alors que la réponse semble être positive pour la partie surdopée du diagramme de phase, il n'existe aucune indication expérimentale ferme en ce qui concerne le dopage optimal.

Le caractère liquide de Fermi peut être étayé de plusieurs manières. Bien entendu, au premier plan se trouvent les comportements à température finie, et en particulier les dépendances thermiques de grandeurs de transports et thermodynamiques comme par exemple la résistivité et la chaleur spécifique. Cela étant, des déviations par rapport à ces comportements n'indiquent pas forcément que l'état fondamental de la phase métallique n'est pas un liquide de Fermi. Une façon alors de caractériser l'état fondamental d'un métal est donc de sonder ses propriétés à température nulle.

La loi de Wiedemann-Franz est probablement, en termes de mesures de transport, la signature à température nulle la plus robuste du liquide de Fermi, puisqu'elle ne procède que du fait qu'il existe des quasi particules relativement bien définies et qui transportent la charge et l'entropie de façon similaire. Nous avons donc entrepris de vérifier la loi de Wiedemann-Franz dans un cuprate au dopage optimal, Bi-2201. Après une brève introduction sur la physique des électrons corrélés, la deuxième partie de cette thèse présente des mesures de conductivité thermique à haut champ et basse température dans Bi-2201 autour du dopage optimal, qui nous ont permis de tester la validité de la loi de Wiedemann-Franz.

Ensuite, nous avons abordé la question du lien existant entre la phase supraconductrice et la phase pseudogap. Plus particulièrement, l'effet Nernst a connu dans ce contexte un regain d'attention ces cinq dernières années. En effet, celui-ci est censé être faible dans un métal et fini dans la phase mixte d'un supraconducteur de type II, en raison de la

présence de vortex. La persistance tant en champ qu'en température d'un effet Nernst dans la phase normale des cuprates a donc particulièrement intrigué la communauté, et a généré un certain nombre d'interprétations dont nous discuterons. En particulier, cette manifestation a fondé expérimentalement une vision de la phase pseudogap des cuprates en termes de paires préformées et d'excitations de type vortex, interprétation qui s'appuie sur l'extension en température des fluctuations supraconductrices dans les cuprates.

Cependant, la compréhension de l'effet Nernst souffre d'un manque de données expérimentales dans des systèmes autres que les systèmes conventionnels (métaux usuels et semi-conducteurs) et les cuprates. Une des raisons du peu de mesures d'effet Nernst est d'une part la conviction que celui-ci est nul dans les phases métalliques conventionnelles, d'autre part la difficulté relative d'interpréter et de mesurer l'effet Nernst, contrairement à des sondes plus directes ou plus facilement mesurables comme les propriétés de transport électrique (résistivité, effet Hall...) ou les sondes de structure électroniques (ARPES, STM...). Or, comme nous le verrons dans la troisième partie, l'effet Nernst peut émerger dans d'autres contextes que les phases vortex, et il est nécessaire de disposer de données expérimentales dans d'autres systèmes non conventionnels pour améliorer, sinon changer notre compréhension de la thermoélectricité transverse.

Nous nous sommes tournés pour cela vers une autre classe de composés, dont certains présentent par ailleurs également une supraconductivité non conventionnelle, les fermions lourds.

Tout comme les cuprates, les fermions lourds sont des systèmes d'électrons fortement corrélés, mais leur physique procède du couplage entre les électrons f et les électrons d de conduction. Et bien que certains composés fermions lourds présentent une supraconductivité non conventionnelle, la présence de fluctuations supraconductrices est ici totalement exclue. Les fermions lourds nous permettent donc d'étudier l'effet Nernst dans des systèmes possédant une physique riche d'électrons fortement corrélés, mais où toute contribution des fluctuations supraconductrices est absente.

La première manifestation des corrélations électroniques dans les fermions lourds est une forte renormalisation de la masse des porteurs qui donne son nom à ces composés. Cette augmentation de parfois trois ordres de grandeur de la masse des porteurs dans des systèmes qui présentent généralement, malgré cette renormalisation, des comportements liquide de Fermi constitue probablement une des plus grandes victoires de la théorie de Landau.

De plus, contrairement aux cuprates qui peuvent être correctement décrits par un diagramme de phase qualitativement universel, les fermions lourds présentent une diversité et une richesse de diagrammes de phase qui en font des composés de choix pour étudier intensément la physique des électrons corrélés. Le nombre relativement important de systèmes (environ une cinquantaine en comptant les composés dopés), permet de sélectionner des situations et de faire varier, grâce à la pression, au champ magnétique ou au dopage chimique les paramètres qui vont influencer les comportements de ces systèmes.

La quatrième partie de cette thèse sera donc exclusivement consacrée à l'étude de l'effet Nernst dans les phases métalliques de systèmes autres que les cuprates. Tout d'abord NbSe₂, un supraconducteur de type II dont la phase normale est mieux caractérisée que celle des cuprates, puis ensuite deux fermions lourds supraconducteurs, CeCoIn₅ et

URu₂Si₂, où la supraconductivité, de type II également, émerge dans une phase normale présentant pour le premier de fortes déviations dues à la présence d'un point critique quantique, pour le second un paramètre d'ordre encore indéterminé qui coexiste avec un antiferromagnétisme réduit. Enfin, nous présenterons les résultats de thermoélectricité dans un fermion lourd non supraconducteur mais archetypal du métamagnétisme, CeRu₂Si₂.

Bien entendu, cette étude ayant révélé des résultats extrêmement inattendus, elle ne constitue qu'un début dans la compréhension et le recensement des sources d'effet Nernst. Cependant, nous discuterons dans la dernière partie des divers scénarios possibles et proposerons des suites à donner à ce travail.

Première partie

Quelques questions sur les systèmes d'électrons fortement corrélés

Chapitre 1

Les cuprates : une supraconductivité non conventionnelle dans une phase normale incomprise

La découverte des cuprates en 1986 par Bednorz et Müller [1] dans LaBaCuO à 30K — alors que la supraconductivité conventionnelle avait atteint sa température maximale de 23,2K avec Nb₃Ge — suivie l'année d'après par YBa₂Cu₃O_{7-δ}, n'a pas seulement excité la communauté scientifique par les perspectives technologiques qu'offrait une supraconductivité accessible avec de l'azote liquide, mais également parce que ces nouveaux supraconducteurs ont très tôt montré des propriétés incomprises et sont apparus comme un défi aux théories classiques de la physique de la matière condensée. Et quasiment deux décennies après cette découverte, et bien que d'immenses énergies aient été mobilisées pour la compréhension de la physique sous-jacente à ces systèmes, il est clair que celle-ci nous échappe encore.

1.1 Généralités et données immédiates

Les supraconducteurs à haute température critique sont tous des *cuprates*, puisqu'ils ont tous dans leur structure des plans cuivre-oxygène, à la présence desquels sont probablement reliées toutes les propriétés de ces matériaux, ces plans étant des réservoirs de porteurs [2]. Leur structure cristalline est celle des pérovskites, et ils présentent par là même une très grande anisotropie (par exemple $\left(\frac{H_{c2//ab}}{H_{c2//c}}\right) \approx 7$ pour YBCO et 50 pour Bi-2212).

Dans leur état de base, les cuprates sont des isolants de Mott, assez bien décrits par un hamiltonien d'Heisenberg antiferromagnétique. Cependant, on peut *doper* ces composés pour arriver *grosso modo* à un *mauvais métal* [3] qui devient supraconducteur à basse température, la température critique dépendant du dopage. Le dopage consiste soit en un changement de la teneur en oxygène (par exemple pour YBa₂Cu₃O_y, YBCO), soit en un ajout de cations (ou un mélange des deux). Si l'introduction de cations de plus faible valence augmente le dopage, comme dans le cas de La_{2-y}Sr_yCuO₄ (LSCO) par exemple, on parle de *dopés aux trous*. Dans le cas inverse, comme c'est le cas pour par

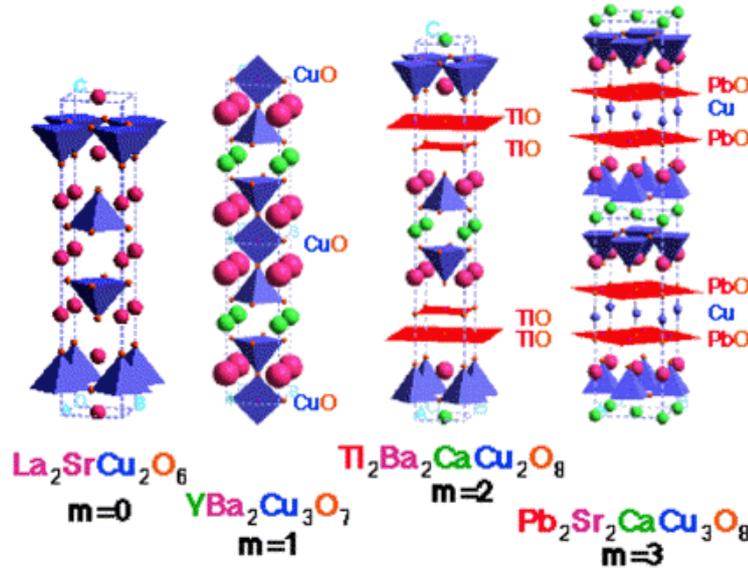


FIG. 1.1 – Structure atomique de quelques cuprates. La base des pyramides correspond aux plans Cu-O.

exemple $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ (PCCO), on parle de *dopés aux électrons*, la grande majorité des cuprates étant des dopés aux trous.

La première propriété frappante des cuprates est bien entendu leur très haute température de transition supraconductrice. Comme on l’a dit plus haut, celle-ci dépend du dopage et est maximale pour un dopage dit *optimal* pour des raisons évidentes. Il est difficile de relier les divers x , y et δ (c’est-à-dire la concentration en dopant et en oxygène) qui se trouvent dans les formules chimiques des composés avec le dopage, c’est-à-dire la teneur en trous ou en électrons selon la famille considérée, puisque celui-ci dépend en général de plusieurs de ces paramètres. Il existe néanmoins une relation universelle¹ empirique entre la température critique et le dopage : [4] :

$$\frac{T_c}{T_c^{max}} = 1 - 82,6(p - 0,16)^2 \quad (1.1)$$

p étant le dopage et T_c^{max} la température critique atteinte au dopage optimal. Cette ”universalisation” a également permis de déduire un diagramme de phase générique pour les cuprates (voir figure 1.2).

Outre le contrôle chimique de la synthèse, le dopage peut être mesuré par trois biais :

- le pouvoir thermoélectrique à 300K, qui décroît linéairement en fonction de p , sauf dans le cas de LSCO [5].
- l’effet Hall à basse température, ou plus particulièrement l’effet Hall renormalisé $\frac{R_{HeN}}{V}$ où $\frac{eN}{V}$ est la densité volumique de charge par atome de cuivre [6].
- par la température critique en utilisant la relation 1.1, connaissant la température critique au dopage optimal.

¹Cette relation souffre de deux exceptions : LSCO pour lequel elle ne rend pas compte de l’anomalie à $p = \frac{1}{8}$ et Bi-2201 pour qui elle s’écrit $\frac{T_c}{T_c^{max}} \approx 1 - 268(p - 0,16)^2$ [6].

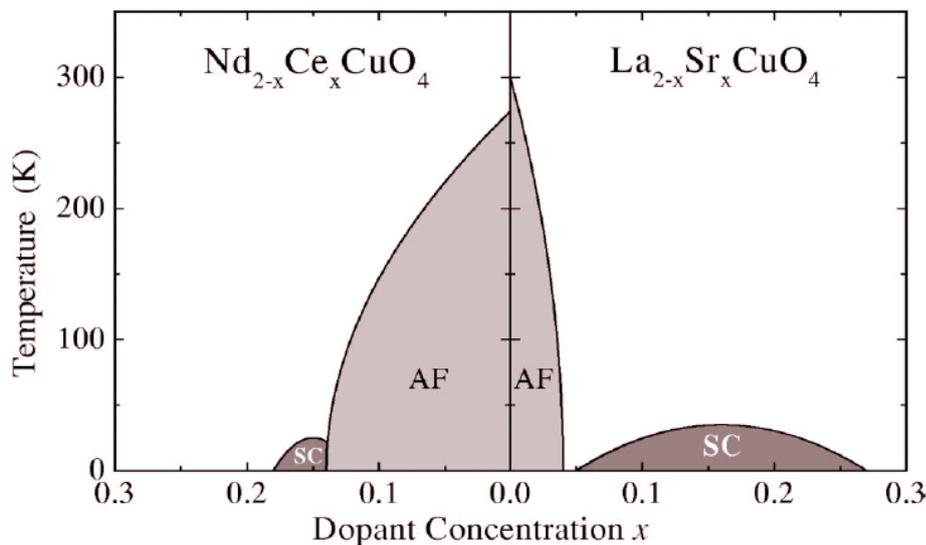


FIG. 1.2 – Diagramme de phase générique des cuprates.

1.2 La phase supraconductrice

Comme nous l'avons déjà mentionné, la supraconductivité dans ces systèmes se distingue immédiatement de celle des supraconducteurs conventionnels par la valeur très élevée de la température critique. Aujourd'hui la T_c maximale atteinte pour un supraconducteur l'a été dans $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$, avec une température critique de 164K à 30GPa [7] et de 134K à pression ambiante [8]. Ceci implique d'ores et déjà des questions sur la nature de la supraconductivité et ses ressemblances avec la théorie BCS/Ginzburg-Landau conventionnelle. En fait, il s'avère que la supraconductivité des cuprates, même si le mécanisme microscopique reste à ce jour indéterminé, peut se décrire dans des termes similaires à ceux de la théorie BCS/GL, en prenant en compte la température critique très élevée et le caractère quasi-bidimensionnel des systèmes, via le modèle de Lawrence-Doniach. On peut donc parler, dans ces systèmes, de cohérence de phase, de paires de Cooper... [9], même si encore une fois le mécanisme d'appariement (phononique, électronique, magnétique ou autre) n'est toujours pas élucidé.

Cependant, cette supraconductivité possède des différences avec les supraconducteurs conventionnels. En particulier, un certain nombre d'expériences ont montré que le paramètre d'ordre, autrement dit le *gap* supraconducteur :

- présente des nœuds
- possède une symétrie d'ordre 4
- possède une phase qui change de signe.

Ceci a amené la communauté à conclure que le paramètre d'ordre possède une symétrie $d_{x^2-y^2}$ [10], contrairement aux supraconducteurs conventionnels qui, eux, présentent un gap isotrope, c'est-à-dire de symétrie *s*, même s'il subsiste un débat pour savoir si, dans certaines parties du diagramme de phase, un terme (*i*)*x* de symétrie *s* ou *d* ne viendrait pas s'ajouter à ce paramètre d'ordre.

Bien entendu, un des paramètres qui vont contribuer à rendre la phase supraconductrice non conventionnelle est le caractère bidimensionnel des cuprates, qui va imposer certaines modifications sur les caractéristiques de cet ordre. En particulier, la transition supraconductrice pourrait être, au lieu d'être une transition de phase à la Landau, c'est-à-dire un prolongement en 2D d'un comportement 3D, une transition de Kosterlitz-Thouless telle qu'elle se produit dans les supraconducteurs bi-dimensionnels, et où la transition est due à la perte de la cohérence de phase et non à l'annulation de l'amplitude du paramètre d'ordre.

Cependant, ce qui rend la transition supraconductrice difficile à décrire ne sont pas tant les propriétés de la phase supraconductrice, où une description de type BCS pourrait encore être valide (même si le mécanisme d'attraction entre les électrons reste inconnu), que celles de la phase haute température.

1.3 La phase normale

1.3.1 Propriétés de transport

En fait, plus encore que la phase supraconductrice qui conserve encore quelques zones d'ombre, c'est la phase haute température qui s'est révélée être un défi majeur à notre compréhension de la physique des électrons corrélés. C'est en effet dans cette région du diagramme de phase que se manifeste un ensemble de propriétés qui témoignent de l'étrangeté des cuprates.

En effet, alors que quand on s'approche du côté surdopé il semblerait que les propriétés de la phase normale soient celles d'un métal relativement conventionnel, au fur et à mesure que, sans passer par la phase supraconductrice, on s'approche de l'isolant de Mott, les propriétés des cuprates deviennent non-conventionnelles.

Une des propriétés les plus frappantes, et aussi les plus immédiatement mesurables, est le comportement de la résistivité dans le plan ab : celle-ci, au lieu d'être quadratique comme dans un liquide de Fermi, est linéaire en température, et ceci de la température ambiante jusqu'à la transition supraconductrice. Plus précisément, elle est linéaire pour les composés au dopage optimal, légèrement sur-linéaire pour les composés sur-dopés et sous-linéaire pour les composés sous-dopés [11][12]. Cette caractéristique très frappante l'est encore plus si l'on en regarde le degré d'extension. En effet, ce comportement s'étend de la transition supraconductrice jusqu'aux températures typiques de fusion de l'échantillon (1000K) et contient deux éléments étranges :

- la résistivité ne montre aucune tendance à la saturation [13], même quand le libre parcours moyen est censé passer en dessous de la distance interatomique, et contrairement à ce qu'il se passe dans un métal normal où la résistivité sature à la limite dite de Mott-Ioffe-Regel [14][15]. C'est cette propriété qui a amené la communauté à classer ces composés dans la catégorie des mauvais métaux [3].
- ce comportement met à jour l'existence d'un mécanisme qui s'appliquerait de 30 à 1000K, c'est-à-dire sur quasiment trois ordres de grandeur en température, et qui n'est pas encore déterminé.

Signalons par ailleurs qu'à bas dopage, la résistivité présente une très forte augmenta-

tion de plusieurs ordres de grandeur, correspondant à une transition métal-isolant et bien que le dopage associé à ce *crossover* entre un comportement métallique et un comportement isolant soit, lui, dépendant du matériau utilisé, cette transition est observée dans Bi-2201 [16], dans LSCO [17], dans YBCO [18] et dans PCCO [19].

Une autre propriété de transport présentant un comportement très frappant est l'effet Hall. Celui-ci est, dans un métal normal, indépendant de la température et directement et uniquement relié au nombre de porteurs. Dans les cuprates, au contraire, il présente une forte dépendance en température, cette dépendance s'aggravant au fur et à mesure que l'on s'enfonce dans le domaine sous-dopé. Quantitativement, le coefficient de Hall R_H varie en $1/T$ à haute température [18][20] et, selon la température de transition décroît ensuite linéairement en température, et présente donc un maximum entre ces deux régimes. Globalement, sa valeur diminue avec le dopage, ce qui n'est pas surprenant puisque le nombre de porteurs augmente.

1.3.2 Le pseudogap

Cependant, toutes les parties de la phase normale ne sont pas égales devant l'étrangeté. En effet, lorsque l'on parcourt à haute température le diagramme de phase des cuprates, on rencontre pour un certain dopage l'émergence de propriétés que l'on associe avec l'ouverture de ce qu'il est maintenant courant d'appeler le *pseudogap*. Un pseudogap est, de manière très générale, un gap partiel, et pourrait être vu par exemple dans une situation où seulement certaines parties de la surface de Fermi seraient gappées, et où le dopage réduirait la proportion de ces parties.

L'existence de ce pseudogap apparaît dans quasiment toutes les mesures effectuées sur les cuprates supraconducteurs dopés aux trous, et celui-ci est grosso-modo situé, dans le diagramme de phase générique des cuprates, sur une ligne oblique partant du dopage optimal pour rejoindre $x = 0$ vers plusieurs centaines de kelvins.

La technique expérimentale la plus probante pour révéler le pseudogap est évidemment l'ARPES, qui permet de balayer la zone de Brillouin et en énergie et en moment [22]. Une mesure d'ARPES trace donc directement la surface de Fermi du composé, et donc directement les gaps. Cette technique a majoritairement été utilisée sur Bi-2212, tout simplement parce que ce composé se *clive* très bien, et qu'une mesure d'ARPES nécessite que la surface soit parallèle aux plans cuivre-oxygène.

Le pseudogap a également été vu par d'autres techniques de spectroscopie, comme la résonance magnétique nucléaire, qui en fait a été la première à découvrir le pseudogap dans YBCO sous dopé [23][24] : on observe, dans les échantillons sous dopés et pour une température $T^* > T_c$ une chute de l'inverse du taux de relaxation donné par le *Knight Shift* du cuivre. Des mesures complémentaires en conductivité optique ont montré qu'il s'agissait bien d'un gap affectant les charges et les spins. Ensuite, les mêmes caractéristiques révélant le pseudogap ont été observées dans d'autres composés, comme Bi-2212 [25]. Il est également observé en spectroscopie tunnel, en neutrons et en diffusion électronique Raman.

Par ailleurs, l'entrée dans la phase pseudogap entraîne également une déviation par rapport au comportement quasi-linéaire de la résistivité, qui en dessous de T^* décroît plus rapidement, observée tout d'abord dans LSCO [26][27] puis par exemple dans YBCO [28].

Enfin, signalons le comportement très inhabituel de l'effet Nernst dans les cuprates dopés aux trous sous-dopés : du côté sous-dopé du diagramme de phase, l'effet Nernst, au lieu d'être comme il le devrait confiné dans la phase mixte de la transition supraconductrice, s'étend largement au dessus de T_c , et ceci *sans discontinuité à la transition*. Ce comportement, que nous discuterons de façon plus approfondie dans la troisième partie, a été un des supports expérimentaux d'une vision particulière de la phase pseudogap, et qui se fonde sur l'existence de paires préformées qui apparaîtraient à la "transition" pseudogap.

Une des questions centrales concernant le pseudogap est de savoir s'il est relié au gap supraconducteur, autrement dit s'il est la réminiscence — ou l'annonciateur — à haute température de la phase supraconductrice, ou bien s'il est la manifestation de l'apparition d'un ordre distinct de la supraconductivité, qui serait en coexistence — sinon en compétition — avec la supraconductivité. Une autre question, reliée à la première, est de savoir si l'entrée dans la phase pseudogap correspond à une véritable transition de phase, ou bien à un simple *crossover* entre deux régimes du diagramme de phase. Dans l'état actuel des choses, la question est loin d'être tranchée, malgré la quantité d'informations expérimentales caractérisant cette transition.

1.4 Quelques modèles théoriques

1.4.1 Fractionalisation

Une des théories qui est peut-être la plus ancienne est celle dite théorie RVB, pour *Resonance Valence Bond* [30]. Sans rentrer dans les détails de cette vision de la phase normale des cuprates, la théorie RVB procède d'un modèle de séparation spin charge : les électrons vont se corrélérer et donner naissance à deux excitations élémentaires distinctes : les spinons, porteurs de spin mais neutres et les holons, sorte de doublet rigide d'électrons, de spin nul et de charge e . Les spinons vont ensuite s'apparier, donnant naissance à cette occasion au pseudogap, et les bosons vont, en se condensant, générer la transition supraconductrice. Dans ce cas, le mécanisme d'appariement ne se fait pas *via* les phonons, mais par un mécanisme de super-échange [31].

1.4.2 Paires préformées

Un autre scénario se fonde sur le fait que, dans les cuprates, la température caractéristique des fluctuations de phase est comparable à la température de transition supraconductrice [32][33]. Ce n'est pas le cas dans les supraconducteurs BCS conventionnels, où de ce fait le traitement en champ moyen de la transition supraconductrice est particulièrement adapté. Dans cette perspective, le pseudogap correspondrait à l'émergence d'une valeur finie de l'amplitude de la fonction d'onde macroscopique de Ginzburg-Landau $Ae^{i\varphi}$, mais la cohérence de phase qui est le fondement de la supraconductivité serait détruite par les fluctuations de phase et n'apparaîtrait qu'à plus basse température. L'effet Nernst persistant dans la phase normale, interprété comme une manifestation d'excitations de type vortex, a été un support expérimental de ce modèle [29].

1.4.3 Point critique quantique

Une autre école se fonde sur l'analogie entre le diagramme de phase des cuprates et celui des fermions lourds supraconducteurs, en particulier la série des $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$. Dans ces composés, il est généralement admis que la supraconductivité se développe autour d'un point critique quantique (qui marque une transition du second ordre à température nulle), qui marque également la fin d'une phase antiferromagnétique. Dans cette perspective, l'isolant de Mott correspondrait à cette phase, et les propriétés de la phase pseudogap seraient en fait dues à un régime de fluctuations quantiques qui affecterait profondément les propriétés usuelles du liquide de Fermi [34]. En particulier, la présence d'un point critique quantique entraîne l'apparition d'exposants différents de ceux du liquide de Fermi dans les dépendances en température des coefficients de transport : la dépendance linéaire en température de la résistivité et celle en $1/T$ du coefficient de Hall seraient aisément expliquées par ce modèle, d'autant que de tels comportements sont également observés dans CeCoIn_5 , un fermion lourd qui à pression et à champ magnétiques nuls se trouve justement dans cette zone de fluctuations quantiques.

1.4.4 Stripes

Une autre vision de la phase normale des cuprates est son agencement en *stripes* : une séparation de phase à l'échelle microscopique engendrerait une structure en bandes chargées séparées par des bandes antiferromagnétiques isolantes, cette séparation de phase arrivant bien entendu à la température du pseudogap. A plus basse température, un couplage Josephson entre les quasiparticules des bandes chargées à travers les bandes isolantes serait suffisamment fort pour induire la cohérence de phase macroscopique nécessaire à la supraconductivité.

Chapitre 2

Fermions lourds

2.1 Introduction

La découverte en 1975 du premier fermion lourd CeAl_3 [35] puis en 1979 du premier fermion lourd supraconducteur CeCu_2Si_2 [36] a ouvert un champ de recherches dont le terme n'est, 30 ans plus tard, pas encore atteint.

Les fermions lourds sont avant tout, comme leur nom l'indique, caractérisés par une masse effective des porteurs de charge très importante. Cette grande masse effective se retrouve principalement dans les mesures de chaleur spécifique, de susceptibilité et dans le coefficient A de résistivité, le composé présentant la masse la plus lourde connu à ce jour étant UBe_{13} avec une valeur de γ extrapolée à 0K de 1100mJ/molK^2 . De ce point de vue, les fermions lourds ont modifié notre vision de la physique non pas par leurs propriétés non liquide de Fermi, mais parce que des composés présentant des masses effectives de trois ordres de grandeur plus élevées que celle de l'électron libre peuvent présenter des comportements s'apparentant tout à fait aux propriétés des métaux simples prédites par la théorie de Landau des liquides de Fermi. Cette simple observation témoigne de la puissance et de l'importance du domaine d'application de cette vision de la matière condensée.

Cependant, les fermions lourds révèlent également une grande diversité d'états fondamentaux en plus du liquide de Fermi, supraconductivité, ondes de densité de charge, ordres magnétiques, ordres cachés... Cette complexité du diagramme de phase des fermions lourds reflète directement leur structure électronique commune. La grande majorité des fermions lourds sont à base de cérium ou d'uranium, même s'il existe des composés à base d'ytterbium (l'équivalent de Ce en trou), de praséodyme, de plutonium et de neptunium. Les composés à base de cérium, comme CeCu_2Si_2 , CeRu_2Si_2 , CePd_2Si_2 , CeNi_2Ge_2 et la classe des $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$, sont des *lanthanides intermétalliques*, c'est-à-dire des composés qui procèdent d'atomes dont la couche $4f$ est partiellement remplie, alors que les composés à base d'uranium, comme UPt_3 , UBe_{13} , UPd_2Al_3 , UGe_2 , URu_2Si_2 , sont des *actinides intermétalliques*, c'est-à-dire des composés dont la base est un atome dont la couche $5f$ est partiellement remplie.

C'est la présence d'électrons sur ces couches f qui va générer une masse effective élevée ainsi que les différents états fondamentaux des fermions lourds. D'une part, le fait que ces couches ne soient que partiellement occupées va entraîner tout naturellement l'apparition

du magnétisme dans ces composés. De plus, ces électrons f vont se coupler plus ou moins fortement avec les électrons de conduction fournis par les autres atomes, ce couplage étant la cause de l'augmentation considérable de la masse des quasiparticules.

Par ailleurs, alors que les états f sont fortement dégénérés dans l'atome même, la présence d'un champ cristallin et du couplage entre les électrons de conduction et les électrons f va entraîner la levée de cette dégénérescence, donnant naissance à une multitude d'états fondamentaux différents en fonction des valeurs de ces deux paramètres. Ceci a pour conséquence que l'on peut, dans un même composé, balayer des états fondamentaux différents grâce à des paramètres extérieurs, comme la pression qui a été très utilisée au cours de ces vingt-cinq dernières années, le champ magnétique ou le dopage.

Comprendre et prédire en termes microscopiques l'occurrence de ces divers états fondamentaux, et décrire théoriquement les diagrammes de phase constituent des grands défis actuels posés par la physique des fermions lourds. En conséquence, un grand effort tant expérimental que théorique a été effectué pour étudier les propriétés des fermions lourds, mais même si de grands progrès ont été accomplis depuis la découverte de CeCu_2Si_2 , aucune description pleine et entière des fermions lourds (si une telle description unique existe) n'est à ce jour disponible.

Comme on vient de le voir, les diagrammes de phase sont quasiment aussi nombreux qu'il y a de composés fermions lourds, et tous présentent au moins une spécificité qui les distingue des autres. Cette thèse n'est pas le lieu d'en faire un catalogue exhaustif, et on pourra se référer aux quelques revues existantes sur les fermions lourds pour cela [37]. Nous allons donc ici nous restreindre à quelques aspects qui semblent révélateurs de la complexité de la physique des fermions lourds.

2.2 Quelques problématiques des fermions lourds

2.2.1 Mécanisme de formation des fermions lourds

Comme nous l'avons déjà rappelé plus haut, le point commun entre tous les composés fermions lourds est, comme leur nom l'indique, la formation de quasiparticules possédant une masse renormalisée qui peut atteindre mille fois celle de l'électron libre. Il y a maintenant un consensus pour dire que l'origine de cette accroissement de masse est l'hybridation entre les électrons f provenant de l'atome de cérium, d'uranium, d'ytterbium... et les électrons de conduction d provenant des ions métalliques impliqués dans la formation du cristal (cuivre, ruthénium, cobalt, rhodium, indium...). Par ailleurs, c'est toujours le problème Kondo qui est à l'œuvre dans ces composés, les propriétés fermions lourds n'apparaissant à proprement parler que pour des températures inférieures à une échelle d'énergie donnée par la température Kondo. Cependant, il semble déjà que des distinctions s'imposent entre les composés au cérium et les composés à l'uranium.

Les composés au cérium

Dans le cas des composés au cérium, il semblerait qu'une description adéquate se fasse en termes d'états $4f^1$ localisés. Une des indications expérimentales soutenant cette vision des composés au cérium est la spectroscopie électronique des états f , dont les

résultats peuvent être résumés ainsi : à haute température, les électrons de conduction sont découplés des électrons f et des moments associés, générant une physique de métal faiblement corrélé. Dans ce contexte, les états d'occupation f^n et $f^{n\pm 1}$ sont dégénérés, et donnent naissance dans le spectre d'excitation à une bosse assez large en énergie au-dessus de l'énergie de Fermi. Lorsque l'on descend en température, en dessous d'une certaine température T^* , qui est la température du réseau Kondo, cette bosse se scinde en deux pics très prononcés. L'apparition de ces pics correspond à la levée de dégénérescence associée à l'hybridation entre les moments localisés $4f$ et les électrons de conduction.

Cet état, appelé *résonance Kondo*, est principalement dû au fort taux d'occupation de l'état $4f^1$, c'est-à-dire à la faible proportion des états $4f^0$ dans la formation de l'état fondamental. On peut montrer que cet état de résonance se manifeste tant que $n_f > 0,85$, n_f étant le taux d'occupation des états f . La formation des quasiparticules lourdes provient alors du mélange entre d'une part les interactions entre les électrons f et les électrons d , et d'autre part entre les électrons f eux-mêmes, qui vont conduire à une augmentation des corrélations au sein des électrons de conduction.

Bien entendu, la physique des fermions lourds dans ce scénario va principalement procéder de la compétition entre la formation de singulets Kondo et l'apparition d'un ordre à grande distance due au couplage entre les états f . Le paramètre naturel pour passer de l'une à l'autre de ces situations est l'hybridation entre les électrons f et les électrons d , qui va affecter le système d'électrons f dans deux voies opposées :

- d'un côté une forte hybridation, accroissant via les électrons de conduction le couplage entre les moments à différents sites, va favoriser l'émergence d'un ordre à grande distance et donc l'apparition de l'antiferromagnétisme ou du ferromagnétisme dans de plus rares cas
- d'un autre côté l'écrantage du moment f par les électrons de conduction via l'effet Kondo va mener à la formation de singulets f , qui ne vont donc plus se coupler ensemble.

Cependant, chacun des gains d'énergie dû à ces deux processus n'a pas la même dépendance avec le couplage, et on peut montrer [46] que pour une valeur suffisamment faible de l'hybridation, on obtient un état fondamental ordonné. Par contre, l'augmentation du paramètre de couplage va détruire cet ordre magnétique et donner naissance à un liquide de Fermi paramagnétique. Cette description du diagramme de phase des fermions lourds basés au cérium cesse d'être théorique dès que l'on s'aperçoit que l'hybridation peut être modifiée directement par des paramètres extérieurs tels que la pression ou la substitution chimique avec des espèces bien choisies.

Cette vision du problème est en fait équivalente au problème du réseau Kondo qui n'est malheureusement, contrairement à celui de l'impureté Kondo, pas résolu actuellement.

Les composés à l'uranium

Dans le cas des composés à l'uranium et contrairement à ce qui se passe dans le cas des composés au cérium, le pic en spectroscopie électronique correspondant aux états f reste à toute température une bosse assez large. Nous sommes donc en présence, même si ceci reste assez difficile à définir, d'une situation où le taux d'occupation des états f est plus loin de l'unité que dans les composés au cérium. Par exemple, une comparaison

entre ce modèle dual et les mesures de dHvA dans UPt₃ et dans UPd₂Al₃ mène à un taux d'occupation de $n_f = 0,65$ [47][48].

Il y a maintenant de plus en plus d'indices en faveur d'une image où coexisteraient des électrons $5f$ localisés et délocalisés. Cette situation est communément dénommée par l'appellation *valence mixte*. L'origine microscopique de cette localisation partielle reste encore obscure, mais elle est probablement due à l'intervention conjointe de, bien entendu, l'hybridation avec les électrons de conduction et la répulsion coulombienne entre les électrons $5f$ eux-mêmes. La formation des bandes de conduction et donc des quasi particules lourdes est alors due au couplage entre les électrons d et les électrons f itinérants, alors que les électrons f localisés vont tendre à réduire la répulsion coulombienne par la formation de multiplets.

Cette différence avec les composés au cérium explique entre autres pourquoi un diagramme systématique comme le diagramme de phase de Doniach où l'on passe simplement d'un état ordonné magnétiquement à un liquide de Fermi paramagnétique n'est pas disponible pour les composés à l'uranium. D'autre part, cette dualité est également responsable de la diversité et de la plus grande complexité des états fondamentaux des composés à l'uranium.

Bien entendu, les modèles traitant de cette dualité ne sont pas plus solubles que celui du réseau Kondo, et peu de descriptions microscopiques génériques de la phénoménologie des fermions lourds à l'uranium sont actuellement disponibles.

La compréhension de ces états fondamentaux conditionne bien entendu celle d'autres phénomènes, en particulier de la supraconductivité des fermions lourds. Dans beaucoup de cas en effet, ceux-ci deviennent supraconducteurs. Cependant le mécanisme microscopique d'appariement des électrons pour former des paires de Cooper d'une part varie d'un système à l'autre, d'autre part reste dans certains cas obscurs puisque trop connecté à un état normal déjà peu compris microscopiquement.

2.2.2 Supraconductivité non conventionnelle

Encore une fois, le survol des propriétés supraconductrices des fermions lourds va nous obliger à distinguer les fermions lourds au cérium de ceux à l'uranium.

Supraconductivité des fermions lourds au cérium

Il existe deux grandes classes de composés au cérium supraconducteurs : ceux appartenant à la famille des CeM₂X₂ et ceux appartenant à la famille des Ce_nM_mIn_{3n+2m}. Les premiers cristallisent dans une structure tétragonale de type ThCr₂Si₂ (voir figure 2.1). Dans cette classe de composés, les composés CeCu₂Si₂, CeCu₂Ge₂, CePd₂Si₂, CeNi₂Ge₂ et CeRh₂Si₂ sont supraconducteurs, les quatre derniers ne le devenant que par l'application d'une pression. Citons par ailleurs comme membre de cette famille le composé CeRu₂Si₂, qui parce qu'il ne présente pas de trace de supraconductivité, peut constituer également une pièce importante du puzzle pour comprendre la supraconductivité dans ces composés. Notons enfin que ces composés sont également structurellement très proches du fermion lourd à l'uranium URu₂Si₂, qui lui aussi devient supraconducteur à pression ambiante.

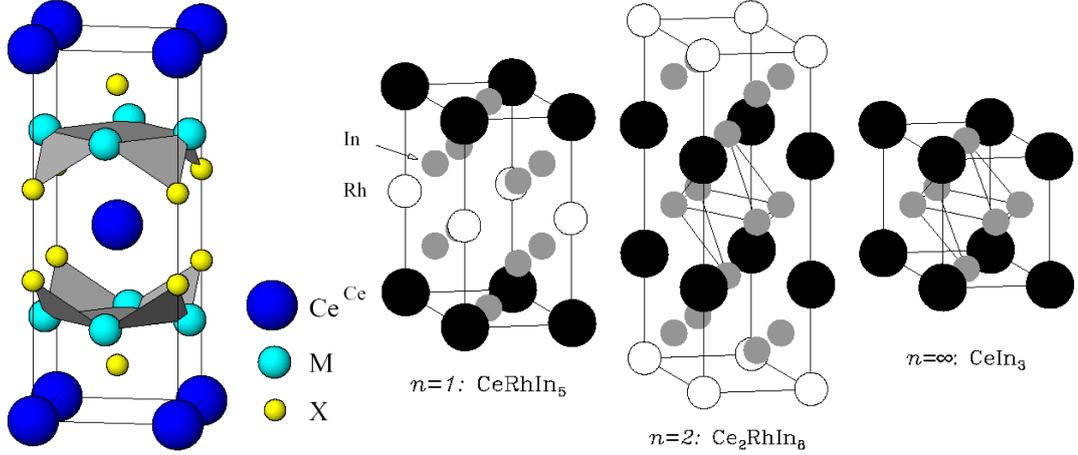


FIG. 2.1 – *A gauche*: structure cristallographique des fermions lourds CeM_2X_2 . *A droite*: structure cristallographique des fermions lourds $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$.

Les seconds, quant à eux, cristallisent tous dans une structure construite à partir de $CeIn_3$ (cubique) et de MIn_2 , pour donner une structure tétragonale anisotrope dès que $n \geq 1$ (voir figure 2.1). Ils peuvent tous être décrits par le même diagramme de phase, où conformément à l'image donnée par le modèle de Doniach on passe en pression d'un ordre antiferromagnétique à un liquide de Fermi paramagnétique. Cependant, autour de la pression où l'ordre magnétique disparaît, émerge un dôme supraconducteur. Celui-ci se trouve à pression ambiante pour $CeCoIn_5$ et $CeIrIn_5$, et à des pressions de quelques GPa pour les autres.

| Composé | T_c^{max} | P_{SC} | ref |
|--------------|---------------------------|---------------------------------------|------------|
| $CeCu_2Si_2$ | 650mK | 0 | [36] |
| $CeCu_2Ge_2$ | 640mK | 7-10GPa | [49] |
| $CePd_2Si_2$ | 550mK | 2-7GPa | [50] |
| $CeNi_2Ge_2$ | $\approx 350mK$ (100mK ?) | $\approx 1,5-3$ GPa ($P=0-0,4GPa$?) | [51]([52]) |
| $CeRh_2Si_2$ | 350mK | 0,9GPa | [53] |

TAB. 2.1 – Propriétés des supraconducteurs CeM_2X_2 .

Mis à part pour $CeCu_2Si_2$, tous ces fermions lourds semblent devenir supraconducteur à la disparition de l'ordre magnétique qui les caractérise à pression nulle¹. Notons cependant l'existence de $CeRu_2Si_2$, qui bien que possédant la même structure que les composés précédemment cités, ne présente aucune trace de supraconductivité. Il semble donc que l'apparition de la supraconductivité soit connectée à la présence d'un *point critique quantique*, dont nous discuterons au paragraphe suivant. Les mécanismes microscopiques

¹La supraconductivité à pression ambiante dans $CeNi_2Ge_2$ reste encore peu fermement établie : la supraconductivité n'a été détectée que par des mesures de résistivité, et n'est indiquée que par une chute de 30% de ρ et non par une annulation de celle-ci. Par ailleurs les valeurs de résistivité semblent très dépendantes de l'échantillon.

reliant la disparition de l'ordre antiferromagnétique à l'émergence de la supraconductivité sont encore peu clairs, d'autant que dans certains cas les deux semblent coexister, de façon assez contradictoire avec une image traditionnelle de la supraconductivité.

Deux comportements particuliers viennent compliquer encore le tableau présenté ci-dessus : d'une part, CeCu_2Si_2 exhibe en fonction du champ magnétique un diagramme de phase très compliqué avec l'apparition au dessus de la phase supraconductrice d'abord d'une phase A qui semblerait être une phase onde de densité de spin, puis d'une phase dite B [54]. La compréhension complète de la transition supraconductrice requiert également celle de la phase A . D'autre part, dans CeCoIn_5 , il semblerait qu'au voisinage du champ critique à $T = 0$, la transition supraconductrice devienne du premier ordre, et qu'un état Fulde Ferrell Larkin Ovchinnikov (FFLO), qui consiste en une modulation spatiale du paramètre d'ordre, apparaisse [157][158][159]. Notons également que dans ce composé la symétrie du paramètre d'ordre semble être $d_{x^2-y^2}$.

Supraconductivité des composés à l'uranium

Puisque les composés à l'uranium présentent une grande diversité d'états fondamentaux, il en va de même pour les phases supraconductrices qui y sont associés. En fait, les composés à l'uranium présentent plus fréquemment une phase supraconductrice que les composés au cérium. De plus, contrairement à ce qui se passe dans les CeM_2X_2 et les $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$, le scénario de criticalité quantique antiferromagnétique semble être beaucoup moins prépondérant dans les fermions lourds à l'uranium. Comme nous l'avons déjà mentionné, un des "points communs" de ces derniers est leur degré variable de localisation des électrons $5f$, cette variabilité menant évidemment à une grande diversité dans les phases supraconductrices.

Un des composés supraconducteurs les plus étudiés est probablement UPt_3 , dont la supraconductivité a été découverte en 1984 [55]. Il s'agit probablement d'un des composés les plus surprenants en ce qui concerne sa phase supraconductrice, puisqu'il exhibe un paramètre d'ordre présentant plusieurs composantes, et donc deux transitions supraconductrices, l'une à $T_{c1} = 530\text{mK}$ et l'autre à $T_{c2} = 480\text{mK}$ [56]. De plus, la première des transitions arrive alors que le système a déjà subi une transition antiferromagnétique avec un petit moment à $T_N = 5,8\text{K}$. Malgré un grand nombre de résultats expérimentaux et de propositions théoriques rappelés dans le récent article de revue par Joynt et Taillefer [57], il n'y a pas encore de consensus sur la symétrie du paramètre d'ordre et la structure du gap supraconducteur, et donc encore moins sur le mécanisme d'appariement, même si une supraconductivité de symétrie f semble être une des options les plus acceptées. Il semblerait de plus que l'ordre antiferromagnétique soit responsable de la séparation en deux températures de transition, le paramètre d'ordre antiferromagnétique agissant comme un briseur de symétrie en se couplant au paramètre d'ordre supraconducteur.

Deux autres exemples présentant une supraconductivité non conventionnelle sont les fermions lourds UPd_2Al_3 et UNi_2Al_3 . Ces deux composés très proches au niveau structural (ils cristallisent tout deux dans une structure hexagonale), possèdent cependant des propriétés assez différentes. En effet, même s'ils présentent des corrélations antiferro-

magnétiques, celles-ci se manifestent dans le premier par l'apparition d'un ordre antiferromagnétique à 14,3K, et dans le second par l'émergence d'une onde de densité de spins à 4,6K. Ceci induit quelques différences dans leur supraconductivité. Celle de UPd₂Al₃ ($T_c = 1,8K$) semble être relayée par les excitations magnétiques, et coexiste avec la phase antiferromagnétique. Par contre, celle de UNi₂Al₃ ($T_c = 1,2K$) semble être un des rares cas de supraconductivité triplet.

Un des exemples les plus surprenants de supraconductivité dans les fermions lourds est probablement UGe₂ : celui-ci présente un état fondamental *ferromagnétique* à pression nulle ($T_{\text{Curie}} = 52K$), qui disparaît vers 16kbar. Cependant, *dès 10kbar*, une phase supraconductrice émerge, coexistant avec le ferromagnétisme, et se maintient jusqu'à 16kbar avec un maximum de $T_c = 700mK$ pour $P_{\text{opt}} = 12,5kbar$ [58]. Dans l'état actuel des choses, aucun scénario satisfaisant n'est présent pour expliquer cette coexistence pour le moins surprenante, même si dès 1957 Ginzburg avait émis l'idée qu'une coexistence entre supraconductivité et ferromagnétisme ne soit pas impossible pourvu que le champ interne ne soit pas plus grand que le champ thermodynamique critique².

Enfin, tournons nous vers un exemple que nous allons par ailleurs étudier, URu₂Si₂. Ce supraconducteur à $T_c = 1,5K$ est surtout exotique en raison de sa phase haute température, qui présente un *ordre caché* dont la nature n'est pas encore à ce jour élucidée, même si un certain nombre de propositions théoriques ont été faites. Nous en discuterons plus en détail dans la quatrième partie de cette thèse.

Signalons pour terminer la découverte récente d'un supraconducteur aux électrons *f* au plutonium, PuCoGe₅ [61], dont la température critique vaut 18K, battant de loin le fermion lourd supraconducteur avec la T_c la plus élevée, CeCoIn₅ ($T_c = 2,3K$). Cette découverte peut entraîner un certain nombre d'avancées dans la compréhension globale de la supraconductivité des composés dont la physique procède d'ions aux couches *f* partiellement remplies, comme les fermions lourds.

2.2.3 Criticalité quantique

Un autre sujet d'actualité sur les fermions lourds, par ailleurs relié aux précédents, est l'existence dans les composés au cérium ainsi que dans quelques composés à l'uranium comme U₂Pt₂In, U₂Pd₂In et U₃Ni₃Sn₄, d'un point critique quantique, que nous avons déjà mentionné dans le paragraphe précédent. Originellement l'appellation point critique quantique (QCP) désigne une transition de phase du seconde ordre à température nulle (c'est-à-dire contrôlée par un autre paramètre comme la pression, la substitution chimique ou le champ magnétique). Dans le cas des fermions lourds, cette définition s'est précisée et le lieu exact du point critique quantique est là où l'ordre magnétique disparaît ($T_N = 0$ ou $T_{\text{Curie}} = 0$) pour laisser place, dans une vision idéale, à un liquide de Fermi

²Notons par ailleurs que cette situation existait déjà dans le composé ErNi₂B₂C où le ferromagnétisme coexiste de manière homogène avec la supraconductivité [59], et de façon plus réduite, à la limite de la transition de Curie dans ErRh₄B₄ et HoMo₆S₈. Notons également que la découverte de la supraconductivité dans UGe₂ a été suivie par celle dans URhGe [60].

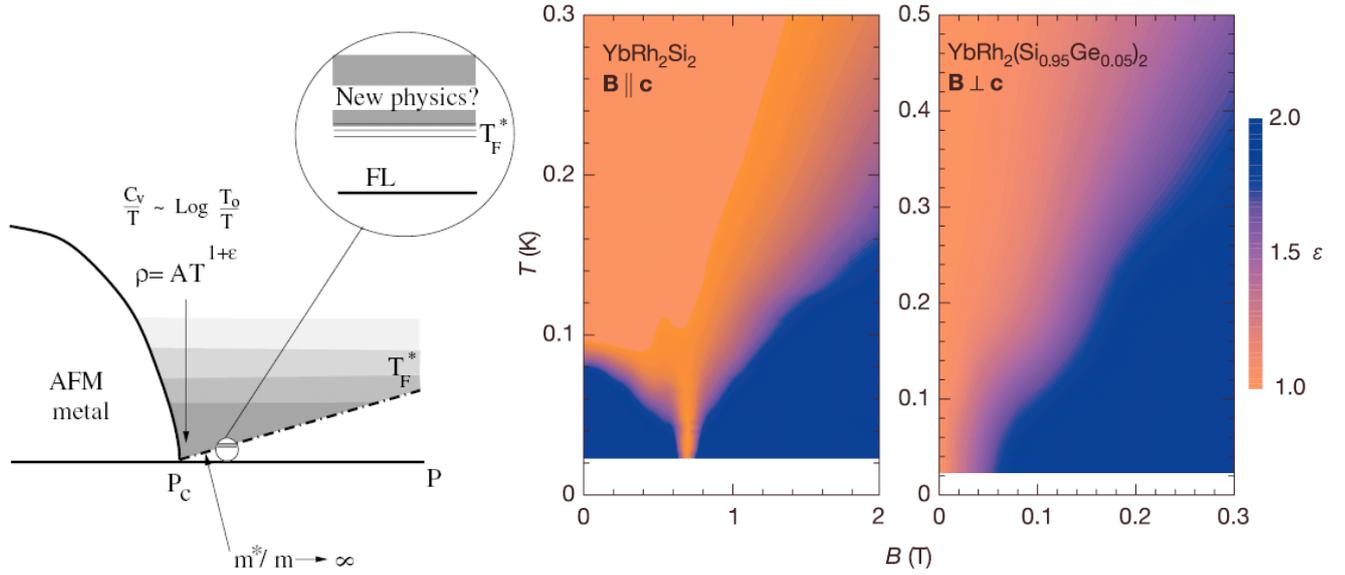


FIG. 2.2 – *A gauche*: Représentation schématique du diagramme T, P autour d'un point critique quantique. *A droite*: Diagramme de phase T, B de YbRh_2Si_2 [62].

paramagnétique.

Bien entendu l'existence d'une telle singularité à température nulle a des incidences sur les propriétés du système à température finie. En particulier, il existe un régime de fluctuations critiques, délimité par un cône dans un diagramme de phase T, P par exemple. Une illustration schématique de ce diagramme est donné figure 2.2.

Dans cette zone de fluctuations critiques, les comportements liquide de Fermi sont fortement affectés, jusqu'à être inexistantes à toute température pour $P = P_c$ ³. Les grandeurs les plus sensibles à ce régime de fluctuations sont la résistivité, qui au lieu d'être en T^2 va présenter une dépendance en température du type $T^{1+\epsilon}$, et le coefficient de chaleur spécifique $\gamma = C/T$ qui, au lieu d'être constant à basse température, va présenter une divergence à $T = 0$, souvent logarithmique, mais parfois avec des exposants plus forts en valeur absolue. Cette divergence de la chaleur spécifique est connectée à une divergence de la masse effective des quasi particules dans ces composés, celle-ci devenant infinie à $P = P_c$. Bien entendu, dès que l'on est à suffisamment basse température pour $P > P_c$, on retrouve les comportements d'un liquide de Fermi paramagnétique.

Ce diagramme de phase se retrouve dans beaucoup de fermions lourds au cérium, et en particulier ceux de la famille $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$ [63]. De plus, pour ces composés, une composante supplémentaire apparaît, masquant les propriétés de l'état fondamental à $P = P_c$: autour du point critique quantique se développe dans le diagramme de phase un dôme supraconducteur, dont le centre se situe en général très près de P_c . Quelques fermions lourds sont référencés dans les tableaux 2.2.

Le caractère systématique, tout du moins pour une classe particulière de composés, a bien entendu suscité beaucoup d'intérêt de la part de la communauté. En particulier, deux composés ont récemment beaucoup attiré l'attention : CeCoIn_5 et YbRh_2Si_2 .

³Dans toute la suite, nous prendrons la pression pour désigner le paramètre extérieur de contrôle.

| Compound | P_c/x_c | $C_v/T \rightarrow \infty?$ | $\rho \sim T^a$ | C/T | ρ |
|---|---------------|-----------------------------|-----------------|-----------------------------------|---------------------|
| CeNi ₂ Ge ₂ | $P_c = 0$ | $\log(T_0/T)^{(a)}$ | $T^{1.2}$ | | |
| YbRh ₂ (Si _{1-x} Ge _x) ₂ | $x_c = 0.05$ | $\log(T_0/T)^{(b)}$ | T | CeIn ₃ | $T^{1.5-1.6}$ |
| Ce(Cu _{1-x} Au _x) ₆ | $x_c = 0.016$ | $\log(T_0/T)$ | $T + c$ | | Near P_c |
| CeCu _{6-x} Ag _x | $x_c = 0.09$ | $\log(T_0/T)$ | $T^{1.1}$ | CeIrIn ₅ | $T^{1.3}$ |
| U ₂ Pt ₂ In | $P_c = 0$ | $\log(T_0/T)$ | T | | for $H = 6$ T |
| U ₂ Pd ₂ In | $P_c < 0$ | ? | $T + c$ | CeCoIn ₅ | $-\ln T$ |
| CePd ₂ Si ₂ | $P_c > 0$ | ? | $T^{1.2}$ | CeRhIn ₅ | T^1 |
| CeIn ₃ | $P_c > 0$ | ? | $T^{1.5}$ | | $P = 3.2$ GPa |
| U ₃ Ni ₃ Sn ₄ | $P_c > 0$ | No | ? | Ce ₂ RhIn ₈ | $T^{0.95 \pm 0.05}$ |
| CeCu ₂ Si ₂ | $P_c = 0$ | No | $T^{1.5}$ | | $P = 1.63$ GPa |

TAB. 2.2 – Quelques fermions lourds et leur caractéristiques au point critique quantique. *A droite*: données pour la famille des Ce_nM_mIn_{3n+2m}. Notons que pour CeCoIn₅ et pour CeIrIn₅, le point critique quantique est supposé être à pression négative, de même que pour CeRu₂Si₂ qui n'est pas dans ces tableaux.

En effet, ces deux composés présentent l'avantage d'être très proches du point critique quantique à pression atmosphérique. Expérimentalement, on peut donc très facilement mesurer les propriétés de la phase de fluctuations critiques quantiques, et donc aisément explorer leur diagramme de phase. Dans le cas de YbRh₂Si₂, la position du point critique quantique est donnée par la composition chimique du composé substitué au germanium YbRh₂(Si_{1-x}Ge_x)₂, dopage équivalent à l'application d'une pression, et est dépendante du champ magnétique. En effet, pour $x = 0$, il existe un point critique quantique mis en évidence par des mesures de résistivité à $B_c = 0,66$ T, et celui-ci tombe à champ nul pour $x = 0,5$. On peut voir ce comportement figure 2.2.

En ce qui concerne CeCoIn₅, ce composé relativement jeune comparé aux autres fermions lourds n'a pas encore révélé toutes ses surprises. Cependant, les études de résistivité sous pression montrent qu'il est tout près de la pression critique, qui elle serait négative, aucune trace d'ordre magnétique ne pouvant être trouvée à pression ambiante [160].

Dans ce contexte, un grand effort expérimental a été fait ces dernières années pour amasser le plus de données autour de ces comportements, afin d'une part d'en dégager l'universalité (si elle existe) et d'autre part pour aider à trouver le meilleur modèle microscopique décrivant ces fluctuations quantiques. Il existe en effet deux versions du même phénomène, la première supposant que le point critique quantique correspond à une instabilité de la surface de Fermi du type onde de densité de spin [64][65], la seconde prenant pour base ce que nous avons déjà mentionné plus tôt, c'est-à-dire le fait que les fermions lourds sont des systèmes composites formés par l'hybridation entre les moments locaux et les électrons de conduction [46]. Dans le premier cas, l'augmentation de la masse des quasiparticules serait le résultat de la transformation d'un électron en un électron auquel s'ajouterait des fluctuations de spin. Une revue récente sur les différences entre ces deux scénarios est donnée référence [66].

Bien entendu, les trois thèmes abordés sont tous, comme on l'a vu, intimement reliés, et la compréhension par exemple de la supraconductivité ou de l'occurrence des divers états fondamentaux dans les fermions lourds implique la compréhension de tout le diagramme de phase du composé et/ou de la classe de composés. Un certain nombre de composés n'ont été découverts que très récemment, en particulier la famille des $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$, bien qu'un nombre considérable de données ait déjà été accumulé sur le sujet. Et plus que pour les composés à l'uranium, les composés au cérium présentent des caractéristiques communes qui en font des systèmes idéaux pour une compréhension — sait on jamais? — universelle du comportement des fermions lourds.

Deuxième partie

Mesures de conductivité thermique
dans les phases normale et
supraconductrice d'un cuprate
optimalement dopé

Chapitre 3

La conductivité thermique comme sonde expérimentale

3.1 Conductivité thermique de la phase supraconductrice

Dans les cuprates, une des caractéristiques de la conductivité thermique de la phase supraconductrice est de présenter un terme linéaire fini dans la limite $T \rightarrow 0$. Cette propriété, observée depuis une décennie [67], constitue une signature très forte de la présence de nœuds dans le gap supraconducteur. En effet, dans un supraconducteur de type *s-wave*, c'est-à-dire présentant un gap sur toute la surface de Fermi, seuls les phonons contribuent au transport d'entropie à basse température. Or, les théories classiques du transport nous enseignent que la conductivité thermique peut s'écrire [70] :

$$\kappa = \frac{1}{3}cvl \quad (3.1)$$

où c est la chaleur spécifique des porteurs impliqués dans le processus de transport, v leur vitesse moyenne et l leur libre parcours moyen. A suffisamment basse température, le transport n'implique plus que des processus élastiques, le libre parcours moyen est constant, et donc la conductivité thermique possède la même dépendance en température que la chaleur spécifique. Or celle-ci est, pour des phonons, en T^3 et linéaire en température pour des électrons. L'observation d'un terme linéaire dans la conductivité thermique dans la limite $T \rightarrow 0$ constitue donc déjà un indice très fort sur la présence d'excitations de type quasi-particules.

Par ailleurs, en plus d'exister dans le cas de gap présentant des nœuds, le terme linéaire de conductivité thermique doit être *universel* [68][69], c'est-à-dire indépendant de la concentration et de la nature des impuretés¹. La seule "dépendance" de ce résultat avec les impuretés est son domaine de validité, qui est donné par $k_B T \ll \gamma \ll k_B T_c$, où γ

¹Notons que la présence d'impuretés, même en très faibles quantités, est nécessaire pour observer ce terme linéaire. En effet, dans le cas d'un supraconducteur parfaitement propre, la densité d'état n'est plus constante à basse température mais linéaire — et donc *nulle* à $T \rightarrow 0$ — et les excitations de type quasi-particules disparaissent à température nulle.

est l'énergie caractéristique associée à la diffusion par les impuretés et T_c la température de transition (la seconde inégalité caractérisant la limite dite *propre*).

En particulier, dans le cas d'un gap $d_{x^2-y^2}$, comme il semble que ce soit le cas dans les cuprates d'après, par exemple, les mesures d'ARPES [71][72], la contribution des quasi-particules à la conductivité thermique vaut, toujours à basse température [69] :

$$\kappa = \frac{\pi^2}{3} N_f v_f^2 \frac{2}{\pi |d\Delta(\varphi)/d\varphi|_{\varphi_{\text{noeud}}} T$$

où Δ est le gap et $|d\Delta(\varphi)/d\varphi|_{\varphi_{\text{noeud}}}$ sa dépendance angulaire, c'est-à-dire la *pente du gap*, au voisinage d'un nœud. Si l'on considère que le paramètre d'ordre peut s'écrire $\Delta_k = \frac{\Delta_0}{2}(\cos k_x a - \cos k_y a)$, alors l'énergie au voisinage du nœud peut s'écrire :

$$E_k = \sqrt{v_F^2 k_F^2 + v_2^2 k_2^2}$$

et la conductivité thermique [73], si $\left(\frac{v_F}{v_2}\right)^2 \gg 1$:

$$\frac{\kappa}{T} = \frac{k_B^2}{3\hbar} \frac{n}{d} \left(\frac{v_F}{v_2} + \frac{v_2}{v_F} \right) \approx \frac{k_B^2}{3\hbar} \frac{n}{d} \left(\frac{v_F}{v_2} \right) \quad (3.2)$$

où n/d est la densité linéique de plans cuivre-oxygène, v_F est la vitesse de Fermi (perpendiculaire à la surface de Fermi $v_F = \frac{d\epsilon_k}{dk_1}$) et v_2 est la vitesse donnant la *pente du gap* ($v_2 = \frac{1}{\hbar} \left| \frac{d\Delta}{dk} \right|_{\text{noeud}}$ parallèle à la surface de Fermi).

Finalement, le terme linéaire de conductivité thermique est un outil permettant de sonder la structure du gap, ainsi que son amplitude, qui est reliée à v_2 par :

$$\Delta_0 = \frac{\hbar k_F v_2}{2} \propto \left(\frac{\kappa(T \rightarrow 0)}{T} \right)^{-1} \quad (3.3)$$

3.2 Conductivité thermique de la phase normale à $T = 0$

Comme dans la phase supraconductrice, la conductivité thermique de la phase normale permet de sonder les excitations élémentaires et les propriétés de transport du système. Classiquement, un certain nombre de processus interviennent dans la conductivité thermique, selon la température et le type de système que l'on considère (voir par exemple [70]). Nous allons ici, tout comme dans la phase supraconductrice, nous intéresser à la limite $T \rightarrow 0$. Dans cette limite, une des propriétés essentielles du liquide de Fermi est la satisfaction de la loi de Wiedemann-Franz, qui relie la conductivité thermique et la conductivité électrique :

$$\frac{\kappa}{\sigma T} = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 = L_0 \quad (3.4)$$

où $L_0 = 2,48 \cdot 10^{-8} \text{W}\Omega\text{K}^{-2}$ est appelé le nombre de Lorentz. L'essence de cette relation est de dire que si les processus de diffusion sont les mêmes pour le transport électrique

que pour le transport thermique (autrement dit si les collisions sont élastiques), alors comme ce sont les mêmes agents — les quasi-particules — qui transportent la charge et l'entropie, les conductivités correspondant aux deux types de transport sont intimement liées. Il va sans dire que dans la relation 3.4, il s'agit de la conductivité thermique *des quasi-particules uniquement*.

A basse température, le même raisonnement qu'au paragraphe précédent donne les dépendances en température des conductivités des phonons et des électrons, ce qui permet de distinguer les deux contributions et d'extraire la conductivité thermique électronique.

La loi de Wiedemann-Franz, tout d'abord empiriquement observée par ceux dont elle porte le nom en 1853, a été ensuite démontrée dans le cadre de la théorie classique du transport [70]. Cette loi est extrêmement robuste, et doit être vérifiée tant à trois qu'à deux dimensions, quelque soit le degré de désordre, le type d'interaction, la valeur du champ magnétique... Expérimentalement, elle est universelle dans la limite $T \rightarrow 0$ et a été vérifiée dans des systèmes très divers, des métaux simples aux fermions lourds et aux gaz bi-dimensionnels, et même lorsque ces systèmes présentaient des déviations notables par rapport aux comportements attendus pour un liquide de Fermi (résistivité quadratique, chaleur spécifique linéaire...).

Bien entendu, dès qu'il existe un autre biais (en oubliant les phonons) de transporter la charge sans l'entropie ou inversement, la loi de Wiedemann-Franz n'est plus censée être valide. Par exemple, dans un liquide de Luttinger le rapport de Lorentz $L = \frac{\kappa}{\sigma T}$ dévie fortement de la valeur L_0 [83]. Plus fondamentalement donc, la loi de Wiedemann-Franz dans la limite $T \rightarrow 0$ teste le caractère liquide de Fermi des excitations élémentaires du système. Dès que ces excitations ne présentent plus un caractère quasi-particulaire à la Landau, alors la relation 3.4 n'est plus satisfaite.

Or un certain nombre de scénarios ont émergés pour interpréter les comportements inexpliqués dans la phase haute température des cuprates. En particulier, certains modèles font apparaître le *fractionnement* des électrons, qui se sépareraient en un "spinon" transportant l'entropie, mais neutre, et un holon, boson de charge e [84][85]. Bien entendu, dans ce cas, la loi de Wiedemann-Franz est violée [86][87]. Par contre, si l'état fondamental de la phase normale est un liquide de Fermi, même marginal, ou bien s'il existe un ordre autre que la supraconductivité (par exemple une onde de densité de charge), elle doit être vérifiée [88]. Vérifier la loi de Wiedemann-Franz dans la phase normale à basse température fournit donc un moyen binaire de trancher entre différents scénarios.

3.3 Conductivité thermique dans les cuprates : l'état de l'art

Bien entendu, la conductivité thermique de la phase normale et celle de la phase supraconductrice ont été très rapidement mesurées dans les cuprates, et dans beaucoup de gammes de températures. En effet, en dehors de la limite $T \rightarrow 0$, le gap $d_{x^2-y^2}$ entraîne d'autres anomalies de la conductivité thermique dans différents régimes, en particulier l'effet Volovik dans la phase vortex. Le pic de conductivité thermique à la transition supraconductrice a également largement été étudié afin de mettre à jour les mécanismes

d'appariement et de transition. Cependant, nous allons ici nous concentrer sur la limite basse température de la conductivité thermique, définie comme plus haut par $T \ll T_c$.

3.3.1 Phase supraconductrice

La première mesure qui témoigne du caractère universel de la conductivité thermique dans la limite $T \rightarrow 0$ date de 1997 [67], où la substitution d'ions cuivre par des ions zinc dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$, permettant d'augmenter d'un facteur 40 le taux de diffusion, laisse la valeur du terme électronique inchangée à $T = 0$.

Ce résultat, allié aux considérations théoriques que nous venons d'exposer, a constitué une pièce importante pour arriver au consensus sur la symétrie d du paramètre d'ordre. L'étude de ce terme linéaire s'est bien entendu prolongée, avec l'objectif d'explorer le diagramme de phase tant en dopage qu'en champ magnétique. Un des résultats les plus surprenants a été la découverte, en 2000, de *l'absence de terme linéaire* dans Y-248 sous-dopé [82], qui pouvait être interprétée comme la manifestation soit de l'apparition d'un autre gap (ou peut-être d'une composante imaginaire), soit comme l'indication d'une localisation des quasi-particules par les impuretés.

Ensuite, ce terme linéaire a également été mesuré dans Bi-2212 au dopage optimal [76], et son universalité établie par des mesures de conductivité thermique dans des échantillons optimalement dopés irradiés par des électrons [77].

C'est en 2002 qu'une première étude systématique du terme linéaire à différents dopages est réalisée, et ceci dans LSCO [78]. Takeya *et al.* observent alors que le terme linéaire croît rapidement lorsque le dopage augmente, partant de zéro pour la zone non supraconductrice. Ces études en fonction du dopage permettent alors de tirer une valeur du gap supraconducteur selon la procédure explicitée au paragraphe précédent, et par ailleurs introduite depuis 1999 dans la littérature [75]. Le résultat le plus frappant de ces études est que, contrairement à ce qui se passe pour les supraconducteurs conventionnels où, pour une symétrie d , $\Delta_{BCS} = 2,14k_B T_c$, *la variation du gap supraconducteur n'est pas la même que celle de T_c* . En effet, bien que celui-ci parte normalement de 0 pour les composés fortement surdopés et suive relativement bien la relation BCS dans la zone surdopée du diagramme de phase, il continue d'augmenter alors que T_c diminue lorsque l'on passe du côté sous-dopé du diagramme de phase. Ce comportement, observé dans YBCO et LSCO [78][74], donne par ailleurs pour YBCO des valeurs du gap qui sont cohérentes avec celles fournies par les mesures d'ARPES².

Finalement, bien que les premières mesures de dépendance en champ magnétique du terme linéaire aient été effectuées très tôt [75], il faut attendre 2003 pour qu'une étude systématique soit réalisée [95]. Les résultats, obtenus dans des cristaux de LSCO, mettent à jour un *crossover* dans la dépendance en champ magnétique de κ_0/T lorsque l'on passe d'un échantillon sous dopé à un échantillon sur dopé : alors que le terme linéaire de conductivité thermique *diminue* avec le champ magnétique dans la partie sous-dopée, il augmente avec celui-ci dans la partie sur-dopée. La comparaison de ces résultats avec ceux de résistivité à 60T montre que la diminution du terme linéaire est couplée dans

²Dans le cas de LSCO, les valeurs de $\frac{\kappa_0}{T}$ sont trop petites pour pouvoir fonctionner avec les valeurs de l'équation 3.2, qui ne peut donc pas s'appliquer.

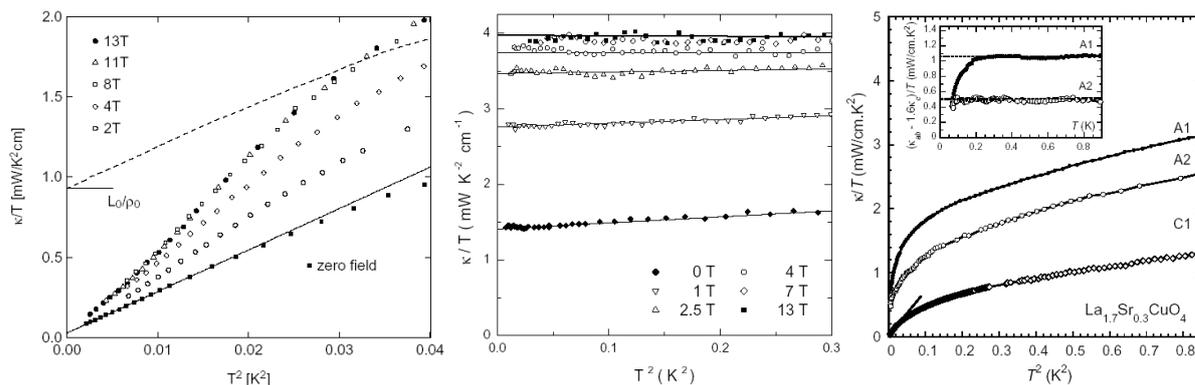


FIG. 3.1 – Conductivité thermique dans la phase normale de, de gauche à droite : PCCO au dopage optimal [81], TI-2201 surdopé [80] et LSCO très surdopé [79]. On observe la chute de κ à basse température pour le premier et le dernier.

LSCO à l'entrée dans le régime de localisation dans les échantillons sous-dopés. Cette diminution a donc été naturellement attribuée à la localisation par le champ magnétique des quasi-particules nodales. Ceci a été observé de façon simultanée à Toronto [96], et un comportement similaire a été rapporté dans YBCO [97], même si les variations en champ sont beaucoup plus faibles dans ce dernier cas ($\pm 5\%$ dans YBCO contre $+200\%$ et -50% dans LSCO, à 15T).

3.3.2 Phase normale

Comme nous l'avons déjà dit, un des points centraux de la compréhension de la physique des cuprates est de savoir si la phase non supraconductrice est un liquide de Fermi, et la loi de Wiedemann-Franz constitue une sonde à température nulle très forte de la nature des excitations élémentaires.

Bien entendu, la variation de la conductivité thermique en champ magnétique indique sa valeur dans la phase normale, mais dans la majorité des cas ceci ne fait que montrer une tendance. En effet, la supraconductivité dans les cuprates étant très robuste, les champs magnétiques nécessaires pour la détruire et pouvoir sonder la phase normale à basse température et au dopage optimal sont particulièrement élevés et généralement inaccessibles en DC aujourd'hui. Ceci explique pourquoi peu d'études expérimentales de la loi de Wiedemann-Franz ont été effectuées jusqu'à présent.

Cependant, il existe quelques composés dont la T_c est suffisamment basse pour que le champ critique puisse être atteint avec les moyens technologiques actuels. Le premier à avoir été mesuré est PCCO, cuprate dopé aux électrons, pour lequel le champ critique au dopage optimal vaut environ 13T [81]. Les résultats rapportés alors sont particulièrement surprenants : pour la première fois, la loi de Wiedemann-Franz est violée dans un métal, et ceci de deux façons : pour $T > 300\text{mK}$, le terme électronique à 13T présente un excès d'un facteur $\approx 1,7$ par rapport à la loi de Wiedemann-Franz, puis à plus basse température survient une chute très rapide de cette contribution électronique jusqu'à une valeur à température nulle donnée par $\kappa_0/T = 0,03-0,07\text{mW/K}^2\text{cm}$, valeur

considérablement plus petite que la valeur attendue par la loi de Wiedemann-Franz et la résistivité ($0,91\text{mW}/\text{K}^2\text{cm}$) d'une part, et d'autre part que les valeurs des termes linéaires observées dans les autres cuprates dans la phase supraconductrice.

Après ces résultats, la validité de la loi de Wiedemann-Franz a été testée dans deux autres composés, $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ surdopé [80], ainsi que dans LSCO extrêmement surdopé et non supraconducteur [79]. Les mesures dans Tl-2201 montrent une vérification parfaite de la loi de Wiedemann-Franz, avec une précision de l'ordre de 5%, témoignant de la nature liquide de Fermi de l'état fondamental de ce cuprate, dans la partie sur-dopée loin du dopage optimal. Les résultats dans LSCO sont intéressants à deux titres : si l'on ne regarde que les données au dessus de 250mK, la loi de Wiedemann-Franz est vérifiée à quelques % près, étendant les résultats obtenus sur Tl-2201. Cependant, de la même manière que dans PCCO, la conductivité thermique montre une chute très brutale en dessous de 200mK, pour tomber très rapidement à 0. Tous ces résultats sont montrés figure 3.1.

Une chute de conductivité thermique embarrassante

Cependant, cette chute de conductivité thermique apparaissant dans les mesures de LSCO semble extrinsèque, n'apparaissant que dans un des deux échantillons présentés. De plus, une série de manipulations effectuées sur des cristaux de YBCO ont montré que la présence de cette chute à basse température était clairement liée à la qualité des contacts : un échantillon de YBCO ne présentant pas cette chute l'exhibait après un traitement mécanique brutal des contacts. De plus, cette chute a également été observée dans deux des échantillons de Tl-2201 où la loi de Wiedemann-Franz était vérifiée [105].

Indiquant peut-être plus encore le caractère extrinsèque de ce comportement, nous avons mesuré la conductivité thermique dans la phase normale à basse température dans NbSe_2 , et observé une chute similaire de la conductivité thermique. Ainsi, plutôt que d'être reliée à une physique exotique, cette chute de conductivité thermique semble plus être un artefact expérimental qu'une propriété fondamentale des cuprates³. En particulier, la chute du terme linéaire dans PCCO est probablement également d'origine extrinsèque [104].

Bien entendu, la cause précise de l'apparition de cet effondrement du terme électronique n'est pas encore très claire. Cependant, on peut imaginer un scénario caricatural en ces termes : de mauvais contacts entraînent une thermalisation de l'échantillon majoritairement via les phonons, et, à basse température, le couplage entre les électrons et les phonons devient suffisamment mauvais pour que les quasi-particules ne ressentent plus l'injection de chaleur dans l'échantillon. Le transport d'entropie se fait de plus en plus par les phonons, menant à une chute apparente de la contribution électronique à la conductivité thermique. Cela étant dit, la raison pour laquelle ce comportement est observé dans PCCO, LSCO, et pas dans Bi2201 par exemple, n'est pas encore claire.

³Ceci par ailleurs permet de jeter un autre regard sur les résultats dans Y-248 sous-dopé : la nullité du terme linéaire dans la phase supraconductrice de ce composé peut largement être due à la présence de cette chute.

Ce problème de la chute de conductivité va par ailleurs perturber l'extraction du terme linéaire dans la conductivité thermique dans PCCO : en effet, cette chute pourrait éventuellement masquer une décroissance plus modérée de la conductivité thermique qui mènerait à une vérification de la loi de Wiedemann-Franz. D'autres mesures sont donc nécessaires pour savoir si l'excès de conductivité thermique observé dans PCCO est robuste et mène à plus basse température à une violation *réelle* de la loi de Wiedemann-Franz (et si, par ailleurs, cette violation s'aggrave au fur et à mesure que l'on s'approche de l'isolant de Mott), ou bien si cette dernière est en fait vérifiée si l'on arrive à obtenir des données non perturbées par cette chute extrinsèque. En résumé, bien qu'il semble maintenant acquis que l'état fondamental des cuprates surdopés soit un liquide de Fermi, ceci reste à vérifier pour le dopage optimal.

C'est dans cette optique et dans ce contexte que nous avons commencé à réaliser des mesures de conductivité thermique dans la phase normale et dans la limite $T \rightarrow 0$ d'un autre composé, Bi-2201, autour du dopage optimal.

Chapitre 4

Mesurer la conductivité thermique à haut champ et basse température : un défi technologique

Déterminer la conductivité thermique électronique de la phase normale d'un supraconducteur dans la limite $T=0$ est quasiment contradictoire dans les termes. En effet, il faut aller à basse température pour pouvoir extraire le terme électronique linéaire de la conductivité thermique, mais c'est justement à basse température que l'on se trouve dans la phase supraconductrice, et non plus dans la phase normale. D'où l'idée d'utiliser le champ magnétique pour s'affranchir de la transition supraconductrice et sonder ainsi la phase normale jusqu'aux plus basses températures.

Mais ce qui peut sembler facile si l'on a en tête les ordres de grandeur des champs et températures critiques des supraconducteurs conventionnels devient un véritable défi technique pour les cuprates, qui présentent pour la majorité d'entre eux autour de leur dopage optimal des champs critiques non atteints aujourd'hui par des bobines DC. Par ailleurs, l'utilisation d'un champ intense rend bien évidemment l'expérimentation plus compliquée : contraintes d'espace, de temps, forts effets du magnétisme sur les mesures...

Pour faire face à ces difficultés, nous avons développé un dispositif expérimental qui nous a permis de réussir ces mesures.

4.1 Dispositif expérimental

Le principe général de la mesure sera plus amplement décrit dans la partie suivante, concernant les mesures thermoélectriques. Nous ne détaillerons ici que les spécificités pour la mesure de conductivité thermique sous champ, et nous renvoyons le lecteur au chapitre suivant pour plus de détails.

Nous avons, en raison de la présence d'un haut champ magnétique, utilisé un porte échantillon en araldite, placé à l'intérieur de la chambre de mélange d'un cryostat à dilution Kelvinox *top-loading* [89]. Avec ce dispositif la température de la chambre de mélange est descendue jusqu'à 25mK à 0T et 40mK à 25T, ce qui nous a permis de faire des mesures pour une température de l'échantillon de 150mK à 25T . Afin d'éviter que

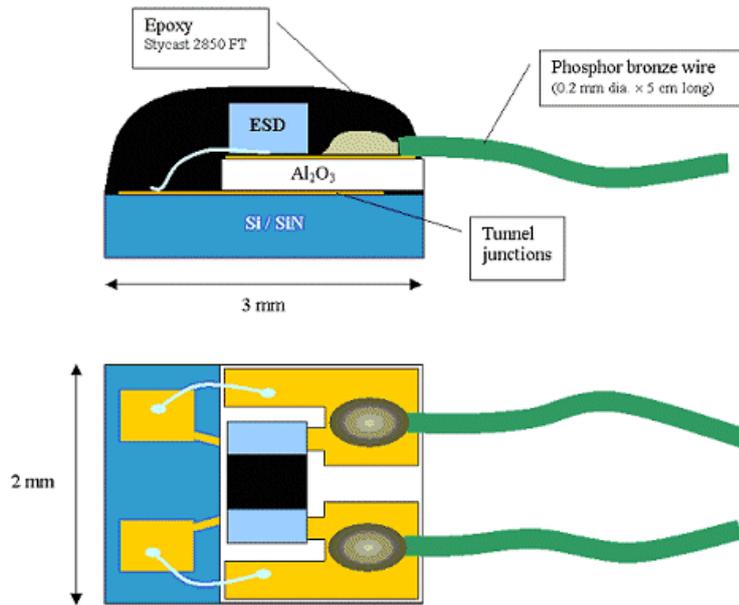


FIG. 4.1 – Schéma d'un thermomètre à blocage de Coulomb(CBT).

les vibrations ne perturbent la mesure des thermomètres, nous avons fixé les colonnes de fils de manganin torsadés auxquelles ceux-ci sont attachés par des haubans en filament de kevlar.

Bien entendu, les champs magnétiques nécessaires à ces mesures ne sont pas actuellement disponibles en laboratoire, et nous avons effectué ces expériences au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses (LCMI) à Grenoble.

4.2 Thermométrie à haut champ magnétique : thermométrie à blocage de Coulomb

Il va de soit que la mesure de la conductivité thermique, en ce qu'elle procède d'une mesure de gradient thermique, requiert une très bonne thermométrie. Au delà des précautions d'ordre technique prises pour éviter toute perturbation de la mesure et augmenter au maximum la sensibilité (filtres, torsadage, choix judicieux des thermomètres...), une calibration irréprochable des thermomètres est indispensable. Or la configuration de ces mesures induit un dilemme : pour mesurer la température avec une grande précision à basse température et avec un espace limité, des thermomètres résistifs, comme les oxydes de ruthénium que nous avons utilisés, sont requis. Mais l'application d'un champ magnétique va considérablement fausser les mesures en raison de la magnétorésistance des thermomètres. Nous avons donc utilisé un dispositif pour calibrer la magnétorésistance de nos thermomètres : le thermomètre à blocage de Coulomb (CBT, *Coulomb Blockade Thermometry*).

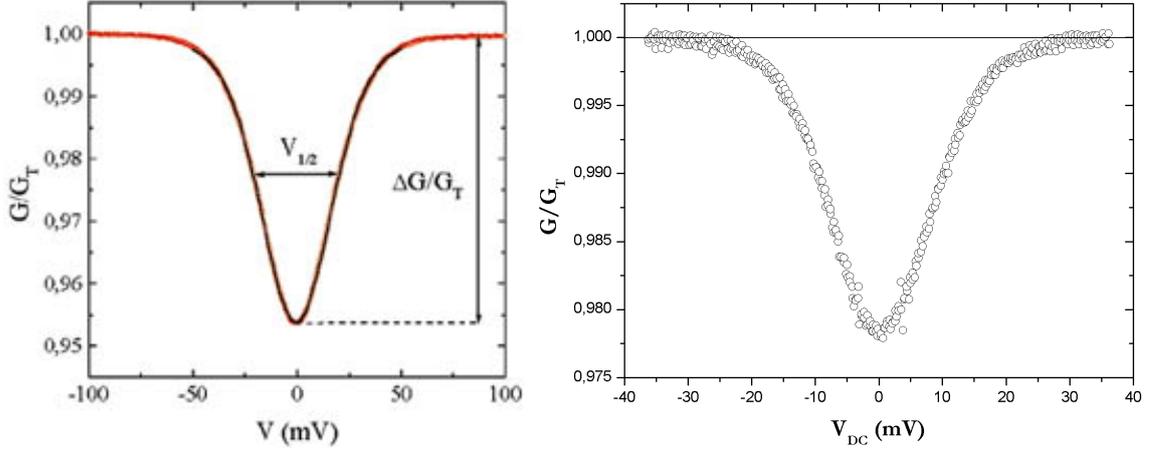


FIG. 4.2 – *A gauche* : Fonction $g(x) = \frac{x \sinh x - 4 \sinh^2 x/2}{8 \sinh^4 x/2}$, caractéristique de la conductance différentielle d'un réseau de jonction tunnel. *A droite* : conductance différentielle mesurée vers 400mK.

4.2.1 Principe de fonctionnement

Un CBT, produit par la société Nanoway, Finlande, est composé d'une série (100 dans notre cas) de jonctions tunnels Al/AlO_x/Al, fabriquées par évaporation/oxydation d'aluminium [90] sur un substrat de silicium, et enrobé de stycast en guise de protection électrique et physique (voir fig. 4.1). On peut montrer, par une simple analyse, que dans un régime haute température défini par $k_B T \gg \epsilon_c = \frac{e^2}{2C_{eff}}$, où ϵ_c est l'énergie de charge de la jonction, et C_{eff} la capacité équivalent de la jonction ($C_{eff} \approx 100$ fF, soit $\epsilon_c \approx$ qq mK), la conductivité différentielle peut s'écrire en fonction de la température et de la tension continue imposée $V(bias)$ [91][92] :

$$G = G_T \left[1 - \frac{\epsilon_c}{k_B T} g \left(\frac{eV}{N k_B T} \right) \right] \quad (4.1)$$

où G_T est la conductance différentielle à fort *bias*, N le nombre de jonctions et g une fonction définie par :

$$g(x) = \frac{x \sinh x - 4 \sinh^2 x/2}{8 \sinh^4 x/2}$$

Ceci implique, en calculant semi-numériquement cette fonction, que la largeur à mi-hauteur (fig. 4.2) vaut :

$$V_{1/2} = 5,439 N k_B T / e \quad (4.2)$$

Le CBT est donc un thermomètre primaire, fonctionnant — en ce qui concerne celui que nous avons utilisé — entre 20mK et 1K. Par ailleurs — et c'est là tout l'intérêt de mettre en œuvre cette thermométrie — la conductance différentielle du CBT est strictement indépendante du champ [90]. Nous avons donc utilisé ce dernier pour étalonner la magnétorésistance de nos thermomètres. Le schéma de la mesure est donné figure 4.3.

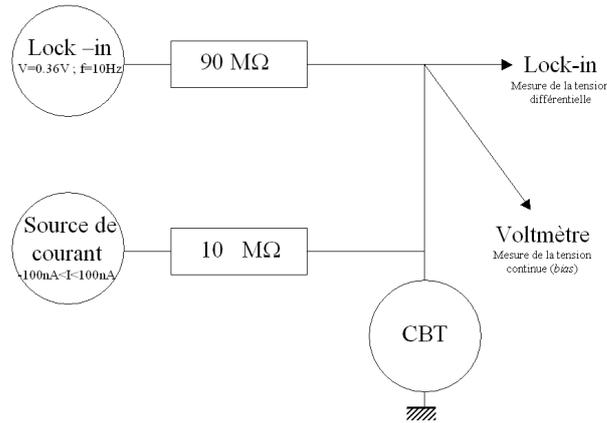


FIG. 4.3 – Schéma de la mesure du CBT.

4.3 Procédure de calibration : principe et validation

La calibration s’est effectuée en deux étapes. Tout d’abord, nous avons étalonné nos thermomètres de mesures à champ nul à l’aide d’un thermomètre au Germanium calibré par Lakeshore, ce qui nous a permis d’avoir une très bonne calibration des résistances en fonction de la température. Toujours à champ nul¹, nous avons mesuré la courbe donnant les résistances en fonction de la largeur à mi-hauteur de la conductance différentielle du CBT $V_{1/2}$.

Ensuite, nous avons fait exactement — et strictement dans les mêmes conditions de courants, d’impédance d’entrée et de sortie... — la même mesure à 25T. En considérant que $V_{1/2}$ n’a pas été affectée par le champ magnétique, la comparaison entre les deux mesures donne la magnétorésistance des thermomètres.

Afin de valider cette procédure, nous avons mesuré rapidement la conductivité thermique d’un fil d’or, et cherché à vérifier la loi de Wiedemann-Franz. Les résultats sont donnés fig. 4.4.

L’or est un très bon conducteur, donc la contribution des phonons à la conductivité thermique est négligeable. Celle-ci, purement électronique, est donc linéaire et $\kappa/T = \text{cste}$. On voit que l’application d’un champ magnétique multiplie la résistivité par un facteur 3,5 (L_0/ρ est divisé d’autant), mais que, comme attendu dans un métal simple, la conductivité thermique est, elle aussi, divisée par ce même facteur. On vérifie la loi de Wiedemann-Franz dans l’or à 1% à 0T, et à 3% à 25T, ce qui valide intégralement notre procédure.

4.4 Echantillons

Nous avons utilisés des échantillon de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ de dimensions typiques $(2 - 8) \times (400 - 800) \times (600 - 900) \mu\text{m}^3$, dopés en remplaçant les ions Sr^{2+} par des ions Bi^{3+} [93]. Le dopage des échantillons de $\text{Bi}_{2+x}\text{Sr}_{2-x}\text{CuO}_{6+\delta}$ que nous avons réussi à réaliser est compris

¹En fait à 0,5T, le CBT devant être soumis à un petit champ pour fonctionner. Cependant, la variation de la résistance des oxydes de ruthénium est négligeable pour un champ aussi faible.

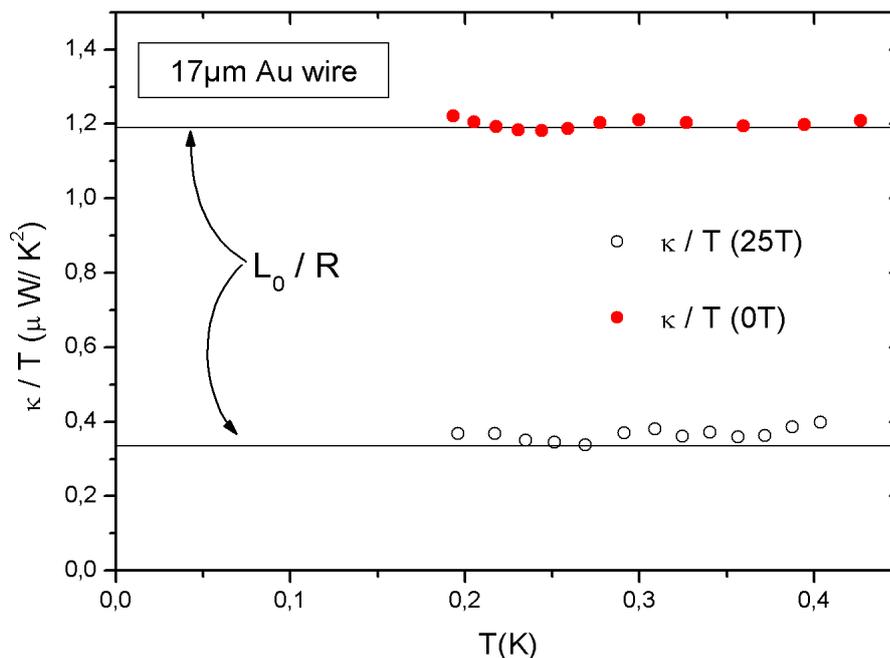


FIG. 4.4 – Conductivité thermique divisée par la température d’un fil d’or. *En haut* : résultats à champ nul. *En bas* : Résultats à 25T.

entre $x = 0,17$ et $x = 0,7$, et la température critique maximum obtenue vaut $T_c = 10,5K$.

Cette température critique est faible comparée à celle qui est obtenue en dopant le composé stoechiométrique $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ avec des ions La^{3+} plutôt qu’avec des ions Bi^{3+} , et qui vaut 38K [94]. Il semblerait donc que le désordre associé à la substitution par des ions Bi^{3+} est plus fort que celui associé à la substitution par des ions La^{3+} .

Nous avons déterminé le dopage de nos échantillons d’une part par des mesures d’effet Hall, d’autre part en comparant les températures de transition et les résistivités résiduelles de nos échantillons (voir fig. 4.5). En effet, il a été reporté que la mesure de la quantité $\frac{R_{HE}}{V_0}$, où V_0 est le volume d’une maille élémentaire, constitue une mesure relativement bonne du dopage [6]. Nous avons pu déterminer que le dopage de nos échantillons variait entre $p = 0,14$ (échantillon légèrement sur-dopé) et $p = 0,19$ (échantillon légèrement sous-dopé).

Nous avons donc réussi à synthétiser des échantillons qui non seulement sont au dopage optimal (en considérant le nombre de porteurs), mais qui ont une température et un champ critique suffisamment faible pour que l’on puisse sortir de la phase supraconductrice à l’aide des champs magnétiques continus disponibles techniquement : *nous sommes donc en mesure de sonder — dans la limite $T \rightarrow 0$ — l’état fondamental de la phase normale d’un cuprate au dopage optimal*, et donc de vérifier la validité de la loi de Wiedemann-Franz.

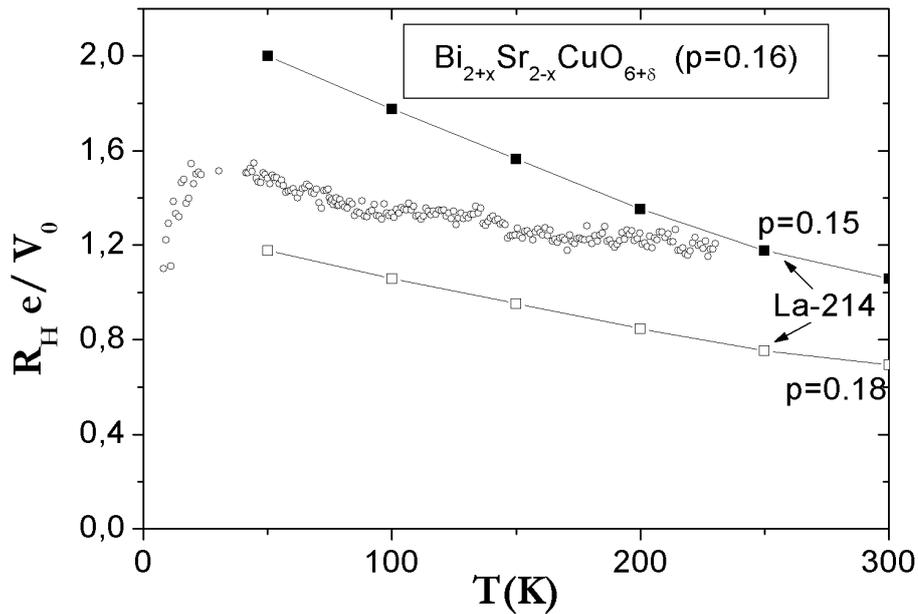


FIG. 4.5 – Coefficient Hall renormalisé dans Bi-2201. Une comparaison avec les données de LSCO [6] permet de tirer le dopage $p \approx 0,16$.

4.5 Estimation des barres d'erreur

Les principales sources d'erreur dans nos mesures sont :

- ① la détermination du facteur géométrique, en particulier de l'épaisseur.
- ② corrélé au premier point, la largeur des contacts qui peut induire une différence entre le facteur géométrique effectif pour la résistivité et celui pour la conductivité thermique.
- ③ bien entendu, la calibration de nos thermomètres et l'extraction de la conductivité thermique.
- ④ d'éventuelles contributions d'axe c à la résistivité.
- ⑤ enfin et surtout, l'extrapolation de nos mesures à $T = 0$

On peut proposer une estimation pour ces cinq sources. La première est en fait à la fois la pire et la moins influente des quatre. En effet, l'incertitude sur l'épaisseur de l'échantillon peut aller jusqu'à 10-20%, ce qui serait fatal pour vérifier une quelconque relation avec une précision meilleure que celle-là. Cependant, le facteur géométrique n'intervient pas dans la vérification de la loi de Wiedemann-Franz puisqu'il est le même pour la résistivité et la conductivité thermique. En ce qui concerne le deuxième point, nous n'avons expérimentalement constaté aucune variation de la conductivité thermique avec la largeur des contacts d'or, et donc cette source peut être considérée comme non influente.

En ce qui concerne la calibration de nos thermomètres et l'extraction de la conductivité thermique, les mesures sur le fil d'or témoignent que l'erreur maximale que nous faisons est de l'ordre de 3% (voir paragraphe précédent). De même des mesures de résistivité dans diverses configurations de contacts (tous du même côté ou les contacts d'injection de courant et ceux de mesure de tension de part et d'autre de l'échantillon) ont montré que l'erreur maximale due à cette contribution était de l'ordre de 6%. Enfin, l'extrapolation

à $T = 0$ est bien entendu dépendante des données, mais l'erreur associée est pour nos mesures majorée par 8%.

La somme de ces contributions mène donc à une erreur de 17% sur la détermination de la valeur du terme linéaire de conductivité thermique. Cependant, ceci constitue bien entendu une vision optimiste de nos barres d'erreur. Un des points qui peut amener le plus d'incertitude est l'analyse des résultats. En effet, dans l'or, le traitement des données est largement facilité par le fait que la conductivité électronique est très supérieure à la conductivité phononique, et donc plus facilement extractible. Ce n'est pas le cas dans Bi-2201, et ceci mène à deux contributions plus fortes à l'incertitude : d'une part les résultats vont être plus affectés par le traitement des données, et d'autre part la partie de la courbe qu'il nous faut utiliser est beaucoup plus restreinte, puisqu'on doit véritablement attendre l'entrée dans le régime en T^3 des phonons. Or il s'avère que la mesure du CBT à basse température entraîne un léger échauffement de ce dernier, et donc fausse légèrement notre calibration. Cette erreur, qui n'affecte que peu les résultats sur l'or puisque la gamme sur laquelle on extrait le terme linéaire est très étendue, peut par contre beaucoup plus affecter l'extraction de κ_0/T dans Bi-2201.

Ainsi, la valeur des 3% donnée plus haut est plus un minimum qu'une borne supérieure, et la valeur de 17% une vision encore une fois plutôt optimiste. La vision la plus pessimiste de ces incertitudes supplémentaires peut amener à une erreur de l'ordre de 50%, et les barres d'erreur réelles doivent se situer entre ces deux valeurs.

Chapitre 5

Résultats et discussion

5.1 Terme linéaire de la phase supraconductrice

Dans un premier temps, nous nous intéresserons à la conductivité thermique de la phase supraconductrice et plus particulièrement, au vu de la discussion précédente, au terme linéaire. Comme indiqué au chapitre précédent, nous avons déterminé à l'aide d'une mesure de coefficient Hall le dopage de notre échantillon présentant la température critique la plus élevée. Ensuite nous avons déduit le dopage des autres échantillons en mesurant leur température critique en résistivité (voir fig.5.1) puis en appliquant la relation [6]¹ :

$$p = 0,17 + \sqrt{\frac{1 - \frac{T_c}{T_c^{max}}}{268}} \quad (5.1)$$

le caractère surdopé ou sous-dopé de l'échantillon étant déterminé par la valeur de la résistivité au-dessus de la transition.

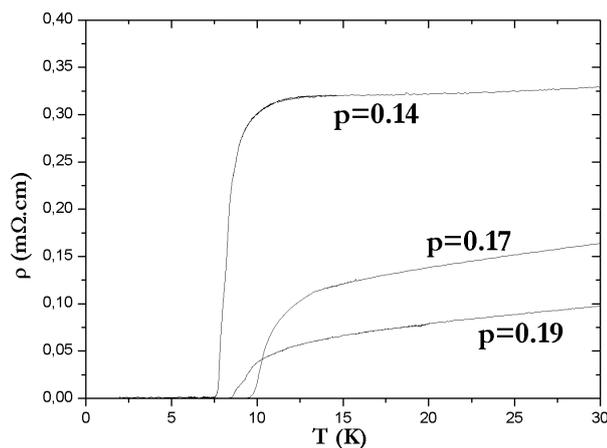


FIG. 5.1 – Résistivité et transition des trois échantillons de Bi-2201

¹Cette relation n'est pas la relation dite "universelle" des cuprates, qui elle s'écrit $p = 0,16 + \sqrt{\frac{1 - \frac{T_c}{T_c^{max}}}{82,6}}$, et qui ne fonctionne pas dans le cas de Bi2201 [6].

Grâce à ces trois échantillons, nous avons pu balayer une région située autour du dopage optimal en conductivité thermique. Afin d'en extraire la contribution électronique, nous supposons, comme discuté au chapitre 3, que celle-ci est linéaire en température ($= \alpha_e T$) tandis que celle des phonons est de la forme $\alpha_{ph} T^3$. On peut donc écrire :

$$\frac{\kappa}{T} = \alpha_e + \alpha_{ph} T^2$$

En traçant donc κ/T en fonction de T^2 , on obtient donc une fonction affine dont l'extrapolation à $T = 0$ donne le terme électronique. Cette représentation de la conductivité thermique des trois échantillons est donnée fig. 5.2.

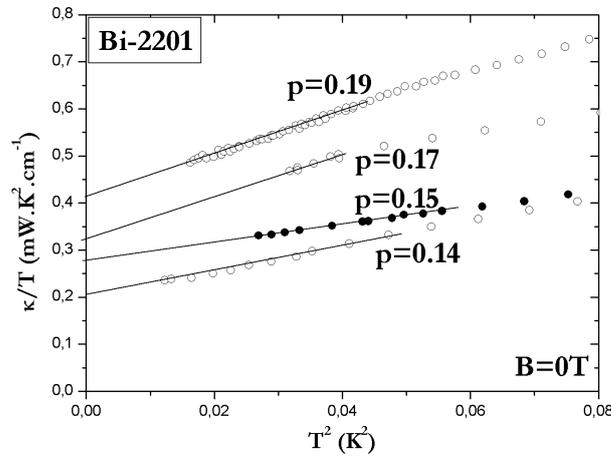


FIG. 5.2 – Conductivité thermique de Bi-2201 pour plusieurs dopages autour du dopage optimal

Comme observé dans d'autres composés supraconducteurs (voir chapitre 3), le terme linéaire augmente avec le dopage : comme on le voit fig. 5.2, la valeur du terme linéaire varie de $0,19 \text{ mW/K}^2\text{cm}^{-1}$ pour l'échantillon le plus sous-dopé ($p = 0,14$) à $0,4 \text{ mW/K}^2\text{cm}^{-1}$ pour l'échantillon l'échantillon le plus surdopé ($p = 0,19$).

La valeur du gap supraconducteur est donnée par :

$$\Delta_0 = \frac{\hbar k_F v_2}{2} = \frac{k_B^2 k_F v_F n}{6} \frac{1}{d \kappa_0 / T} \quad (5.2)$$

| p | T_c (K) | $\frac{\kappa_0}{T}$ | Δ_0 (meV) |
|------|-----------|----------------------|------------------|
| 0,14 | 8,2 | 0,19 | 27 |
| 0,15 | 9,6 | 0,27 | 19 |
| 0,17 | 10,6 | 0,33 | 16 |
| 0,19 | 9,5 | 0,41 | 13 |

TAB. 5.1 – Valeurs de $\frac{\kappa_0}{T}$ et les valeurs du gap correspondantes.

La valeur du gap pour nos divers composés est représentée dans le tableau 5.1. On peut comparer ces résultats avec les mesures déjà reportées sur les autres composés dopés aux trous (voir figure 5.3). On s'aperçoit alors que bien que la valeur du gap soit plus faible dans le cas de Bi-2201 que dans les autres composés, le rapport $\frac{\Delta}{k_B T_c}$ est beaucoup plus grand : relativement à YBCO par exemple, la chute de la température critique est beaucoup plus importante que celle du gap associé. Par ailleurs, la valeur de ce rapport est un exploit en soi : il vaut environ 15 au dopage optimal, alors que dans les autres cuprates il vaut environ 4.

Notons que la valeur du gap trouvée ici est comparable aux valeurs données par les mesures d'effet tunnel [99][100].

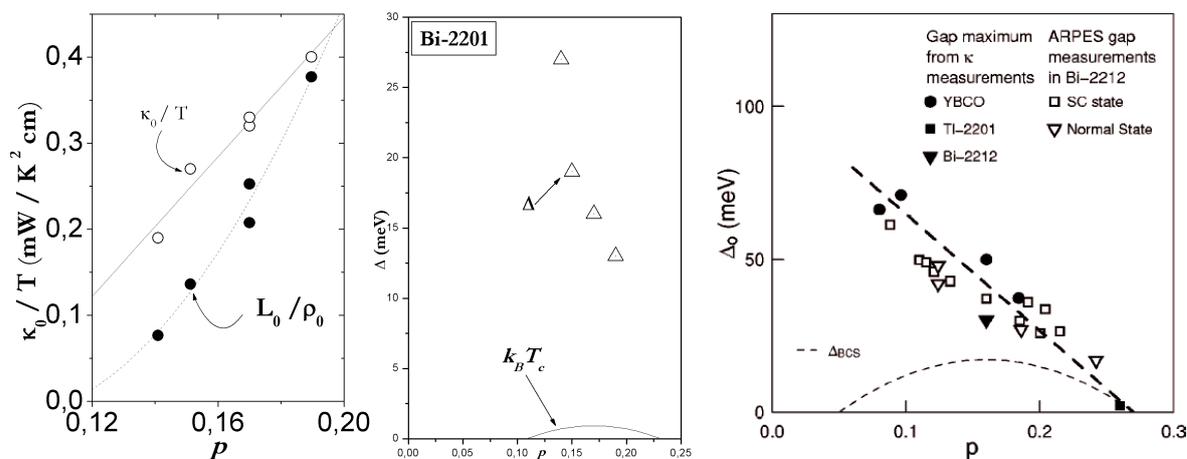


FIG. 5.3 – *A gauche*: Variation du terme linéaire en fonction du dopage et comparaison avec L_0/ρ_0 . *Au centre* : Variation du gap avec le dopage tirée de nos mesures. *A droite*: Variation du gap avec le dopage tirée de [74].

Bien que la loi de Wiedemann-Franz ne soit pas supposée être valide dans la phase supraconductrice, on peut quand même comparer la valeur du terme linéaire avec celle attendue d'après la relation 3.4. La valeur du terme électronique est, d'après les résultats portés figure 5.3 systématiquement *supérieure* à celle attendue d'après la résistivité. Ceci implique, si la loi de Wiedemann-Franz est vérifiée dans la phase normale, que la conductivité thermique doit *diminuer avec le champ magnétique*, en particulier pour l'échantillon le plus sous-dopé, où cette dernière devrait être divisée par deux entre la phase supraconductrice et la phase normale.

L'effet du champ magnétique sur le terme linéaire de conductivité thermique a été étudié dans d'autres composés. LSCO [95][96] et YBCO [97] semblent se comporter de façon similaire : il existe une valeur du dopage en-dessous de laquelle le terme linéaire diminue avec le champ et au-dessus de laquelle il augmente. Cependant, alors que cette valeur correspond à peu près au dopage optimal dans LSCO ($p = 0,16$), elle est située dans le régime fortement sous-dopé dans YBCO ($p = 0,07$). Par ailleurs, ces effets sont au maximum de l'ordre de 15% pour le dopage optimal, loin du facteur 2 dont on a besoin pour notre échantillon le plus sous dopé. Enfin, les mesures de conductivité thermique dans Bi-2212 [98] montrent que celle-ci augmente avec le champ, ce qui conduirait à une

violation très forte de la loi de Wiedemann-Franz. Le comportement du terme linéaire dans nos échantillons est donc difficile à prévoir, et sera en partie éclairci par les résultats suivants.

5.2 Phase normale et vérification de la loi de Wiedemann-Franz

Nous avons étudié les deux échantillons situés autour du dopage optimal ($p = 0, 17$ et $p = 0, 19$) avec un champ magnétique intense, les deux donnant des résultats relativement similaires. Malheureusement, pour des questions de temps, les deux échantillons sous-dopés n'ont pas pu être étudiés sous champ intense. Le résultat le plus frappant, lorsque l'on regarde rapidement les données (voir figure 5.4), est que la conductivité thermique semble très peu affectée par le champ magnétique : elle augmente faiblement (de l'ordre d'une petite dizaine de %) pour l'échantillon légèrement surdopé ($p = 0, 19$) et reste inchangée dans le cas de l'échantillon au dopage optimal ($p = 0, 17$).

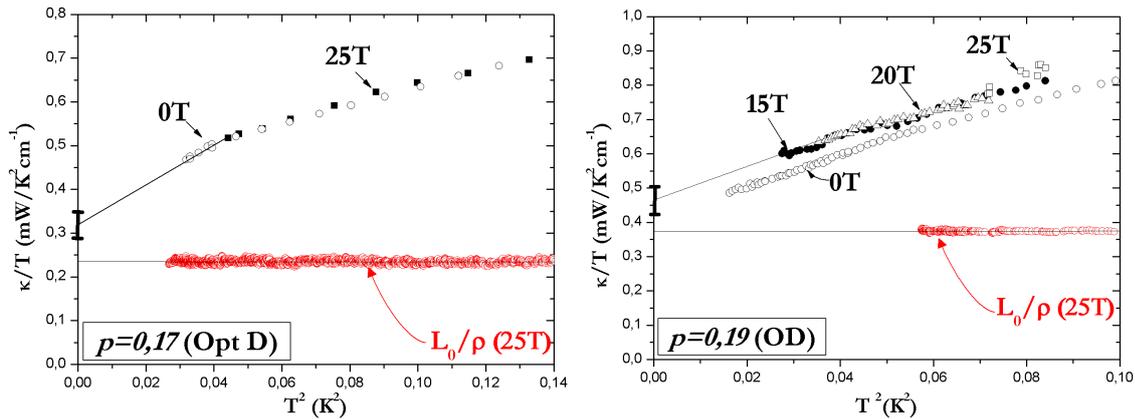


FIG. 5.4 – Vérification de la loi de Wiedemann-Franz dans deux échantillons de Bi-2201, l'un au dopage optimal (à gauche), l'autre légèrement surdopé (à droite).

5.2.1 Échantillon surdopé

Comme on peut le voir sur la figure 5.4, les seuls points que nous avons été capables de mesurer à 25 T sont confinés au-dessus de 275mK, et seuls les points à 15T descendent à suffisamment basse température pour pouvoir extraire de façon fiable le terme linéaire. Or, ce n'est qu'à 25T que la supraconductivité est détruite de façon satisfaisante et que la résistivité devient constante, comme on peut le voir figure 5.5, ce qui permet une extrapolation de sa valeur à $T = 0$. En effet, encore à 20T on observe une légère descente de la résistivité, qui suggère que la phase supraconductrice est encore présente.

La figure 5.4 montre la conductivité thermique tant dans la phase supraconductrice que dans la phase normale des échantillons surdopé et optimalement dopé. La courbe de $\frac{\kappa}{T}$ présente, comme attendu, une allure de droite en fonction de T^2 , et ceci en dessous d'une

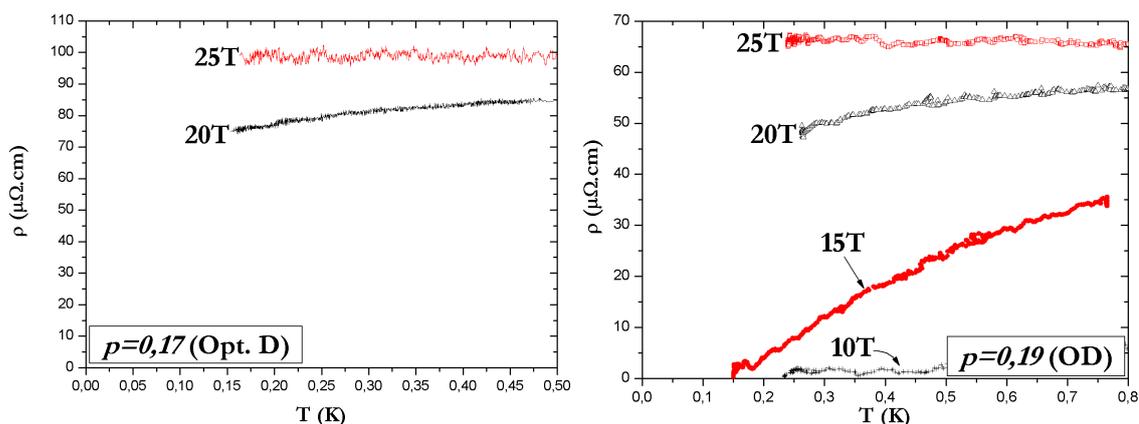


FIG. 5.5 – Résistivité des deux échantillons de Bi-2201, l’un au dopage optimal (à gauche), l’autre légèrement surdopé (à droite).

température correspondant à $T^2 \approx 0,05\text{K}^2$ ($T \approx 220\text{mK}$). On s’aperçoit que l’application d’un champ magnétique décale la courbe de $\frac{\kappa}{T}$ sans en changer la pente, ce qui est normal vu que le champ magnétique n’est censé affecter que très peu les phonons. Cependant, et de façon assez surprenante, bien que la résistivité continue de changer avec le champ magnétique au-dessus de 15T, la conductivité thermique semble, elle, avoir atteint un plateau en champ magnétique : dans la gamme de température où elles sont disponibles, les mesures à 15T, 20T et 25T coïncident, ce qui indique que la conductivité thermique semble peu affectée par la transition supraconductrice. En faisant l’hypothèse qu’il en est de même à plus basse température, l’extrapolation de la conductivité thermique à 15T va être la même que celle à 25T.

L’extrapolation de cette courbe nous donne donc le terme électronique de la phase normale qui vaut $\frac{\kappa_N}{T} = 0,46\text{mW.K}^{-2}\text{cm}^{-1}$, tandis que la valeur attendue par la loi de Wiedemann-Franz est $\frac{L_0}{\rho_0} = 0,37\text{mW.K}^{-2}\text{cm}^{-1}$. On observe donc une légère déviation, de l’ordre de 20% en excès, de la conductivité thermique par rapport à la loi de Wiedemann-Franz, déviation qui cependant reste tout à fait dans nos barres d’erreur.

5.2.2 Échantillon au dopage optimal

Comme on peut le voir figure 5.5, il est nécessaire pour cet échantillon d’aller jusqu’à 25T pour obtenir une résistivité constante. Cependant, bien qu’entre 0T et 25T le système subisse une transition de phase, la conductivité thermique semble complètement indifférente à la présence du champ magnétique (voir figure 5.4). La variation de la conductivité thermique entre la phase supraconductrice à 0T et la phase normale à 25T, s’il y en a une, est inférieure à notre résolution expérimentale. Ceci est assez surprenant dans la mesure où le système subit entre 0 et 25T une transition de phase, et qu’à cette dernière est associée la destruction du gap supraconducteur.

Les courbes de $\frac{\kappa}{T}$ pour cet échantillon sont assez similaires à celles de l’échantillon précédent. Comme le montrait déjà la figure 5.2, la contribution phononique (qui correspond à la pente de $\frac{\kappa}{T}$) est légèrement plus faible dans cet échantillon, et le régime où la

conductivité thermique varie en T^3 n'est atteint qu'en dessous de $T^2 \approx 0,05\text{K}^2$.

L'apparente indifférence de κ envers le champ magnétique nous permet, en suivant exactement le même raisonnement qu'au paragraphe précédent, d'extraire le terme électronique de la phase normale en utilisant les points de plus basse température à 0T. On en tire $\frac{\kappa_N}{T} = 0,32\text{mW.K}^{-2}\text{cm}^{-1}$, alors que la valeur tirée de la résistivité est $\frac{L_0}{\rho_0} = 0,23\text{mW.K}^{-2}\text{cm}^{-1}$. On observe donc une déviation plus importante que dans l'échantillon légèrement surdopé, de l'ordre de 30% en excès, par rapport à la loi de Wiedemann-Franz, même si ici encore la déviation reste relativement faible comparée aux erreurs expérimentales.

5.3 Discussion et perspectives

Ces résultats contiennent trois aspects importants :

① Le terme linéaire de la phase supraconductrice augmente avec le dopage, ceci étant relié à un gap supraconducteur qui, lui, diminue lorsque l'on parcourt le diagramme de phase de gauche à droite. Ce comportement est similaire à celui observé dans les autres cuprates, et semble constituer un élément fondamental de la compréhension de cette supraconductivité non conventionnelle. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que dans le cas de nos échantillons la limite propre n'est pas respectée, et que γ n'est pas très petit devant $k_B T_c$, comme en témoigne la valeur très basse de T_c . De plus, les valeurs du gap que nous déduisons ici sont très basses comparées à celles trouvées dans les autres composés au même dopage, bien que très similaires à celle trouvées par spectroscopie tunnel [99][100]. Notons qu'il a été observé que Bi-2201, lorsqu'il est dopé au lanthane, possède à la fois une température critique et un gap supraconducteur plus bas que les autres composés [6], bien que l'origine de cette propriété reste inconnue. Cette observation pourrait expliquer pourquoi les gaps observés dans Bi-2201 dopé au bismuth sont aussi faibles. Cependant, le rapport $\frac{\Delta_0}{k_B T_c}$, qui vaut 2,74 dans la théorie BCS, vaut ici 15, ce qui d'une part est exceptionnellement large même pour les cuprates (par exemple il vaut, au dopage optimal, environ 6 dans YBCO et 5 dans Bi-2212 [74]), et qui d'autre part est également très élevé par rapport à Bi2201 dopé au lanthane, où ce rapport vaut à peu près 4 [101]. Ceci tendrait à montrer que le dopage par substitution de strontium par du bismuth réduit la température critique par une augmentation du désordre plus que par une diminution du gap supraconducteur, ceci étant confirmé par une résistivité résiduelle plus grande dans nos échantillons que dans ceux dopés au lanthane.

② Autour du dopage optimal, la conductivité thermique semble peu ou pas affectée par le champ magnétique. Ceci est probablement le résultat du passage d'un état où le terme linéaire *augmente* avec le champ (côté surdopé) à un état où il diminue avec le champ (côté sous-dopé). On retrouve encore ici le même comportement observé dans LSCO [95][96] et dans YBCO [97], même si dans le cas de ce dernier ce passage se trouve à beaucoup plus bas dopage. Ce *crossover* a été associé à une transition métal-isolant de l'état fondamental, observé en résistivité dans LSCO [102]. Nos mesures, même si elles restent dans l'état actuel très parcellaires, pourraient être associées à une telle transition métal-isolant. Cependant, les mesures de résistivité dans Bi2201 dopé au lanthane montrent que cette

transition se passe en résistivité vers $p \approx 0,12$, soit pour un dopage beaucoup plus bas que celui de nos échantillons. Le fait que la destruction du gap supraconducteur n'affecte que très peu la conductivité thermique des quasiparticules, alors que celle-ci subissent une transition de phase, reste encore à expliquer.

③ Surtout, nos résultats constituent les seules mesures de conductivité thermique dans la phase normale d'un cuprate au dopage optimal qui ne soient pas perturbées par la présence de la l'effondrement de conductivité thermique discutée au premier chapitre, et par conséquent dont on peut extraire, certes avec des incertitudes, mais de manière plus fiable, le terme linéaire. Bien entendu, le fait que nos données ne contiennent pas cette chute constituent un indice supplémentaire sur le caractère extrinsèque de son origine. La valeur de ce terme linéaire est au-dessus de celle prévue par la loi de Wiedemann-Franz, mais les incertitudes sur l'extraction de cette valeur font que nos résultats n'excluent pas non plus une vérification.

De plus, il s'avère que le désordre peut, dans un système bidimensionnel ou caractérisé par une résistance proche du quantum de résistance, mener à une violation de la loi de Wiedemann-Franz caractérisée par un *excès* de conductivité thermique, ceci provenant d'interactions électron - électron à longue distance qui vont interférer avec la diffusion par les impuretés de façon différente pour la conductivité thermique et la conductivité électrique [106][107].

L'excès de conductivité thermique que nous observons ici peut donc éventuellement être dû à cela. Plus naïvement encore, on peut se convaincre qu'un échantillon inhomogène contenant des parties isolantes va, en raison de la présence des phonons, mener à l'extraction d'un terme linéaire en excès par rapport à la loi de Wiedemann-Franz.

En effet, considérons le cas extrême d'un barreau long métallique dont une "section" perpendiculaire à la direction du courant de chaleur serait isolante électriquement, les deux thermomètres de mesure étant de part et d'autre de cette partie isolante. Tant que les phonons thermalisent les électrons, le profil de température sera quasiment identique au barreau intégralement conducteur pour peu que la section soit d'une épaisseur faible devant la longueur du barreau. On peut donc en extraire un terme linéaire correspondant à la conductivité thermique électronique du barreau, alors que la conductivité électrique, elle, sera nulle. Ce n'est qu'à basse température, en dessous de la température de découplage entre les électrons et les phonons, que la conductivité thermique retrouvera un comportement purement en T^3 , et donc que la loi de Wiedemann-Franz sera vérifiée.

En raison de cela ces mesures ne tranchent pas complètement le débat sur la nature liquide de Fermi de la phase normale. Cependant, elles limitent fortement les possibilités de violation de la loi de Wiedemann-Franz. En effet, même avec la vision la plus pessimiste de nos barres d'erreur, l'excès de conductivité thermique par rapport à ce qu'elle devrait être ne peut pas excéder 70% ceci étant une valeur *maximale*. En résumé, la loi de Wiedemann-Franz dans Bi-2201 est *soit vérifiée, soit faiblement violée*.

Or les scénarios de fractionalisation prédisent en général des écarts beaucoup plus importants [86]. A strictement parler donc, nos mesures indiquent que les excitation élémentaires autour du dopage optimal sont au moins proches d'excitations de type liquide de Fermi.

En conclusion, nous avons réussi à mesurer, certes avec une importante incertitude expérimentale, la conductivité thermique dans deux cristaux de Bi-2201 autour du dopage optimal, l'un des deux échantillons étant légèrement surdopé, et le second juste au dopage optimal. Nos mesures, même si elles ne tranchent pas le débat de façon aussi précise que l'on pourrait le souhaiter, semblent étendre le protectorat du liquide de Fermi au dopage optimal, ou tout du moins montrer que l'état fondamental y restera très proche, et imposent des contraintes importantes sur les modèles de la phase normale, et en particulier sur les scénarios de fractionalisation.

Troisième partie

Thermoélectricité expérimentale - Rappels et mise en œuvre

Chapitre 6

Le tenseur thermoélectrique

La première mesure d'effet Nernst a été effectuée en 1886 par Nernst et Ettingshausen dans le bismuth [109]. Cependant, et bien qu'il ait été constamment utilisé comme sonde expérimentale depuis, cet effet est l'un des moins connus des coefficients du tenseur thermoélectrique, contrairement par exemple à l'effet Peltier ou à l'effet Seebeck. Nous allons donc dans ce chapitre effectuer un rapide survol de l'effet Nernst.

6.1 Définitions

L'effet Nernst — également appelé *Nernst-Ettingshausen* ou *Ettingshausen-Nernst* selon les époques¹ — correspond à l'apparition d'une tension transverse lorsqu'un matériau plongé dans un champ magnétique est traversé par un courant de chaleur. Quantitativement, ceci s'écrit, si l'on appelle x la direction du gradient thermique, y la direction de la tension transverse et z celle du champ magnétique :

$$N = \frac{E_y}{-\nabla_x T} \quad (6.1)$$

A cet égard, l'effet Nernst est le pendant transverse du pouvoir thermoélectrique — ou effet Seebeck — défini par :

$$S = \frac{E_x}{\nabla_x T} \quad (6.2)$$

Rappelons que comme ces deux effets sont liés au transport d'entropie, le troisième principe de la thermodynamique indique qu'ils doivent être nuls à température nulle.

Comme l'effet Nernst est un effet transverse, il est bien entendu nul tant que l'on n'applique aucun champ magnétique perpendiculaire à la direction du courant de chaleur, et la plus simpliste des approches indique qu'il augmente lorsque le champ magnétique augmente et est impair en champ (à l'instar de tous les effets transverses). On définit donc une grandeur renormalisée par rapport au champ magnétique, le *coefficient Nernst* $\nu = N/B \approx N/(\mu_0 H)$.

¹A ne pas confondre avec l'effet Ettingshausen tout seul, qui correspond à l'apparition d'un gradient thermique transverse lors du passage d'un courant électrique longitudinal.

Finalement, la manière la plus simple d'écrire les deux effets est la suivante :

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} S & N \\ -N & S \end{bmatrix} \vec{\nabla}T = Q\vec{\nabla}T \quad (6.3)$$

où Q est appelé *tenseur thermoélectrique*

Par ailleurs, comme on va le voir par la suite, on est souvent amené à travailler non pas sur le tenseur thermoélectrique, mais sur le tenseur α défini par :

$$\vec{J}_e = \sigma\vec{E} - \alpha\vec{\nabla}T \quad (6.4)$$

$$\vec{J}_Q = \alpha T\vec{E} - L\vec{\nabla}T \quad (6.5)$$

où \vec{J}_e et \vec{J}_Q sont respectivement les vecteurs courants électriques et courants thermiques, et où on reconnaît, entre autres coefficients, la conductivité électrique σ . La relation entre les deux tenseurs est triviale et est donnée par :

$$Q = \sigma^{-1}\alpha \quad (6.6)$$

Cette relation donne tout de suite le moyen d'obtenir α à partir des grandeurs mesurées :

$$\begin{aligned} -\alpha_{xx} &= \sigma_{xx}S - \sigma_{xy}N = \frac{1}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2} (\rho_{xx}S + \rho_{xy}N) \\ -\alpha_{xy} &= \sigma_{xx}N + \sigma_{xy}S = \frac{1}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2} (\rho_{xx}N - \rho_{xy}S) \end{aligned}$$

6.2 Problèmes de signe

La définition du signe de l'effet Nernst n'a pas toujours été la même, et il s'agit ici de préciser quelque peu les conventions. Comme l'indique la définition donnée au paragraphe précédent, l'effet Nernst est positif si le champ électrique est orienté positivement selon l'axe y d'un repère direct, le courant de chaleur étant orienté *positivement* selon l'axe x et le champ magnétique selon l'axe z . Il s'agit de la même définition que pour l'effet Hall, avec le courant électrique en lieu et place du courant de chaleur. Ceci explique par ailleurs pourquoi on considère la direction *opposée* au gradient thermique, puisque celui-ci est dans le sens contraire de celui du courant de chaleur.

Une autre définition est fondée sur le signal Nernst généré par les vortex dans la phase mixte d'un supraconducteur de type 2. En effet, comme nous le verrons au paragraphe suivant, le mouvement des vortex donne naissance à un effet Nernst toujours de même signe. La communauté a pris l'habitude de définir comme positif le signe de cet effet Nernst, mais la mesure d'effet Nernst dans des composés non supraconducteurs rend obligatoire une définition plus générale. Fort heureusement, ces deux définitions sont équivalentes, comme nous le verrons bientôt.

6.3 Les sources "identifiées" d'effet Nernst

6.3.1 Le gaz d'électrons, compensation de Sondheimer

L'effet Nernst est *a priori*, tout comme le pouvoir thermoélectrique, un effet compliqué, puisqu'il mélange la thermodynamique (via le transport d'entropie) et les phénomènes de

transport. Cependant, si l'on reprend la relation 6.6, un rapide calcul mène à :

$$N = \frac{\sigma_{xx}\alpha_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \left[\frac{\alpha_{xy}}{\alpha_{xx}} - \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} \right] \quad (6.7)$$

$$= \frac{\sigma_{xx}\alpha_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} [\tan \theta_\alpha - \tan \theta_H] \quad (6.8)$$

où θ_H est l'angle de Hall, et θ_α l'angle entre le champ thermoélectrique et le gradient thermique. L'apparition dans l'effet Nernst de la *différence* entre ces deux angles, qui sont *a priori* du même ordre de grandeur entraîne une réduction drastique de l'effet Nernst pour un métal simple. En fait, dans un modèle plus élaboré, on peut montrer que cette différence est nulle si le temps de relaxation intervenant dans le transport thermique est indépendant de l'énergie [110] :

$$\nu = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3m} \left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon=\mu} \quad (6.9)$$

Cette annulation de l'effet Nernst a été appelée *compensation de Sondheimer* [111], même si celui-ci ne l'a jamais formulée ainsi.

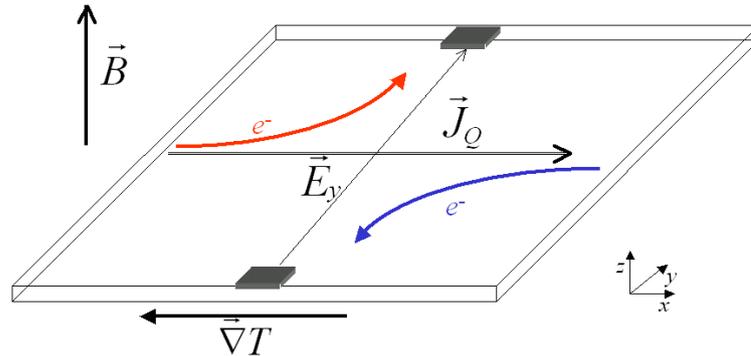


FIG. 6.1 – Compensation de Sondheimer. La nullité du courant électrique est assurée par l'apparition d'un "contre-courant" électronique, entraînant la nullité de l'effet Nernst.

Cette compensation peut se comprendre schématiquement. Lors d'une mesure de thermoélectricité, le courant électrique doit être nul alors que le courant de chaleur, lui, doit être fini en raison de la présence d'un gradient thermique constant. Comme les électrons transportent à la fois la charge et l'entropie, la seule façon de satisfaire simultanément à ces deux conditions est d'avoir un contre-courant électronique allant du côté froid vers le côté chaud, annulant ainsi la contribution au courant électrique des électrons allant du côté chaud au côté froid de l'échantillon². Ces deux courants vont alors donner un effet Nernst nul, sauf s'ils ont des propriétés de transport très dépendantes de leur côté d'origine, ou plus précisément dit sauf s'ils ont des propriétés de transport — comme par

²Ce raisonnement n'est bien sûr pas applicable aux phonons, qui ne transportent pas la charge. Cependant, et en directe conséquence, ils ne peuvent générer aucun effet transverse, et ne contribuent donc pas à l'effet Nernst.

exemple le temps de relaxation — dépendantes de l'énergie. Notons que pour un temps de relaxation croissant avec l'énergie (ce qui est le cas dans les modèles électroniques simples), l'effet Nernst est positif [110], et que l'amplitude attendue pour ce genre d'effet est faible (de l'ordre de quelques nV/KT). Par ailleurs, l'effet Nernst est dans ce cas linéaire en champ magnétique.

6.3.2 Les métaux multibandes - Effet Nernst ambipolaire

Le raisonnement mené précédemment ne tient que si l'on est en présence d'un seul type de porteurs. En effet, le terme entre crochets de la relation 6.7 se généralise, pour deux types de porteurs, à :

$$N \propto \left[\frac{\alpha_{xy}^1 + \alpha_{xy}^2}{\alpha_{xx}^1 + \alpha_{xx}^2} - \frac{\sigma_{xy}^1 + \sigma_{xy}^2}{\sigma_{xx}^1 + \sigma_{xx}^2} \right] \quad (6.10)$$

les exposants désignant le numéro de la bande. La compensation de Sondheimer, toujours valide pour chaque bande ($\frac{\alpha_{xy}^i}{\alpha_{xx}^i} = \frac{\sigma_{xy}^i}{\sigma_{xx}^i}$), n'aboutit pas ici à une annulation de l'effet Nernst, même dans le cas d'un gaz d'électrons. Si l'on reprend la même représentation schématique qu'au paragraphe précédent, avec par exemple des électrons et des trous, on s'aperçoit que la nullité du courant électrique n'impose plus l'existence d'un contre courant (voir figure 6.2).

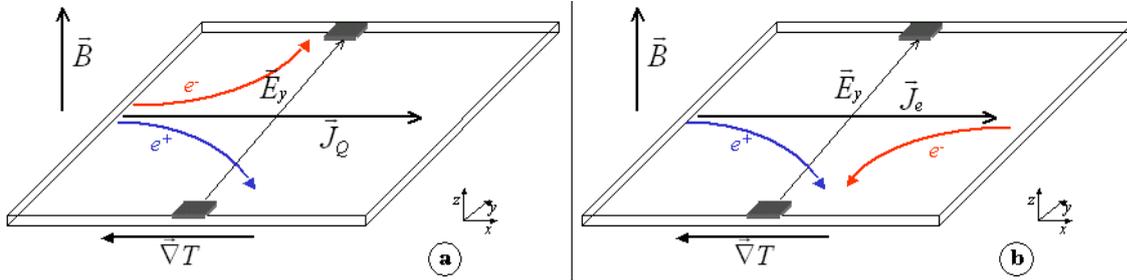


FIG. 6.2 – a) Effet Nernst ambipolaire; b) compensation ambipolaire de l'effet Hall

On voit immédiatement qu'à la différence de l'effet Hall, le signe de l'effet Nernst ne dépend pas du signe des porteurs. C'est ce qui explique pourquoi, dans les modèles les plus simples de contribution ambipolaire, le signe de l'effet Nernst est prévu positif [110][112][113]. Cette différence de comportement entre l'effet Hall et l'effet Nernst permet en général d'identifier très clairement la nature ambipolaire des effets thermomagnétiques : lorsque l'effet Hall s'annule (métal compensé), ce qui se traduit dans la relation 6.10 par $\sigma_{xy} = \sigma_{xy}^+ + \sigma_{xy}^- = 0$, l'effet Nernst présente, lui, un maximum. C'est cet effet qui a été très utilisé dans l'étude des semi-conducteurs. Son amplitude est très variable, de quelques nV/KT dans les métaux à plusieurs centaines de $\mu\text{V}/\text{KT}$ dans les semi-conducteurs. Ici encore il est généralement linéaire en champ magnétique.

Par ailleurs, on peut réécrire la relation 6.10 sous la forme (en négligeant σ_{xy}^2 devant σ_{xx}^2 , ce qui est souvent le cas dans les métaux à plusieurs types de porteurs, et en écrivant

pour simplifier $\sigma_{xx} \equiv \sigma$) :

$$\nu = \frac{\nu^+ \sigma^+ + \nu^- \sigma^-}{\sigma^+ \sigma^-} + \frac{\sigma^+ \sigma^- (S^+ - S^-) (\sigma^+ R_H^+ - \sigma^- R_H^-)}{(\sigma^+ + \sigma^-)^2} \quad (6.11)$$

Or on peut également montrer que, dans les mêmes conditions, la magnétorésistance s'écrit :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\sigma^+ \sigma^- (S^+ - S^-) (\sigma^+ R_H^+ - \sigma^- R_H^-)}{(\sigma^+ + \sigma^-)^2} \quad (6.12)$$

Cette expression est exactement la même que le second membre de la relation 6.11. On voit donc, et ceci peut constituer une vérification expérimentale de l'origine de l'effet Nernst, qu'un maximum en magnétorésistance (correspondant à l'égalité des mobilités) va être proche d'un maximum dans l'effet Nernst.

6.3.3 Phase mixte des supraconducteurs de type II - Effet Nernst des vortex

La contribution à la thermoélectricité transverse des vortex a été prévue [114][115] et observée [115][116][117][118] dès l'avènement des supraconducteurs conventionnels. L'apparition d'un effet Nernst dans la phase mixte est rattachée à deux causes :

- les vortex sont des réservoirs d'entropie plongés dans le superfluide. Par conséquent, lorsque le matériau est soumis à un gradient thermique, ils sont soumis à une force donnée par $\vec{F} = -S_\Phi \vec{\nabla} T$, où S_Φ est la différence d'entropie entre le cœur des vortex et le superfluide.
- le mouvement des vortex avec une vitesse \vec{v}_Φ dans un champ magnétique entraîne l'apparition d'un champ électrique perpendiculaire au mouvement et au champ magnétique $\vec{E} = -v_\Phi \wedge \vec{B}$. Donc *si les vortex peuvent se mouvoir*, ceux-ci vont être une source "évidente" d'effet Nernst.

L'existence d'un effet Nernst dans la phase supraconductrice est donc reliée non seulement à l'existence des vortex, mais également à leur capacité à se mouvoir sous l'effet d'un gradient thermique. Notons que si le gradient thermique est selon $-x$ et que le champ magnétique est selon z , alors le champ électrique généré sera selon $-(x) \wedge (z)$, soit selon y . *L'effet Nernst dû aux vortex est donc toujours positif*, ce qui — comme nous l'avions annoncé — est cohérent avec la définition donnée au paragraphe 6.2 et l'usage actuel sur la définition du signe de l'effet Nernst. On peut voir l'allure typique de l'effet Nernst dans la phase mixte d'un supraconducteur de type II (ici le niobium) figure 6.3. Son signe est bien positif, sa valeur est environ de $500 \mu\text{V}/\text{KT}$, et la forme de tente — que ce soit en fonction du champ ou de la température — est caractéristique de l'effet Nernst dû aux vortex : nul au-dessus de T_c et en dessous de la température à laquelle les vortex ne bougent plus, il présente un maximum entre ces deux températures.

Finalement, on peut déduire de l'effet Nernst l'excès d'entropie transporté par chaque vortex. Deux éléments permettent de le déterminer :

- lors d'une mesure *thermoélectrique* les vortex se meuvent sous l'action d'un gradient thermique à la vitesse v_x , celle-ci étant proportionnelle à la force appliquée via un coefficient de viscosité η : $v_x = \eta \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right) S_\Phi$. La tension transverse est alors donnée par $E_y = B_z v_x$.

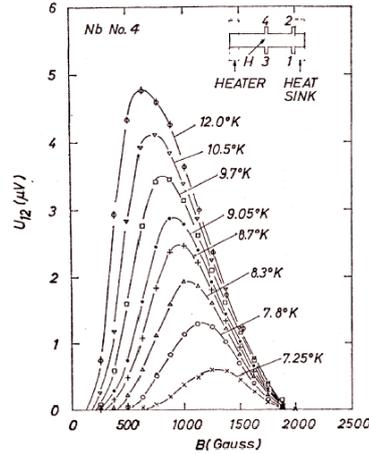


FIG. 6.3 – Tension Nernst dans la phase mixte du Niobium en fonction du champ, d’après [116].

- par ailleurs, lors d’une mesure *électrique*, la force de Lorentz $f_L = J_x \Phi_0$ provoque un mouvement transverse des vortex, ce qui génère la tension longitudinale $E_x = B_z v_y$ (résistivité flux flow). Ici encore, la vitesse et la force sont reliées par le même coefficient de viscosité, et donc $v_y = \eta J_x \Phi_0$.

Ceci mène immédiatement à :

$$\frac{J_x \Phi_0 B_z}{E_x} = \frac{\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right) S_\Phi B_z}{E_y}$$

qui se réécrit en [119] [120] :

$$S_\Phi = \frac{N \Phi_0}{\rho_F} \quad (6.13)$$

où N est l’effet Nernst et ρ_F la résistivité. On peut également définir une entropie par mole de vortex en multipliant par la densité surfacique de vortex B/Φ_0

$$S_m = \frac{NB}{\rho_F} V_m \quad (6.14)$$

où V_m est le volume molaire du matériau.

6.3.4 Visions de l’effet Nernst

L’effet Nernst, comme on vient de le voir, procède de multiples sources, et une vision simple de cet effet n’est pas toujours possible même dans les modèles les plus basiques. Cependant, on peut essayer de donner une interprétation ”géométrique” de l’effet Nernst. Dans le cas de l’effet Hall, N.P. Ong a présenté une interprétation en terme d’intégrale de chemin autour de la surface de Fermi [122]. En ce qui concerne l’effet Nernst, nous pouvons partir de l’expression de Mott du coefficient α_{xy} (qui revient à celle de ν si l’angle

de Hall est petit), obtenue à l'aide de l'équation de Boltzmann[111]³ :

$$\alpha_{xy} = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3 e} \left(\frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial \epsilon} \right)_\mu \quad (6.15)$$

Or, si l'on considère un métal simple non compensé, c'est-à-dire où les termes ambipolaires restent faibles, mais par exemple avec plusieurs bandes, on peut écrire que [122][127] :

$$\sigma_{xy} \propto V_1(\mu) - V_2(\mu)$$

où V_1 est le volume des états occupés de type "électrons" et V_2 le volume des états occupés de type "trous". Que représente alors la dérivée énergétique de cette différence, c'est-à-dire l'effet Nernst ? En fait l'effet Nernst est relié à *la variation du nombre d'états occupés lorsque l'on fait varier le potentiel chimique*, ce qui implique qu'il va être extrêmement sensible à la topologie de la surface de Fermi : une surface de Fermi "biscornue" avec une ou plusieurs bandes peut entraîner la présence d'un effet Nernst important.

Une autre manière de voir l'effet Nernst procède de l'image qu'en donnent les vortex. En fait, la genèse par les vortex d'une tension transverse n'est que très peu reliée, finalement, à la structure détaillée du vortex : il suffit d'un objet qui puisse se mouvoir sous l'action d'un gradient thermique (i.e. qui soit un réservoir d'entropie), et qui ait une composante magnétique pour entraîner l'apparition d'une tension transverse. Ainsi, l'effet Nernst peut également être le symptôme d'un système à deux fluides, l'un au moins étant magnétique, ou bien d'un système présentant une inhomogénéité spatiale magnétique.

6.4 L'effet Nernst dans les cuprates : résultats et interprétations

Parmi tant d'autres propriétés de ces systèmes étranges que sont les cuprates, l'effet Nernst a bien entendu été mesuré dans quasiment tous les composés et dans des domaines importants de dopage, de champ et de température.

La première mesure d'effet Nernst dans les cuprates remonte à 1990 [128] dans YBa-CuO, afin de caractériser le mouvement des vortex dans la phase mixte des cuprates, et de comprendre un certain nombre de propriétés anormales de cette phase, en particulier le changement de signe de l'effet Hall à bas champ et le pic dans le pouvoir thermoélectrique. Seul l'effet Nernst de la phase mixte sera donc mesuré jusqu'en 1994.

³Cette relation est par ailleurs équivalente à la relation 6.9. En effet, on peut écrire la relation 6.7 dans la limite $\sigma_{xy} \ll \sigma_{xx}$ comme :

$$N = \frac{\alpha_{xy}\sigma_{xx} - \alpha_{xx}\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}^2}$$

ce qui, en utilisant la formule de Mott, donne :

$$N = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \left(\frac{\partial \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}}{\partial \epsilon} \right)_\mu = \frac{\pi^2 k_B^2 T B}{3m} \left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon} \right)_\mu$$

puisque $\sigma_{xy}/\sigma_{xx} = \omega_c \tau$ [70]

Les deux premières mesures d'effet Nernst dans la phase normale des cuprates seront publiées dans le même volume de Physical Review Letters B, la première dans deux cuprates dopés aux trous, YBaCuO et Bi-2212 [119]⁴, et la seconde Tl-2212 [129]. A partir de ces deux papiers le traitement des dopés aux trous et des dopés aux électrons vont diverger.

6.4.1 Cuprates dopés aux électrons : deux types de porteurs

Il faudra attendre 1997 pour que d'autres mesures d'effet Nernst dans l'état normal d'un cuprate dopé aux électrons soit réalisées [134]. Alors que les résultats dans Tl-2212 n'étaient pas particulièrement spectaculaires (signal Nernst négatif de l'ordre de quelques nV/KT), ceux dans NCCO sont particulièrement instructifs : on y voit, à différents dopages — y compris dans un échantillon très sous-dopé non supraconducteur — un effet Nernst *positif* présentant un pic entre 50 et 100nV/KT (voir figure 6.4).

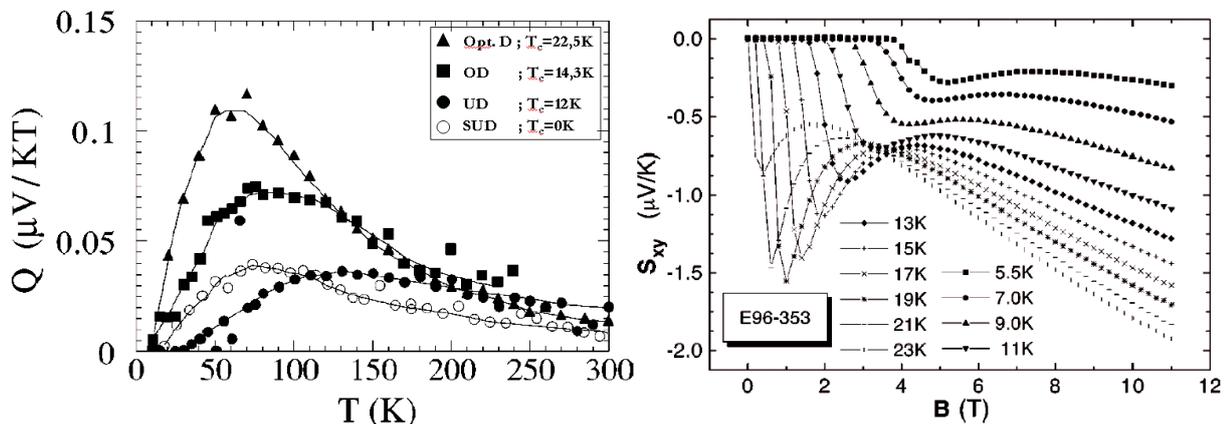


FIG. 6.4 – Coefficient Nernst dans NCCO. *A gauche*: dépendance en température dans la phase normale [134]. *A droite*: dépendance en champ dans la phase mixte et dans la phase normale [130]. Le signe négatif dans la figure de droite est dû à une différence de convention.

Cet effet Nernst anormalement grand pour un métal est alors interprété comme indiquant la présence de deux types de porteurs. Cette interprétation quasi-particulaire est renforcée par le fait que l'effet Nernst est linéaire en champ magnétique dans la phase normale [130]. Enfin, c'est cette interprétation qui a été mise en avant pour interpréter l'effet Nernst dans PCCO [135]⁵.

⁴En fait, ces mesures étaient également destinées à l'étude de la phase mixte, mais on distingue déjà ce qui suscitera un grand intérêt pour l'effet Nernst dans les cuprates dopés aux trous, à savoir la persistance de l'effet Nernst au dessus de T_c

⁵Cette interprétation se rapporte également à d'autres observations : le pouvoir thermoélectrique change de signe avec le dopage [134], des mesures d'ARPES suggèrent que l'on passe avec le dopage d'une surface de Fermi de type électrons à une surface de Fermi de type trou [133]. La magnétorésistance montre, comme l'effet Nernst, un maximum au dopage optimal, coïncidence qui est prévue dans un modèle élémentaire à deux types de porteurs (voir paragraphe 6.3.2).

6.4.2 Cuprates dopés aux trous : vorticit  et fluctuations supraconductrices

C'est dans les cuprates dop s aux trous que l'effet Nernst a fait couler beaucoup d'encre, et g n r  un d bat qui est loin d' tre clos. En 2000, six ans apr s les mesures de Ri *et al.*, Wang *et al.* publient de nouveaux r sultats d'effet Nernst dans la phase normale de LSCO sous dop , montrant un effet Nernst *positif*, prolongeant le signal des vortex dans la phase normale [131]. Ce comportement est confirm  par la suite dans LSCO et dans Bi-2201 [111], puis dans YBCO [132], et enfin  tudi    plus bas dopage et   plus haut champ dans LSCO [120]. De fa on compl mentaire   ce comportement de prolongement de l'effet Nernst *en temp rature au dessus de la transition*, on observe  galement *une survie tr s frappante de l'effet Nernst en champ magn tique*. En effet, le pic d'effet Nernst associ ,   bas champ, aux vortex dans la phase supraconductrice semble survivre de fa on assez soutenue lorsque l'on augmente le champ alors que la zone de temp rature correspondant   la transition supraconductrice a  t  nettement d cal e   plus basse temp rature par le champ magn tique (figure 6.5) . Cette survivance du pic d'effet Nernst sugg re que la supraconductivit  (ou plus pr cis ment la vorticit ) est plus robuste par rapport au champ magn tique que ne semble l'indiquer la r sistivit .

Tous ces r sultats ont  t  interpr t s comme une manifestation d'excitations de type vortex dans la phase pseudogap [29]. Cette vision se place dans un mod le de paires pr form es, o  T_c traduit non pas la disparition de *l'amplitude* du param tre d'ordre, mais uniquement de la *coh rence de phase*. En effet, la temp rature caract ristique associ e aux fluctuations de phase est reli e   l'inverse de la longueur de p n tration $\lambda(0)$ par [123] :

$$T_\theta^{max} = \frac{A}{k_B} \frac{\hbar^2 a}{4\mu_0 e^2 \lambda^2(0)}$$

o  a est le maximum entre la longueur de coh rence et l'espacement entre deux plans cristallographiques, et A une constante sans dimension, variant de 2,2 pour les mat riaux isotropes   0,9 pour les mat riaux quasi-bidimensionnels.

Il est  vident que si T_θ^{max} est tr s grand devant T_c , alors les fluctuations de phase ne vont que tr s peu intervenir dans la transition supraconductrice, et donc que T_c sera tr s bien donn e par la th orie BCS (ce qui signifie en particulier que la temp rature de transition correspondra bien   l'annulation de *l'amplitude* du param tre d'ordre). C'est ce qui se produit dans les supraconducteurs usuels comme le plomb, o  le rapport T_θ^{max}/T_c vaut environ 10^5 .

Par contre, dans les cuprates, ce rapport est proche de 1, et on s'attend   ce que T_c soit drastiquement r duite par les fluctuations de phase. Ceci am ne naturellement   imaginer que l'annulation de l'amplitude du param tre d'ordre se produit   plus haute temp rature, mais que les fluctuations de phase emp chent les propri t s macroscopiques (conductivit  infinie et diamagn tisme parfait) d' merger. La valeur de T_c est donc le produit d'une comp tition entre la supraconductivit  et les fluctuations de phases, ce qui induit qu'il y a bien des paires *pr form es* au-dessus de T_c . Il est alors ais  de comprendre pourquoi on peut interpr ter les r sultats d'effet Nernst comme une manifestation de l'existence d'excitations de type vortex dans la phase normale.

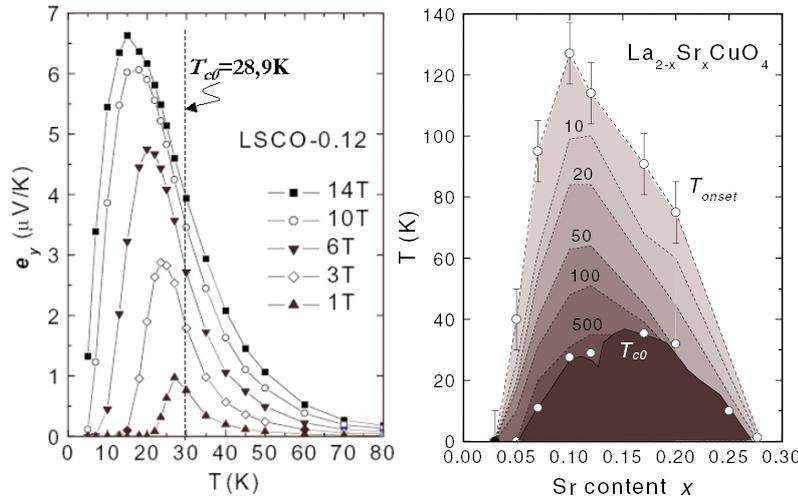


FIG. 6.5 – *A gauche*: Effet Nernst dans LSCO sous dopé en fonction de la température. *A droite*: diagramme de phase tiré de l'effet Nernst, où T_{onset} est la température d'apparition du signal Nernst [29].

Plusieurs faits expérimentaux dans les résultats d'effet Nernst rendent cette conclusion plausible (voir figure 6.5). D'une part, celui-ci ne montre aucun accident à la transition supraconductrice donnée par la résistivité ou la susceptibilité. D'autre part, l'effet Nernst présente la forme de tente caractéristique des vortex jusqu'à son annulation à une température bien supérieure à T_c . Enfin, il semblerait, même si l'effet Nernst n'a pas encore été mesuré pour des échantillons tellement surdopés que leur T_c tombe à zéro, que l'émergence de cet effet Nernst coïncide en dopage avec l'émergence de la supraconductivité [29]⁶.

6.4.3 D'autres scénarios

Encore plus récemment, différents scénarios ont été proposés pour expliquer l'effet Nernst dans les cuprates et dans d'autres systèmes :

- l'existence d'un N fini pourrait provenir de fluctuations supraconductrices, mais n'impliquant pas nécessairement l'existence d'excitations de types vortex. Kontani a proposé un modèle de fluctuations supraconductrices d – wave transportées par les corrélations AF dans la phase pseudogap [32]. D'un autre côté, Ussishkin *et al.* ont mis en avant une description de type gaussienne des fluctuations, permettant de contourner les difficultés liées au traitement des vortex à haute température [33].
- l'effet Nernst pourrait avoir comme origine l'existence d'une onde de densité non conventionnelle, qui, se mouvant sous l'influence d'un gradient thermique, générerait un effet Nernst [124][136]. Cette explication a été proposée tant pour les cuprates que pour les mesures sur NbSe_2 présentées dans cette thèse.
- Divers scénarios plus "exotiques" ont par ailleurs vu le jour, impliquant l'existence

⁶Remarquons cependant qu'un effet Nernst fini a été mesuré dans la partie sous-dopée *non-supraconductrice* du diagramme de phase.

de paires de bosons — les bipolarons — formées dans la phase pseudogap [125], ou bien les interférences entre les électrons localisés par des impuretés au niveau de Fermi et les électrons itinérants [126].

Contrairement à l'interprétation ambipolaire dans les cuprates dopés aux électrons qui visiblement fait maintenant consensus, tous les scénarios proposés dans les cuprates dopés aux trous sont sujets à débats. Un des fondements, et également une des lacunes de ce débat est qu'à part dans les oxydes supraconducteurs, l'effet Nernst n'a été que peu mesuré dans les systèmes non-conventionnels, malgré la simplicité de la mise en œuvre expérimentale. Ceci est probablement dû au fait que, à l'instar du pouvoir thermoélectrique, son interprétation dans les systèmes complexes peut se révéler très ardue, voire impossible.

Cependant, une des manières d'éclaircir le débat actuellement en cours dans les cuprates est de répondre à la question suivante : l'effet Nernst est-il obligatoirement relié à la présence de vortex, et, si non, quelles sont les autres contributions et dans quelle mesure peut-on les exclure dans les cuprates dopés aux trous ?

Les résultats que nous allons maintenant présenter constituent un début de réponse à cette question.

Chapitre 7

La mesure de l'effet Nernst

7.1 Dispositif expérimental

Le dispositif que nous employons nous permet de mesurer simultanément l'effet Nernst, le pouvoir thermoélectrique et la conductivité thermique, ainsi que l'effet Hall et la résistivité électrique. Plus précisément, les mesures thermoélectriques procèdent de la détermination de deux grandeurs, le gradient thermique et les tensions transverses et longitudinales, ces deux mesures présentant des contraintes distinctes.

7.1.1 Description et spécifications du dispositif

Nous avons pour toutes les mesures de thermoélectricité utilisé un cryostat à ^4He , ce qui offre une gamme de température allant de 1,2K jusqu'à environ 50K. La puissance frigorifique est donnée soit par une pompe mécanique externe, soit par une pompe à charbon située dans le cryostat, et permettant de descendre aux plus basses températures tant qu'elle n'est pas saturée. Le porte-échantillon est composé de plusieurs parties distinctes (fig. 7.1) :

① le corps du porte-échantillon lui-même, en cuivre pour assurer une thermalisation rapide et surtout homogène. Il est directement relié au doigt froid du cryostat, et tous les fils y sont thermalisés à l'aide de masses thermiques. Par ailleurs, un petit bloc permet de créer facilement un contact thermique entre un côté de l'échantillon et le porte-échantillon, fixant la température de cette extrémité à la valeur de celle du porte-échantillon (la conductance thermique des parties en cuivre étant considérable comparée à celle de l'échantillon, le gradient thermique se situe uniquement sur ce dernier).

② Le chauffage est une résistance d'environ $2\text{k}\Omega$ à basse température. C'est la puissance qui y est dissipée par effet Joule qui génère le courant de chaleur dans l'échantillon, et donc, puisque le côté opposé est maintenu à la température de consigne, le gradient thermique. La valeur de la puissance émise est contrôlée par une source de courant DC qui mesure également la tension aux bornes du chauffage. Les puissances injectées typiques vont de $1\ \mu\text{W}$ pour les plus basses températures à $250\ \text{mW}$ pour les plus élevées. Typiquement, ceci nous permet d'obtenir des gradients thermiques compris entre 5 et 10% de la température moyenne de l'échantillon dans l'ensemble de nos expériences.

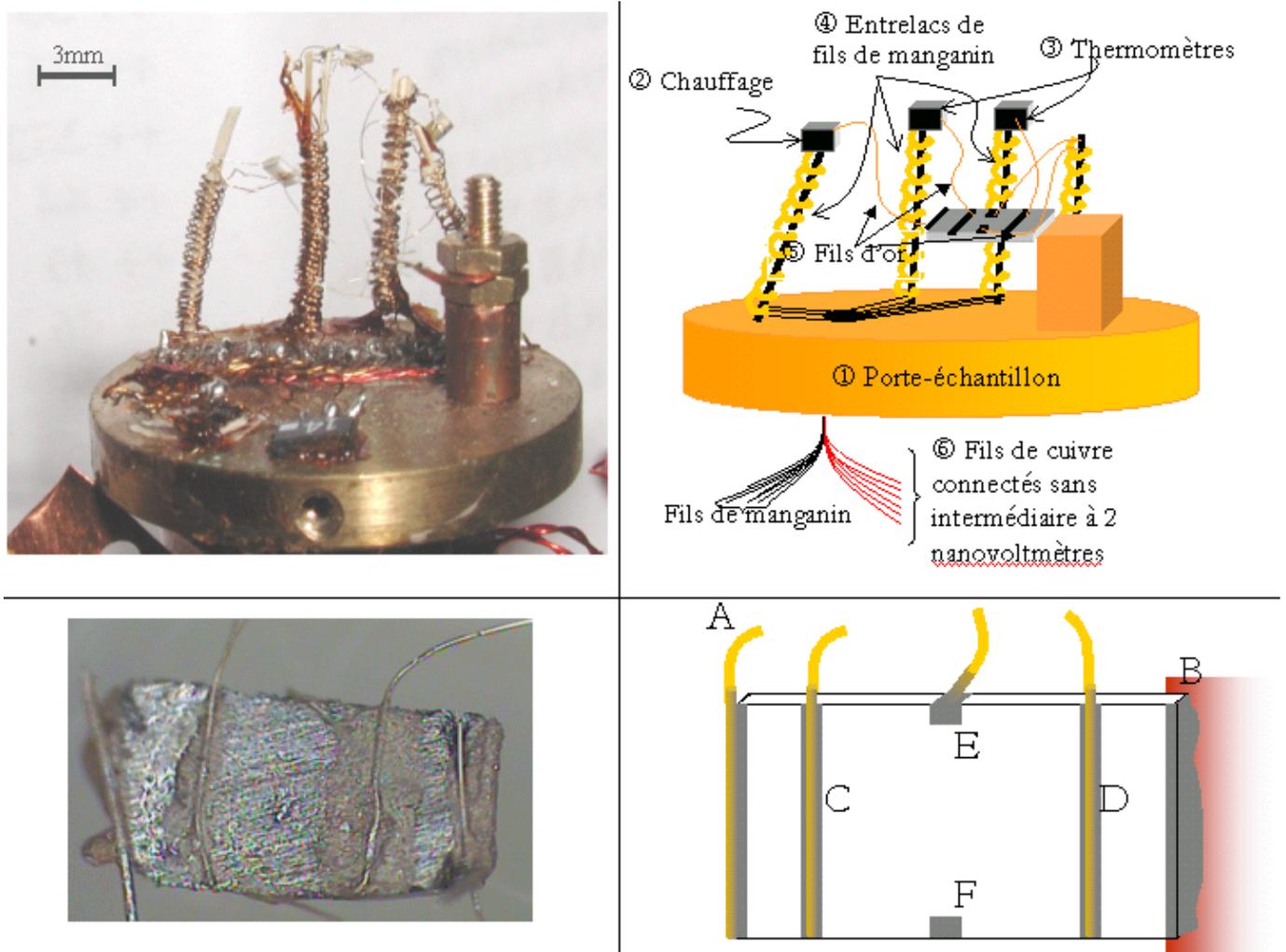


FIG. 7.1 – Photo et schéma de l'échantillon et du porte échantillon

③ Les deux thermomètres sont des Cernox, permettant une bonne sensibilité dans notre gamme de température (même si celle-ci devient assez basse au-dessus de 30K). Leur valeur est mesurée à l'aide de deux lock-ins.

④ Les fils de manganin sont les fils d'amenée de courant. Ils sont entrelacés deux par deux pour éviter les contributions parasites dues à l'induction magnétique, ainsi que pour minimiser les contraintes dues à la force de Laplace. Bien que métallique, le manganin possède une très mauvaise conductivité thermique, et la forme hélicoïdale donnée à la tresse permet d'en augmenter la longueur, ce qui permet de réduire les pertes thermiques lors des mesures de conductivité thermique, ceci pour être sûr que quasiment toute la puissance générée par le chauffage va effectivement transiter par l'échantillon, et non par un autre circuit thermique. Afin d'éviter qu'ils ne vibrent trop et ne perturbent les mesures, et aussi pour leur conférer une certaine rigidité, un morceau de bois est glissé à l'intérieur de l'hélice à la façon d'un tuteur.

⑤ Les fils d'or (ou parfois d'argent) sont les agents essentiels de la mesure. Possédant

une excellente conductivité thermique et électrique, ils vont jouer deux rôles :

- ils vont constituer le contact thermique entre l'échantillon et le chauffage (contact A) et les thermomètres (contact C et D).
- ils constituent également la dernière partie des fils de mesure électrique (contacts C et D pour la tension longitudinale et E et F pour la tension transverse) et d'injection de courant électrique (contacts A et B).

⑥ Bien entendu, des fils relient le porte-échantillon aux appareils de mesure. Usuellement, il s'agit de fils de manganin avec plusieurs étages thermiques pour limiter les pertes thermiques et augmenter la puissance frigorifique du cryostat. Cependant, dans le cas des mesures de thermoélectricité qui sont des mesures de tension *continue*, il faut utiliser un circuit qui ait peu de contributions continues dans la mesure. Nous avons donc utilisé des fils de cuivre *reliés sans aucun intermédiaire aux nanovoltmètres DC*, ce qui permet en particulier de se débarrasser des contributions dues aux soudures à haute température.

Ce dispositif nous permet d'avoir une résolution sur nos mesures électriques de l'ordre du dixième de nanovolt, et sur le gradient thermique de l'ordre d'un millième de la température moyenne de l'échantillon.

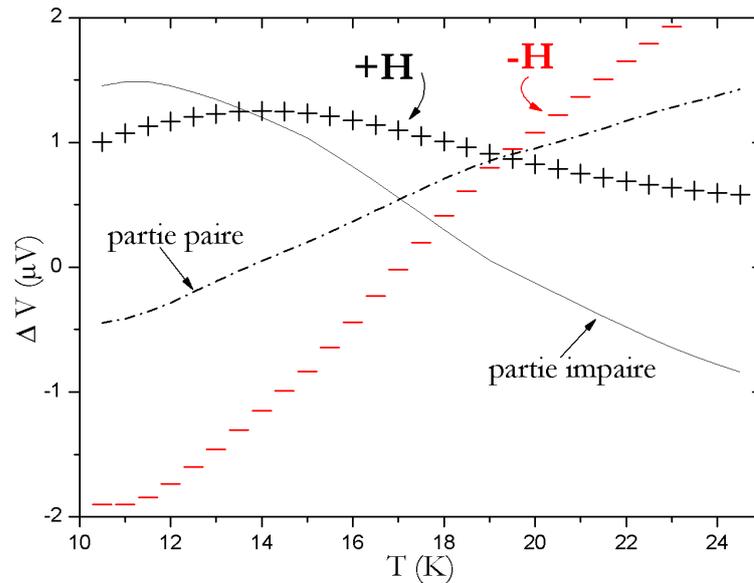


FIG. 7.2 – Parties paire et impaire du signal Nernst : + signal mesuré à $+H_0$; - signal mesuré à $-H_0$; trait continu : partie impaire ; trait pointillé : partie paire.

7.1.2 Procédure expérimentale

Mesures thermoélectriques

Le principe des mesures d'effet Nernst et de pouvoir thermoélectrique est particulièrement trivial : il s'agit d'imposer un gradient thermique perpendiculairement à un champ magnétique, de le mesurer et de mesurer les tensions longitudinales et transverses qui apparaissent. Cependant, en pratique, il faut se débarrasser de deux contributions pour

pouvoir faire la mesure : l'offset thermoélectrique, qui provient entre autres du pouvoir thermoélectrique du cuivre, et le mésalignement des contacts, qui va entraîner une contamination de l'effet Nernst par le pouvoir thermoélectrique et vice-versa. Pour se débarrasser de ces deux contributions, le protocole expérimental est le suivant :

- mesure à gradient thermique nul (c'est-à-dire sans aucun courant dans le chauffage)
- mesure à gradient thermique fini, en présence d'un champ magnétique positif
- procédure similaire pour la direction opposée du champ magnétique.

La soustraction du signal à gradient nul permet de se débarrasser de l'offset. Ensuite, en supposant que l'effet Nernst — en tant qu'effet transverse — est impair en champ et que le pouvoir thermoélectrique est pair en champ, l'extraction de la composante *impaire* du signal mesuré entre E et F et de la composante *paire* du signal mesuré entre C et D donne respectivement le signal Nernst et le signal thermoélectrique (voir fig. 7.2).

Mesures électriques

Les mesures électriques (résistivité et effet Hall), ont généralement été faites selon le même principe que les mesures thermoélectriques, c'est-à-dire avec la même procédure pour se débarrasser des offsets et extraire les parties paires et impaires. Cependant, pour des matériaux présentant des contributions thermoélectriques si importantes, la contamination due à l'apparition d'un petit gradient thermique lors de l'établissement du courant électrique peut être importante. Nous avons donc effectué des mesures en changeant également la direction du courant électrique, pour s'affranchir des contributions du pouvoir thermoélectrique dans les mesures de résistivité et d'effet Nernst dans les mesures d'effet Hall.

Autres contributions

D'autres contributions aux effets thermoélectriques sont à attendre, en particulier tous les effets de mésalignement (champ, orientation des axes cristallographiques...). Des évaluations rapides montrent que ces effets vont être de l'ordre de quelques pour cent par rapport aux signaux mesurés, ce qui est tout à fait acceptable.

Cependant, il existe une contribution dont il est difficile de se débarrasser : le pouvoir thermoélectrique des fils de manganin. En effet, lors de la mesure de la tension longitudinale, la tension mesurée peut se décomposer ainsi, les contributions entre 300K et T_0 étant supprimées avec l'offset :

$$\begin{aligned}
 V^+ - V^- &= \underbrace{V^+(T_0) - V^+(T^+)}_{Mang.} + \underbrace{V^+(T^+) - V^-(T^-)}_{ech.} + \underbrace{V^-(T^-) - V^-(T_0)}_{Mang.} \\
 &= S_{Mang.}(T_0 - T^+) + S_{Ech.}(T^+ - T^-) + S_{Mang.}(T^- - T_0) \\
 &= (S_{Ech.} - S_{Mang.})(T^+ - T^-)
 \end{aligned}$$

où T_0 est la température du porte-échantillon, T^+ est la température en C, T^- celle en D, $S_{Ech.}$ le pouvoir thermoélectrique de l'échantillon et $S_{Mang.}$ celui du manganin. Il faut

donc ajouter à toutes nos mesures de pouvoir thermoélectrique le pouvoir thermoélectrique du manganin, qui est positif et vaut environ 400nV/KT à 10K et 100nV/KT à 2K [137], ce qui reste en général petit par rapport à ceux que nous avons mesurés. Notons que cet effet n'affecte pas l'effet Nernst, puisque les contacts E et F sont, eux, à la même température, et également parce qu'il contribue de façon *paire en champ magnétique* à la tension.

7.2 Adiabatique ou isotherme ?

Dans l'immense majorité des mesures d'effet Nernst, la question des conditions aux limites s'est posée. En effet, l'effet Nernst peut être mesuré :

- de façon adiabatique, c'est-à-dire avec des conditions aux limites du type $J_{Qy} = 0$, et donc *a priori* $\vec{\nabla}_y T \neq 0$. C'est la façon dont nous avons mesuré l'effet Nernst.
- ou de façon isotherme, c'est-à-dire avec des conditions aux limites du type $\vec{\nabla}_y T = 0$. C'est ce qui arrive lorsque l'échantillon est déposé sur un substrat.

L'immense majorité des mesures d'effet Nernst sont effectuées de manière *adiabatique*. Or il est évident que dans cette configuration, un terme parasite peut complètement fausser les mesures : l'effet Righi-Leduc. Cet effet consiste en l'apparition, sous champ magnétique, d'un gradient thermique transverse et si le matériau possède un pouvoir thermoélectrique, ce gradient thermique va générer un champ électrique *transverse, impair en champ magnétique* $\vec{E}_y^{R.L.} = \vec{\nabla}_y T S$, qui n'a rien à voir avec l'effet Nernst au sens strict du terme. Comme les mesures isothermes restent très difficiles à faire (en particulier parce que les gradients thermiques sont faibles), il faut s'assurer que cet effet ne soit pas l'effet prépondérant, c'est-à-dire que $\frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T} \ll 1$.

Trivialement, l'application des conditions aux limites adiabatiques donne :

$$\frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T} = \frac{\kappa_{xy}}{\kappa_{xx}} \quad (7.1)$$

ce qui ramène à la relation bien connue entre l'effet Nernst adiabatique et l'effet Nernst isotherme [112] [138] :

$$N^i = N^a + S \frac{\kappa_{xy}}{\kappa_{xx}} \quad (7.2)$$

Tout d'abord, si l'on ne considère que le gaz d'électrons et si la loi de Wiedemann-Franz est vérifiée, l'angle de Righi-Leduc est strictement égal à l'angle de Hall. Plus exactement, on peut montrer que, quand la loi de Wiedemann-Franz n'est pas vérifiée :

$$\frac{\theta_{R.L.}}{\theta_H} = \frac{L}{L_0} \quad (7.3)$$

où $L = \frac{\kappa\rho}{T}$ et L_0 est le nombre de Lorentz. Or pour l'immense majorité des métaux, $L \leq L_0$, ce qui fait que *l'effet Hall est une borne supérieure de l'effet Righi Leduc*. Un angle de Hall faible est donc la garantie que l'effet Nernst adiabatique et l'effet Nernst isotherme sont quasiment identiques.

Ensuite, si l'on tient compte à présent des phonons, la relation 7.1 se réécrit :

$$\frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T} = \frac{\kappa_{xy}^e}{\kappa_{xx}^e + \kappa_{xx}^{ph}} \quad (7.4)$$

ce qui montre que si les phonons dominent le transport d'entropie, alors l'effet Righi-Leduc va être également faible. Finalement, on peut tout condenser sous la forme :

$$\frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T} = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} \left[\frac{1}{1 + \frac{\kappa^{ph}}{\kappa^e}} \right] \quad (7.5)$$

Nous discuterons pour chacune de nos mesures de l'opportunité de confondre N^a et N^i . Pour ce faire, nous utiliserons les deux limitations :

- soit $L \gg L_0$, auquel cas les phonons dominent le transport de chaleur, et la direction du gradient thermique est majoritairement imposée par eux, et est donc longitudinal.
- sinon, il nous faudra comparer les deux angles $\frac{N}{S}$ et $\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}}$, puisque si la tension transverse vient uniquement de l'effet Righi-Leduc, alors $\frac{N}{S} = \frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T} = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}$.

Quatrième partie

Résultats de thermoélectricité

Chapitre 8

Supraconducteurs métalliques ”conventionnels” : le cas de NbSe₂

Préliminaire : effet Nernst isotherme dans l’or

Dans la partie précédente, nous avons vu que l’effet Nernst isotherme dans un métal simple devait être nul. Cependant, comme la mesure de l’effet Nernst a connu un regain d’intérêt et que cette affirmation est une des bases de son interprétation, nous avons effectué une mesure dans l’or.

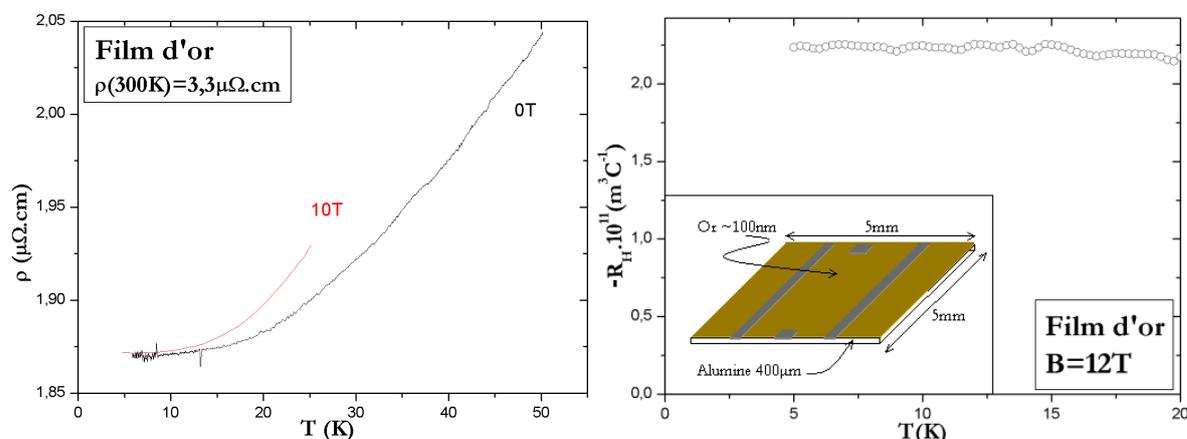


FIG. 8.1 – Mesures électriques dans un échantillon d’or évaporé sur de l’alumine : *A gauche*: Résistivité. *A droite*: Coefficient de Hall. *En insert* : schéma de l’échantillon.

Afin d’être sûr que nous mesurons l’effet Nernst de façon isotherme et non de manière adiabatique, nous avons évaporé un mince film d’or ($e \approx 100\text{nm}$) sur une plaque d’alumine de $400\mu\text{m}$ d’épaisseur et de dimensions $5\text{mm} \times 5\text{mm}$ (voir figure 8.1). La rugosité de l’alumine, contrôlée par AFM, est inférieure à 30nm , ce qui nous assure une couche d’or relativement homogène. Ainsi, nous avons un support *isolant* qui contrôle la conduction de chaleur, et qui va imposer un gradient thermique strictement parallèle au courant de chaleur, la conductance du substrat d’alumine étant de plus d’un ordre de grandeur

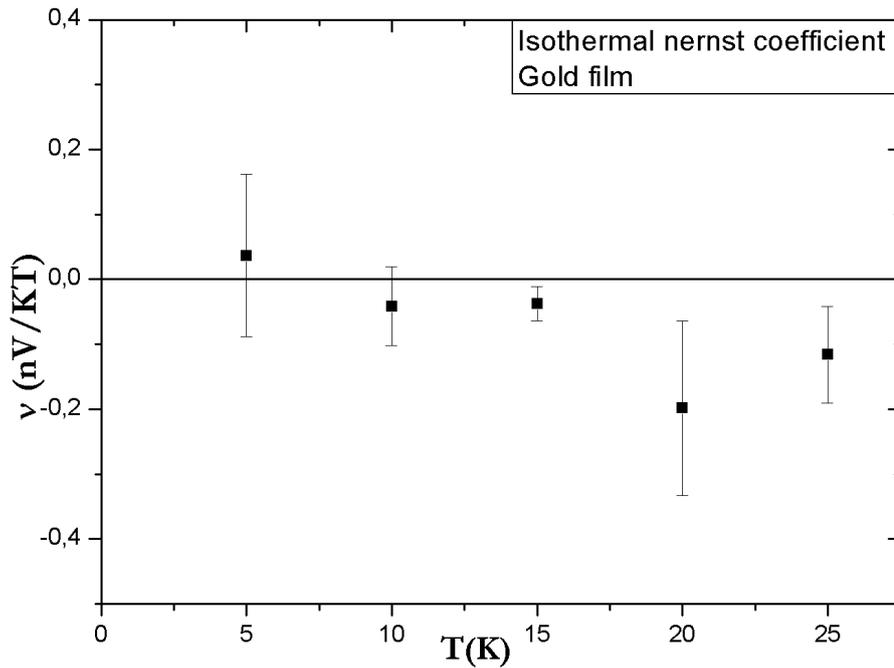


FIG. 8.2 – Effet Nernst isotherme dans un échantillon d'or.

supérieure à celle de l'or¹. Par contre, les propriétés thermoélectriques vont, elles, être imposées par la partie *conductrice* de l'ensemble, et donc par l'or.

L'intégrité et la qualité de l'échantillon ont été testées par des mesures élémentaires de résistivité et d'effet Hall. Ces mesures sont données figure 8.1.

Le rapport de résistivité ainsi trouvé est de moins de 2, et une comparaison avec la littérature montre que notre échantillon est très sale, même si pour de telles épaisseurs les rapports de résistivité rapportés sont plutôt de l'ordre de 4 [142]. Par contre, le coefficient de Hall est constant en température, comme pour un métal normal, même si sa valeur reste assez faible [139], et mène à un nombre de porteurs de :

$$n = \frac{1}{R_{He}} = 2,7 \cdot 10^{23} \text{ porteurs } \text{cm}^{-3}$$

ce qui est une valeur un peu élevée comparée aux valeurs tabulées ($6 \cdot 10^{22}$ pour l'or à 300K), mais la qualité des mesures, ainsi que l'incertitude très élevée sur le facteur géométrique *réel* de la couche d'or (pas du tout contrôlé lors de l'évaporation) peuvent induire une telle différence.

Ceci nous confirme que nous avons bien un échantillon conducteur déposé sur l'alumine.

Les mesures d'effet Nernst ont été effectuées à l'aide de rampes en champ de -12T à +12T — et inversement — à diverses températures. Cette méthode permet de mieux

¹En effet, la conductivité thermique de l'alumine étant voisine de 100mW/Kcm [140], et celle de l'or variant entre 4 et 20 W/Kcm, le rapport entre les deux conductances va être donné par $\frac{\lambda_{Au}}{\lambda_{Alu}} = \frac{\kappa_{Au}}{\kappa_{Alu}} \frac{e_{Alu}}{e_{Au}} \approx 40$.

discerner la partie impaire du signal, et donc l'effet Nernst. Les résultats sont donnés figure 8.2.

Comme on le voit, l'effet Nernst est extrêmement faible ($< 0,2 \text{ nVK}^{-1} \text{ T}^{-1}$), et à la limite de notre résolution expérimentale. Pour des effets de cet ordre de grandeur, les effets parasites comme l'induction magnétique ou la dissipation dues à la variation du champ magnétique ne sont plus négligeables. Nous pouvons donc conclure que, *dans la limite de notre résolution expérimentale, l'effet Nernst isotherme dans l'or est nul*, comme attendu. Cette vérification faite, nous pouvons aborder plus sereinement les résultats suivants.

8.1 2H-NbSe₂ : un métal simple ?

2H-NbSe₂ est un supraconducteur de type II avec une température critique de $T_c = 7,3 \text{ K}$, présentant également une transition onde de densité de charge (CDW) incommensurable à $T_{CDW} = 33 \text{ K}$ [143]. Il possède une structure hexagonales quasi-bidimensionnelle D_{6h}^4 constituée de sandwiches de Se-Nb-Se, et fait partie de la famille des dichalcogénides. Dans cette famille, trois membres sont particulièrement intéressants, TaS₂, TaSe₂ et NbSe₂, qui présentent tous trois les deux transitions, T_c diminuant et T_{CDW} augmentant lorsque l'on descend dans la classification périodique. Ces deux transitions semblent corrélées dans ces composés.

Ce composé a été découvert au milieu des années 60, relativement étudié depuis, mais les caractéristiques de la transition CDW restent encore inexplicées : observée en neutrons [143] et en rayons X [144], elle n'affecte que très peu les propriétés de transport et thermodynamiques — seules des anomalies sont détectées dans la résistivité et la chaleur spécifique [152]— et les mesures d'ARPES, qui ont parfaitement détecté le gap supraconducteur [145], ont été incapables de détecter celui associé à la transition CDW [146], qui semble par ailleurs ne concerner qu'une toute petite portion de la surface de Fermi. Tout ceci ne serait pas particulièrement intrigant si les mesures d'effet Hall ne perturbaient pas le tableau : celui-ci, loin de se conformer à la quasi-indifférence des autres propriétés de transport par rapport à cette transition, est profondément affecté par celle-ci puisqu'il change de signe à partir de 33K, indiquant *un changement rapide du signe des porteurs majoritaires* [147][148]. Cette incompatibilité apparente entre une surface de Fermi peu troublée par la transition et un coefficient de Hall indiquant un changement radical dans sa topologie reste encore intrigante.

Les échantillons de NbSe₂ que nous avons mesurés nous ont été synthétisés par H. Berger², par la méthode usuelle de transport par des vapeurs d'iode, qui consiste à enfermer dans une ampoule à quartz les quantités stoechiométriques de Nb et Se et à les soumettre à un gradient de température pendant plusieurs semaines. La taille typique des échantillons était de $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm} \times 100 \mu\text{m}$, et leur résistivité résiduelle valait environ $6 \mu\Omega\text{cm}$, comme on peut le voir figure 8.5.

²Département de Physique, Ecole polytechnique Fédérale de Lausanne, CH-1015 Lausanne, Suisse.

8.2 Effet Nernst dans NbSe₂

C'est dans ce contexte que nous avons effectué des mesures thermoélectriques dans NbSe₂, à l'origine pour étudier un supraconducteur de type II plus conventionnel que les cuprates. La figure 8.3 donne la dépendance en température de l'effet Nernst dans la phase métallique et dans la phase supraconductrice.

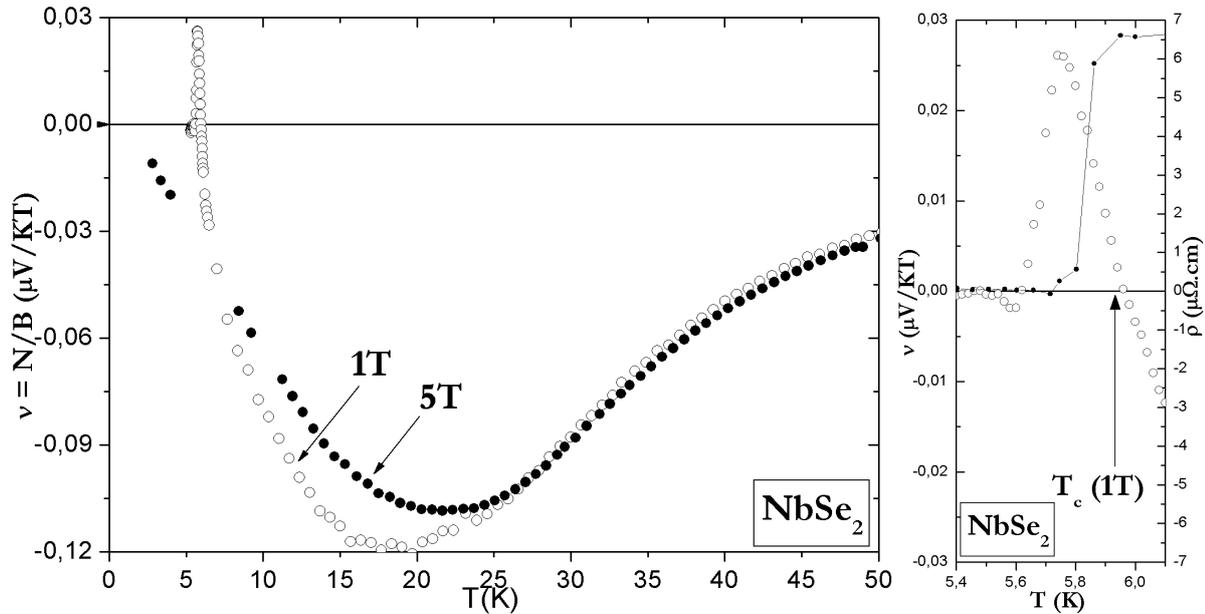


FIG. 8.3 – *A gauche*: Coefficient Nernst dans NbSe₂ pour $B=1\text{T}$ (cercles vides) et $B=5\text{T}$ (cercles pleins). *A droite*: Coefficient Nernst dans la phase supraconductrice à 1T (cercles vides) et résistivité à la transition (petits ronds pleins et trait continu).

8.2.1 Signal vortex dans la phase mixte

On distingue très clairement dans la phase supraconductrice le signal *positif* dû au vortex, avec la forme de tente caractéristique, qui culmine à $5,7\text{K}$ à $270\text{nV}/\text{KT}$. Remarquons que l'annulation de la résistivité et celle du signal vortex ne coïncident pas, bien qu'elles le devraient, ceci étant dû à l'élargissement de la transition supraconductrice causé par l'application d'un gradient thermique, certaines parties étant à des températures plus élevées que la température moyenne de l'échantillon. Le gradient thermique n'étant pas présent lors des mesures de résistivité, il est normal que celle-ci tombe apparemment à zéro plus vite que le signal vortex (la différence étant de l'ordre de 150mK , ce qui correspond bien à l'élargissement de ΔT attendu).

8.2.2 Un effet Nernst anormal (?) dans la phase métallique

Revenons maintenant au signal de la phase métallique. Le premier résultat frappant de ces mesures est l'émergence, dans la phase CDW mais sans discontinuité à la transition,

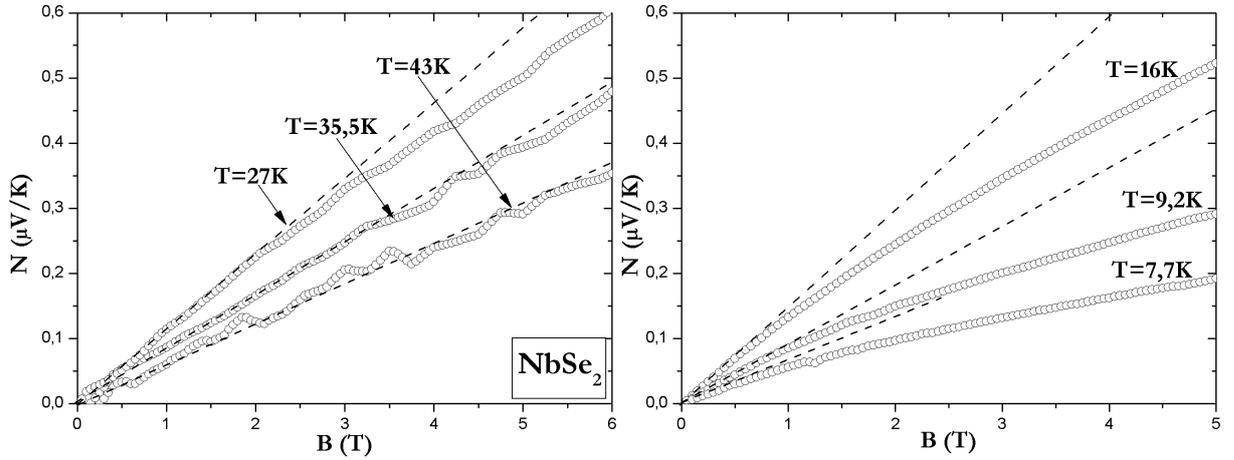


FIG. 8.4 – *A gauche*: Dépendance en champ de l'effet Nernst pour $T > 25\text{K}$. *A droite*: Dépendance en champ de l'effet Nernst pour $T < 25\text{K}$. Les pointillés sont des extrapolations linéaires du signal dans la limite $B \rightarrow 0$.

d'un signal Nernst *négligeable* d'environ 120nV/KT , devenant légèrement sous-linéaire en champ³ en-dessous de 30K . Partant d'une valeur de 30nV/KT à haute température, il augmente lorsque la température diminue pour présenter, dans la phase CDW un pic prononcé vers $20\text{-}25\text{K}$ dont la position dépend légèrement du champ magnétique, avant de chuter rapidement vers zéro, soit à T_c pour $B = 1\text{T}$ puisque l'échantillon est encore supraconducteur, soit à $T = 0$ pour $B = 5\text{T} > H_{c2} = 4,5\text{T}$.

Par ailleurs, à haute température, il est strictement linéaire en champ magnétique, et devient légèrement sous-linéaire en-dessous de la transition CDW, cette déviation par rapport à la linéarité s'aggravant au fur et à mesure que l'on descend en température, comme on le voit figure 8.4.

8.3 Autres propriétés de transport

Comme nous l'avons dit précédemment, les autres propriétés de transport sont peu affectées par la transition CDW, comme en témoignent par exemple le pouvoir thermoélectrique et la résistivité (figure 8.5), même si dans cette dernière on peut deviner une petite rupture de pente à la transition (insert de la figure 8.5).

Le pouvoir thermoélectrique présente, tout comme l'effet Nernst, un maximum vers 25K . Il est — assez conventionnellement — indépendant du champ magnétique, et est de plus linéaire de $T = 0\text{K}$ à $T \approx 10\text{K}$. Ce comportement linéaire à basse température est le comportement prédit par un modèle simple de gaz d'électrons. De plus, si l'on calcule le rapport $N_0 e \frac{S}{T}$, on trouve une valeur de 29mJ/K^2 , assez proche de la valeur du coefficient γ chaleur spécifique⁴ $C/T = \gamma = 17\text{mJK}^2$ [152].

³Par *sous-linéaire*, nous entendons que $\frac{N(\alpha H_0)}{N(H_0)} < \alpha$. Dans le cas contraire, nous le qualifierons de *sur-linéaire*.

⁴Cette corrélation entre la chaleur spécifique et le pouvoir thermoélectrique est écrite dans tous les

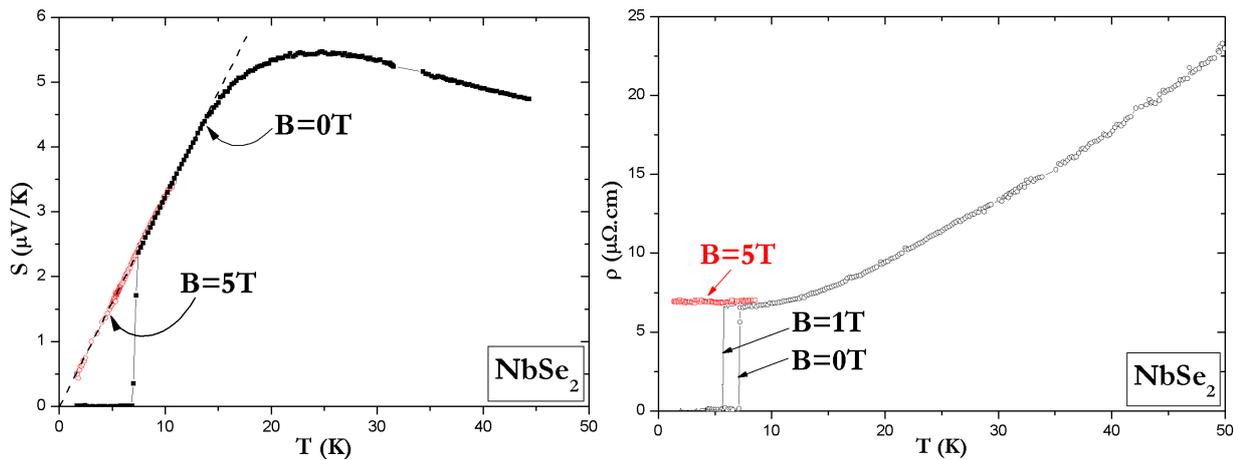


FIG. 8.5 – Deux propriétés de transport de NbSe_2 . *A gauche*: Pouvoir thermoélectrique à 0T (carrés pleins) et à 5T (cercles vides). *A droite*: Résistivité de NbSe_2 à 0T, 1T et 5T. *En insert* : détail de la résistivité autour de T_{CDW} .

En ce qui concerne la résistivité, rien *a priori* ne permet de distinguer une quelconque transition à $T_{CDW} = 33\text{K}$. Cependant, si l'on trace ρ en fonction de T sur un échelle log-log, on distingue une petite rupture de pente à la transition CDW⁵ (figure 8.6).

Parallèlement à ce comportement, l'effet Hall est, lui, spectaculairement affecté par la transition CDW : d'une valeur constante en température *positive* de $5 \cdot 10^{-10} \text{m}^3/\text{C}$ ($n = 1,25 \cdot 10^{22} \text{trous}/\text{cm}^3$), il passe en-dessous de T_{CDW} à une valeur — toujours constante en température — *négative* de $6 \cdot 10^{-10} \text{m}^3/\text{C}$ ($n = 1,04 \cdot 10^{22} \text{électrons}/\text{cm}^3$) (voir figure 8.6). Ce comportement est similaire à celui déjà reporté précédemment [147][148]. Cette inversion sur moins de 20K du signe des porteurs majoritaires traduit, *a priori*, une modification drastique de la topologie de la surface de Fermi. Le scénario qui vient le premier à l'esprit serait la perte d'une poche entière de trous. Or ni la chaleur spécifique (qui montre que la densité d'état reste inchangée de part et d'autre de la transition CDW) ni le pouvoir thermoélectrique qui n'est pas du tout affecté par cette transition ne corroborent ce mécanisme, qu'ils infirment au contraire. En fait, le scénario le plus plausible, que nous discuterons plus en détail, consiste en une modification drastique du libre parcours moyen.

Cependant, même si les raisons microscopiques de ce comportement restent encore incompréhensibles, le changement de signe de l'effet Hall procure une explication assez simple pour l'apparition d'un pic d'effet Nernst dans la phase CDW. En effet, le tracé simultané de l'effet Hall et de l'effet Nernst montre qu'à $B = 5\text{T}$, *le coefficient Nernst est maximal quand le coefficient de Hall est nul* (figure 8.7). Ceci suggère très fortement, si l'on se réfère

textbooks de physique du solide [70]. Cependant, la relation $\gamma = N_0 e \frac{S}{T}$ n'y est jamais écrite, et ce n'est que très récemment qu'on a entrepris de la vérifier à partir des données existantes [150]. Notons de plus qu'il est surprenant que cette relation fonctionne dans NbSe_2 qui possède plusieurs bandes et où on devrait avoir $N_0 e \frac{S}{T\gamma} < 1$.

⁵Ce type d'anomalies en résistivité a déjà été observé dans les mesures précédentes [151][152][153], mais son amplitude semble très dépendante de l'échantillon.

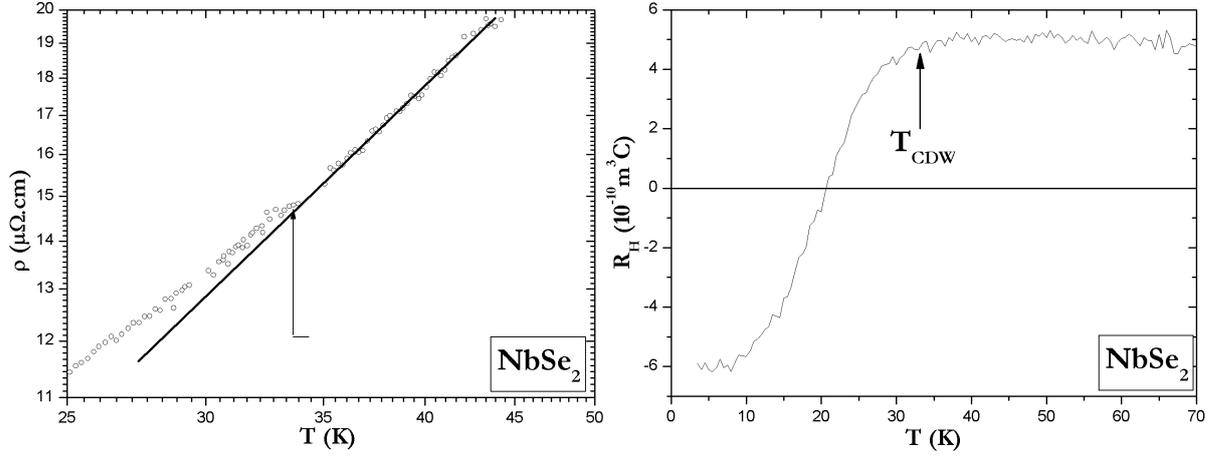


FIG. 8.6 – *A gauche*: Résistivité de NbSe₂ autour de T_{CDW} . *A droite*: Coefficient de Hall dans NbSe₂.

à la partie précédente, que l'effet Nernst observé dans NbSe₂ est d'origine *ambipolaire*, et donc que l'annulation de Sondheimer ne s'applique pas ici⁶.

Pour conclure, revenons à la compensation de Sondheimer. Celle-ci peut être vue, comme nous l'avons discuté dans la partie précédente, comme une compensation entre deux angles, l'angle de Hall et l'angle thermoélectrique. Nos données nous permettent de calculer ces deux angles via les relations :

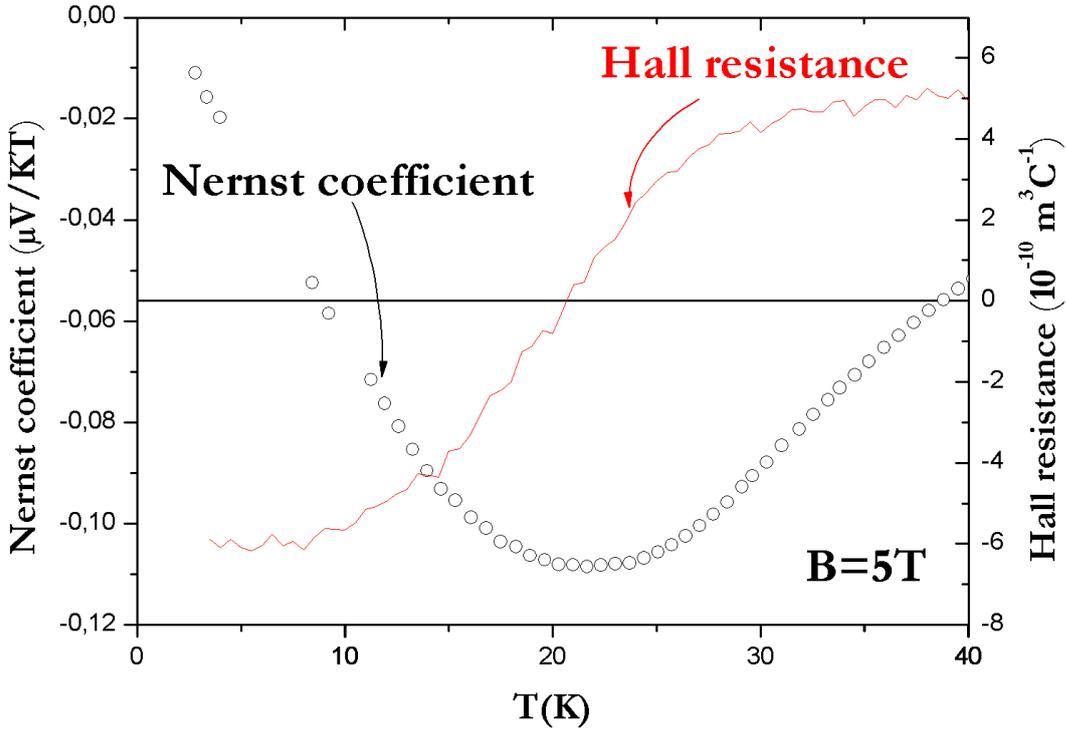
$$\begin{aligned}\sigma_{xx} &= \frac{1}{\rho_{xx}} \\ \sigma_{xy} &= -\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2} \\ \alpha_{xx} &= S \cdot \sigma_{xx} \\ \alpha_{xy} &= \sigma_{xx} N - \sigma_{xy} S\end{aligned}$$

où on a négligé σ_{xy}^2 devant σ_{xx}^2 dans la seconde relation et $\sigma_{xy} N$ devant $\sigma_{xx} S$ dans la troisième. On peut donc tracer les deux angles (ou plutôt leur tangente)(figure 8.8). On voit alors qu'ils subissent tous deux l'entrée dans la phase CDW, certes avec un peu de retard, mais que l'ambipolarité entraîne systématiquement un excès de l'angle de Hall sur l'angle thermoélectrique, ce qui conduit à l'effet Nernst.

8.4 Discussion préliminaire sur NbSe₂

Les mesures thermoélectriques que nous avons effectuées apporte une série d'indices supplémentaires à la compréhension de cette transition CDW, et viennent compléter un tableau donné par les mesures d'effet Hall.

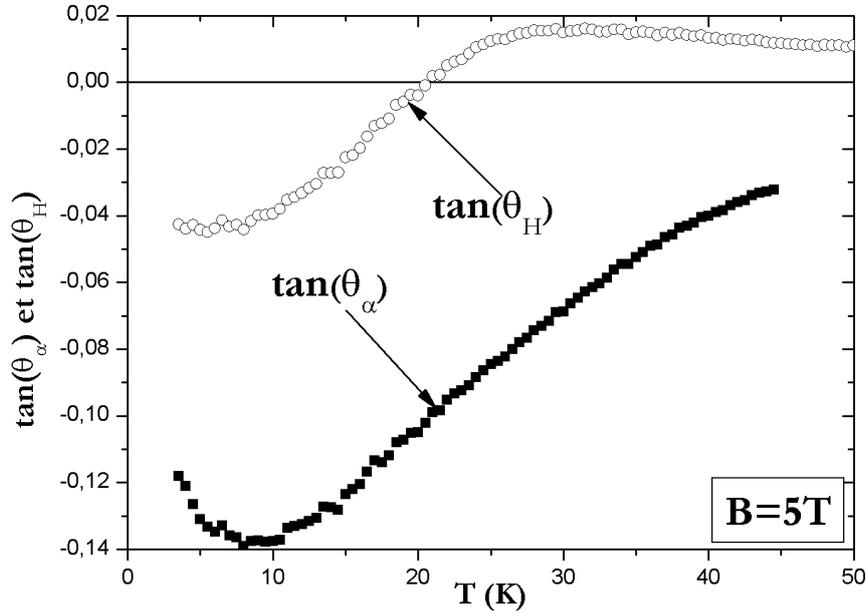
⁶Notons également que cette simultanéité entre la nullité de l'effet Hall et le maximum de l'effet Nernst exclut toute possibilité de contribution adiabatique à ce dernier. Nous pouvons donc ici supposer que $N^a = N^i$.


 FIG. 8.7 – Coefficient Nernst (cercles ouverts) et coefficient de Hall dans NbSe_2 .

Le changement de signe de l'effet Hall après la transition CDW a été interprété comme une indication très forte de l'existence d'une poche d'électrons dans la surface de Fermi. Comme nous l'avons déjà signalé, il est évident que le scénario qui viendrait le premier à l'esprit, à savoir la perte d'une poche de trous au profit d'une poche d'électrons, est invalidé par le fait que la majorité des grandeurs ne voient la transition à 33K que comme une légère anomalie : la chaleur spécifique indique une densité d'état inchangée à 1% près avant et après la transition [152], les mesures d'ARPES ne parviennent pas à distinguer l'ouverture d'un gap... Le pouvoir thermoélectrique que nous avons mesuré vient également confirmer le fait que la densité de porteurs n'est pas affectée par la transition CDW. Une façon d'expliquer le changement de signe de l'effet Hall est d'associer à la transition CDW une modification drastique du libre parcours moyen respectif des différents porteurs. En effet, dans le cas de deux bandes de porteurs de signe opposée, l'effet Hall peut s'écrire [122] :

$$R_H = \frac{2\pi d(l_+^2 - l_-^2)}{e[(k_F^+ l_+)^2 + (k_F^- l_-)^2]}$$

où d est la distance entre deux plans atomiques (ce modèle étant construit dans le cadre de métaux quasi bidimensionnel), l_{\pm} représente les libres parcours moyens des deux bandes et k_F^{\pm} les vecteurs d'onde de Fermi des deux bandes. Cette expression indique clairement que si l_- et l_+ sont différemment affectés par la transition supraconductrice, on peut s'attendre à un changement de signe de l'effet Hall si, d'une situation où $l_+ > l_-$, on passe à une situation où $l_+ < l_-$.

FIG. 8.8 – Angle Peltier et angle de Hall dans NbSe₂.

Une analyse plus fine a également été faite par Huntley et Frindt, en terme de mobilités [148]. Ils ont montré par une sorte de loi d'échelle que l'effet Hall pouvait être expliqué par la présence de trous (1 pour 2 atomes de Niobium) présentant une mobilité réduite et d'électrons très peu nombreux (3 pour 1000 atomes de Niobium) mais possédant une mobilité beaucoup plus grande.

Ce changement de libre parcours moyen est corroboré par la dépendance de l'amplitude (et même de l'existence) du changement de signe de R_H avec la qualité de l'échantillon. En effet, pour $T > T_{CDW}$, R_H est indépendant de la qualité de l'échantillon alors qu'en dessous de T_{CDW} il en devient fortement dépendant. Ceci suggère un passage d'un régime de diffusion par le réseau à un régime de diffusion par les impuretés. La modification drastique du rapport des mobilités des trous et des électrons (μ_+/μ_- passe de 0,1 à 0,04 lorsque T diminue) serait alors due à une différence de comportement dans les interactions entre les deux bandes et les impuretés.

Nos mesures d'effet Nernst viennent confirmer l'existence de deux types de porteurs de signe opposé. En effet, la coïncidence entre le changement de signe de l'effet Hall, le maximum d'effet Nernst ainsi qu'une forte anomalie en magnétorésistance constituent un support solide pour un scénario ambipolaire de la transition CDW, même si à ce jour aucune poche d'électrons n'a été observée dans la surface de Fermi, ni n'est prévue par les calculs de bande.

Finalement, ces mesures viennent rappeler, alors que cet aspect avait été un peu oublié, qu'un métal liquide de Fermi peut abriter un effet Nernst substantiel, pour peu que l'on

soit proche de la situation d'un métal compensé : NbSe₂ constitue en ce sens un exemple quasi-*textbook* de l'effet Nernst ambipolaire en montrant cette coïncidence entre la nullité de l'effet Hall et le maximum de l'effet Nernst.

Cependant, le signe de l'effet Nernst reste encore problématique (de même que le signe du pouvoir thermoélectrique qui reste toujours positif alors que R_H change de signe) et incompris, puisqu'en particulier il est l'opposé de celui observé dans les cuprates dopés aux électrons⁷.

⁷Cette observation sur le signe, ajoutée au fait que l'effet Nernst est non nul au dessus de 33K commence à augmenter en valeur absolue dès 50K, a fondé une autre interprétation de l'effet Nernst dans NbSe₂ : ce dernier serait en fait relié directement à l'existence de l'onde de densité de charge, donc il serait également l'annonciateur [136][154].

Chapitre 9

Fermions lourds supraconducteurs : les cas de CeCoIn_5 et de URu_2Si_2

9.1 Mesures thermoélectriques dans CeCoIn_5

9.1.1 CeCoIn_5 , criticalité quantique et supraconductivité

La famille des $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$ (M=Co, In, Rh)

CeCoIn_5 est membre d'une famille de fermions lourds de formule $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$, où M est un métal de la neuvième colonne de la classification périodique. Le composé le plus simple de cette famille est CeIn_3 , qui cristallise dans une structure cubique type AuCu_3 . Ensuite, les composés CeMIn_5 ($m = 1, n = 1$) cristallisent dans une structure tétragonale de type HoGoCa_5 [155], construite à partir de la "brique élémentaire" CeIn_3 et de plans MIn_2 . C'est la présence de ces plans de MIn_2 qui introduit l'anisotropie dans ces systèmes, même si on ne peut pas parler de composés bidimensionnels. Cette anisotropie est bien entendue augmentée lorsque l'on passe au composé à $n = 2$ dont la seule occurrence est Ce_2RhIn_8 .

Tous les composés avec $n = 1$ présentent par ailleurs un point critique, et CeRhIn_5 devient supraconducteur au voisinage de la pression critique quantique pour quelques GPa. CeIrIn_5 et CeCoIn_5 sont, eux, supraconducteurs à pression ambiante [63].

Tous les composés de la famille des $\text{Ce}_n\text{M}_m\text{In}_{3n+2m}$ semblent pouvoir être décrits par le même diagramme de phase (T,P), même si chacun d'entre eux y occupe une position différente (voir figure 9.1). A pression ambiante, CeIn_3 , CeRhIn_5 et Ce_2RhIn_8 sont antiferromagnétiques, avec des températures de transition de 10,2K, 3,8K et 2,8K, cette phase disparaissant avec la pression pour une pression P_N . Au voisinage de cette pression, ils présentent un point critique quantique qui se manifeste par des propriétés non liquide de Fermi, en particulier par des exposants en résistivité ($\rho - \rho_0 \propto T^\epsilon$) inférieurs à 2 ($1 < \epsilon < 1,6$), et des comportements divergents du coefficient de chaleur spécifique $\gamma = C/T$ à basse température [63]. Pour les trois composés ordonnés antiferromagnétiquement à $P = 0$, la température de Néel T_N diminue lorsque l'anisotropie (paramétrée par n) augmente, ainsi que la pression où la température de transition supraconductrice T_c est maximale.

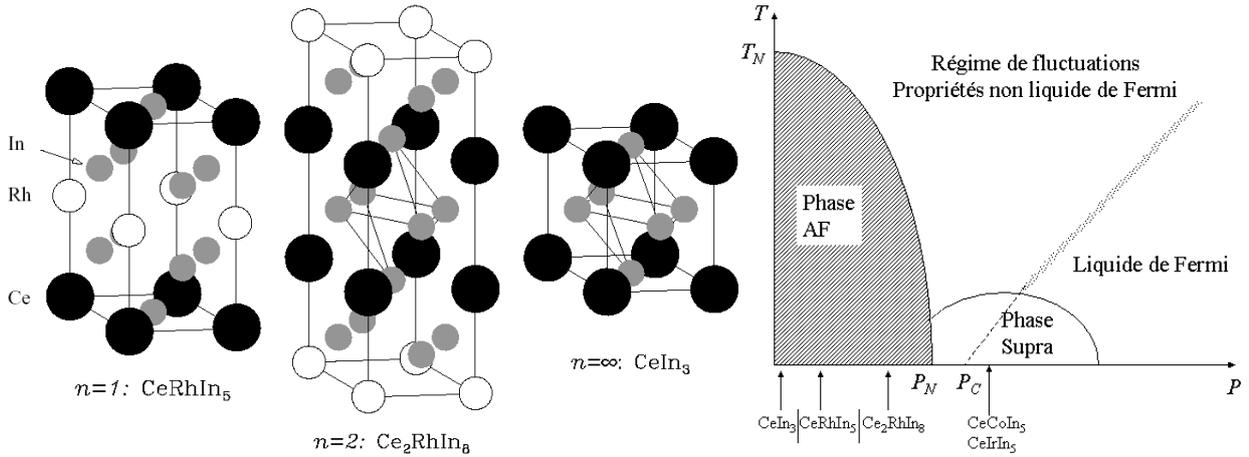


FIG. 9.1 – *A gauche*: Structure cristallographique des composés $Ce_n M_m In_{3n+2m}$. *A droite*: Diagramme de phase générique des composés $Ce_n M_m In_{3n+2m}$

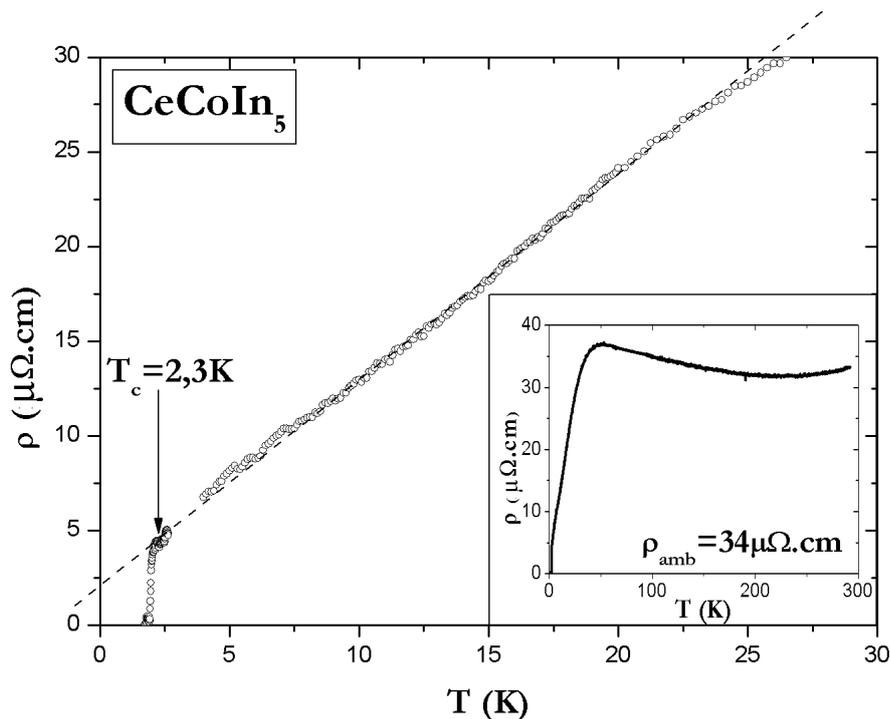
Propriétés particulières de $CeCoIn_5$

$CeCoIn_5$, plus particulièrement, montre des propriétés similaires à celles de ses cousins. C'est un fermion lourd, dans la mesure où son γ dans la phase normale et haut champ (9T), c'est-à-dire quand ce coefficient a un sens, vaut $\gamma = 680 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}^{-1}$, et ses paramètres de maille dans la structure tétragonale sont $a = 0,462 \text{ nm}$ et $c = 0,756 \text{ nm}$. Les mesures de dHvA montrent l'existence de trois surfaces de Fermi, deux de trous et une d'électrons [165]. $CeCoIn_5$ est supraconducteur à pression ambiante avec une température critique de $T_c = 2,3 \text{ K}$ [156], ce qui en fait le fermion lourd supraconducteur possédant la température critique la plus élevée à pression atmosphérique¹. Le champ critique associé à la supraconductivité est de 5T pour $B//c$, et de 12T pour B dans le plan ab . La phase supraconductrice est presque conventionnelle, même si on pense avoir trouvé des traces de transition FFLO à haut champ et basse température dans cette phase [157][158][159].

À pression ambiante et en dessous d'une température $T^* \approx 20 \text{ K}$, sa résistivité devient linéaire en température [160] et le coefficient de Hall varie en $1/T$, ce qui donne $\tan^{-1} \theta_H \propto T^2$ [161], comportements réminiscents de ceux observés dans les cuprates. De plus, sa chaleur spécifique diverge en $-\ln T$ à 5T en dessous de 600mK. Toutes ces déviations par rapport au comportement liquide de Fermi indiquent que $CeCoIn_5$ se trouve au voisinage d'un point critique quantique, que l'on a situé à une pression négative $P_c \approx -0,7 \text{ GPa}$ par analogie avec le diagramme de phase des autres composés $Ce_n M_m In_{3n+2m}$ [160]. Notons cependant que la substitution du cérium par du lanthane, équivalent à l'application d'une pression chimique négative, augmente la température critique, ce qui est l'inverse du comportement attendu pour une pression négative [162].

De plus, il semblerait qu'il existe un passage de ces propriétés non liquide de Fermi à un régime plus conventionnel lorsque l'on applique un champ magnétique. En effet, la résistivité devient en T^2 lorsque l'on augmente le champ au dessus d'une valeur $B_{FL}(T)$

¹Remarquons quand même la découverte récente d'un composé $5f$, $PuCoGe_5$ [61] qui devient supraconducteur à 18,5K et qui possède le même type de structure cristallographique que $CeCoIn_5$.

FIG. 9.2 – Résistivité de $CeCoIn_5$.

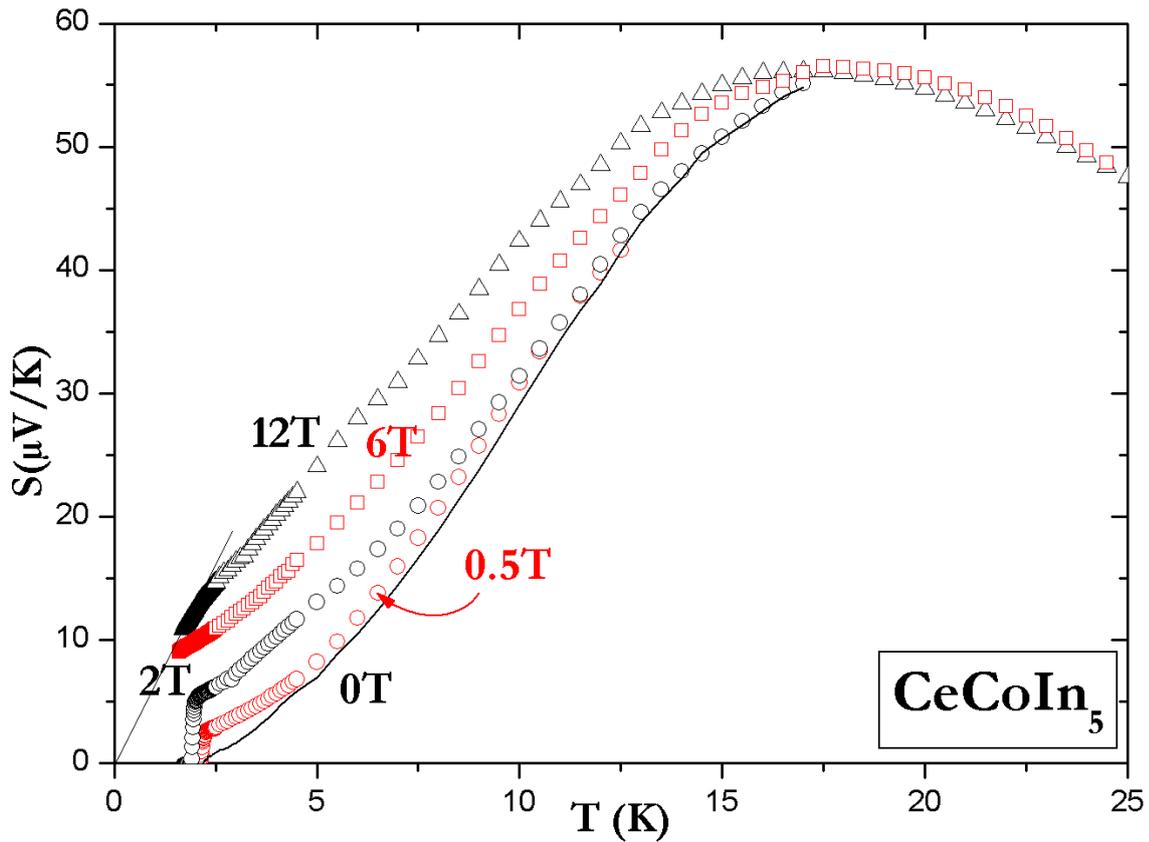
[163], et la chaleur spécifique retrouve un comportement linéaire en température lorsque l'on passe de 5 à 9T [164]. Comme le coefficient A de résistivité ($\rho - \rho_0 = AT^2$), quand il existe, semble diverger à 5T, et ce de façon concomitante avec la divergence de γ , ces observations ont été attribuées à l'existence d'un point critique quantique à 5T, c'est-à-dire coïncidant avec H_{c2} .

Les échantillons que nous avons étudiés ont été synthétisés par une méthode dite de *self-flux* [156] par R. Settai et Y. Onuki², et nous ont été fournis par l'équipe du professeur Y. Matsuda³. La taille typique de nos échantillons est $1\text{mm} \times 1\text{mm} \times 100\mu\text{m}$.

La figure 9.2 montre la résistivité d'un des échantillons de $CeCoIn_5$ que nous avons étudiés. La résistivité à température ambiante vaut $34\mu\Omega.\text{cm}$. Lorsque l'on descend la température, la résistivité diminue lentement, puis remonte pour présenter un maximum très net vers 40K, puis descend très abruptement pour terminer par un régime linéaire en température au-dessous de 20K. On observe également sur cette courbe la transition supraconductrice à 2,3K. L'extrapolation au-delà de cette transition de la résistivité de la phase métallique mène à une valeur de résistivité résiduelle de l'ordre de $2\mu\Omega.\text{cm}$, ce qui est comparable aux valeurs rencontrées dans la littérature.

²Graduate School of Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka, 560-0043 Japan.

³Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581 Japan.


 FIG. 9.3 – Pouvoir thermoélectrique de $CeCoIn_5$.

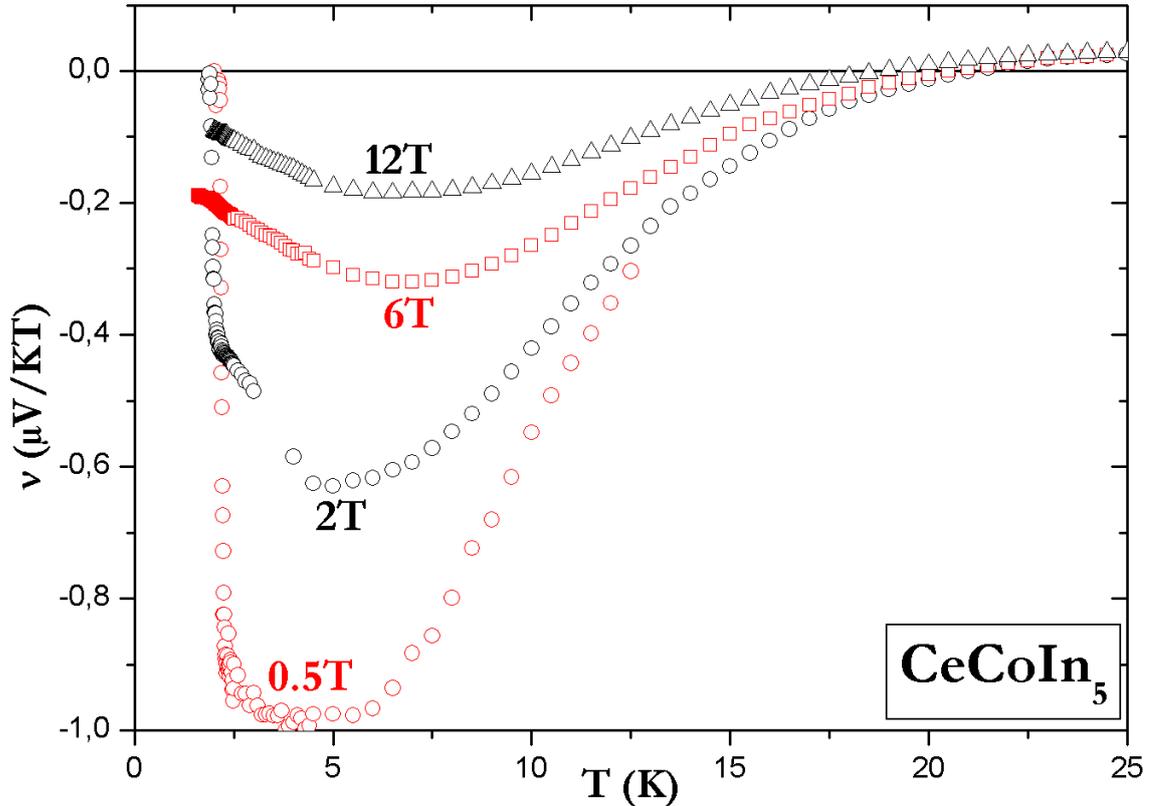
9.1.2 Résultats de thermoélectricité

Nous avons donc effectué des mesures de thermoélectricité dans une zone couvrant la partie non-liquide de Fermi du diagramme de phase. Malheureusement, le cryostat utilisé ne nous a pas permis de descendre suffisamment bas en température, au champ maximal disponible (12T), pour mordre de façon satisfaisante sur la zone où les propriétés liquide de Fermi sont censées être restaurées [163]. Précisons que, dans toutes ces mesures, le champ magnétique est orienté selon l'axe c du cristal, alors que le gradient thermique et les effets thermoélectriques sont dans le plan ab .

Ces mesures montrent qu'il y a trois régimes de température distincts (voir figures 9.3 et 9.4) :

- la partie haute température, c'est-à-dire pour des températures au-dessus de $T^* \approx 18K-20K$.
- la partie non liquide de Fermi, située entre la transition supra (2,3K à champ nul, 0K pour $B > 5T$) et T^* .
- la phase supraconductrice.

Nous allons nous attacher à décrire ces différents régimes.

FIG. 9.4 – Coefficient Nernst dans $CeCoIn_5$.

Partie haute température ($T > T^*$) - propriétés conventionnelles

Il n'y a que peu de choses à dire sur cette zone de température. Comme on peut le voir figure 9.3, le pouvoir thermoélectrique vaut environ $50\mu V/K$, est indépendant du champ, et décroît doucement avec la température. L'effet Nernst (figure 9.4), quant à lui, est linéaire en champ magnétique (autrement dit ν est indépendant du champ) et vaut environ $30nV/KT$. Bien que le signe ne soit pas le même que dans $NbSe_2$, on peut attribuer ce signal à une source ambipolaire, les calculs de bande montrant que $CeCoIn_5$ est un métal compensé [161], avec une surface de Fermi constituée de 3 bandes, dont deux de trous et une d'électrons [165].

Partie non liquide de Fermi ($T_c < T < T^*$)- thermoélectricité exotique

C'est dans cette zone que se situent les résultats les plus étonnants. Comme on peut le constater figure 9.4, en dessous de T^* , l'effet Nernst change de signe et augmente très rapidement jusqu'à atteindre $1\mu V/KT$ pour $B = 0,5T$. Cette valeur est en soi une surprise, puisque jamais un effet Nernst de cette taille n'avait été mesuré dans un métal.

Dans la même zone de température, le pouvoir thermoélectrique devient dépendant du champ. A $0T$, il devient tellement petit qu'il est difficile de distinguer la transition supraconductrice à $2,3K$ sur la figure 9.3. Cette dépendance en champ est très forte,

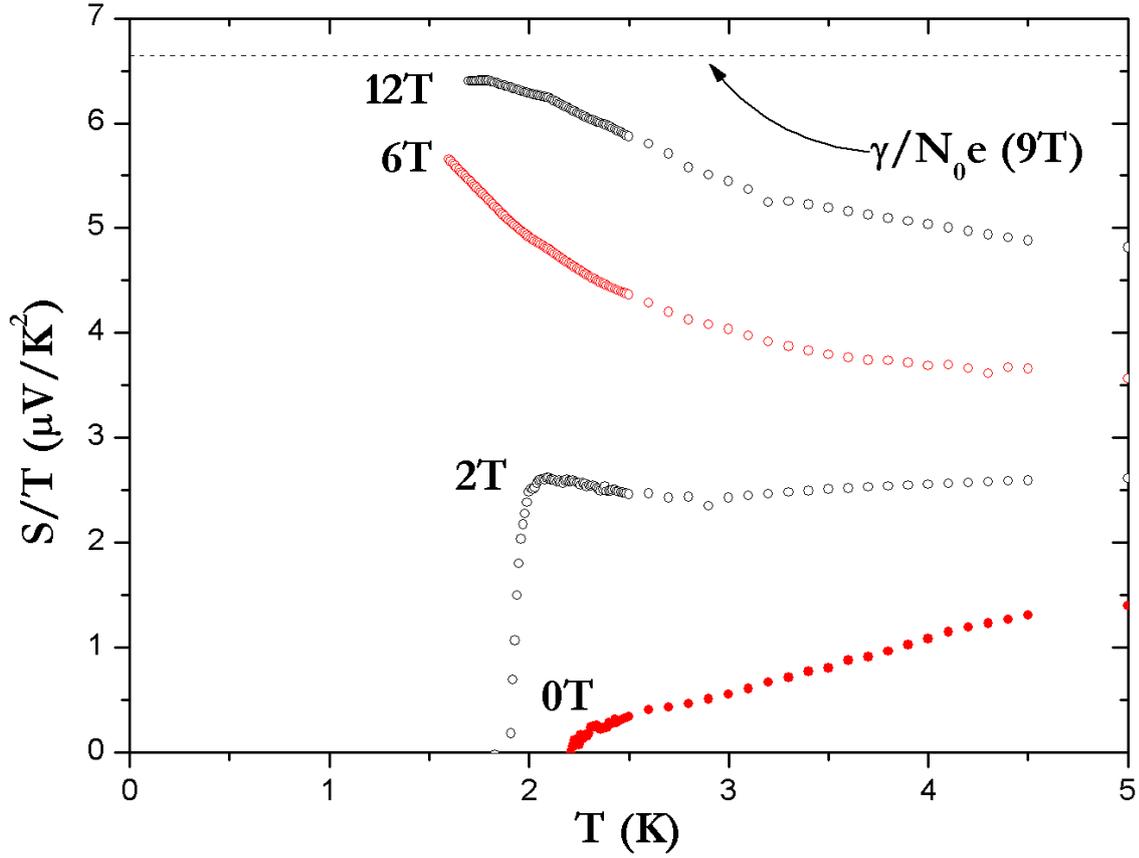


FIG. 9.5 – Rapport S/T dans $CeCoIn_5$ à différents champs magnétiques et $\frac{\gamma}{N_0e}$ à 9T dans la limite $T \rightarrow 0$.

puisqu'à 2,5K S passe de $0,8\mu V/K$ à champ nul à $2,9\mu V/K$ à 0,5T, puis à $15\mu V/K$ à 12T. De plus S ne présente de comportement linéaire en température, même aux plus basses températures mesurées, qu'à 12T.

On peut, comme on l'a fait avec $NbSe_2$, comparer la valeur de γ et de $\frac{S}{T}$ en traçant $\frac{S}{T}$ en fonction de T . Avant même de vérifier quantitativement cette relation, on voit qu'il y aura une zone de champ magnétique où elle ne sera pas valide, vu que S est multiplié par 20 entre 0 et 12T et que γ est quasiment indépendant du champ magnétique dans ce domaine de température [166].

La figure 9.5 représente le rapport $\frac{S}{T}$, ainsi que la valeur donnée par $\frac{\gamma}{N_0e}$ à haut champ dans la limite $T \rightarrow 0$, à différents champs magnétiques.

On s'aperçoit qu'au fur et à mesure que l'on augmente le champ magnétique, le pouvoir thermoélectrique a tendance à rejoindre la valeur qu'il aurait si le système était un gaz d'électrons simple, mais avec une masse effective élevée. Ce comportement, relié aux autres propriétés de transport, traduit encore une fois la tendance de $CeCoIn_5$ à restaurer les propriétés du liquide de Fermi à haut champ et basse température.

Cette propriété est également présente dans l'effet Nernst, même si elle y est moins prononcée. En effet, le coefficient Nernst, très élevé à 0,5T, s'effondre avec l'application de champs magnétiques plus élevés pour atteindre à 12T des valeurs beaucoup plus usuelles

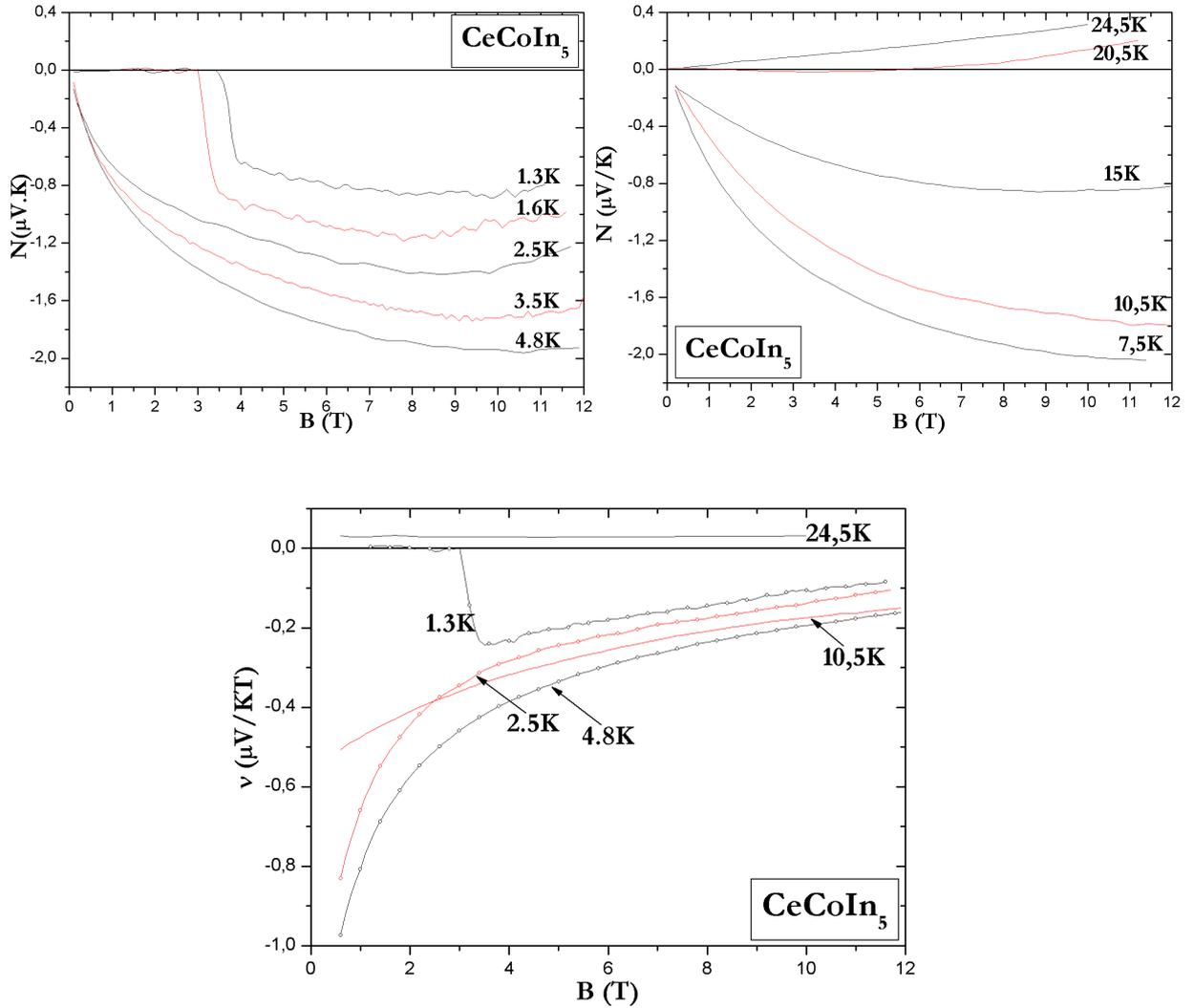


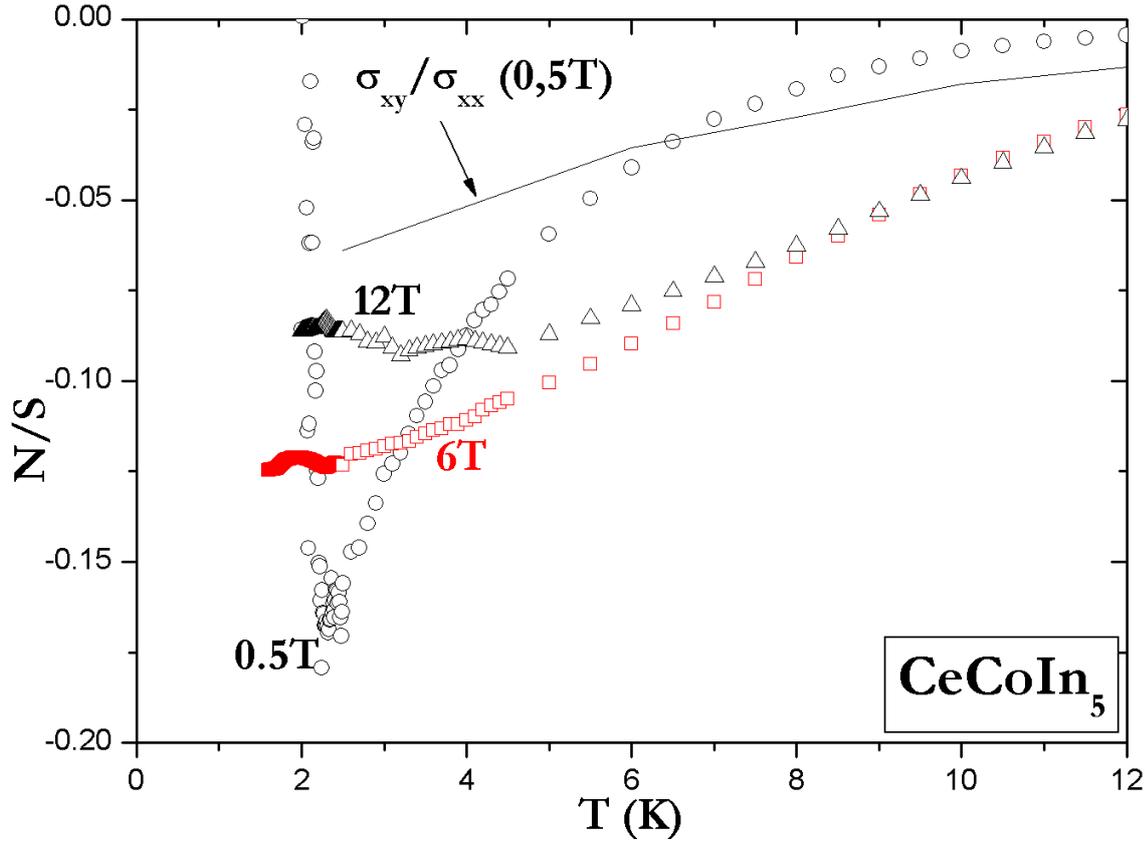
FIG. 9.6 – *En haut* : Effet Nernst en fonction du champ magnétique dans $CeCoIn_5$. *A gauche*: Pour $T < 4,2K$. *A droite*: Pour $T > 4,2K$. *En bas* : Coefficient Nernst en fonction du champ magnétique à différentes températures.

(de l'ordre de quelques centaines de nV/KT). Ceci est en fait le résultat d'un effet Nernst *profondément sous-linéaire en champ magnétique*, allant même, à basse température, à *décroître avec le champ* à haut champ (figure 9.6).

Cependant, si l'on croit que le régime au-dessus de T^* correspond au régime liquide de Fermi pour l'effet Nernst, il apparaît qu'il faudra attendre des champs beaucoup plus élevés pour que l'effet Nernst change à nouveau de signe.

Cet effondrement de l'effet Nernst avec le champ magnétique va de pair avec une divergence du coefficient Nernst dans la limite $B \rightarrow 0$, cette divergence étant la plus prononcée vers 4K.

On retrouve par ailleurs dans la figure 9.6 que l'effet Nernst au-dessus de T^* est linéaire,


 FIG. 9.7 – Rapport $\frac{N}{S}$, ou $\tan(\theta_{Th})$ et tangente de l'angle de Hall.

ainsi que la transition supraconductrice en dessous de $T_c = 2, 3K$.

Enfin, un pouvoir thermoélectrique très faible combiné avec un effet Nernst gigantesque à champ nul va produire un angle thermoélectrique considérable. La figure 9.7 montre le rapport $\frac{N}{S} = \tan(\theta_{Th})$ à 0T, 6T et 12T.

Le rapport N/S tend à diverger dans la limite $T \rightarrow 0$ et $B \rightarrow 0$, cette divergence n'étant interrompue que par la transition supraconductrice. Si cette divergence devait se prolonger dans la région de température que la supraconductivité nous empêche de sonder, ceci traduirait le fait que *le système, soumis à un gradient de température longitudinale, a tendance à produire une réponse électrique purement transverse, et ceci dans la limite des bas champs magnétiques.*

La thermoélectricité de la phase normale révèle donc, pour conclure cette partie de l'étude, un certain nombre de caractéristiques surprenantes. En particulier, les propriétés les plus marginales se produisent à 0T, et non pas à 5T, contrairement à ce que l'existence d'un point critique quantique à 5T pourrait laisser supposer [163][164]. Rien de notable n'est d'ailleurs observé à $B = 5T$. L'effet Hall présente également des propriétés similaires à l'effet Nernst : en effet, la résistivité étant en T et le coefficient de Hall en T^{-2} , le rapport $\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}$ varie en $1/T$, et donc diverge à basse température comme le rapport N/S . De plus, la résistance de Hall montre également cette forte sous-linéarité en champ magnétique. Les deux propriétés sont donc corrélées, mais la figure 9.7 montre que systématiquement $\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} <$

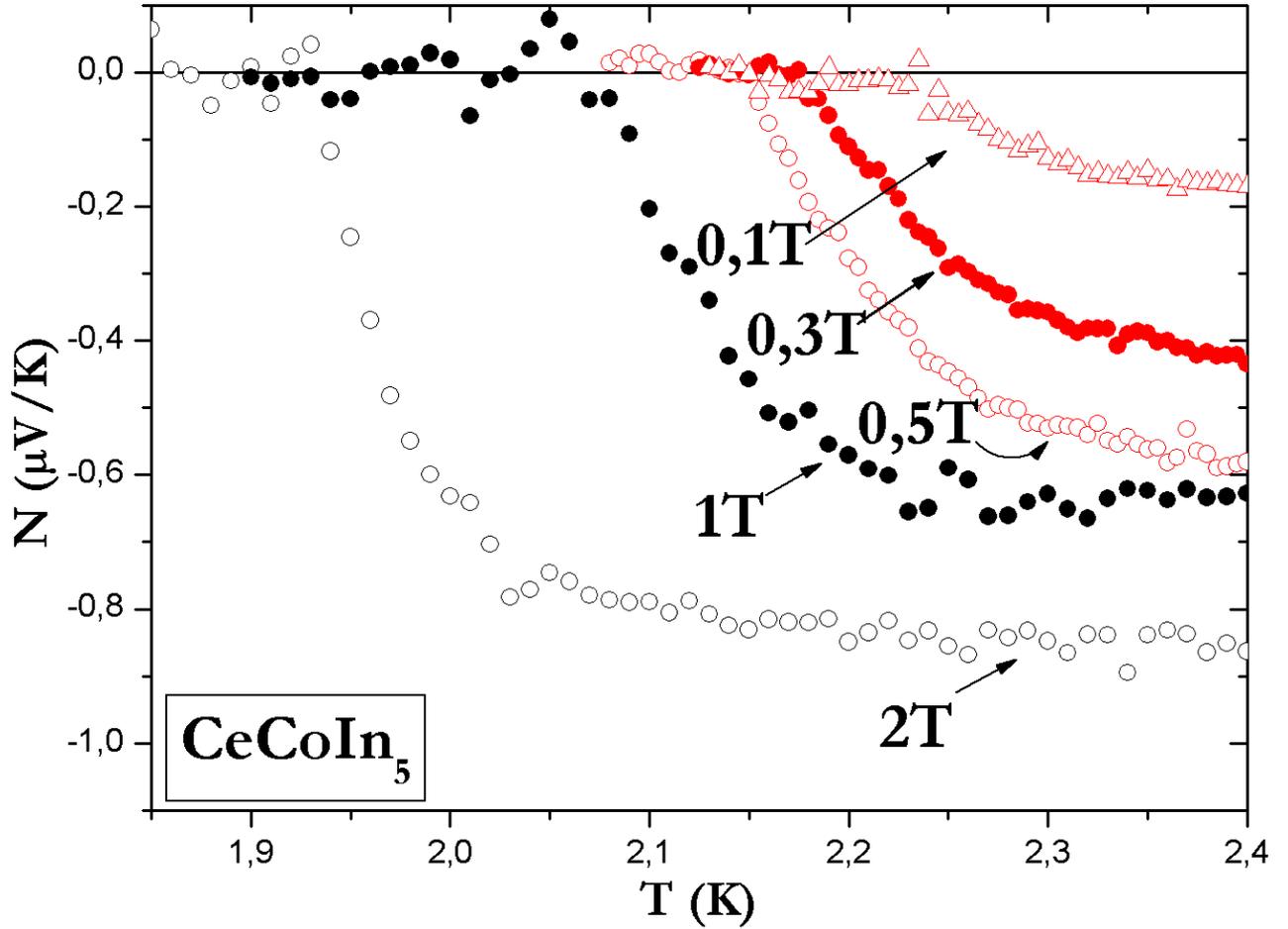


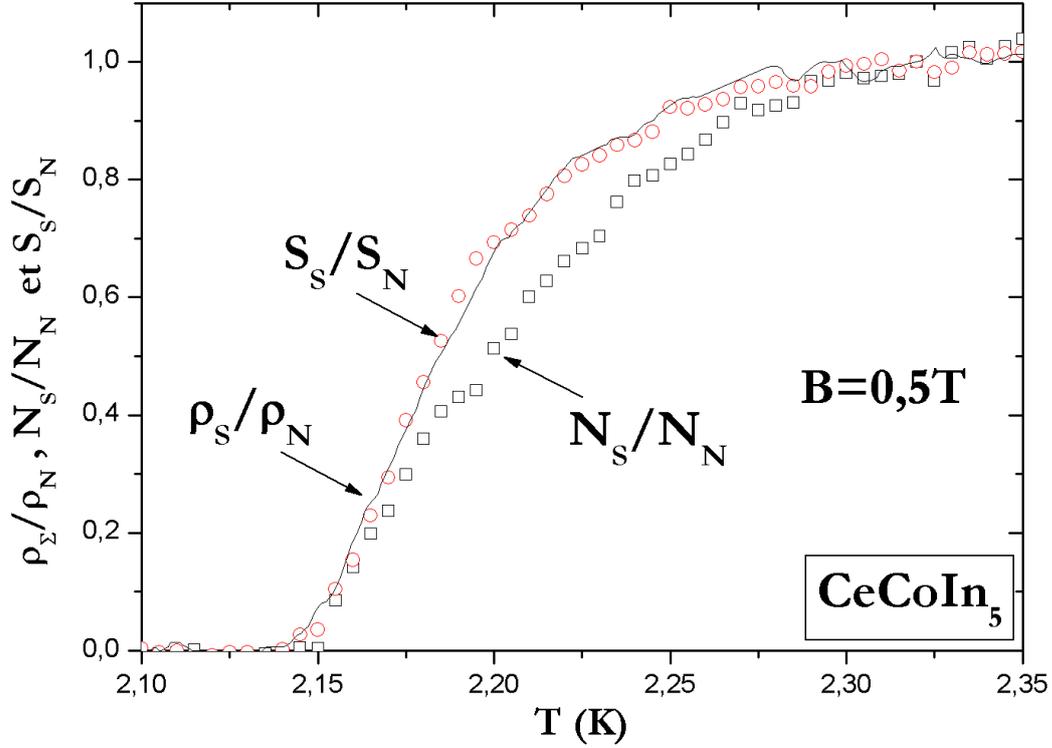
FIG. 9.8 – Effet Nernst lors de la transition supraconductrice à différents champs magnétiques dans $CeCoIn_5$.

$\frac{N}{S}$. Ceci montre que la contribution adiabatique à l'effet Nernst — via l'effet Righi-Leduc — reste faible. En effet, l'inégalité précédente implique que $\frac{N}{S} > \frac{\vec{\nabla}_y T}{\vec{\nabla}_x T}$.

Partie supraconductrice - mais où sont les vortex ?

Revenons encore une fois à la figure 9.4. On y distingue très clairement la transition supraconductrice vers 2K. Cependant, $CeCoIn_5$ est un supraconducteur de type II, et donc devrait montrer un signal vortex. Or, à première vue, il n'en est rien. Ceci est confirmé figure 9.8.

En fait, le signal de la phase normale est tellement élevé que le signal vortex est enterré dessous. Pour extraire cette contribution, on peut utiliser le fait que les vortex ne génèrent qu'une tension transverse, et donc que le pouvoir thermoélectrique est exempt de toute contribution de la part des vortex. On peut donc écrire que :


 FIG. 9.9 – Rapports $\frac{N}{N_n}$ (carrés vides), $\frac{S}{S_n}$ (cercles vides) et $\frac{\rho}{\rho_n}$ (ligne).

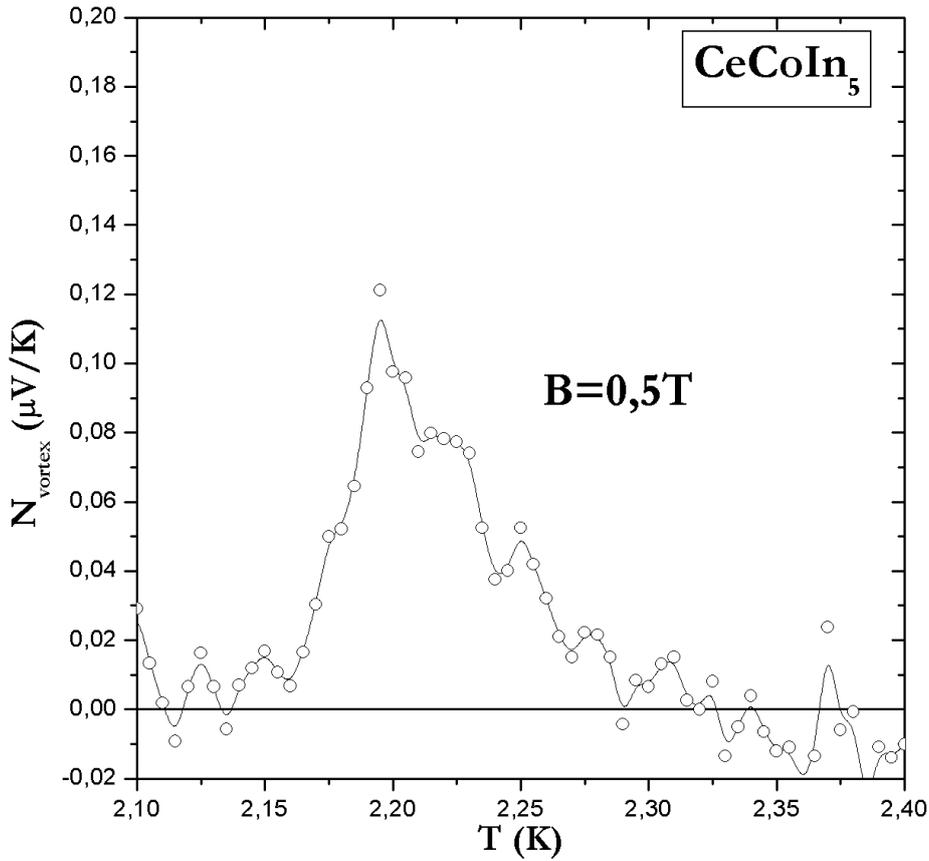
$$\begin{aligned} N &= N_{qp} + N_v \\ S &= S_{qp} \end{aligned}$$

Pour vérifier cela, on doit comparer les rapports $\frac{\rho}{\rho_n}$ et $\frac{S}{S_n}$, c'est-à-dire les variations *relatives* de la résistivité et du pouvoir thermoélectrique. En effet, si les vortex ne contribuent pas à S , alors celui-ci doit avoir la même dépendance en température que ρ , à savoir uniquement le mouvement du fluide normal dans la direction du gradient thermique [167]. Par ailleurs, le même raisonnement implique que la contribution quasi-particulaire à l'effet Nernst dans la transition supraconductrice est également donnée par :

$$\frac{N_{qp}}{N_n} = \frac{\rho}{\rho_n} = \frac{S}{S_n}$$

Ceci nous permet de déduire la contribution des vortex :

$$N_v = N_n \left(\frac{N}{N_n} - \frac{S}{S_n} \right)$$

FIG. 9.10 – Signal Nernst dû aux vortex à $B = 0,5T$.

La figure 9.9 nous montre ces trois rapports lors de la transition supraconductrice à $B = 0,5T$. On constate alors que, durant toute la transition, $\frac{\rho}{\rho_n} = \frac{S}{S_n}$, ce qui confirme qu'il n'y pas de contribution des vortex à S , mais que $\frac{N}{N_n} < \frac{S}{S_n}$, ce qui va bien donner une contribution positive des vortex puisque $N_n < 0$.

Cette procédure fonctionne pour tous les champs que nous avons mesurés, et mène aux signaux vortex donnés figure 9.10.

9.2 Première discussion sur $CeCoIn_5$

L'émergence d'un effet Nernst sous linéaire en champ magnétique et de forte amplitude sous la température T^* constitue une manifestation supplémentaire du comportement non liquide de Fermi de $CeCoIn_5$ dans cette zone de champ et de température. Il est clair que la proximité d'un point critique quantique à pression négative va générer ce type de comportements, et particulièrement des modifications très spectaculaires sous champ magnétique.

En particulier, cette proximité génère l'existence d'un point critique quantique à 5T, caractérisé en résistivité (divergence du coefficient A) et en chaleur spécifique (divergence

de γ pour $T \rightarrow 0$). Cela étant, la caractérisation de ce point critique reste encore incomplète, ceci étant essentiellement dû à la présence de la supraconductivité qui masque, est générée par, coexiste ou entre en compétition avec, s'il existe, l'ordre magnétique à bas champ. En particulier la question de savoir s'il s'agit d'une transition métamagnétique associée à l'existence d'un magnétisme itinérant comme dans $CeCu_2Si_2$ ou bien d'un point critique quantique marquant la transition entre une phase antiferromagnétique ordonnée et une phase paramagnétique, n'est pas encore élucidée.

La thermoélectricité de ce système, assez curieusement, ne réagit pourtant que très peu à la présence de ce point quantique. En effet, rien ni dans le pouvoir thermoélectrique ni dans l'effet Nernst ne transparait à $B = 5T$, et l'ensemble des comportements thermoélectriques "pathologiques" observés — faible pouvoir thermoélectrique, effet Nernst important, divergence de la tangente de l'angle thermoélectrique — se situe plutôt dans la limite $B \rightarrow 0$. Cependant, les coefficients Nernst et Seebeck ne sont pas les seuls à montrer un comportement en champ magnétique ignorant — ou ne montrant pas de façon évidente — le point à $5T$. En effet, l'effet Hall montre des comportements très similaires à l'effet Nernst, avec un comportement en $1/T$ de ρ_{xy} , divergence qui est très accentuée à bas champ, l'application de quelques tesla suffisant à faire chuter l'amplitude de R_H (voir figure 9.11).

Il semble relativement clair au vu de cette dépendance en champ et en température que le comportement de l'effet Nernst et celui de l'effet Hall sont intimement liés dans ce système. Il est donc intéressant de regarder quelle interprétation de l'effet Hall a été donnée. Tout d'abord, une première remarque s'impose : le comportement en $1/T$ de ρ_{xy} et celui en T de ρ sont également observés dans l'analogue structural de $CeCoIn_5$, $LaCoIn_5$ (La-115) [161]. Ceci montre que ces comportements, en soi, ne sont pas liés à la présence d'un point critique quantique, mais plutôt à la structure électronique particulière de $CeCoIn_5$. Cela étant, l'introduction des électrons f dans le système (via le passage du composé au lanthane au composé au cérium) va introduire deux fortes modifications : une augmentation (en valeur absolue) très forte de R_H d'une part, et d'autre part une très forte dépendance en champ magnétique de ce coefficient, l'application d'un champ supérieur à $10T$ entraînant le retour de la valeur de R_H vers celle de $LaCoIn_5$.

Ce comportement de l'effet Hall a été interprété comme la manifestation de la présence de deux porteurs, révélés à plus basse température par les mesures de dHvA, d'une part des trous assez lourds ($87m_e$) et des électrons plus légers ($20m_e$), dont les mobilités respectives présentent des dépendances en température et en champ différentes (figure 9.11). L'interprétation directe est alors qu'à bas champ magnétique, les électrons, plus légers, vont contribuer de façon plus importante à R_H , lui conférant une forte valeur négative. L'application d'un champ magnétique va ensuite augmenter la mobilité des trous, — probablement en en diminuant la masse — augmentant leur contribution à R_H et donc ramenant cette grandeur vers les valeurs positives [161].

Une des premières objections que l'on peut faire à ce scénario est que la chaleur spécifique, dans ce domaine de température, est indépendante du champ magnétique. Ce n'est en effet qu'en dessous de $600mK$ que la chaleur spécifique diminue avec le champ magnétique. Il est donc quantitativement difficile d'imaginer comment l'effet Hall peut être autant affecté par le champ magnétique alors que la chaleur spécifique y reste, elle, complètement indifférente.

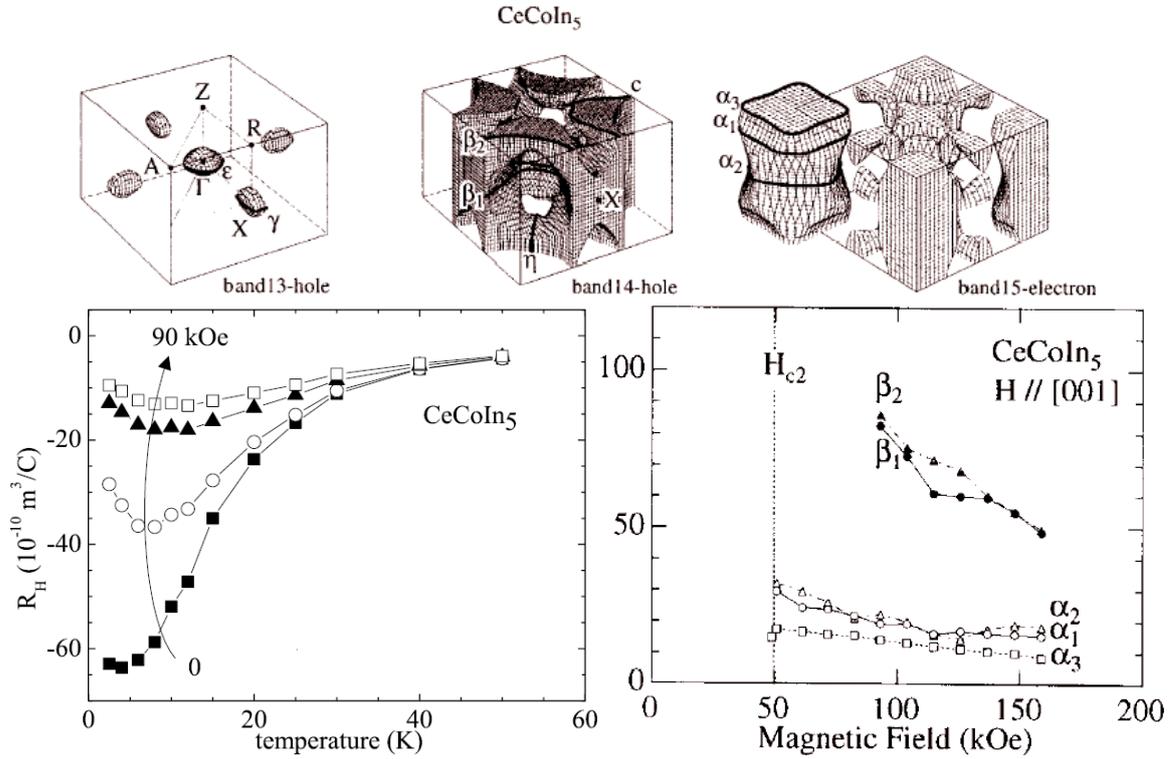


FIG. 9.11 – *En haut* : Surface de Fermi de $CeCoIn_5$ [165]. *A droite* : Coefficient de Hall dans $CeCoIn_5$ [161]. *A gauche* : Dépendance en champ magnétique des masses effectives des électrons et des trous [165].

De plus, l'effet Nernst que nous avons mesuré ne semble pas à première vue aller dans le sens de ce scénario. En effet, une façon simple de voir cette interprétation est celle d'un système non compensé à bas champ, et qui se rapprocherait d'un métal compensé avec le champ magnétique. Or le coefficient Nernst diminue également avec le champ, ce qui, si l'on se réfère à notre compréhension des mécanismes ambipolaires d'une part, et d'autre part aux résultats dans par exemple $NbSe_2$, est contradictoire avec cette image de $CeCoIn_5$. D'autre part, l'amplitude de l'effet Nernst est également très importante, et difficile à concilier avec les ordres de grandeur d'un effet Nernst purement ambipolaire⁴.

Une façon de concilier les deux scénarios serait d'imaginer que deux contributions s'ajoutent dans l'effet Nernst : une contribution d'origine ambipolaire *positive*, dont l'importance relative augmenterait avec le champ (c'est-à-dire à mesure que le système se rapproche de la compensation), et une forte contribution négative dont l'origine resterait encore à déterminer. Cependant, les mesures d'effet Nernst pour $T > T^*$ montrent que l'amplitude maximale de la contribution ambipolaire (correspondant à la situation où l'effet Hall est faible et où le métal est compensé) est inférieure à $100 \text{ nV}/\text{KT}$. Leur contribution ne saurait donc expliquer à première vue la grande variation en champ de N pour $T < T^*$, d'autant qu'elle devrait se réduire si l'on considère que, même à haut champ ou dans $La-115$, l'effet Hall s'écarte de plus en plus de la nullité à mesure que la

⁴Ceci est également vrai pour la variation du coefficient Nernst entre 0 et 12T.

température diminue.

Les résultats de thermoélectricité dans $CeCoIn_5$ montrent enfin qu'un métal peut abriter un effet Nernst de très grande amplitude, et non linéaire (en l'occurrence sous-linéaire) en champ magnétique. De façon immédiate, et en anticipant un peu sur les résultats dans les autres fermions lourds, il semble qu'une masse effective grande et/ou la proximité d'un point critique quantique (celui à champ nul et à pression négative), va entraîner la naissance d'un fort effet Nernst. Ceci peut être compris très sommairement via la relation :

$$\nu = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3m} \left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon=\mu}$$

Dans cette relation, si on écrit que $\left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon=\mu} \approx \frac{l}{v_F \epsilon_F}$, on peut voir que la petitesse de l'énergie de Fermi va entraîner un effet Nernst grand : *une masse effective élevée va conduire à l'émergence d'un grand effet Nernst*. Cependant, la connexion entre les deux grandeurs dans $CeCoIn_5$ n'est pas aussi simple que cela, puisque l'effet Nernst se heurte aux mêmes difficultés que R_H : ν est fortement dépendant du champ magnétique alors que γ ne l'est pas. Ceci est également corroboré par S , ou plus précisément par S/T , qui est lui aussi fortement dépendant en champ, en particulier dans la limite $B \rightarrow 0$. Cependant, la dépendance en champ de l'effet Nernst, très similaire à celle de l'effet Hall, montre que son existence est reliée à la physique des électrons $4f$: de la même façon que pour l'effet Hall où l'application d'un champ magnétique ramène le système vers un comportement similaire à celui du composé isostructural La-115, l'effet Nernst est ramené vers un comportement plus conventionnel à mesure que l'on s'approche des hauts champs magnétiques, même si ceci reste à confirmer par des mesures dans La-115. Finalement, les mesures dans $CeCoIn_5$ montrent, même si ceci reste encore très qualitatif, que *l'effet Nernst est fortement affecté par la physique des électrons f , mais d'une façon plus complexe que simplement via la renormalisation de la masse des quasiparticules*.

9.3 Mesures thermoélectriques dans URu₂Si₂

9.3.1 URu₂Si₂ : magnétisme et ordre caché

URu₂Si₂ est un fermion lourd "modéré" ($\gamma = 180\text{mJ/molK}^2$ à T_N , 110mJ/molK^2 à T_c et 60mJ/molK^2 à $T=0$ et $B=5\text{T}$), supraconducteur à $T_c = 1,3\text{K}$. Il cristallise dans une structure tétragonale de type ThCr₂Si₂.

La phase supraconductrice apparaît, lorsque l'on descend la température, après une transition à $T_N = 17,5\text{K}$. A cette transition sont associées des anomalies très importantes dans les propriétés de transport et la chaleur spécifique : le coefficient γ , dont l'extrapolation à $T = 0$ donne une valeur de $180\text{mJ/K}^2\text{mol}$, montre un saut à T_N de $\frac{\Delta C}{T_N} = 300\text{mJ/K}^2\text{mol}$. Elle présente ensuite une décroissance exponentielle avec une échelle d'énergie $\Delta \approx 100\text{K}$, pour tendre à $T = 0$ (soit en extrapolant soit en appliquant un champ magnétique de 5T pour détruire la supraconductivité, γ étant indépendante du champ magnétique à ces températures) à une valeur de $\gamma_0 = 60\text{mJ/K}^2\text{mol}$ [168][169]. La résistivité présente elle aussi une anomalie à T_N , puis un comportement également actif [170]. L'effet Hall, quant à lui, montre un saut très important traduisant une perte de quasiment 90% des porteurs de charge à la transition [170]. Cette transition est également reliée à une forte anomalie structurelle montrée par un pic marqué et anisotrope dans les mesures de dilatation thermique [169].

L'entrée dans la phase située sous T_N s'accompagne de l'apparition d'un moment magnétique ordonné antiferromagnétiquement [171], ainsi que de l'ouverture d'un gap qui est visible dans les propriétés de transport déjà mentionnées. Cependant, la valeur du moment magnétique mesuré par les neutrons est de $0,03\mu_B/U$, ce qui est extrêmement faible comparé aux anomalies [171]. Par exemple dans UPt₃ qui présente un moment magnétique antiferromagnétique du même ordre de grandeur, il est difficile de distinguer en chaleur spécifique la transition antiferromagnétique vers 4K . Cet apparent désaccord entre l'amplitude des anomalies à la transition et la faible valeur du moment magnétique a constitué le fil conducteur des études menées depuis une vingtaine d'années sur ce composé.

Un certain nombre de résultats récents ont amené la communauté à considérer l'existence de deux paramètres d'ordre dans cette phase : le paramètre d'ordre m , correspondant à l'ordre antiferromagnétique, et un paramètre d'ordre *caché* ψ . En particulier, des mesures de magnétorésistance [172] ont montré que le gap et le moment magnétique possédaient des dépendances en champ différentes, et surtout les mesures de neutrons mettent clairement en évidence deux échelles d'énergie distinctes [173][174]. Plusieurs caractéristiques forment aujourd'hui un tableau très riche mais encore mystérieux de cette phase communément appelée phase *ordre caché*. En premier lieu, il existe toujours un moment magnétique qui reste petit, qui s'ordonne antiferromagnétiquement selon l'axe c . Cependant, il semble que la valeur de ce moment magnétique à pression ambiante soit très dépendante de la qualité de l'échantillon et de l'histoire magnétique de l'échantillon [175], le moment variant de $0.017\text{-}0.04\mu_B/U$. Par ailleurs, ce moment n'a jamais été détecté à pression ambiante par RMN. Malgré cette dépendance en échantillon, les dépendances tant en champ magnétique qu'en pression sont les mêmes quelque soit l'échantillon d'une part, et d'autre part il n'existe aucun échantillon qui ne montre pas, en neutrons, l'exis-

tence de ce moment. Celui-ci est donc une propriété *intrinsèque* de la transition à T_N , même si l'apparition de ce moment magnétique émerge parfois à une température *plus basse* que T_N [176].

La valeur de ce moment connaît une variation très spectaculaire en pression. A partir de la pression ambiante, il augmente linéairement jusqu'à saturer à une valeur d'environ $0,25\mu_B$ à 1GPa. Cette augmentation ou apparition est observée en neutrons [177], mais également en RMN [179] et en μ -SR [178], et bien que toutes ces sondes donnent une pression d'apparition de ce moment *différente*, elles tendent à mettre en évidence un moment magnétique identique à 1GPa. Signalons qu'au delà de cette pression, vers $P_c = 1,5$ GPa, URu_2Si_2 subit une transition qui le fait passer à un magnétisme de type Ising tridimensionnel [177].

Ces résultats vont également dans le sens de l'existence de deux paramètres d'ordre puisqu'alors que m est fortement affecté par la pression, T_N reste, elle, grossièrement indépendante de la pression (plus exactement elle varie de 1K entre 0 et 1GPa) [177]. Cependant, puisque m et ψ émergent dans la même région de température, il est très clair que ces deux paramètres sont couplés. Les deux questions clé de la physique de URu_2Si_2 sont alors : quelle est la nature de cet ordre caché non magnétique et quelle est la nature du couplage entre les deux paramètres d'ordre? Le lien entre la phase *ordre caché* et l'apparition de la supraconductivité constitue également une question cruciale dans ce composé.

Une première proposition théorique [180] et de récentes mesures de neutrons ont montré que ψ brisait la symétrie par renversement du temps [174] et que l'on a un couplage *linéaire* entre m et ψ . Cependant, afin d'expliquer la dépendance en pression de m , plusieurs scénarios ont vu le jour. Le premier consiste en un couplage linéaire et dépendant de la pression entre les deux paramètres d'ordre dans une vision homogène de la phase *ordre caché*. Cependant, il s'avère que ce scénario est difficile à justifier pour des raisons de symétrie [181].

Un autre scénario est fondé sur le caractère dynamique de m , dont la valeur fluctue fortement. Ceci expliquerait pourquoi il n'est détecté à pression ambiante ni en μ -SR, ni en RMN alors qu'il serait vu partiellement en neutrons pour lesquels le temps de mesure est plus court, et complètement en rayons X qui ont un temps de mesure très court. L'effet de la pression serait alors uniquement de stabiliser ce moment en arrêtant les fluctuations.

Finalement, le scénario qui semble le plus partagé dans la communauté [175][179][181], est celui d'une *inhomogénéité* de la phase *ordre caché* : à pression ambiante, le paramètre d'ordre m occuperait une fraction très faible de l'échantillon, et le volume occupé serait en dessous de la résolution des mesures de RMN et de μ -SR. Lorsque la pression augmente, le volume occupé par m augmenterait jusqu'à occuper, à 1GPa, l'ensemble de l'échantillon. Dans cette perspective, tous les résultats s'interprètent en termes d'une *séparation de phase entre l'ordre antiferromagnétique et l'ordre caché en conséquence d'une transition du premier ordre induite par une distorsion du réseau* [175]. En effet, des mesures récentes de diffusions élastiques de neutrons montrent que le paramètre pertinent n'est pas la pression mais plus précisément le rapport $\frac{c}{a}$ [182]. Cette interprétation est particulièrement soutenue par les mesures de RMN sous pression qui montrent à 8kbar la coexistence entre un signal antiferromagnétique et le signal paramagnétique de la phase normale, puis l'évolution de ces deux signaux vers une situation où ne subsiste que le signal antiferro-

magnétique à 1GPa [179].

Ce scénario est cependant encore contesté, et un des arguments récemment soulevé concerne l'existence d'un couplage entre deux paramètres d'ordre spatialement séparés [183]. Notons finalement qu'un des modèles proposés dans le cadre de cette séparation de phase consiste en un couplage de l'ordre antiferromagnétique avec un magnétisme orbital qui serait la caractéristique du paramètre d'ordre ψ [184]. Les récentes mesures de diffusion de neutrons effectuées pour vérifier ce modèle n'ont cependant pas abouti à une réponse définitive [185].

La récente série de mesures effectuées à haut champ apporte de nouvelles informations sur la caractérisation de URu_2Si_2 . En effet, un diagramme de phase particulièrement complexe se développe autour d'un point critique situé autour de 38T [186]. La caractérisation de cette criticalité reste encore floue, surtout en raison de la présence de la phase *ordre caché* qui masque ici encore l'éventuelle phase magnétique à bas champ. Bien que l'occurrence d'un nombre très important de phases rende l'interprétation du comportement à haut champ difficile, plusieurs éléments y sont précisés : il existe un point critique, associé à une transition métamagnétique [187][188] à 38T, qui est distinct du point de disparition de la phase *ordre caché* qui, lui, se situe vers 35T, cet écart entre les deux champs s'accroissant lorsque l'on substitue Ru par Rh [188]. Les processus qui font disparaître ψ et m à haut champ restent encore peu clairs et la question de savoir à quel point l'existence de cette transition quantique influence les propriétés à bas champ reste encore ouverte.

Finalement, l'image qui ressort de ces études à haut champ est que URu_2Si_2 est un fermion lourd beaucoup plus proche des autres composés à l'uranium qu'on aurait pu le penser [188], présentant une transition métamagnétique à 38T, et une phase antiferromagnétique à bas champ. Cependant l'apparition de cette dernière est concomitante avec celle d'un autre paramètre d'ordre qui brise la symétrie par renversement du temps et qui se couple avec l'ordre antiferromagnétique en même temps qu'il rentre spatialement en compétition avec lui, entraînant un confinement spatial de m et une inhomogénéité de l'échantillon.

Les échantillons de URu_2Si_2 nous ont été fournis par J. Flouquet⁵, et ont été synthétisés par P. Lejay⁶ par croissance dans un four à trois électrodes (*three arc furnace*) sous atmosphère purifiée d'argon, puis recuits pendant une semaine à 1050°C sous ultra vide. La taille typique de nos échantillons était de $1\text{mm} \times 1\text{mm} \times 180\mu\text{m}$, la plus petite dimension étant selon l'axe c .

9.3.2 Résultats de thermoélectricité dans la phase *ordre caché*

Nous avons mesuré dans la phase *ordre caché* l'effet Nernst et le pouvoir thermoélectrique, le champ magnétique étant orienté selon l'axe c , et le courant de chaleur ainsi que le champ thermoélectrique étant, eux, dans le plan ab . Les résultats sont donnés figures 9.12 et 9.13.

Au-dessus de la température de transition $T_N \approx 18\text{K}$, l'effet Nernst est nul. Cependant, dès que l'on entre dans la phase *ordre caché*, il augmente jusqu'à donner un pic

⁵DRFMC/SPSMS, Commissariat à l'Energie Atomique, F-38042 Grenoble, France

⁶Centre de Recherche sur les Très Basses Températures (CNRS), F-38042 Grenoble, France

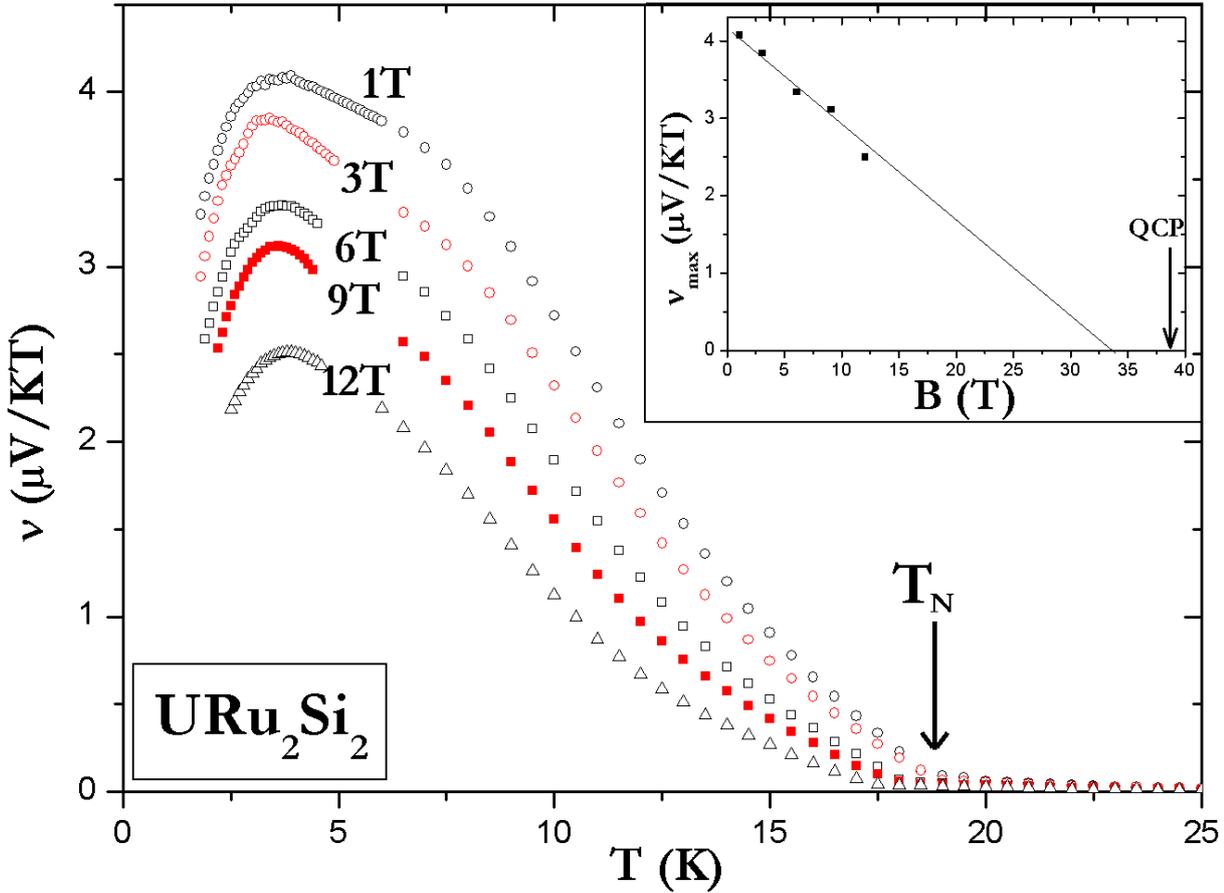


FIG. 9.12 – Coefficient Nernst dans la phase *ordre caché* de URu_2Si_2 . *Insert* : Evolution du maximum du coefficient Nernst avec le champ magnétique.

positif vers 3K, d'une amplitude de $4,1\mu V/KT$, valeur encore plus élevée que celle rapportée précédemment dans $CeCoIn_5$, qui n'aura hébergé le plus grand effet Nernst mesuré dans un métal que quelques mois. A plus basse température, le coefficient Nernst plonge directement vers 0, et on peut inférer qu'il ne va pas présenter de structure particulière.

En ce qui concerne la dépendance en champ, la figure 9.12 montre que, comme dans $CeCoIn_5$, l'effet Nernst est sous-linéaire, même si cette sous-linéarité est moins forte ici que dans le composé au cérium. En effet, pour le maximum dans le cas de $CeCoIn_5$, $\nu(0,5T)/\nu(12T) \approx 5$ alors qu'ici $\nu(0,5T)/\nu(12T) \approx 1,6$. Cependant, cette différence peut être attribuée à la différence d'échelle caractéristique en champ entre $CeCoIn_5$ et URu_2Si_2 : le point critique quantique est situé à 5T dans le premier alors qu'il est situé à 38T dans le second, et si l'on calcule les pentes $\frac{\Delta\nu}{\Delta B}$ dans les deux cas, on trouve $0,08\mu V/KT^2$ pour $CeCoIn_5$ et $0,12\mu V/KT^2$ pour URu_2Si_2 . Dans cette perspective, la sous-linéarité dans URu_2Si_2 est plus importante que dans $CeCoIn_5$, même si les deux pentes sont très comparables.

De plus, le champ magnétique retarde l'émergence de l'effet Nernst, qui se produit à 18,5K pour $B = 1T$ et vers 17,5K pour $B = 12T$. Cette variation traduit juste la

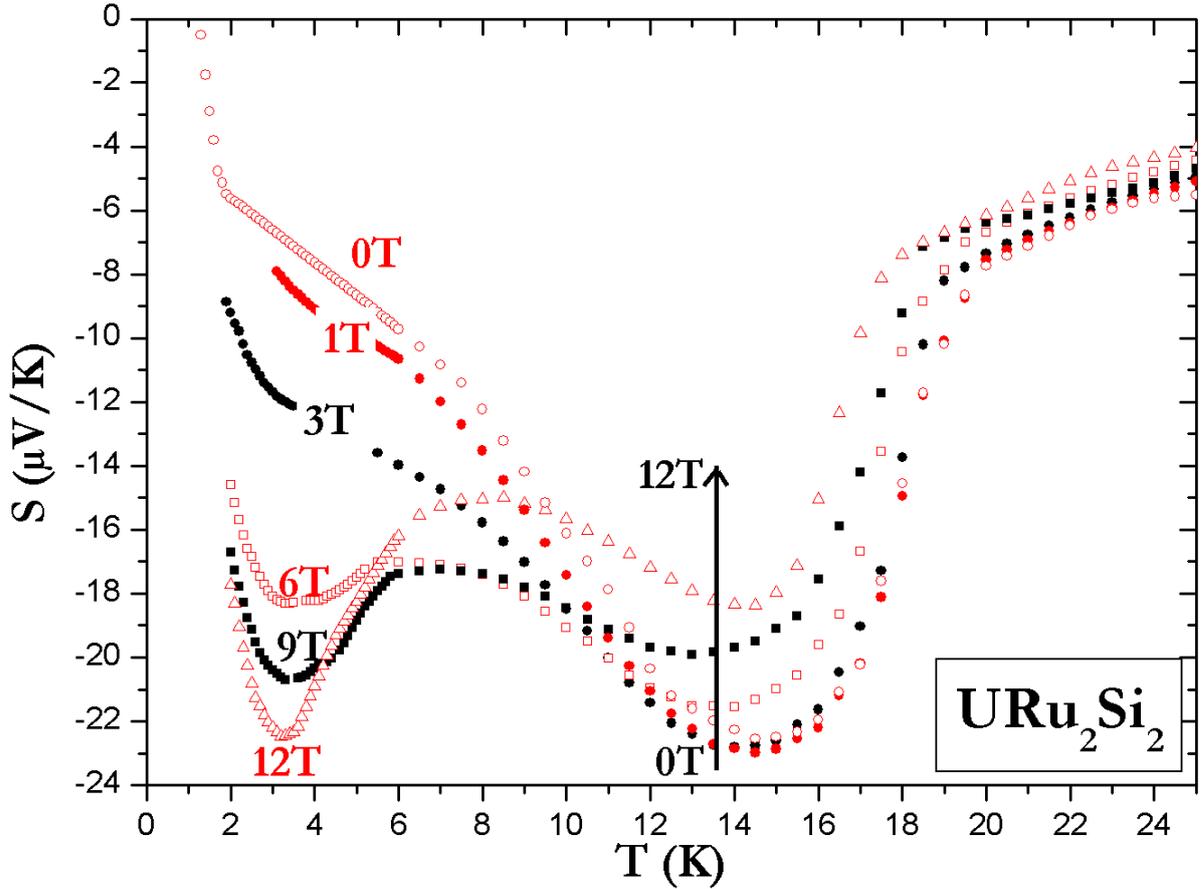


FIG. 9.13 – Pouvoir thermoélectrique dans la phase *ordre caché* de URu_2Si_2

dépendance de T_N avec le champ magnétique, et suit grossièrement l'évolution déjà rapportée par d'autres mesures. La position en température du maximum semble par contre être indépendante du champ magnétique.

C'est une évidence de dire que l'émergence de l'effet Nernst est liée à l'entrée dans la phase *ordre caché*. Ceci est cependant confirmé si l'on regarde l'évolution du maximum d'effet Nernst avec le champ magnétique : une extrapolation linéaire de nos données jusqu'à 40T montre que l'effet Nernst ne survivra pas à la disparition de la transition, qui arrive vers 38T.

Le coefficient Nernst n'est par ailleurs pas le seul à être fortement affecté par la transition à 18K. En effet, le pouvoir thermoélectrique va, lui aussi, subir de profondes modifications. Au-dessus de T_N , il présente une faible dépendance en champ magnétique, passant de $-6\mu\text{V/K}$ à $-4\mu\text{V/K}$ lorsque le champ passe de 0 à 12T. Ceci traduit une légère dépendance de l'entropie en champ magnétique qui est également observée dans la conductivité thermique, comme nous le verrons plus tard.

Par contre, lorsque le système entre dans la phase *ordre caché*, le pouvoir thermoélectrique augmente considérablement, passant (pour $B=0\text{T}$) de $-7\mu\text{V/K}$ à $-22\mu\text{V/K}$ et présentant un pic très prononcé vers 15K. Cette structure relativement simple à 0T se

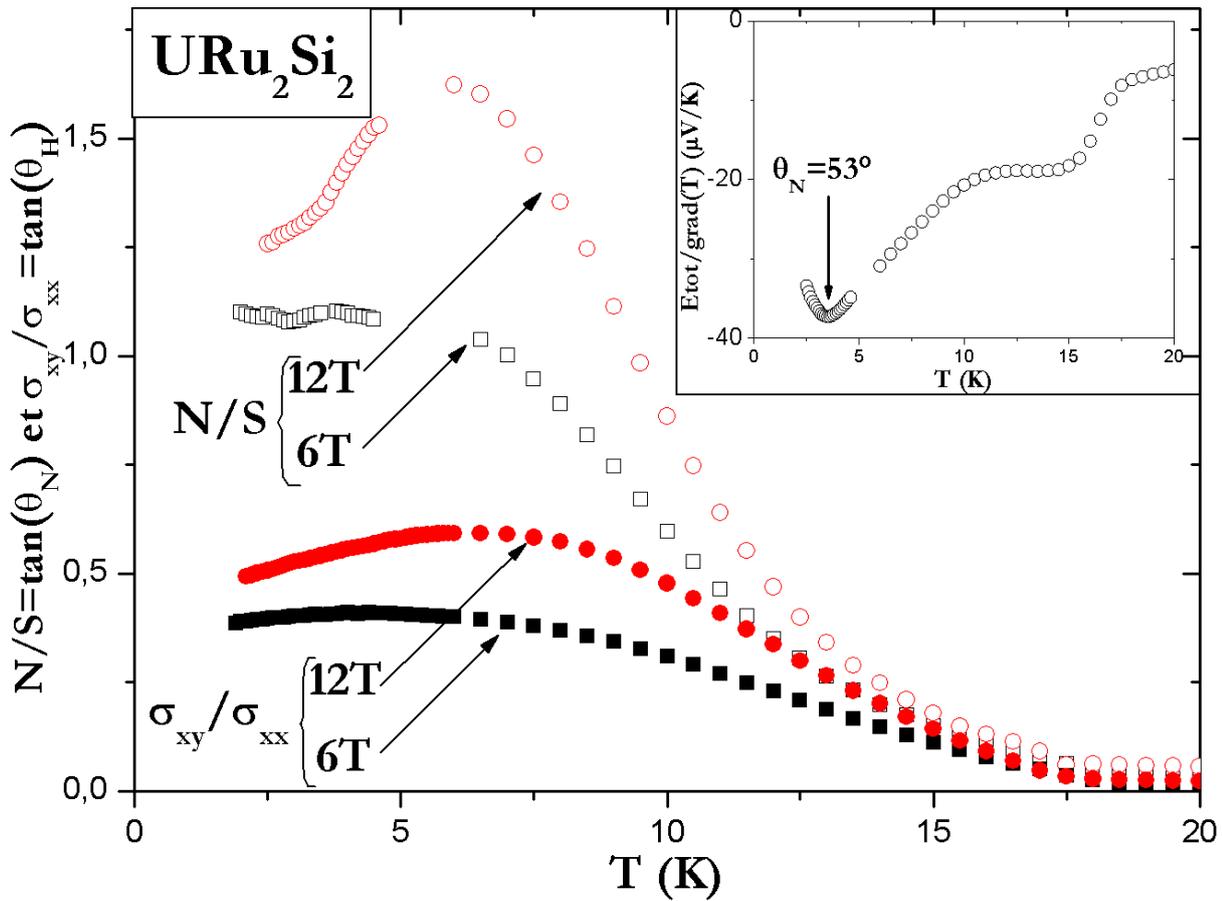


FIG. 9.14 – Tangente des angles de Hall et de Nernst dans URu_2Si_2 (en valeur absolue). *Insert* : valeur du champ électrique total divisé par le gradient thermique.

complice lorsque l'on applique un champ magnétique : d'une part l'amplitude du pic à 15K décroît progressivement jusqu'à atteindre à 12T la valeur de $-18\mu V/K$, d'autre part la présence du champ magnétique entraîne l'émergence d'un pic très étroit au-dessus de 3T, dont le maximum se situe vers 3,5K et qui culmine à 12T à la valeur de $-23\mu V/K$. On peut enfin observer, à 0T, la transition supraconductrice à 1,5K du pouvoir thermoélectrique, sur laquelle nous reviendrons. Notons que la courbe à 0T est en parfait accord avec les mesures réalisées précédemment [189], et présente à 1,5K la transition supraconductrice.

La figure 9.14 montre le rapport $\left|\frac{N}{S}\right|$ ainsi que la tangente de l'angle de Hall $\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}$. Le mélange du pic de pouvoir thermoélectrique à basse température et du maximum d'effet Nernst induit un maximum vers 5K dans N/S . Par ailleurs celui-ci, contrairement à ce qui se passe dans $CeCoIn_5$, ne semble pas vouloir diverger dans la limite basse température (mis à part à bas champ magnétique). Cependant, deux choses notables apparaissent sur cette figure :

- le rapport N/S est, dès l'entrée dans la phase *ordre caché*, supérieur au rapport σ_{xy}/σ_{xx} , jusqu'à atteindre trois fois son amplitude vers 5K. Ceci, combiné avec les indications que nous donne la conductivité thermique (voir paragraphe suivant),

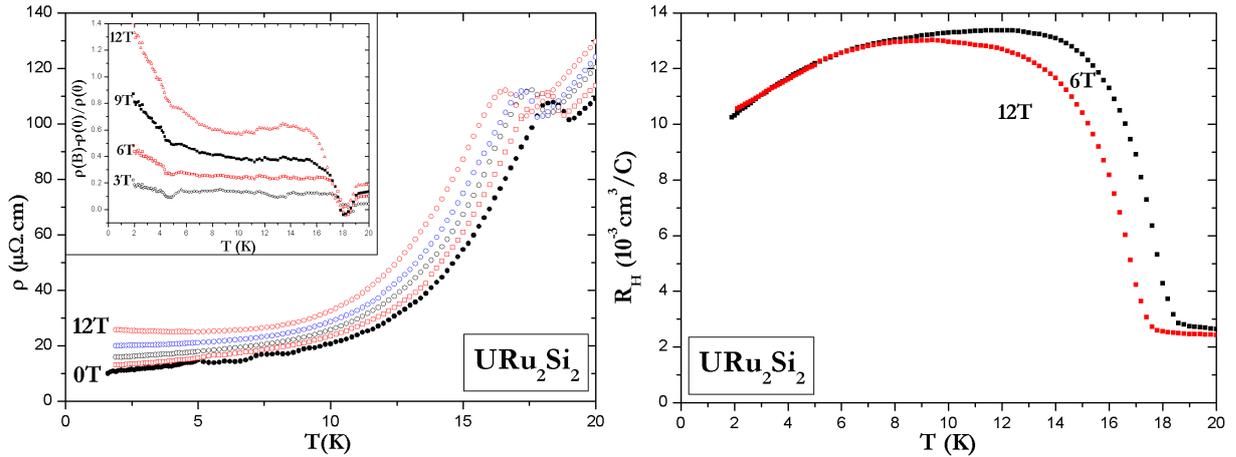


FIG. 9.15 – *A gauche*: Résistivité de URu_2Si_2 pour $B = 0T, 3T, 6T, 9T$ et $12T$ (de bas en haut). *A droite*: Coefficient de Hall dans URu_2Si_2 , à $6T$ et $12T$.

montre que l'effet Nernst observé est tout du moins en grande partie non dû à l'effet Righi-Leduc.

- vers $5K$, le rapport N/S vaut $1,6$ en valeur absolue, ce qui signifie qu'à $12T$, la réponse transverse à une excitation longitudinale est plus importante que la réponse longitudinale elle-même⁷. Nous sommes donc en présence de ce que l'on pourrait appeler un *effet Nernst géant*. Anecdotiquement, si l'on calcule la valeur de $\frac{E_{tot}}{\nabla_x T}$ à $12T$, on s'aperçoit que l'on atteint, pour un angle de 53° et à $3,5K$ la valeur de $37\mu V/K$. Ceci correspond à un facteur de puissance $\frac{S^2}{\rho}$ d'environ $55\mu W/K^2 cm$, ce qui est la plus grande valeur reportée dans ces gammes de températures [190]⁸. Nous sommes donc, à $12T$ et si l'on tient compte de l'effet Nernst, en présence du matériau le plus efficace dans un dispositif de refroidissement vers $3K$.

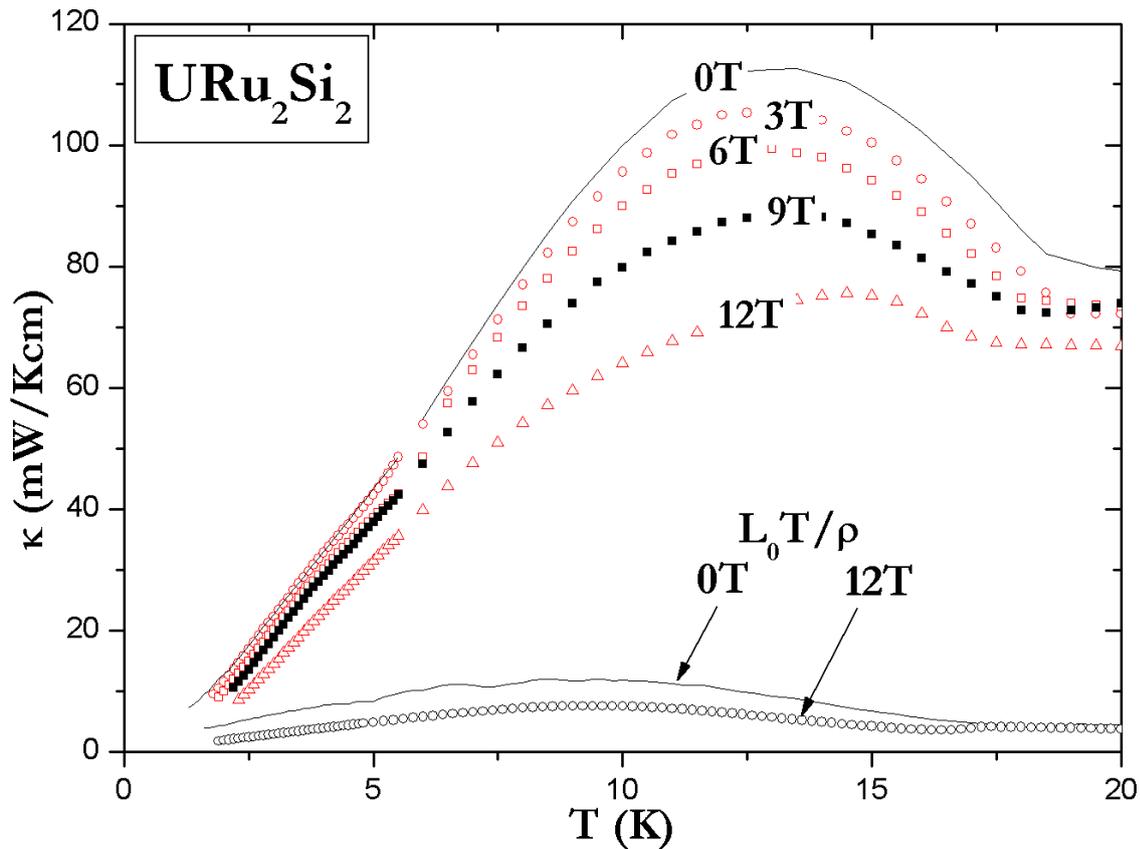
9.3.3 Autres propriétés de transport

Nous avons également mesuré, toujours dans la phase *ordre caché*, le coefficient de Hall et la résistivité. Comme nous l'avons déjà mentionné dans l'introduction, la résistivité montre un petit saut à la transition, puis adopte un comportement exponentiellement décroissant⁹, traduisant ainsi l'apparition d'un gap d'une centaine de Kelvin dans la phase *ordre caché* [191]. A basse température, des difficultés techniques nous ont empêchés lors de ces mesures d'arriver jusqu'à la transition supraconductrice, que nous n'avons donc observée que dans les mesures de thermoélectricité. A haute température, ce compor-

⁷Ce n'était pas le cas dans $CeCoIn_5$, où le rapport N/S était maximum à $0,5T$ et valait au maximum $0,2$.

⁸Le facteur de mérite Z à $3,5K$ est donné par $ZT = \frac{S^2}{\rho\kappa} T = 10^{-2}$, ce qui est loin des valeurs de ZT autour de 1 trouvées à température ambiante ($BiTe_3$), en particulier parce que la conductivité thermique des phonons est très forte. De plus, les autres résultats rapportés ne tiennent compte que du pouvoir thermoélectrique à $0T$, et non du champ électrique total (qui peut être non parallèle à ∇T sous champ).

⁹Plus exactement, la résistivité adopte un comportement en $AT^2 + bT(1 + \frac{2T}{\Delta})e^{\frac{k_B T}{\Delta}}$ [191].


 FIG. 9.16 – Conductivité thermique de URu_2Si_2 de 0 à 12T.

tement est en accord avec les mesures de résistivité déjà rapportées. Par ailleurs, on peut très distinctement observer une magnétorésistance positive constante sur l'intervalle $4K < T < 15K$, puis qui croît légèrement lorsque l'on diminue la température. Cette magnétorésistance nous donne une indication précieuse : son allure n'a à première vue rien de commun avec celle de l'effet Nernst, contrairement à ce qui devrait se produire dans un scénario ambipolaire habituel. L'émergence d'un effet Nernst dans la phase *ordre caché* n'est donc *a priori* pas liée à une apparition pour $T < T_N$ d'une compensation entre plusieurs types de porteurs.

On distingue de plus très clairement le déplacement de la température de transition avec le champ magnétique dans la résistivité et le coefficient de Hall, ce qui constitue apparemment la seule source de non linéarité en champ magnétique de l'effet Hall.

Par ailleurs, la conductivité thermique montre un accroissement prononcé lorsque le système entre dans la phase *ordre caché* (voir figure 9.16), avant de finalement présenter un maximum vers 12K, puis de chuter vers 0 quand $T \rightarrow 0$. Cette *augmentation* de la conductivité thermique à la transition peut sembler étrange pour un système qui y perd 90% de ses porteurs. En fait, ce saut traduit uniquement le fait que ce ne sont pas les électrons qui sont les porteurs majoritaires d'entropie dans ce système, mais les phonons. L'affaissement du nombre de porteurs — et donc de diffuseurs des phonons — entraîne donc nécessairement une augmentation de la conductivité thermique.

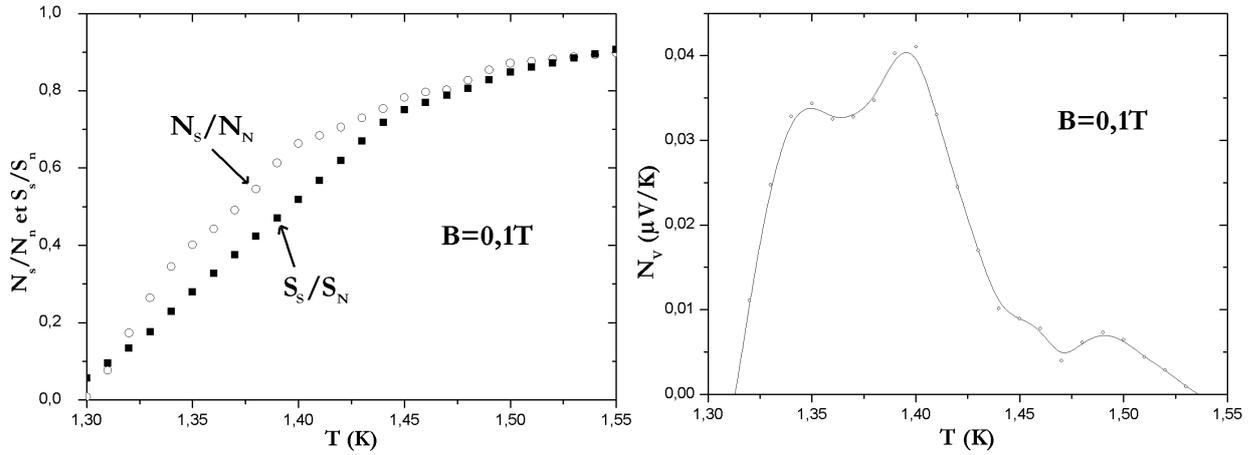


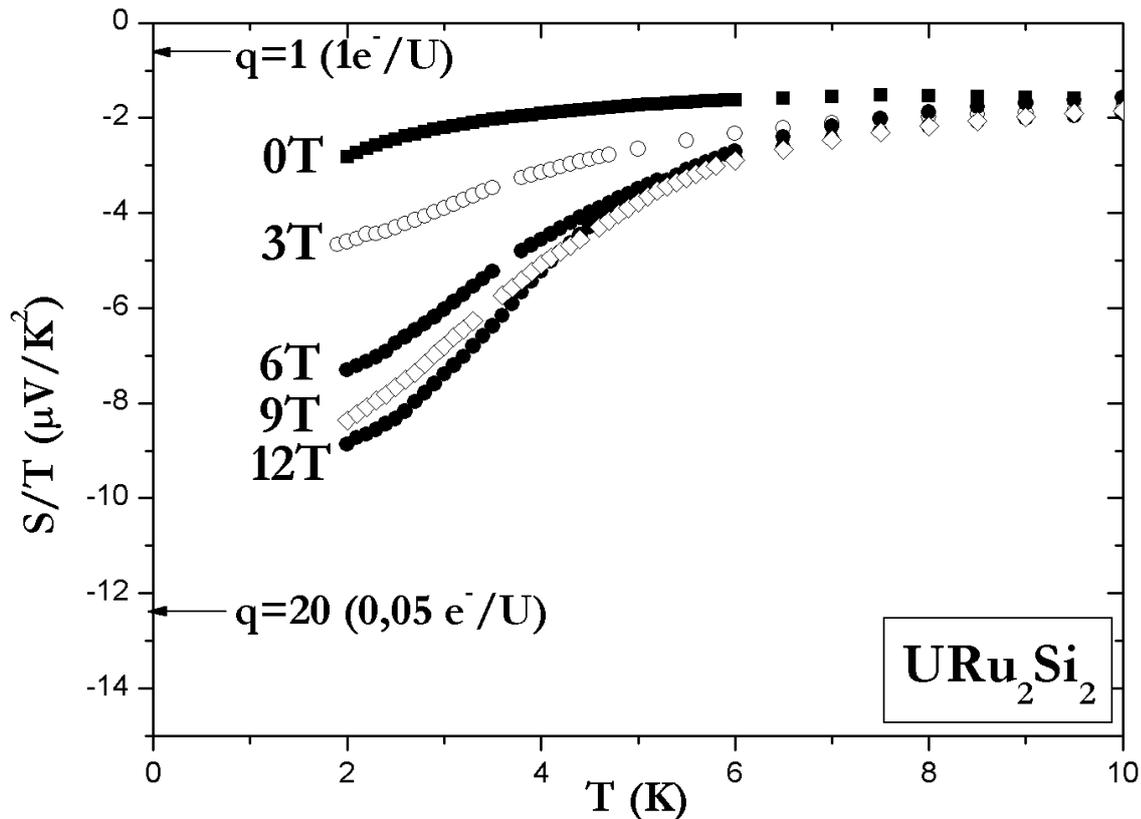
FIG. 9.17 – *A gauche*: Rapports $\frac{N}{N_n}$ et $\frac{S}{S_n}$ pendant la transition supraconductrice. *A droite*: Signal des vortex extrait.

Le caractère prépondérant des phonons dans le transport de chaleur est par ailleurs confirmé par la valeur du rapport $\frac{L_0 T}{\rho}$, où L_0 est le nombre de Lorentz et ρ la résistivité. En effet, même si la loi de Wiedemann-Franz n'est pas supposée être parfaitement vérifiée à ces températures, ce rapport donne une estimation de la contribution *électronique* à la conductivité thermique. Or on constate qu'à la transition, $\kappa \approx 20 \frac{L_0 T}{\rho}$, ce qui montre que la contribution électronique à la conductivité thermique reste faible. Ceci reste vrai pour quasiment toute la région d'étude, sauf peut-être en-dessous de 5K où, même si la conductivité thermique reste supérieure à $\frac{L_0 T}{\rho}$, elle en a le même ordre de grandeur¹⁰.

9.3.4 Extraction du signal vortex

Ici encore, le signal de la phase normale est trop important pour pouvoir distinguer clairement le signal des vortex. Nous devons donc utiliser la même procédure que dans $CeCoIn_5$ pour extraire ce dernier. La figure 9.17 montre la procédure d'extraction à $B = 0,1T$, et le signal vortex correspondant. Bien entendu ici, le rapport $\frac{N}{N_n}$ est *plus grand* que le rapport $\frac{S}{S_n}$, puisque l'effet Nernst est positif — et donc du même signe que les vortex — dans la phase normale. Les structures observées dans le pic des vortex sont probablement dues au bruit. On trouve donc un signal dû aux vortex à 0,1T qui vaut 40nV/K, ce qui est assez comparable à l'amplitude trouvée dans $CeCoIn_5$. Cependant, contrairement à ce qui avait été fait dans $CeCoIn_5$ et $NbSe_2$, les mesures de S et de N à la transition n'ont pas été réalisées simultanément. Le signe du signal vortex extrait confirme comme dans les deux composés précédents le signe de l'effet Nernst dans la phase normale, mais l'amplitude du signal vortex dans URu_2Si_2 doit être pris avec précaution.

¹⁰Ceci nous assure par ailleurs que nous pouvons encore une fois confondre l'effet Nernst *isotherme* avec l'effet Nernst *adiabatique*. En effet, l'angle de Hall vaut au maximum 0,6 à 12T. Ceci ajouté aux considérations sur la conductivité thermique montre que $\frac{\kappa_{xy}}{\kappa_{xx}} \approx 1-10\%$ et donc que l'effet que nous voyons n'est pas dû à l'effet Righi-Leduc.


 FIG. 9.18 – Rapport S/T dans URu_2Si_2

9.4 Première discussion sur URu_2Si_2

La thermoélectricité de URu_2Si_2 manifeste, comme on l'a vu, ces propriétés particulièrement spectaculaires à l'entrée dans la phase *ordre caché*. Etant nul pour $T > T_N$ et commençant à augmenter de façon significative à partir de la transition, il est clair que l'émergence d'un effet Nernst de forte amplitude est directement reliée à cette phase. Il en est de même pour la structure et la dépendance en champ particulièrement complexes du pouvoir thermoélectrique.

9.4.1 Pouvoir thermoélectrique

Une des caractéristiques intéressantes de la thermoélectricité dans URu_2Si_2 est l'*augmentation* du pouvoir thermoélectrique à l'entrée dans la phase *ordre caché*. En effet, cette transition est censée s'accompagner d'une *perte d'entropie* de près d'un facteur 3, si l'on en croit les données de chaleur spécifique qui passe d'une valeur extrapolée de $180\text{mJ/K}^2\text{mol}$ à $60\text{mJ/K}^2\text{mol}$. Or une telle chute d'entropie devrait se traduire par une chute similaire dans le pouvoir thermoélectrique.

Or, l'augmentation de S traduirait plutôt une *augmentation* de l'entropie par électron d'un facteur 3. Comment concilier alors ces deux données ? Si l'on se souvient que la chaleur spécifique — basiquement — représente l'entropie par atome d'uranium alors que

le pouvoir thermoélectrique représente l'entropie par porteur, une façon de concilier les deux tendances serait de dire que d'une part l'entropie des électrons *augmente d'un facteur 3* (S passe de $-7\mu\text{V/K}$ à $-22\mu\text{V/K}$), et que le nombre de porteur par atome d'uranium *diminue d'un facteur 10*, ce qui entraîne une baisse d'un facteur 3 de la chaleur spécifique. Cette image de la phase *ordre caché*, qui contiendrait peu d'électrons mais fortement entropiques, diffère de la vision habituelle de URu_2Si_2 .

Curieusement, cette perte de 90% du nombre de porteurs à la transition est également observée par les mesures d'effet Hall (figure 9.15) : celui-ci, relativement faible dans la phase métallique ($R_H = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{cm}^3/\text{C}$), saute soudainement à T_N pour atteindre à $B = 6\text{T}$ un maximum de $13,5 \cdot 10^{-3} \text{cm}^3/\text{C}$. Ce résultat est en accord avec les mesures d'effet Hall déjà rapportées dans la littérature [191]. Le fait que l'effet Nernst soit nul dans la phase haute température indique qu'il y a un type de porteurs majoritaire et le saut d'effet Hall traduit une perte du nombre de porteurs, et non pas un changement dans la prédominance de plusieurs types de porteurs électroniques. Cette perte du nombre de porteurs peut être évaluée : en utilisant une interpolation de Fert-Levy au-dessus de T_N et une interpolation linéaire jusqu'à $T = 0$ [192], on trouve que le nombre de porteurs passe de $0,4e^-/U$ à $0,04e^-/U$ lors de la transition [191]. On retrouve alors par cette analyse la chute de 90% du nombre de porteurs.

Finalement, même si ceci reste sujet à débat et en particulier reste à concilier avec le comportement de la résistivité, cette interprétation modifie légèrement notre vision de URu_2Si_2 dans la phase *ordre caché* : au lieu d'être un fermion lourd léger avec des porteurs peu entropiques, il serait plutôt caractérisé par une densité de porteurs (et donc un nombre d'électrons par atome d'Uranium) très faible mais possédant des excitations très entropiques.

Par contre, le développement d'un pic vers 3K reste très mystérieux, d'autant que cette échelle de température n'est observée en champ magnétique dans aucune autre grandeur, mis à part peut être l'augmentation de l'énergie du gap associée à ψ dans la direction 001 avec le champ magnétique. Cela étant, en l'absence d'une compréhension théorique plus avancée, cette corrélation reste extrêmement spéculative, d'autant que l'échelle d'énergie associée au gap est de l'ordre de 100K. Par contre, l'émergence de ce pic correspond ici encore à une augmentation de la pente du pouvoir thermoélectrique à basse température, qui fait rapprocher S/T de la valeur attendue pour γ avec un nombre de porteurs par atome d'uranium de 0,05, valeur suggérée par les mesures d'effet Hall. On peut alors supposer que la coïncidence sera restaurée à la sortie de la phase *ordre caché*, c'est-à-dire à 35T, mais des mesures à haut champ doivent confirmer cette affirmation.

9.4.2 Effet Nernst

L'émergence d'un effet Nernst dans la phase *ordre caché* reste malheureusement mal comprise en raison de la multiplicité des sources possibles. En effet, plusieurs possibilités apparaissent :

① l'effet Nernst provient uniquement du paramètre d'ordre m . Il est alors associé au magnétisme itinérant qui existe pour les champs inférieurs à celui correspondant à la transition métamagnétique. Il reste cependant étrange dans cette perspective qu'un effet

aussi important émerge d'un moment magnétique aussi petit ou occupant une fraction extrêmement réduite de l'échantillon.

② l'effet Nernst est uniquement associé au paramètre d'ordre ψ , et est donc uniquement relié à l'existence d'un gap Δ . Cela étant, l'amplitude du coefficient Nernst à 3K diminue entre 0 et 12T de quasiment 40% alors que le gap, lui, ne diminue que d'une petite vingtaine de %. Cette dépendance en champ magnétique témoigne, même si elle ne constitue pas une preuve flagrante, du lien qui existe entre m et ν , puisque m diminue beaucoup plus vite que Δ dans cette zone de champ magnétique [181].

③ l'émergence de cet effet Nernst est relié à la présence des deux phases et éventuellement au couplage entre les deux. Ceci rend évidemment l'interprétation de l'effet Nernst particulièrement compliquée. Cependant, on peut mettre en avant une vision naïve des choses, qui irait dans le sens et se fonderait sur le scénario correspondant à une inhomogénéité spatiale de la phase *ordre caché*. En effet, de façon similaire aux vortex dans la phase mixte d'un supraconducteur de type 2, on peut imaginer que les phases correspondant au deux paramètres d'ordre m et ψ vont pouvoir se mouvoir dans l'échantillon et, possédant des entropies différentes, se déplaceront l'une par rapport à l'autre, générant une tension transverse de la même façon que les vortex donnent naissance à l'effet Nernst.

Quelle que soit l'explication juste pour expliquer l'émergence d'un coefficient Nernst aussi élevé, on peut d'ores et déjà comparer URu_2Si_2 et $CeCoIn_5$. D'une part, on voit que la présence d'une forte masse effective ne suffit pas à entraîner l'apparition d'un fort effet Nernst, puisque celui-ci est nul au-dessus de T_N dans URu_2Si_2 . Ceci est d'autre part confirmé par le fait qu'alors que la masse effective de $CeCoIn_5$ est plus grande que celle de URu_2Si_2 , le coefficient Nernst est, lui, plus grand dans le second composé. Enfin, le signe de l'effet Nernst est différent dans les deux cas, ce qui pourrait indiquer des origines physiques différentes.

Remarquons finalement que dans URu_2Si_2 comme dans $CeCoIn_5$, l'émergence d'un grand coefficient Nernst est concomitant avec celle d'un effet Hall particulièrement important, et de même signe, même si la structure des deux R_H et de ν sont moins semblables. En particulier, alors que R_H devient indépendant du champ magnétique pour des températures inférieures à 4K, c'est dans cette zone que la sous linéarité de l'effet Nernst est la plus prononcée. Par ailleurs, le maximum dans l'effet Hall est très proche de la transition alors qu'il est à 3K dans l'effet Nernst.

Chapitre 10

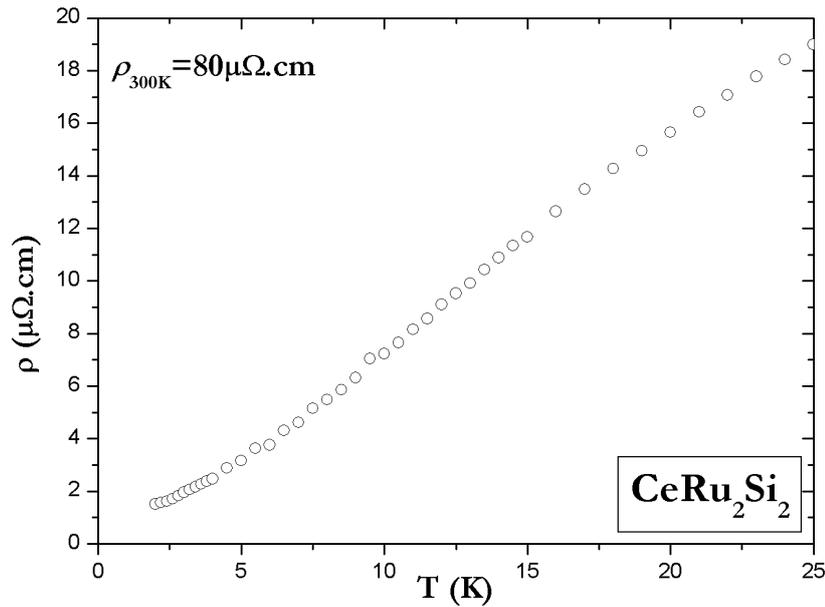
Effet Nernst et métamagnétisme : le réseau Kondo CeRu₂Si₂

10.1 Introduction

CeRu₂Si₂ est un fermion plutôt lourd ($\gamma = 350\text{mJ/molK}^2$ en dessous de 1K) [193] et qui cristallise dans une structure tétragonale, de même que URu₂Si₂. Il fait partie de la famille des fermions lourds de formule CeM₂X₂, à laquelle appartiennent CeCu₂Si₂, le premier fermion lourd supraconducteur à avoir été découvert, CeCu₂Ge₂ et CeRu₂Ge₂. L'état fondamental à pression et champ magnétique nul est paramagnétique, et la substitution de quelques pour cent de cérium par du lanthane — opération équivalente à l'application d'une pression négative — fait apparaître un ordre antiferromagnétique pour $x = 0.07$ dans Ce_{1-x}La_xRu₂Si₂ [194]. CeRu₂Si₂ est donc proche d'un point critique correspondant à la disparition de l'ordre antiferromagnétique [195]. Ceci est confirmé par le fait que l'application d'une pression agrandit le domaine de température où la résistivité est quadratique en température, comme dans un liquide de Fermi [196].

Cependant, l'état fondamental de CeRu₂Si₂ n'est pas simplement paramagnétique : les mesures de neutrons à champ nul et à basse température font apparaître des corrélations antiferromagnétiques pour deux vecteurs incommensurables avec le réseau, l'un des deux correspondant à celui de l'ordre à longue distance qui apparaît à pression négative [198]. De plus, l'aimantation présente une forte courbure positive, avec un point d'inflexion à $H_M = 7,8\text{T}$ [197]. Cette valeur du champ magnétique correspond à une transition métamagnétique, terme qui ici indique le passage d'une phase paramagnétique à bas champ vers une phase paramagnétique polarisée¹ [195]. Ce passage semble correspondre à une évolution de corrélations antiferromagnétiques à des corrélations ferromagnétiques [198], ainsi qu'à un changement dans le degré de localisation des électrons f , qui d'itinerants à bas champ deviennent localisés à haut champ [199]. Enfin, il existe un certain nombre de résultats qui excluent la présence d'une transition du premier ordre à $H = H_M$ [200]. Pour résumer, l'état fondamental de CeRu₂Si₂ est caractérisé par des corrélations magnétiques où les fluctuations empêchent la formation d'un ordre à longue distance.

¹Notons qu'originellement, l'expression *transition métamagnétique*. désignait une transition du premier ordre en champ d'une phase antiferromagnétique vers une phase paramagnétique

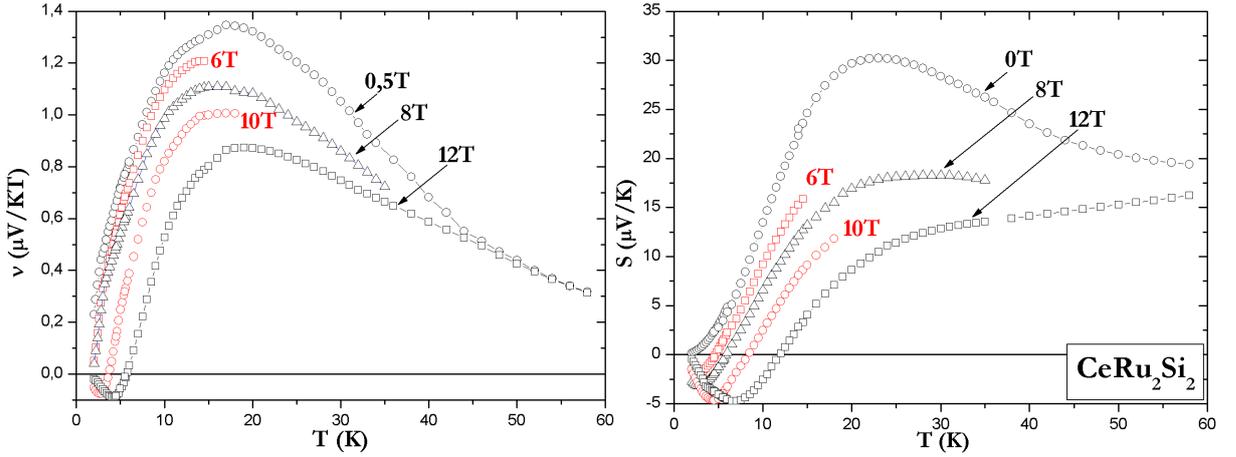

 FIG. 10.1 – Résistivité de $CeRu_2Si_2$ en fonction de la température.

Enfin, remarquons que contrairement à ses cousins $CeCu_2Si_2$ et $CeCu_2Ge_2$, $CeRu_2Si_2$ ne présente aucune trace de supraconductivité jusqu'à 20mK [197], tout comme $CeRu_2Ge_2$, même si aucune détection systématique n'a été effectuée dans ce dernier cas [195]. Cette absence constitue également un moyen de comprendre la supraconductivité non conventionnelle des fermions lourds dans un environnement antiferromagnétique.

Une des caractéristiques frappantes de la transition métamagnétique est son influence sur les propriétés fermions lourds de $CeRu_2Si_2$. En effet, le coefficient γ de chaleur spécifique à 1,5K, constant de 0 à 5T, présente un pic prononcé à H_M ($\gamma(H_M) = 490$ mJ/molK²), et s'effondre ensuite pour saturer à $\gamma=80$ mJ/molK² [193]. Cette disparition de la masse effective, qui est également donnée par les mesures d'aimantation, est accompagnée par un très fort changement structural du réseau, la dilatation thermique changeant de signe lorsque l'on passe H_M . Bien entendu, l'effondrement de la masse effective est connectée de façon directe au quasi-effondrement du réseau cristallin, révélé par des mesures de magnétostriction et de vitesse du son [194].

Le fait que cette transition métamagnétique soit connectée d'une manière quelconque aux électrons de conduction est montré par les mesures de résistivité et d'effet Hall [197], ainsi que par les mesures de conductivité thermique [201]. En particulier, la magnétorésistance présente un pic très net de valeur 0,4 pour $H = H_M$. Ce comportement est également observé dans la conductivité thermique, qui elle présente à toute température inférieure à 15K un minimum à H_M . L'effet Hall, quant à lui, montre également un maximum à H_M . Afin de compléter le tableau de $CeRu_2Si_2$, nous avons cherché à déterminer comment cette transition affectait la thermoélectricité de ce système.

Les échantillons de $CeRu_2Si_2$ nous ont été fournis J. Flouquet et synthétisés par P. Lejay. On peut voir leur résistivité sur la figure 10.1. Celle-ci vaut $80\mu\Omega\text{cm}$ à température

FIG. 10.2 – Coefficients Nernst et Seebeck en fonction de la température dans CeRu_2Si_2 .

ambiante. La résistivité résiduelle de nos échantillons vaut environ $1,2\mu\Omega\text{cm}$, valeur légèrement plus basse que ce qui est rapporté en général dans la littérature (de l'ordre de $2\mu\Omega\text{cm}$).

10.2 Résultats de thermoélectricité

Avant toute chose, notons que dans CeRu_2Si_2 la loi de Wiedemann-Franz est vérifiée pour $T < 20\text{K}$, c'est-à-dire que $\frac{L}{L_0} \approx 1$. De plus, l'effet Hall est assez fort et présente des valeurs qui sont de l'ordre de 10% de la résistivité. On ne peut donc pas exclure une contribution de l'effet Righi-Leduc dans ces mesures d'effet Nernst. Cependant, la structure de l'effet Nernst observée à la transition métamagnétique ne peut être imputée à l'effet Righi-Leduc, comme nous allons le voir.

La figure 10.2 montre tout d'abord la dépendance en température de l'effet Nernst et du pouvoir thermoélectrique. Le champ magnétique est orienté selon l'axe c , c'est-à-dire parallèlement à la direction du moment antiferromagnétique observé dans $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$.

Dès l'azote, le coefficient Nernst présente une valeur relativement élevée, et qui augmente jusqu'à un maximum à $T = 15\text{K}$. A haute température, il semble linéaire en champ magnétique (ν indépendant du champ). Ensuite, il s'effondre rapidement jusqu'à zéro pour $H < H_M$, mais présente un changement de signe pour $H > H_M$, la température de changement de signe étant une fonction croissante de H . Cette structure est réminiscente de celle du pouvoir thermoélectrique qui, lui change de signe à plus haute température et pour tous les champs sauf 0T. Par ailleurs, le pouvoir thermoélectrique présente une dépendance en champ magnétique.

Cependant, comme nous l'avons déjà vu, les comportements les plus révélateurs apparaissent en fonction du champ magnétique. Tournons-nous donc vers la dépendance en champ de l'effet Nernst. Celle-ci est donnée, pour plus de clarté, par les trois graphiques de la figure 10.3. Comme on le voit, à basse température, l'effet Nernst est loin d'être linéaire en champ magnétique, et présente même une structure relativement compliquée. De plus, la transition métamagnétique affecte profondément la thermoélectricité de CeRu_2Si_2 : sa

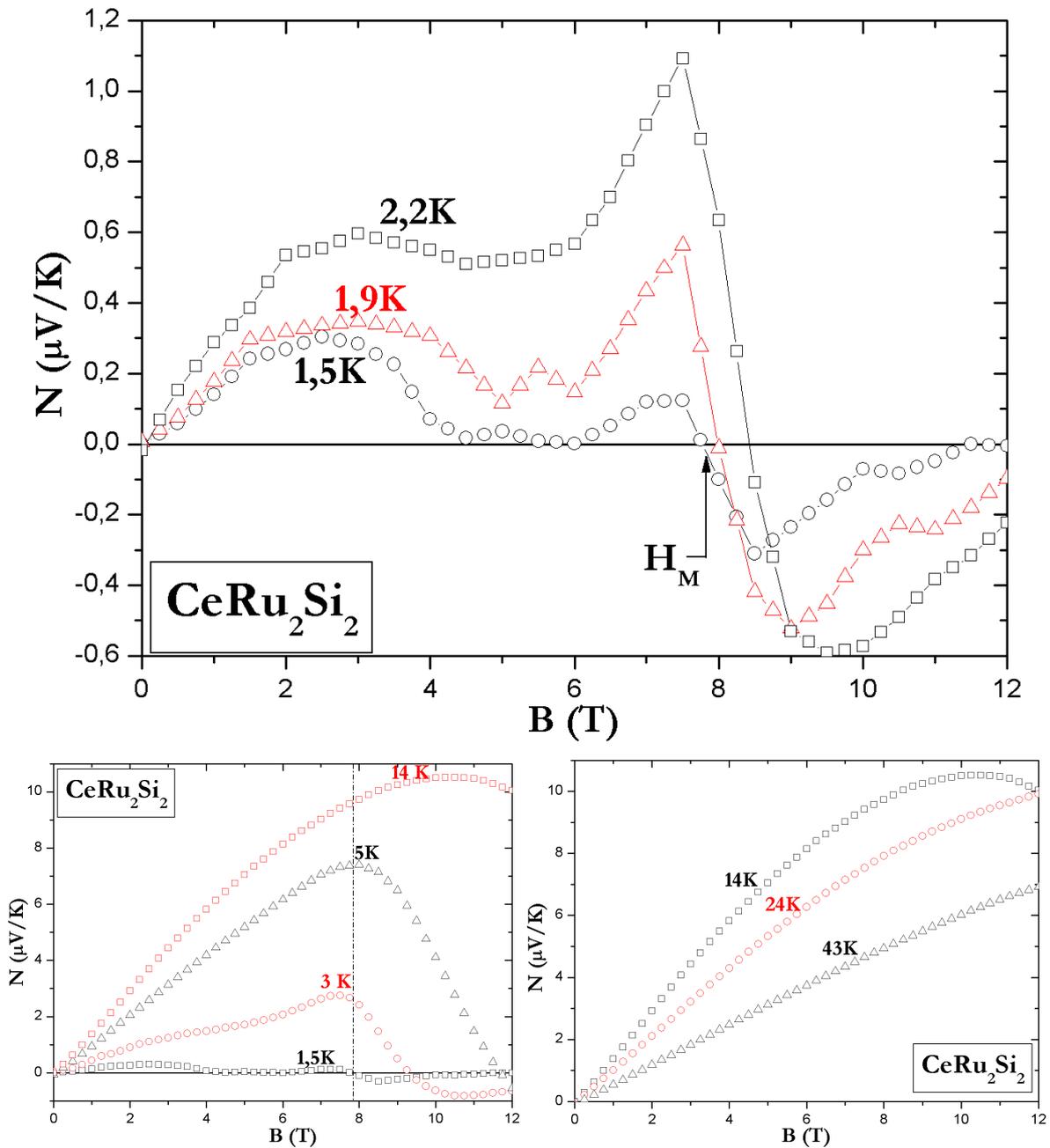


FIG. 10.3 – Signal Nernst en fonction du champ magnétique dans $CeRu_2Si_2$.

présence entraîne un changement de signe de l'effet Nernst, le champ correspondant à ce changement de signe étant, comme on l'a déjà observé sur les courbes en température, une fonction croissante de la température.

A plus haute température, c'est-à-dire entre 3 et 15K environ, la structure de l'effet Nernst se simplifie, devenant plus lisse et faisant apparaître un domaine linéaire en champ à bas champ. L'effet Nernst présente toujours un maximum dont l'emplacement se décale vers les hauts champs au fur et à mesure que la température augmente. Enfin, à très

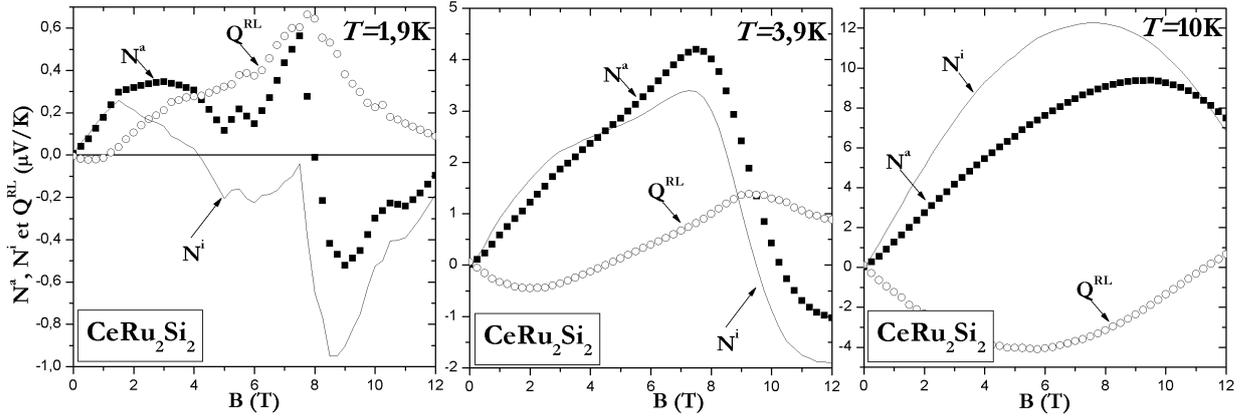


FIG. 10.4 – Effets Nernst adiabatique N^a , contribution de l'effet Righi-Leduc Q^{RL} et effet Nernst dit isotherme N^i .

haute température, le maximum disparaît de la fenêtre explorée en champ et, vers 40K, on observe un régime quasi-linéaire de l'effet Nernst, pour une valeur de $\nu = 500\text{nV/KT}$.

Ici, le problème de la contamination de l'effet Nernst par l'effet Righi-Leduc se pose beaucoup plus que dans les deux autres échantillons. En effet, dès que l'on est en dessous de 10K, le rapport de Lorentz L/L_0 est très proche de l'unité [201], ce qui montre que l'immense majorité de la conduction thermique se fait via les électrons. Ceci provient, si l'on veut comparer cette situation à celle de URu₂Si₂, du fait que la résistivité est un ordre de grandeur plus faible dans CeRu₂Si₂ que dans ce dernier, ce qui ramène la conductivité thermique électronique à une valeur inférieure à celle due aux phonons. D'autre part, à basse température dès que l'on a dépassé le champ où ρ_{xy} est relativement constant, les rapports $\frac{N}{S}$ et $\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}}$ sont du même ordre de grandeur. Cependant lorsqu'on augmente la température, ρ_{xx} augmente beaucoup plus rapidement que ρ_{xy} d'une part, et d'autre part le pouvoir thermoélectrique entre 0 et 15K reste confiné entre +5 et -5 $\mu\text{V/K}$ alors que l'effet Nernst, lui, ne cesse de croître. La contribution de l'effet Righi-Leduc à l'effet Nernst adiabatique va donc se réduire rapidement à mesure que la température augmente.

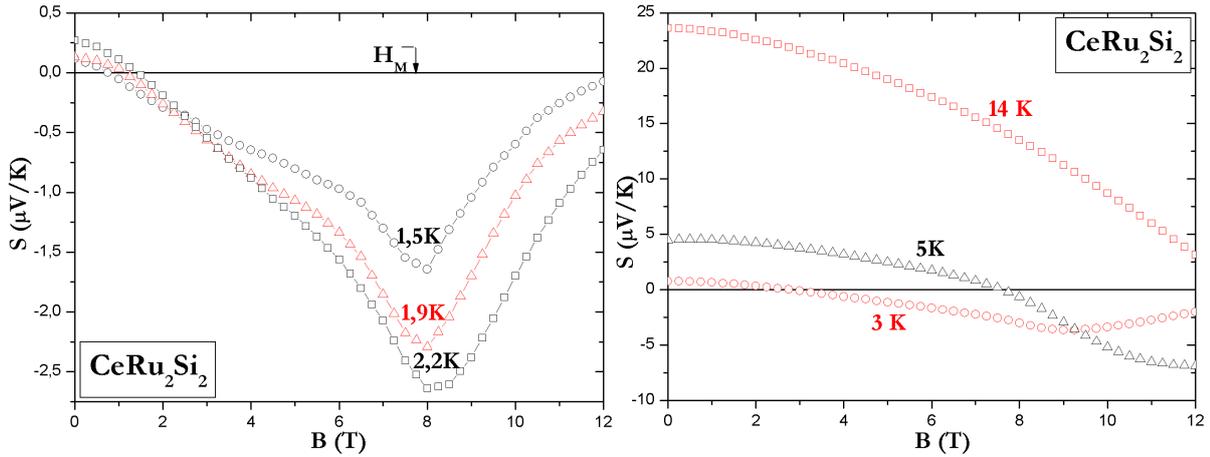
On peut estimer cette contribution via la relation :

$$Q^{R.L.} = S \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}$$

qui suppose uniquement que $\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} = \frac{\kappa_{xy}}{\kappa_{xx}}$. La figure 10.4 montre, en carrés pleins, l'effet Nernst mesuré dans notre configuration *adiabatique*, la contribution estimée de l'effet Righi-Leduc combiné au pouvoir thermoélectrique $Q^{R.L.}$, en ronds vides. La différence entre ces deux contributions va donner une bonne estimation de l'effet Nernst isotherme, via la relation :

$$N^i = N^a - Q^{R.L.}$$

On s'aperçoit tout de suite que, alors que cette contamination est particulièrement inquiétante à basse température, le comportement qualitatif de l'effet Nernst, à savoir le pic négatif prononcé pour $H > H_M$ ne disparaît pas pour toutes les températures. On voit tout de même qu'avec cette méthode d'extraction, le changement de signe de l'effet Nernst disparaît pour les températures les plus basses.


 FIG. 10.5 – Pouvoir thermoélectrique en fonction du champ magnétique dans $CeRu_2Si_2$.

Cependant, la validité de la relation $\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} = \frac{\kappa_{xy}}{\kappa_{xx}}$ est loin d'être évidente vu la complexité de l'effet Hall, et donc nous n'utiliserons pas la procédure d'extraction que nous avons mise en œuvre pour déduire l'effet Nernst isotherme. En l'absence de mesures de κ_{xy} sur $CeRu_2Si_2$, nous allons donc continuer à travailler avec l'effet Nernst adiabatique, tout en gardant à l'esprit que seule une description *qualitative* (ou bien quantitative à 20% près) et grossière — les détails de structure pouvant aussi bien provenir de l'effet Righi-Leduc que de l'effet Nernst isotherme — peut être effectuée sur ces mesures.

Le pouvoir thermoélectrique montre également de très fortes anomalies autour de la transition métamagnétique à basse température, comme le montre la figure 10.5. Cependant, alors que l'effet Nernst semble être sensible à la transition métamagnétique jusqu'au moins une quinzaine de kelvin, en exhibant un maximum positif, le pouvoir thermoélectrique, lui, montre deux régimes qualitativement différents. En effet, au-dessous de 3K, la transition métamagnétique est très visible par l'occurrence d'un maximum négatif prononcé dans le pouvoir thermoélectrique, vers $H = H_M$, ce maximum augmentant comme celui de l'effet Nernst avec la température. Cependant, au dessus de cette température, le pouvoir thermoélectrique ne montre plus au départ qu'un petit point d'inflexion à la transition ($T = 5K$), puis y est complètement insensible, comme on peut le voir sur la partie droite de la figure 10.5. L'existence de ces deux régimes a déjà été observée par Amato *et al.*[202]. Cependant, il existe des différences entre ces mesures et les nôtres, et alors que la température de changement de régime est d'environ 4K pour nos mesures, elle est de 8K pour les mesures plus anciennes². Malgré ce désaccord, nos résultats restent qualitativement les mêmes que ceux déjà rapportés.

Cette rapide indifférence du pouvoir thermoélectrique vis-à-vis de la transition métamagnétique montre qu'une autre échelle d'énergie est à l'œuvre. De plus, bien qu'on ne puisse pas extraire des données de pouvoir thermoélectrique le terme linéaire à basse température, puisque celui-ci ne semble apparaître qu'en dessous de 1K à 0T, S présentant encore une structure à basse température, il est raisonnable de penser que le pic de

²Cette température est celle au dessus de laquelle le pouvoir thermoélectrique est une fonction monotonement décroissante du champ, selon la définition de Amato *et al.* que nous avons reprise.

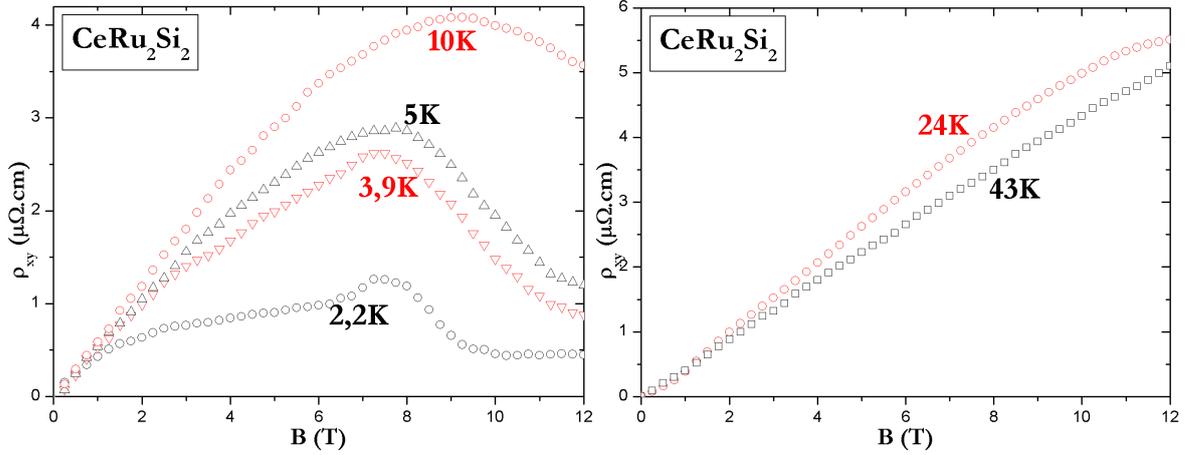


FIG. 10.6 – Effet Hall dans CeRu_2Si_2 . *A gauche*: pour $T < 15\text{K}$. *A droite*: pour $T > 15\text{K}$.

pouvoir thermoélectrique autour de $H = H_M$ est clairement relié à celui de la chaleur spécifique, traduisant l'augmentation de la masse effective, même si dans le cas du premier cet extremum est estompé par une autre contribution.

10.3 Autres propriétés de transport

En ce qui concerne les autres propriétés de transport, l'effet Hall est, comme nous l'avons déjà dit, également affecté par la transition métamagnétique. Le comportement de ρ_{xy} est donné figure 10.6 et reproduit les mesures déjà rapportées dans la littérature [197]. On s'aperçoit alors que, tout comme dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , le comportement de l'effet Nernst et celui de l'effet Hall semblent très corrélés³. En effet, les deux présentent un maximum exactement au même endroit, la seule différence étant que l'effet Hall, lui, ne change pas de signe à $H = H_M$, contrairement à N , ceci indiquant un changement non pas dans le type et le nombre de porteurs, mais dans la nature de leurs interactions.

Par ailleurs, l'effet Hall est particulièrement non linéaire en champ magnétique en-dessous d'une dizaine de Kelvin, puis tend progressivement à le devenir au fur et à mesure que la température augmente, comportement extrêmement similaire à celui de l'effet Nernst également.

10.4 Première discussion sur CeRu_2Si_2

CeRu_2Si_2 s'avère être un composé particulièrement intéressant en ce sens que, contrairement à CeCoIn_5 ou URu_2Si_2 , son comportement est assez archétypal : ni supraconductivité ni ordre caché d'aucune sorte ne viennent masquer les caractéristiques de la transition. On s'aperçoit alors que cette transition métamagnétique a une influence frappante sur la thermoélectricité du système, et en particulier de l'effet Nernst.

³L'effet Hall ne s'annule par ailleurs jamais, ce qui exclut toute explication d'origine purement ambipolaire.

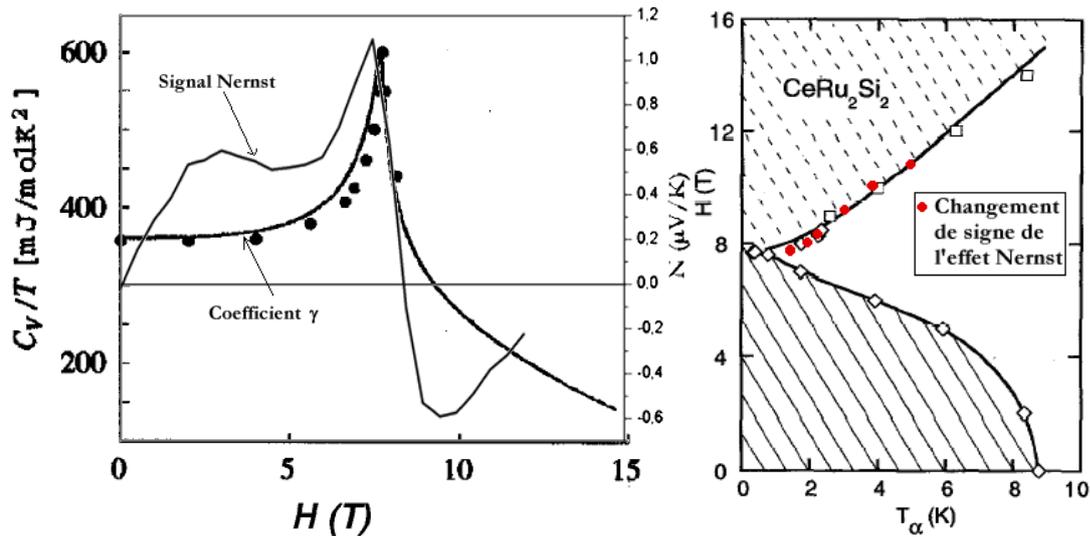


FIG. 10.7 – *A gauche*: Effet Nernst et chaleur spécifique de $CeRu_2Si_2$ à basse température. *A droite*: Diagramme de phase de $CeRu_2Si_2$, d'après [194]. Les ronds pleins correspondent au changement de signe de l'effet Nernst.

Comme nous l'avons déjà signalé, ce n'est pas tant l'amplitude du signal Nernst qui est frappante dans $CeRu_2Si_2$, même si elle atteint $1,4\mu V/KT$ à $0,5T$ vers $15K$, ce qui est désormais dans les ordres de grandeur usuels de ν dans les fermions lourds, mais le changement de signe très prononcé à la transition métamagnétique. Si l'on trace sur un diagramme $H - T$ les points de changement de signe de l'effet Nernst⁴, on retrouve exactement la ligne qui était donnée par le maximum de la chaleur spécifique dans le diagramme de phase de $CeRu_2Si_2$, comme on peut le voir figure 10.7.

Cette coïncidence entre le maximum de la chaleur spécifique et la nullité de l'effet Nernst renforce encore l'idée qu'une simple renormalisation de la masse des quasi-particules ne suffit pas à avoir un effet Nernst important. Cependant, la structure particulièrement complexe de l'effet Nernst en champ magnétique s'explique qualitativement par le fait que la surface de Fermi est particulièrement affectée par la transition. De plus, le changement de signe de l'effet Nernst montre que la physique des fermions lourds va induire des contributions de signe opposé selon les circonstances.

Plus précisément, on voit si l'on se limite à $H < H_M$, qu'au voisinage d'un point critique quantique en pression, proximité qui va naturellement générer un diagramme de phase plus ou moins riche en champ magnétique, le magnétisme itinérant induit *seul* l'existence d'un effet Nernst *de grande amplitude, positif et sous linéaire en champ magnétique*. De plus, à l'entrée dans la partie plus localisée du diagramme de phase, c'est-à-dire pour $H > H_M$, correspond un changement de signe dans l'effet Nernst. Par ailleurs, on observe que la perte du caractère fermion lourd montrée par la chute très rapide de γ après la transition métamagnétique s'accompagne d'une chute rapide de l'effet Nernst qui semble

⁴Nous avons pris le changement de signe de l'effet Nernst adiabatique, dont la position exacte est très certainement influencée par l'effet Righi-Leduc. Cependant, le déplacement en champ pour une température donnée n'excède jamais les $0,5T$.

devoir, à basse température, s'annuler vers une quinzaine de teslas. Ceci montre encore une fois que l'effet Nernst est un indicateur particulièrement sensible de la présence des électrons f et de leur couplage avec les électrons de conduction.

Notons encore une fois que dans $CeRu_2Si_2$ comme dans les deux autres fermions lourds que nous avons étudiés, l'effet Nernst est corrélé à l'effet Hall, mais cette fois, de manière totalement opposée à ce qui se passe dans un métal compensé où c'est l'effet Nernst qui change de signe quand l'effet Hall est maximal. Ce comportement reste encore à expliquer. En effet, alors qu'il est facile de comprendre les changements de signe de l'effet Hall dans une image de deux porteurs de charge opposée, le signe de l'effet Nernst, lui, est censé pour un système donné être indépendant du signe des porteurs (ce qui est la raison profonde pour laquelle il apparaît dans les métaux compensés), et reste de manière générale assez peu prédictible. Plus précisément ici, alors que le signe des porteurs ne change pas, le changement de topologie de la surface de Fermi va affecter de façon considérable l'effet Nernst.

Cinquième partie
Discussion des résultats

Chapitre 11

Thermoélectricité des fermions lourds : vers de nouvelles sources d'effet Nernst ?

Nous avons mesuré l'effet Nernst dans trois composés aux fermions lourds, CeCoIn_5 , URu_2Si_2 et CeRu_2Si_2 . Dans les trois systèmes, nous avons observé l'émergence d'un effet Nernst important dans la phase métallique, dont l'amplitude est au moins comparable sinon plus importante que celle de l'effet Nernst généré par les vortex dans la phase mixte des cuprates supraconducteurs. Par ailleurs, la dépendance en champ magnétique de N dans les trois composés est elle aussi non conventionnelle : dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , l'effet Nernst est sous linéaire en champ, et dans CeRu_2Si_2 , il présente en raison de la présence d'une transition métamagnétique à 8T une structure particulièrement accidentée, avec un changement de signe à la transition.

11.1 De nouvelles sources d'effet Nernst

Une des premières questions soulevées par ces résultats est de savoir si l'émergence d'un effet Nernst dans les phases métalliques de ces trois composés met en évidence de nouvelles sources de thermoélectricité transverse, ou bien si une interprétation plus conventionnelle peut être mise en avant.

Nous avons rappelé dans la troisième partie de cette thèse que l'effet Nernst dans un métal comprenant un type de porteur devait être nul, ou du moins très faible en raison de la compensation de Sondheimer. Dans ce cas, l'effet Nernst doit être donné par¹ :

$$\nu = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3m} \left(\frac{\partial \tau}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon=\mu} \quad (11.1)$$

De manière générale, cette quantité impliquant la dérivée énergétique du temps de relaxation est faible. Nos mesures dans l'or ont confirmé cette affirmation.

¹Cette relation implique que la théorie de Boltzmann puisse être appliquée, et en particulier qu'il existe un temps de relaxation bien défini.

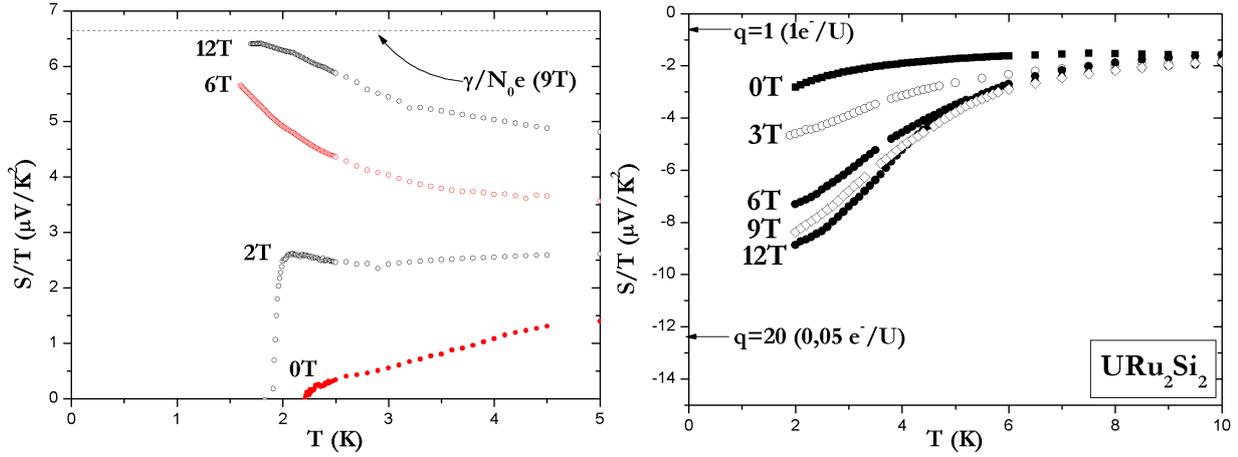


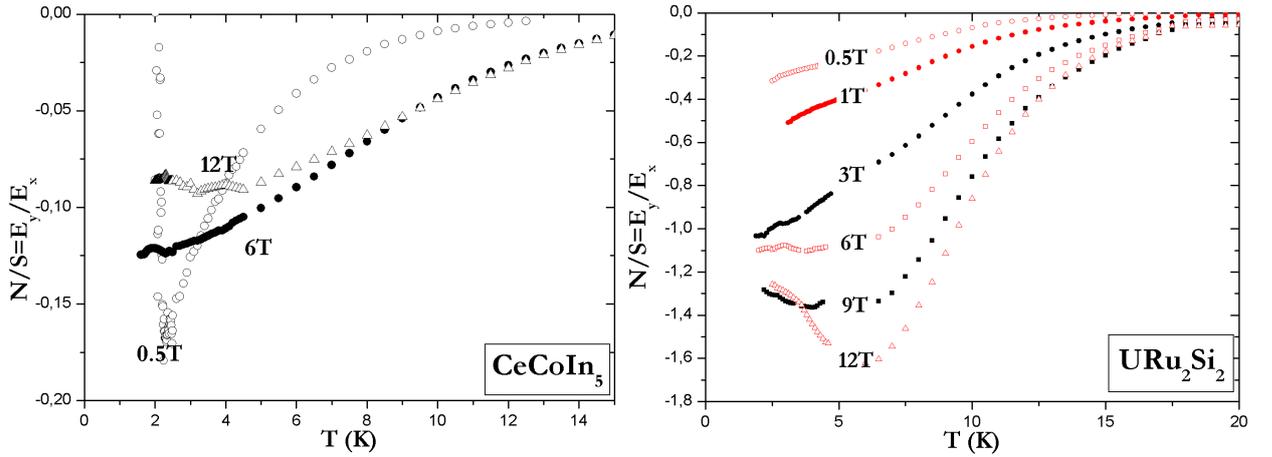
FIG. 11.1 – Rapport S/T dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , ainsi que la valeur attendue d'après γ et le nombre estimé de porteurs par maille élémentaire.

Avant de discuter de l'ordre de grandeur de ce terme dans les fermions lourds, remarquons que l'unicité du type de porteur dans les fermions lourds peut largement être mise en doute. Par exemple, dans CeCoIn_5 , les calculs de bandes montrent que ce système est un métal compensé. Cela étant, force est de constater que l'effet Nernst que nous avons mesuré dans les trois systèmes ne présente pas les caractéristiques usuelles d'un effet Nernst ambipolaire. En effet, comme les mesures dans NbSe_2 l'ont rappelé, la compensation qui donne naissance à un effet Nernst important donne également lieu à un effet Hall *petit*. Or, dans les trois systèmes étudiés, l'apparition d'un effet Nernst important est couplé à celle d'un effet Hall également grand. Ceci rend l'interprétation en termes simples de non compensation entre plusieurs types de porteurs difficile à maintenir comme source unique des effets observés.

Ceci ne signifie pas que toute contribution ambipolaire est absente dans l'effet Nernst des fermions lourds. En fait, comme nous l'avons déjà discuté, les mesures pour $T > T^*$ dans CeCoIn_5 nous donnent un ordre de grandeur de ces contributions, qui est celui trouvé dans NbSe_2 par exemple, et donc quasiment un ordre de grandeur en deçà des effets Nernst maximum que nous avons observés. Il s'avère donc que la contribution majoritaire à l'effet Nernst provient soit du terme en $\left(\frac{\partial \pi}{\partial \epsilon}\right)_{\epsilon=\mu}$, soit d'une source encore non identifiée.

11.2 Un effet Nernst géant corrélé à un effet Seebeck réduit

Dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , l'émergence d'un effet Nernst géant est associé à une réduction du pouvoir thermoélectrique, tout du moins à bas champ magnétique. Il est également intéressant de constater que lorsque le régime linéaire est atteint, c'est-à-dire en dessous d'une température pour laquelle $\frac{S}{T}$ est quasiment constant, le champ magnétique fait — dans les deux systèmes — augmenter le pouvoir thermoélectrique alors qu'il fait diminuer le coefficient Nernst.


 FIG. 11.2 – Rapports $\frac{N}{S}$ à différents champs magnétiques dans CeCoIn_5 et dans URu_2Si_2

La petitesse de la valeur du pouvoir thermoélectrique est révélée par la comparaison entre $\frac{S}{T}$ et le coefficient $\gamma = \frac{C_e}{T}$ de chaleur spécifique. En effet, il a été récemment remarqué que dans un grand nombre de composés, le nombre

$$q = \frac{S/T}{\gamma} N_0 e$$

est proche de l'unité [150]. Cependant, tant dans CeCoIn_5 que dans URu_2Si_2 , la valeur de $\frac{S}{T}$ est bien en dessous de la valeur escomptée pour $q = 1$. Or le champ magnétique a tendance à ramener la valeur de $\frac{S}{T}$ vers la valeur qu'il devrait avoir d'après celle de la chaleur spécifique. La figure 11.1 montre ce comportement pour CeCoIn_5 et URu_2Si_2 . La valeur de S/T attendue montrée sur chacune des figures correspond à $q = 1$ pour CeCoIn_5 mais à $q = 20$ pour URu_2Si_2 , l'effet Hall montrant une perte de 90% des porteurs à la transition, et donc un nombre d'électrons de 0,05 par atome d'uranium. On voit que ce rapprochement est beaucoup plus rapide dans CeCoIn_5 que dans URu_2Si_2 , ce qui peut être dû à des différences d'échelles de champ magnétique : la restauration des propriétés liquide de Fermi dans CeCoIn_5 se fait, à ces températures, vers une quinzaine de Tesla, alors que l'échelle caractéristique associée soit à la disparition du paramètre d'ordre ψ , soit au point critique, est de l'ordre de 35-40T.

Cette petitesse de S associée à une grande valeur de N donne un comportement à basse température particulièrement frappant : comme nous l'avons déjà remarqué, dans les deux cas le rapport $\frac{N}{S}$ semble *diverger à basse température*, la divergence n'étant dans les deux cas interrompue que par la transition supraconductrice. Ce comportement est montré figure 11.2.

Remarquons qu'alors que dans URu_2Si_2 le rapport $\frac{N}{S}$ augmente avec le champ magnétique, traduisant une augmentation plus rapide de N que de S en champ, dans CeCoIn_5 il *diminue* avec le champ magnétique, ce qui est essentiellement dû à la très forte dépendance de S en champ.

Notons finalement qu'on ne peut avoir les mêmes considérations sur CeRu_2Si_2 . En

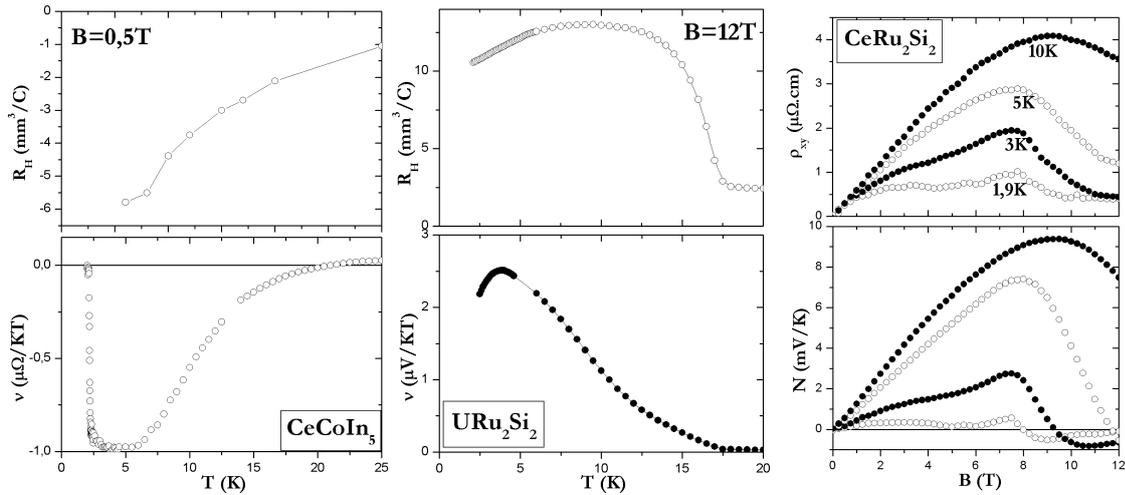


FIG. 11.3 – Coefficients Nernst et Hall en fonction de T dans CeCoIn₅ et URu₂Si₂, signaux Nernst et Hall dans CeRu₂Si₂ en fonction du champ magnétique.

effet, il est difficile de tracer le rapport N/S dans ce composé puisque le pouvoir thermoélectrique change de signe et donc passe par zéro. D'autre part, les mesures de pouvoir thermoélectrique à plus basse température montrent que le régime linéaire n'est pas encore atteint aux températures les plus basses où nous avons mesuré l'effet Seebeck [202].

11.3 Une deuxième corrélation : l'effet Nernst et l'effet Hall

Dans les trois systèmes étudiés, l'effet Nernst et l'effet Hall exhibent des comportements étonnamment similaires. Notons avant toutes choses que ceci pourrait jeter une ombre de doute quant à l'assimilation entre les effets Nernst adiabatique et isotherme, puisque dans le cas d'un effet Nernst purement dû à l'effet Righi-Leduc, on s'attend à ce que ν et R_H aient la même structure (plus exactement ν/S et R_H/ρ_{xx}). En plus des arguments que nous avons mis en avant pour exclure, tout du moins dans les cas de CeCoIn₅ et URu₂Si₂, une contribution trop importante de κ_{xy} , d'autres arguments viennent s'ajouter ici. D'une part N/S et R_H/ρ_{xx} devraient, dans le cas d'une forte contamination, avoir toujours le même signe, soit toujours le signe opposé. Or il s'avère d'une part que ce n'est pas le cas lorsque l'on compare CeCoIn₅ et URu₂Si₂, et d'autre part que le rapport N/S change de signe en champ magnétique dans CeRu₂Si₂ alors que R_H/ρ_{xx} reste toujours positif. Une contamination de l'effet Nernst dans les trois composés est donc difficile à imaginer.

Quelques différences subsistent tout de même entre les trois composés. Alors que dans CeCoIn₅ l'effet Hall et l'effet Nernst ont des allures extrêmement similaires (même si N , contrairement à ρ_{xy} , n'est pas en $1/T$), dans URu₂Si₂ leurs allures diffèrent sensiblement. En effet, alors que l'effet Hall atteint son maximum vers 10K, l'effet Nernst est à cette température encore relativement bas et ne sera maximal qu'à 3K. Il en est de même

pour les dépendances en champ dans les deux composés. Dans CeCoIn_5 , ν comme R_H s'effondre avec le champ, alors que la sous-linéarité est moins prononcée dans URu_2Si_2 et surtout que R_H est indépendant du champ à basse température.

11.4 L'effet Nernst, une manifestation de la physique des fermions lourds ?

Dans les trois systèmes étudiés, il est clair que l'émergence d'un effet Nernst de grande amplitude est reliée aux propriétés caractéristiques de la physique des fermions lourds. Dans CeCoIn_5 , si l'on suppose que l'apparition d'un effet Nernst fortement non linéaire est intimement reliée à celle d'un effet Hall présentant les mêmes caractéristiques, alors qu'il ne les montre pas dans La-115, alors l'émergence d'un effet Nernst géant est clairement reliée à la présence des électrons $4f$. Dans URu_2Si_2 , l'effet Nernst n'apparaît que dans la phase *ordre caché*, qui, même si ses origines sont encore mal connues, procède très probablement des interactions avec les électrons $5f$. Enfin dans CeRu_2Si_2 , il est évident que N est intimement lié à la transition métamagnétique, elle-même évidemment reliée à la physique des électrons f .

C'est peut-être ce dernier exemple qui est le plus instructif : au changement de caractéristiques dans le couplage entre les électrons f et les électrons d correspond un changement drastique de l'effet Nernst. Cet exemple témoigne du fait que la nature du couplage avec les électrons f va avoir une influence très importante sur l'effet Nernst dans les fermions lourds.

L'origine de cette influence reste encore à déterminer précisément. Cela étant, la corrélation entre l'effet Nernst et l'effet Hall peut amener déjà un premier élément de réponse. En effet, comme nous l'avons déjà dit, l'effet Nernst peut s'écrire :

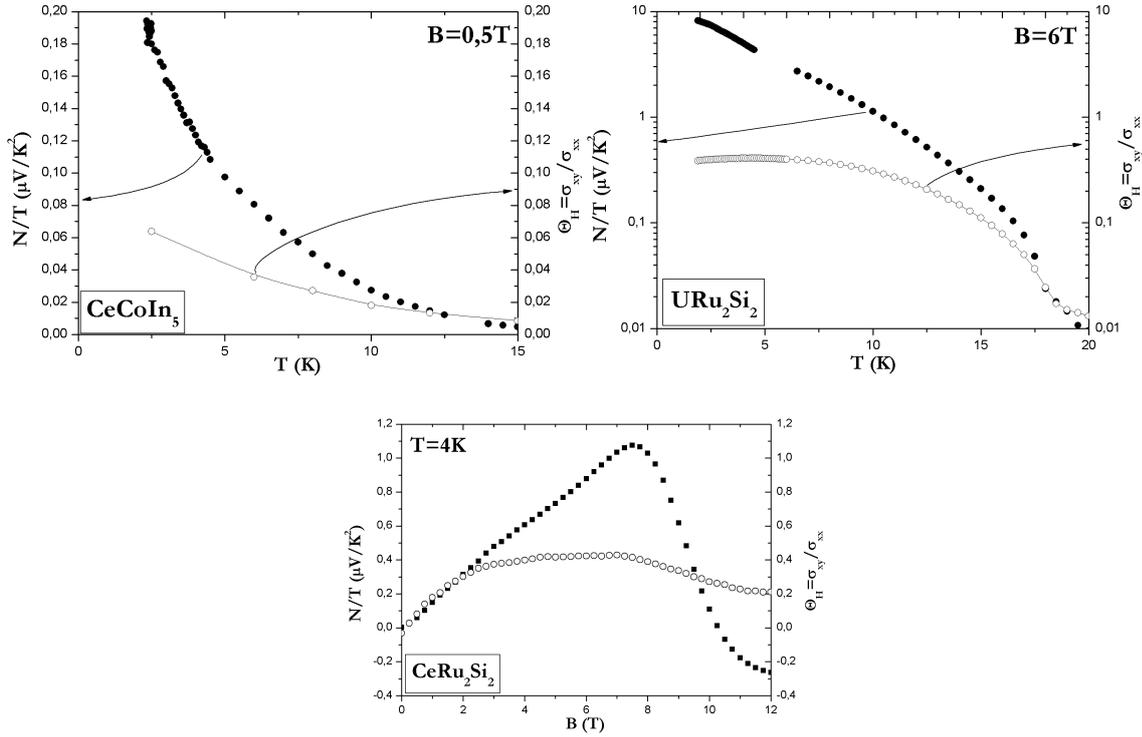
$$\frac{N}{T} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e} \left(\frac{\partial \theta_H}{\partial \epsilon} \right)_{\epsilon = \epsilon_F} \quad (11.2)$$

où $\theta_H = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}}$. Cet angle est par ailleurs relié directement, dans une simple image de Boltzmann, au temps de relaxation des quasiparticules via la relation $\theta_H = \omega_c \tau$.

Si l'on regarde la relation 11.2, on s'aperçoit que, naturellement, toute variation significative d'un coefficient de Hall élevé va induire un effet Nernst élevé. Par ailleurs, on peut linéariser cette relation ($\theta_H \propto \epsilon$) autour de l'énergie de Fermi pour aboutir à :

$$N = 283 \frac{\mu V}{K} \frac{k_B T}{\epsilon_F} \theta_H \quad (11.3)$$

On constate alors qu'une énergie de Fermi réduite va également contribuer à une augmentation de l'effet Nernst par rapport à ce qui est usuellement observé dans les métaux. Or l'énergie de Fermi des fermions lourds est de façon très générale petite, ce qui est normal étant donné que pour un gaz de fermions libres l'énergie de Fermi est inversement proportionnelle à la masse effective des quasi particules. Un temps de relaxation grand (c'est-à-dire un angle de Hall important) couplé à une énergie de Fermi réduite pourrait


 FIG. 11.4 – Rapport N/T et angle de Hall dans les trois systèmes étudiés.

donc expliquer l'émergence d'un effet Nernst géant dans les trois systèmes que nous avons étudiés.

Cela étant, cet argument simple, même s'il permet d'entrevoir une raison naturelle pour expliquer l'émergence de l'effet Nernst, présente quelques faiblesses lorsque l'on essaye de l'appliquer quantitativement. La figure 11.4 compare les variations de N/T et de θ_H dans les trois systèmes. On voit alors que tant dans CeCoIn_5 que dans URu_2Si_2 l'émergence en dessous respectivement de T^* et de T_N de l'effet Nernst est beaucoup plus importante que celle attendue via la relation 11.3, en supposant bien entendu une énergie de Fermi constante. Ces résultats suggèrent donc *une forte dépendance en énergie du temps de relaxation*. En ce qui concerne CeRu_2Si_2 , le champ magnétique va, de la même façon que la température dans les deux autres systèmes, affecter de façon beaucoup plus marquée l'effet Nernst que l'effet Hall, en tout cas — et ce avant le changement de température — au delà d'une simple proportionnalité².

On peut enfin estimer, via la relation 11.3, la valeur de l'énergie de Fermi. Les résultats sont donnés au tableau 11.1.

Il est alors clair que, même si l'effet Nernst est évidemment une manifestation expérimentale très visible de la physique des fermions lourds, c'est-à-dire de la présence des électrons f et de leur couplage avec les électrons de conduction, il va être affecté d'une manière beaucoup plus subtile et complexe que via la simple renormalisation de la masse et

²En ce qui concerne CeRu_2Si_2 , l'application de cette relation reste sujette à caution. En effet, le changement de signe de l'effet Nernst ne devrait pas se produire alors que l'angle de Hall reste positif.

11.5. Un terme $\left(\frac{\partial\tau}{\partial\epsilon}\right)_{\epsilon_F}$ fortement dépendant de l'énergie.

| | N/T ($\mu\text{V}/\text{K}^2$) | θ_H | ϵ_F (K) | γ (mJ/K ² mol) ($T = 0$) |
|--|------------------------------------|------------|------------------|--|
| CeCoIn ₅ (2,5K et 0,5T) | 0,18 | 0,06 | 94 | 1000 |
| URu ₂ Si ₂ (3K et 6T) | 0,20 | 0,4 | 17 | 60 |
| CeRu ₂ Si ₂ (4K et 7,8T) | 1 | 0,4 | 113 | 350 |

TAB. 11.1 – Valeurs estimées de ϵ_F et comparaison avec γ à température nulle.

la réduction drastique de l'énergie de Fermi. Le tableau 11.1 montre bien que, même si on trouve des valeurs de ϵ_F dont les ordres de grandeur sont concevables pour des fermions lourds, la corrélation entre l'énergie de Fermi ainsi déterminée et la masse effective ne fonctionne pas. Par ailleurs, les zones d'émergence de cet effet Nernst géant mettent en évidence que le caractère fermion lourd ne suffit pas à lui seul à expliquer l'émergence de l'effet Nernst : URu₂Si₂ est un fermion lourd bien avant la transition vers la phase *ordre caché*, alors que l'effet Nernst, lui, n'est non nul qu'en dessous de T_N ; dans CeCoIn₅, l'émergence de l'effet Nernst ne se fait qu'en dessous de $T^* \approx 20\text{K}$, alors que la formation de l'état fermion lourd se fait à une température de l'ordre de 40K.

Ceci nous amène à nous demander quelle est l'origine microscopique de l'émergence de tels effets. Malheureusement, cette étude regroupe l'ensemble des mesures d'effet Nernst réalisées dans les fermions lourds, ce qui constitue un nombre assez limité compte tenu de la richesse et la diversité des comportements de ces systèmes. On ne peut donc qu'espérer, dans l'état actuel des choses et avant toute discussion, que l'apparition d'une thermoélectricité transverse dans les fermions lourds procède de la physique générale de ces systèmes et non de comportements particuliers associés à ces trois composés; et en l'absence d'une étude plus étendue sur ces systèmes, tant théorique qu'expérimentale, nous ne pouvons dans l'état actuel des choses que rester à un niveau relativement spéculatif. En gardant cette réserve à l'esprit, nous pouvons discuter plus avant des sources possibles de l'effet Nernst.

11.5 Un terme $\left(\frac{\partial\tau}{\partial\epsilon}\right)_{\epsilon_F}$ fortement dépendant de l'énergie.

Revenons à l'expression première de l'effet Nernst, à savoir :

$$\nu = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3m^*} \left(\frac{\partial\tau}{\partial\epsilon}\right)_{\epsilon=\mu}$$

Si l'on se restreint à cette expression, dérivée d'un simple traitement "à la Boltzmann", on s'aperçoit, en restant qualitatif, qu'un effet Nernst important va émerger dans des systèmes où des conditions particulières vont induire une dépendance particulièrement forte du temps de relaxation en énergie. Précisons avant d'aller plus loin que dès que l'on s'éloigne des systèmes simples, la grandeur désignée par τ , bien que désignant toujours les propriétés de transport du système, recouvre une physique beaucoup plus complexe. Remarquons déjà que, dans cette relation, la masse effective est au *dénominateur* de l'expression, ce qui laisserait penser qu'une masse effective grande induirait un effet Nernst

petit, contrairement à ce que nous avons laissé entendre au paragraphe précédent. Cette apparente contradiction entre deux relations par ailleurs équivalentes est levée par le fait que, dans les fermions lourds, τ est augmenté *grosso modo* d'un facteur m^* tandis que l'énergie de Fermi est, elle, diminuée du même facteur. Ceci mène donc bien à l'augmentation en m^* que nous avons déjà signalée.

Dans la perception de l'effet Nernst donnée par cette relation, ce n'est pas la *thermodynamique* du système qui va être la cause de l'émergence d'un signal fort (grande masse effective, petite énergie de Fermi...), mais les propriétés *de transport*. Ceci permet alors également de comprendre la corrélation forte entre l'effet Hall et l'effet Nernst dans ces matériaux : dès que l'on est en présence d'une situation où l'effet Hall devient dépendant du temps de relaxation, un effet Nernst peut émerger. Ceci reste cependant une considération très générale en l'absence de précisions sur la dépendance en énergie de τ^3 .

Penchons nous à présent sur chacun des systèmes pris individuellement. Dans NbSe₂, comme nous l'avons discuté et même si les mécanismes ne sont pas encore totalement éclaircis, il semble clair que la transition CDW affecte directement le temps de relaxation dans les propriétés de transport, mais de façon différente pour les trous et les électrons, ce qui amène à l'apparition de l'effet Nernst. Dans CeCoIn₅, il semble qu'une manière de concilier l'effet Hall et l'effet Nernst soit également de considérer un temps de relaxation des porteurs dépendant du champ magnétique, ces derniers gardant par ailleurs leur masse effective inchangée (tout du moins à haute température). En ce qui concerne CeRu₂Si₂, il est clair que les propriétés de transport sont particulièrement affectées par la transition métamagnétique, et on peut très bien imaginer que les modifications de la surface de Fermi associées à la proximité de cette transition vont se répercuter sur la dépendance en énergie de τ .

La situation est un peu plus compliquée dans URu₂Si₂ où la coexistence de deux paramètres d'ordre peut largement compliquer l'explication, mais une dépendance exotique de τ en énergie n'est pas non plus exclue.

Cependant, tout ceci reste, surtout dans les deux derniers composés, très spéculatif et requiert un traitement théorique approprié.

³Par ailleurs, dans des systèmes complexes comme par exemple CeCoIn₅, la définition stricte de τ devient plus ardue que dans un métal simple. Ceci rend une analyse fine d'autant plus difficile.

Chapitre 12

Quelques conjectures sur les sources d'effet Nernst - Perspectives

La discussion du chapitre précédent montre que l'émergence d'un grand effet Nernst dans les fermions lourds provient soit d'un temps de relaxation particulièrement dépendant de l'énergie, soit d'autres sources non identifiées. Nous allons ici essayer de déterminer quelles sont les situations ou les sources qui peuvent être de bons candidats pour une compréhension de l'effet Nernst.

12.1 Proximité d'un point critique quantique

12.1.1 Point critique quantique en pression

CeCoIn₅ et CeRu₂Si₂ sont tous deux situés à une pression légèrement plus élevée que celle correspondant au point critique quantique marquant la disparition de la phase antiferromagnétique. Cependant des différences substantielles existent entre les deux composés, en particulier le fait que CeRu₂Si₂ ne montre aucune trace de supraconductivité. Malgré ces différences, les fluctuations quantiques vont générer des comportements remarquables sous champ magnétique, qui correspondent au point critique quantique à 5T dans CeCoIn₅ ou bien à la transition métamagnétique à 8T dans CeRu₂Si₂.

Il est alors tout à fait envisageable que la présence des fluctuations quantiques induisent l'émergence d'un effet Nernst important. En particulier, N risque d'être particulièrement sensible aux modifications drastiques que va subir la surface de Fermi (que ce soit l'apparition de "lignes chaudes" dans la surface de Fermi, dans une vision de type Hertz-Millis, ou bien sa brusque reconfiguration dans une vision de couplage faible). En effet, si l'effet Nernst peut être vu comme la manière dont le remplissage de la surface de Fermi varie lorsque l'on déplace le potentiel chimique, il est clair qu'une surface de Fermi accidentée ou fluctuante ne peut qu'engendrer un effet Nernst d'amplitude conséquente. Plus particulièrement, Coleman et al. ont montré que l'effet Hall était particulièrement sensible aux variations de la surface de Fermi [66]. L'effet Nernst étant relié via l'expression de Mott à l'effet Hall, il est clair que cette sensibilité peut engendrer un fort effet Nernst.

Cependant, plusieurs différences entre les trois systèmes étudiés peuvent contredire

cette interprétation. D'une part, URu₂Si₂ n'est pas proche d'un point critique quantique sous pression, et l'émergence de l'effet Nernst dans ce composé ne se fait pas via un *crossover*, mais véritablement après une transition de phase à 17,5K. L'effet Nernst dans URu₂Si₂ réclamerait donc une autre explication. D'autre part, bien que CeCoIn₅ et CeRu₂Si₂ soient positionnés de la même manière par rapport au point critique quantique à pression négative, leurs coefficients Nernst n'ont pas le même signe. De plus, N est particulièrement affecté par la transition métamagnétique à 8T dans CeRu₂Si₂, alors qu'il est remarquablement indifférent au point critique quantique à 5T dans CeCoIn₅.

12.1.2 Metamagnétisme et criticalité induite sous champ

Si l'on oublie la présence du paramètre d'ordre ψ et la phase *ordre caché* dans URu₂Si₂, celui-ci et CeRu₂Si₂ présentent tous deux une transition métamagnétique, à 38T pour le premier et à 8T pour le second. L'effet Nernst exhibe dans URu₂Si₂ des caractéristiques qualitativement similaires à CeRu₂Si₂ : d'une part il est positif pour $H < H_M$ et sous linéaire en champ, et d'autre part il montre une tendance à changer de signe (tout du moins à s'annuler) pour $H = H_M$. Bien entendu le domaine d'exploration de la transition métamagnétique dans nos mesures sur URu₂Si₂ reste limité aux très bas champs, puisque le champ magnétique maximal que nous avons atteint n'est que le tiers de H_M . Dans cette perspective, l'émergence de l'effet Nernst dans URu₂Si₂ ne serait pas dû directement à la phase *ordre caché*, mais uniquement à la manifestation de la transition métamagnétique.

Il reste cependant, dans ce scénario, à expliquer pourquoi N s'annule dès que l'on sort de la phase *ordre caché*, même si ce n'est qu'à l'entrée dans cette phase que les corrélations antiferromagnétiques caractéristiques de la phase bas champ d'une transition métamagnétique apparaissent, alors que les mesures sous fort champ magnétique montrent que le champ de disparition de la phase *ordre caché* est distinct de celui correspondant à la transition métamagnétique. De plus, ce comportement de l'effet Nernst n'est absolument pas celui observé autour du point critique quantique induit sous champ dans CeCoIn₅. Il faudrait donc trouver une autre explication pour l'émergence de l'effet Nernst dans ce composé. Cela étant, le fait que l'on n'observe pas de changement ni d'annulation de l'effet Nernst à 5T dans CeCoIn₅ montre que la transition magnétique à $B=5T$ n'est pas une transition métamagnétique, si bien entendu le comportement observé dans CeRu₂Si₂ a un caractère universel.

12.2 Signe de l'effet Nernst et degré de localisation des électrons f

CeRu₂Si₂ est probablement le composé le plus instructif des trois composés à bien des égards. En effet, se présentant comme l'archétype du metamagnétisme, les comportements qu'il exhibe ne peuvent avoir qu'un nombre réduit d'origines, contrairement aux situations de CeCoIn₅ et URu₂Si₂ pour lesquels plusieurs phénomènes sont à l'œuvre dans la construction de leur physique.

L'effet Nernst dans CeRu₂Si₂ nous enseigne plusieurs choses : la première est que, comme on s'y attend, l'effet Nernst est particulièrement sensible à une modification impor-

tante de la surface de Fermi. Par ailleurs, le passage d'un caractère délocalisé des électrons f (ou tout du moins *dual*, c'est-à-dire où une partie des électrons f serait délocalisée) ($H < H_M$) à localisé ($H > H_M$) est clairement indiqué par le passage de positif à négatif de l'effet Nernst : il est clair que celui-ci est le résultat de deux contributions de signe opposé qui par contre s'ajoutent dans la chaleur spécifique.

Or le signe positif de l'effet Nernst se retrouve dans URu_2Si_2 , où les électrons f sont délocalisés (au moins partiellement) et sont à l'origine du magnétisme itinérant, et le signe négatif dans CeCoIn_5 , où les électrons f sont bien décrits par le réseau Kondo et donc ont plus un caractère localisé.

Le signe de l'effet Nernst dans les fermions lourds pourrait être un indicateur de l'état de localisation des électrons f . En effet, comme nous l'avons déjà vu dans les discussions préliminaires sur les trois composés, *l'effet Nernst semble être un indicateur très sensible de la présence des électrons f et de leur couplage avec les électrons d , autrement dit de la physique fondamentale des fermions lourds*. Il serait dans cette perspective peu étonnant que la localisation des électrons f , qui est un des paramètres clés dans la formation des états fondamentaux des fermions lourds, soit perçue d'une manière ou d'une autre par l'effet Nernst. Cependant, le nombre de composés étudiés étant très limité par rapport à celui des fermions lourds dans leur ensemble, et en l'absence de prédiction théorique sur le sujet, cette corrélation reste extrêmement spéculative, et devrait être vérifiée dans d'autres composés.

12.3 Présence d'une onde de densité de charge non-conventionnelle

Les résultats dans NbSe_2 et CeCoIn_5 ont également été interprétés comme indiquant la présence d'une onde de densité de charge non conventionnelle. Dans un récent article, Dora *et al.* ont montré que si un tel ordre était présent, les électrons orbiteraient autour du champ magnétique, et généreraient lors de leur déplacement sous l'action d'un gradient thermique une tension transverse, et donc un signal Nernst *négatif* [154]. Cette analyse rejoint celle de Oganessian *et al.* sur NbSe_2 , où l'émergence de l'effet Nernst a été interprétée non pas comme la manifestation du caractère compensé du système, mais de la présence de l'onde de densité de charge [136]. Le fait que N soit non nul et augmente pour des températures où R_H est constant montrerait qu'il pourrait être un annonciateur de la transition à T_{CDW} . De plus, selon Oganessian *et al.*, le signe de l'effet Nernst ambipolaire étant nécessairement positif, le signal observé dans la phase métallique de NbSe_2 ne pouvait être attribué à la présence de plusieurs types de porteurs.

Cependant, l'universalité de cette origine reste très contestable. Par exemple, aucune trace d'onde de densité de charge n'a été détectée dans CeCoIn_5 . En ce qui concerne URu_2Si_2 , le signe de l'effet Nernst n'est pas celui attendu par les calculs de Dora *et al.*, et une contribution supplémentaire doit être envisagée, même si le scénario d'une onde de densité de charge a été mis en avant pour caractériser le paramètre d'ordre caché. Enfin, Oganessian *et al.* ont montré que ce scénario est, tant du point de vue du signe que du point de vue de l'amplitude, inapte à expliquer l'émergence de l'effet Nersnt dans la phase

métallique.

12.4 Connection avec le problème des cuprates

Il est bien évident que les résultats d'effet Nernst que nous avons trouvés sont loin de trancher le débat sur l'origine de l'effet Nernst dans les cuprates, et d'expliquer pourquoi une telle différence existe entre les dopés aux électrons et les dopés aux trous.

D'abord et avant tout, nos mesures montrent qu'un effet Nernst *de signe quelconque, possédant une amplitude typique de l'ordre du $\mu V/K$ et fortement non linéaire en champ magnétique* peut apparaître dans des conditions où toute contribution de fluctuations supraconductrice est exclue. Ces résultats mettent donc en évidence d'autres sources potentielles d'effet Nernst. Cependant, le caractère limité de cette étude rend l'identification de cette ou ces sources difficile, et nécessite d'autres mesures dans d'autres composés pour pouvoir compléter la vision de l'effet Nernst que ces mesures apportent. En particulier la question de savoir si l'effet Nernst mesuré dans la phase normale des cuprates dopés aux trous possède la même origine que celui que nous avons découvert dans les fermions lourds est, dans l'état actuel de nos connaissances, impossible à trancher.

Parmi les pistes qui pourraient fonder un scénario commun entre les deux classes de composés se trouve la criticalité quantique. En effet, dans tous les composés que nous avons mesurés, N émergeait dans une zone proche d'un point critique, de nature certes différente, en particulier pour URu_2Si_2 . Or certains scénarios concernant l'émergence de la supraconductivité dans les cuprates s'appuient sur l'existence d'un point critique quantique situé sous le dôme supraconducteur. Le diagramme de phase des cuprates serait alors exactement le même que celui des composés $CeMIn_5$, et les exposants observés dans les propriétés de transport (résistivité linéaire, cotangente de l'angle de Hall en T^2) seraient la manifestation de la présence de ce point critique quantique.

Une autre piste, certes plus ténue, pourrait être celle proposée par K. Maki, s'appuyant sur le fait que la phase pseudogap pourrait être une phase caractérisée par une onde de densité non conventionnelle. Dans ce cas, les effets Nernst observés dans les cuprates, dans $NbSe_2$ et peut-être dans URu_2Si_2 pourraient avoir la même origine. L'universalité de cette source est cependant mise à mal par $CeCoIn_5$ et $CeRu_2Si_2$ d'une part, et par le signe de l'effet Nernst dans URu_2Si_2 , comme nous l'avons déjà discuté.

Finalement, l'idée de considérer les fluctuations antiferromagnétiques comme source d'un effet Nernst d'amplitude élevée pourrait également constituer un lien entre les cuprates et les fermions lourds. Dans ce cas, ce sont les fluctuations antiferromagnétiques critiques qui seraient responsables de l'effet Nernst dans $CeCoIn_5$ et dans la partie bas champ de $CeRu_2Si_2$. En ce qui concerne URu_2Si_2 , l'idée d'un moment antiferromagnétique fluctuant rapidement dans le temps pourrait également constituer, même si un traitement théorique s'impose, l'origine de l'effet Nernst. Enfin, dans les cuprates, ces fluctuations seraient originaires de l'isolant de Mott.

Cela étant dit, la physique des fermions lourds et celle des cuprates procèdent d'origines relativement différentes, et nos mesures montrent que l'émergence d'un effet Nernst important semble intimement liée à la présence des électrons f . Il est donc possible que

les effets Nernst dans les cuprates et dans les fermions lourds ne soient pas connectés et procèdent d'origines différentes. En particulier, il semble que la présence d'une surface de Fermi complexe soit une condition pour l'observation d'un effet Nernst de grande amplitude, condition qui n'est pas *a priori* remplie dans les cuprates. Si finalement la corrélation entre le signe de l'effet Nernst et le degré de localisation des électrons f se confirme, il est clair que la source de l'effet Nernst dans les cuprates risque d'être beaucoup moins directement reliée à celle existant dans les fermions lourds.

Signalons pour terminer que des mesures effectuées dans LSCO fortement surdopé et non supraconducteur montrent l'émergence d'un effet Nernst *négatif* et de relativement faible amplitude (quelques dizaines de nanovolts par kelvin tesla). Ceci indique que la présence d'un effet Nernst est reliée à la présence à basse température de la supraconductivité [203].

12.5 Perspectives

Comme nous l'avons dit plus haut, ces résultats ne constituent qu'un début dans la construction d'une image cohérente et — peut-être — universelle, des sources d'effet Nernst. Un certain nombre de pistes sur les différentes origines de thermoélectricité transverse de forte amplitude ont été abordées, mais d'autres mesures sur d'autres composés doivent être effectuées pour confirmer ou infirmer les divers scénarios.

En particulier, les résultats sur CeRu_2Si_2 , archétype du métamagnétisme, peuvent être extrêmement instructifs s'ils peuvent être généralisés. En ce sens, des mesures dans $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$, autre composé présentant une transition métamagnétique à des champs accessibles, pourrait venir confirmer le lien étroit entre l'émergence d'un effet Nernst positif et la présence de magnétisme itinérant. Par ailleurs, comme la physique des ruthénates de strontium est fondée sur les électrons d et non sur les électrons f , ces mesures pourraient être une première indication de l'importance de ces derniers dans l'émergence d'un effet Nernst de forte amplitude.

En ce qui concerne la proximité d'un point critique quantique en pression, il serait très intéressant, comme cela a été fait pour l'effet Hall, de comparer l'effet Nernst dans La-115 et CeCoIn_5 . En effet, cette comparaison permettrait de trouver quelle est la part des électrons f et des fluctuations quantiques dans l'émergence d'un tel signal.

Bien entendu, la pression étant un outil extrêmement puissant pour modifier de façon contrôlée les états fondamentaux des fermions lourds, la réalisation de mesures d'effet Nernst sous pression génèrerait probablement des résultats extrêmement intéressants et enrichissants. En particulier, balayer le point critique quantique en effet Nernst dans par exemple CeRhIn_5 pourrait donner des clés sur la relation intime entre criticalité quantique et effet Nernst. D'un autre point de vue, l'évolution de la fraction volumique occupée par la phase antiferromagnétique dans URu_2Si_2 en pression permettrait de déterminer si l'effet Nernst est effectivement dû à la présence de l'inhomogénéité de phase (*a priori* il devrait si ce scénario est juste s'annuler lorsque $v_{AF} = 1$).

Quoi qu'il en soit, les résultats que nous avons trouvés restent encore largement inexploités, mais ouvrent des perspectives tant dans l'étude des fermions lourds que dans la

compréhension de l'effet Nernst en tant que sonde expérimentale. On ne peut alors que souhaiter que ces résultats ne soient que le début d'une longue investigation.

Conclusion

Nous avons entrepris de mesurer l'effet Nernst dans un certain nombre de systèmes métalliques, et ceci afin de compléter notre vision des diverses sources potentielles d'effet Nernst. En effet, l'interprétation de l'émergence d'un effet Nernst très important dans la phase normale des cuprates haute- T_c revêt un enjeu important, et la compréhension de l'effet Nernst comme sonde expérimentale pourrait mieux nous permettre de répondre aux questions soulevées par cette émergence : quelle est l'origine de ce signal dans les cuprates ? Est-il dû à des fluctuations supraconductrices, à des excitations de type vortex, à un couplage entre fluctuations antiferromagnétiques et fluctuations supraconductrices, à une onde de densité de charge ? Et pourquoi le comportement des dopés aux trous est-il si différent des dopés aux électrons ?

Les résultats que nous avons trouvés, finalement, se rangent en deux parties qui suivent (presque) la chronologie des mesures. Les premières données, sur NbSe₂ et sur le film d'or, ont plus valeur de confirmation ou de redécouverte, même si dans le cas du premier ces résultats ont apporté une pierre à la compréhension de la transition CDW. En ce qui concerne l'effet Nernst proprement dit, les mesures d'effet Nernst *isotherme* ont confirmé qu'il était nul — ou tout du moins très faible — dans un métal simple, et celles réalisées dans NbSe₂ ont permis de consolider deux aspects "connus" de l'effet Nernst : le premier est l'apparition d'un signal vortex positif dans la phase mixte, et le second est l'effet Nernst ambipolaire, rappelant qu'un métal possédant deux types de porteurs peut engendrer un effet Nernst fini et d'une certaine importance dans sa phase métallique.

Les résultats qui suivent, et qui concernent trois fermions lourds, CeCoIn₅, URu₂Si₂ et CeRu₂Si₂, sont par opposition très surprenants et encore largement inexpliqués. L'émergence dans ces trois composés d'un effet Nernst de grande amplitude (c'est-à-dire supérieure au $\mu\text{V}/\text{KT}$) et sous-linéaire en champ magnétique, constitue le résultat central de ces mesures. Nous avons réussi à montrer que dans les trois cas, ce signal transverse était bien dû à l'effet Nernst, et non à l'effet Righi-Leduc, c'est-à-dire à l'effet cumulé de κ_{xy} et du pouvoir thermoélectrique, bien que dans CeRu₂Si₂ on puisse soupçonner, surtout à basse température, une contamination relativement importante de nos données.

Ces résultats confirment qu'un coefficient Nernst de quelques $\mu\text{V}/\text{KT}$ est observable dans des phases métalliques où la présence de fluctuations supraconductrices est exclue. Par ailleurs, dans les deux systèmes étudiés qui étaient supraconducteurs, à savoir CeCoIn₅ et URu₂Si₂, nous avons réussi à extraire un signal vortex enterré sous le signal de la phase normale, ce qui est en frappant contraste avec le comportement des cuprates.

Pour tous les composés que nous avons mesurés, nous avons constaté que l'émergence d'un effet Nernst géant était intimement corrélée à l'existence d'un effet Hall également

important, ainsi que, dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , un pouvoir thermoélectrique faible et fortement dépendant du champ magnétique. Pour chacun des composés, nous avons discuté des informations que nous apportaient ces toutes nouvelles mesures thermoélectriques. Dans le cas de CeCoIn_5 , nous avons discuté de l'interprétation de l'effet Hall en termes de deux types de porteurs et montré que nos mesures d'effet Nernst étaient relativement incompatibles avec cette explication et qu'une autre origine devait être trouvée. Pour URu_2Si_2 , les mesures de pouvoir thermoélectrique combinées aux mesures d'effet Hall nous ont montré que ce fermion lourd relativement 'léger' était en fait un métal avec peu de porteurs mais très entropiques. Enfin, les mesures dans CeRu_2Si_2 nous ont montré que l'effet Nernst était particulièrement affecté par le métamagnétisme.

Nous avons donc cherché à savoir dans quelle mesure l'apparition d'un grand effet Nernst était connectée à la physique des fermions lourds. Il s'avère que la connection entre un grand effet Hall et une faible énergie de Fermi peut donner une explication simple pour l'apparition de ce signal, mais que le domaine de température et de champ où celui-ci apparaît impose de trouver un ingrédient supplémentaire. En particulier, dans CeCoIn_5 et URu_2Si_2 , l'effet Nernst peut être faible voire nul (dans la phase $T > T_N$ de URu_2Si_2 ou pour $T > T^*$ dans CeCoIn_5) alors que le caractère fermion lourd des matériaux est bel et bien présent. Nous avons cependant observé, malgré ces réserves sur une connection directe entre la renormalisation de la masse et l'émergence de N , que, dans les trois systèmes étudiés, il y avait une corrélation entre le signe de l'effet Nernst et le degré de localisation des électrons f , et en particulier dans CeRu_2Si_2 où le changement des électrons $4f$ de partiellement délocalisés à localisés induit un changement de signe dans l'effet Nernst. Nous avons également discuté d'un certain nombre d'origines possibles moins conventionnelles.

Cependant, cette étude reste très limitée par rapport au paysage des fermions lourds, et il est impossible de tirer des conclusions universelles de ces trois résultats. En ce sens ce travail constitue beaucoup plus un point de départ que la réponse aux questions qui l'ont motivé. Que ce soit dans les fermions lourds ou dans les cuprates, les questions sur l'origine de l'effet Nernst restent largement ouvertes, et attendent d'autres études sur d'autres systèmes.

Les résultats de conductivité thermique dans Bi-2201 sont publiés [204], ainsi que ceux de thermoélectricité dans NbSe_2 [205] et dans CeCoIn_5 [206]. Ceux sur URu_2Si_2 sont en cours de soumission [207] et ceux sur CeRu_2Si_2 sont en cours d'écriture [208].

Bibliographie

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Müller, *Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system*, **Z. Phys. B : Condens. Matter** **64**, 189 (1986)
- [2] H. Shaked *et al.*, *Crystal Structures of the High- T_c Superconducting Copper-Oxides*, **Physica C**, Elsevier Science B.V. (1994)
- [3] V. J. Emery and S. A. Kivelson, *Superconductivity in bad metals*, **Phys. Rev. Lett.** **74**, 3253 (1995)
- [4] Presland *et al.*, *General trends in oxygen stoichiometry effects on T_c in Bi and Tl superconductors*, **Physica C** **176**, 95 (1991)
- [5] S. D. Obertelli, J. R. Cooper and J. L. Tallon, *Systematics in the Thermoelectric Power of high- T_c Oxides*, **Phys. Rev. B** **46**, 14928 (1992)
- [6] Y. Ando *et al.*, *Carrier concentrations in $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-z}\text{La}_z\text{CuO}_{6+\delta}$ single crystals and their relation to the Hall coefficient and thermopower*, **Phys. Rev. B** **61**, R14956 (2000)
- [7] L. Gao *et al.*, *Superconductivity up to 164 K in $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{m-1}\text{Cu}_m\text{O}_{2m+2+\delta}$ ($m=1, 2, \text{ and } 3$) under quasihydrostatic pressures*, **Phys. Rev. B** **50**, 4260 (1994)
- [8] Schilling *et al.*, *Superconductivity above 130 K in the Hg-Ba-Ca-Cu-O system*, **Nature** **363**, 56 (1993)
- [9] M. Thinkam, *Introduction to Superconductivity*, **McGraw-Hill, Inc.**, 2nd edition (1997)
- [10] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, *Pairing symmetry in cuprate superconductors*, **Rev. Mod. Phys.** **72**, 4 (2000)
- [11] A. Carrington *et al.*, *Hall effect and resistivity of oxygen-deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films*, **Phys. Rev. B** **48**, 13051 (1993)
- [12] A. W. Tyler *et al.*, *High-field study of normal-state magnetotransport in $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$* , **Phys. Rev. B** **57**, R728 (1998)
- [13] M. Gurvitch and A. Fiory, *Resistivity of $\text{La}_{1.825}\text{Sr}_{0.175}\text{CuO}_4$ and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ to 1100 K : Absence of saturation and its implications*, **Phys. Rev. Lett.** **59**, 1337 (1987)
- [14] N. F. Mott, , **Philos. Mag.** **16**, 1015 (1972)
- [15] M. Gurvitch, *Ioffe-Regel criterion and resistivity of metals*, **Phys. Rev. B** **24**, 7404 (1981)

- [16] S. Ono *et al.*, *Metal-to-Insulator Crossover in the Low-Temperature Normal State of $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-2x}\text{La}_x\text{CuO}_6 + \delta$* , **Phys. Rev. Lett.** **85**, 638 (2000)
- [17] G.S. Boebinger *et al.*, *Insulator-to-Metal Crossover in the Normal State of $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Near Optimum Doping*, **Phys. Rev. Lett.** **77**, 5417 (1996)
- [18] B. Wuyts, V. V. Moshchalkov, and Y. Bruynseraede, *Resistivity and Hall effect of metallic oxygen-deficient $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ films in the normal state*, **Phys. Rev. B** **53**, 9418 (1996)
- [19] P. Fournier *et al.*, *Insulator-Metal Crossover near Optimal Doping in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$: Anomalous Normal-State Low Temperature Resistivity*, **Phys. Rev. Lett.** **81**, 4720 (1998)
- [20] Y. Ando *et al.*, *Evolution of the Hall Coefficient and the Peculiar Electronic Structure of the Cuprate Superconductors*, **Phys. Rev. Lett.** **92**, 197001 (2004)
- [21] Y. Ando and T. Murayama, *Nonuniversal power law of the Hall scattering rate in a single-layer cuprate $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-2x}\text{La}_x\text{CuO}_6$* , **Phys. Rev. B** **60**, R6991 (1999)
- [22] A. Damascelli, Z. Hussain and Z.-X. Shen, *Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors*, **Rev. Mod. Phys.** **75**, 473 (2003)
- [23] H. Alloul, T. Ohno and P. Mendels, *^{89}Y NMR evidence for a fermi-liquid behavior in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$* , **Phys. Rev. Lett.** **63**, 1700 (1989)
- [24] W. W. Warren, *Cu spin dynamics and superconducting precursor effects in planes above T_c in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$* , **Phys. Rev. Lett.** **62**, 1193 (1989)
- [25] R. E. Walstedt, R. F. Bell and D. B. Mitzi, *Nuclear relaxation behavior of the superconducting cuprates : $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$* , **Phys. Rev. B** **44**, 7760 (1991)
- [26] H. Takagi *et al.*, *Systematic evolution of temperature-dependent resistivity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$* , **Phys. Rev. Lett.** **69**, 2975 (1992)
- [27] B. Batlogg *et al.*, *Normal state phase diagram of $(\text{La,Sr})_2\text{CuO}_4$ from charge and spin dynamics*, **Physica C** **234-240**, 130 (1994)
- [28] T. Ito, K. Takenaka and S. Uchida, *Systematic deviation from T -linear behavior in the in-plane resistivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$: Evidence for dominant spin scattering*, **Phys. Rev. Lett.** **70**, 3995 (1993)
- [29] Ong *et al.*, *Vorticity and the Nernst Effect in Cuprates Superconductors*, **Cond. Mat.** **0312213**, v1 (2003)
- [30] P. W. Anderson, , **Science** **237**, 1197 (1985)
- [31] P. W. Anderson *et al.*, *The Physics Behind High-Temperature Superconducting Cuprates : The "Plain Vanilla" Version Of RVB*, **Cond. Mat.** **0311467**, v1 (2003)
- [32] H. Kontani, *Nernst Coefficient and Magnetoresistance in High- T_c Superconductors : The Role of Superconducting Fluctuations*, **Phys. Rev. Lett.** **89**, 237003 (2002)

-
- [33] I. Ussishkin, S. L. Sondhi and D. A. Huse, *Gaussian Superconducting Fluctuations, Thermal Transport, and the Nernst Effect*, **Phys. Rev. Lett.** **89**, 287001 (2002)
- [34] S. Sachdev, *Colloquium : Order and quantum phase transitions in the cuprates superconductors*, **Rev. Mod. Phys.** **75**, 913 (2003)
- [35] K. Andres, J. E. Grabner and H. R. Ott, *4f-Virtual-Bound-State Formation in CeAl₃ at Low Temperatures*, **Phys. Rev. Lett.** **35**, 1779 (1975)
- [36] F. Steglich *et al.*, *Superconductivity in the Presence of Strong Pauli Paramagnetism : CeCu₂Si₂*, **Phys. Rev. Lett.** **43**, 1892 (1979)
- [37] Plusieurs revues récentes sont disponibles. En ce qui concerne la superconductivité non conventionnelle dans les fermions lourds, voir P. Thalmeier and G. Zwicknagl, *Unconventional Superconductivity and Magnetism in Lanthanide and Actinide Intermetallic compounds*, **Cond. Mat.** **0312540**, v1 (2003). Sur les déviations du liquide de Fermi et la criticalité quantique on peut voir G. R. Stewart, *Non-Fermi-liquid behavior in d- and f-electrons metals*, **Rev. Mod. Phys.** **73**, 797 (2001). Une revue expérimentale est donnée par J. Flouquet, *On the heavy fermion road*, (2004) *to be published*. Des ouvrages plus généraux sont également donnés en référence dans cette dernière revue.
- [38] L. C. Gupta *et al.*, *Magnetic behavior of the Kondo-lattice system CeRu₂Si₂*, **Phys. Rev. B** **28**, 3676 (1983)
- [39] F. R. de Boer *et al.*, *CeCe₂Ge₂ : magnetic order in a Kondo lattice*, **J. Magn. Magn. Mat.** **63 & 64**, 91 (1987)
- [40] C. Godart, L. C. Gupta and M. F. Ravet-Krill, *Investigations of the magnetic properties of CeRh₂Si₂ using lattice parameter, LIII edge and extended X-ray absorption fine structure measurements*, **J. Less-common Met.** **94**, 187 (1983)
- [41] B.H. Grier *et al.*, *Magnetic ordering in CeM₂Si₂ (M=Ag,Au,Pd,Rh) compounds as studied by neutron diffraction*, **Phys. Rev. B** **29**, 2664 (1984)
- [42] D. Rossi, R. Marazza and R. Ferro, *Ternary RME₂X₂ alloys of the rare earths with the precious metals and silicon (or germanium)*, **J. Less-common Met.** **66**, P17 (1979)
- [43] D. Jaccard, K. Behnia and J. Sierro, *Pressure induced heavy fermion superconductivity of CeCu₂Ge₂*, **Phys. Lett. A** **163**, 475 (1992)
- [44] R. Movshovich *et al.*, *Response of CeRh₂Si₂ to pressure*, **Physica B** **223 & 224**, 126 (1996)
- [45] N. D. Mathur *et al.*, *Magnetically mediated superconductivity in heavy fermion compounds*, **Nature** **394**, 39 (1998)
- [46] S. Doniach, *The Kondo lattice and weak antiferromagnetism*, **Physica B** **91**, 231 (1977)
- [47] G. Zwicknagl, A. Yaresko and A. Fulde, *Microscopic description of origin of heavy quasiparticles in UPt₃*, **Phys. Rev. B** **65**, 81103(R) (2002)

- [48] G. Zwicknagl, A. Yaresko and A. Fulde, *Fermi surface and heavy masses for UPd_2Al_3* , **Phys. Rev. B** **68**, 52508 (2003)
- [49] D. Jaccard, K. Behnia and J. Sierro, *Pressure induced heavy fermion superconductivity of $CeCu_2Ge_2$* , **Phys. Lett. A** **163**, 475 (1992)
- [50] S. Raymon and D. Jaccard, *Electronic properties of $CePd_2Si_2$ under pressure*, **Phys. Rev. B** **61**, 8679 (2000)
- [51] D. Braithwaite *et al.*, *Superconductivity, upper critical field and normal state resistivity in $CeNi_2Ge_2$ under pressure*, **J. Phys. Cond. Mat.** **12**, 1339 (2000)
- [52] P. Gegenwart *et al.*, *Non-Fermi-Liquid Effects at Ambient Pressure in a Stoichiometric Heavy-Fermion Compound with Very Low Disorder : $CeNi_2Ge_2$* , **Phys. Rev. Lett.** **82**, 1293 (1999)
- [53] R. Movshovich *et al.*, *Superconductivity in heavy-fermion $CeRh_2Si_2$* , **Phys. Rev. B** **53**, 8241 (1996)
- [54] G. Bruls *et al.*, *Unusual B-T phase diagram of the heavy-fermion superconductor $CeCu_2Si_2$* , **Phys. Rev. Lett.** **72**, 1754 (1994)
- [55] G. R. Stewart *et al.*, *Possibility of Coexistence of Bulk Superconductivity and Spin Fluctuations in UPt_3* , **Phys. Rev. Lett.** **52**, 679 (1984)
- [56] P. Brison *et al.*, *Very low temperature properties of heavy fermion materials*, **Physica B** **199-200**, 70 (1994)
- [57] R. Joynt and L. Taillefer, *The superconducting phases of UPt_3* , **Rev. Mod. Phys.** **74**, 237 (2002)
- [58] S. S. Saxena *et al.*, *Superconductivity on the border of itinerant-electron ferromagnetism in UGe_2* , **Nature** **406**, 587 (2000)
- [59] P. C. Canfield, S. L. Bud'ko and B. K. Cho, *Possible co-existence of superconductivity and weak ferromagnetism in $ErNi_2B_2C$* , **Physica C** **262**, 249 (1996)
- [60] D. Aoki *et al.*, *Coexistence of superconductivity and ferromagnetism in $URhGe$* , **Nature** **413**, 613 (2001)
- [61] J. L. Sarrao *et al.*, *Plutonium-based superconductivity with a transition temperature above 18K*, **Nature** **420**, 297 (2002)
- [62] J. Custers *et al.*, *The break-up of heavy electrons at a quantum critical point*, **Nature** **424**, 524 (2003)
- [63] J. P. Thompson *et al.*, *Magnetism and unconventional superconductivity in $Ce_nM_mIn_{3n+2m}$ heavy-fermions crystals*, **Physica B** **329-333**, 446 (2003)
- [64] J. A. Hertz, *Quantum critical phenomena*, **Phys. Rev. B** **14**, 1165 (1977)
- [65] A. J. Millis, *Effect of a nonzero temperature on quantum critical points in itinerant fermion systems*, **Phys. Rev. B** **48**, 7183 (1993)
- [66] P. Coleman *et al.*, *How do Fermi liquids get heavy and die?*, **J. Phys. Cond. Mat.** **13**, R723 (2001)

-
- [67] L. Taillefer *et al.*, *Universal heat conduction in $YBa_2Cu_3O_{6.9}$* , **Phys. Rev. Lett.** **79**, 483 (1997)
- [68] P. A. Lee, *Localized states in a d-wave superconductor*, **Phys. Rev. Lett.** **71**, 1887 (1993)
- [69] M. J. Graf *et al.*, *Electronic thermal conductivity and the Wiedemann-Franz law for unconventional superconductors*, **Phys. Rev. B** **53**, 15147 (1996)
- [70] Ashcroft and Mermin, *Solid State Physics*, **International Thomson Publishing**, First edition (1976)
- [71] Z.-X. Shen *et al.*, *Anomalously large gap anisotropy in the a – b plane of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* , **Phys. Rev. Lett.** **70**, 1553 (1993)
- [72] J. Mesot *et al.*, *Superconducting Gap Anisotropy and Quasiparticle Interactions : A Doping Dependent Photoemission Study*, **Phys. Rev. Lett.** **83**, 840 (1999)
- [73] A. C. Durst and P. A. Lee, *Impurity-induced quasiparticle transport and universal-limit Wiedemann-Franz violation in d-wave superconductors*, **Phys. Rev. B** **62**, 1270 (2000)
- [74] M. Sutherland *et al.*, *Thermal conductivity across the phase diagram of cuprates : Low-energy quasiparticles and doping dependence of the superconducting gap*, **Phys. Rev. B** **67**, 174520 (2003)
- [75] M. Chiao *et al.*, *Quasiparticle Transport in the Vortex State of $YBa_2Cu_3O_{6.9}$* , **Phys. Rev. Lett.** **82**, 2943 (1999)
- [76] M. Chiao *et al.*, *Low-energy quasiparticles in cuprate superconductors : A quantitative analysis*, **Phys. Rev. B** **62**, 3554 (2000)
- [77] S. Nakamae *et al.*, *Effect of controlled disorder on quasiparticle thermal transport in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$* , **Phys. Rev. B** **63**, 184509 (2001)
- [78] J. Takeya *et al.*, *Low-Temperature Electronic Heat Transport in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ Single Crystals : Unusual Low-Energy Physics in the Normal and Superconducting States*, **Phys. Rev. Lett.** **88**, 77001 (2002)
- [79] S. Nakamae *et al.*, *Electronic ground state of heavily overdoped nonsuperconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$* , **Phys. Rev. B** **68**, 100502 (2003)
- [80] C. Proust *et al.*, *Heat Transport in a Strongly Overdoped Cuprate : Fermi Liquid and a Pure d-wave BCS Superconductor*, **Phys. Rev. Lett.** **89**, 147003 (2002)
- [81] Hill *et al.*, *Breakdown of Fermi-liquid theory in a copper-oxide superconductor*, **Nature** **414**, 711 (2001)
- [82] N. E. Hussey *et al.*, *Absence of Residual Quasiparticle Conductivity in the Underdoped Cuprate $YBa_2Cu_4O_8$* , **Phys. Rev. Lett.** **85**, 4140 (2000)
- [83] C. L. Kane and M. P. A. Fisher, *Thermal Transport in a Luttinger Liquid*, **Phys. Rev. Lett.** **76**, 3192 (1996)

- [84] P. W. Anderson, *The resonating valence bond state in La_2CuO_4 and superconductivity*, **Science** **235**, 1196 (1987)
- [85] T. Senthil and M. P. A. Fisher, *Z_2 gauge theory of fractionalization in strongly correlated systems*, **Phys. Rev. B** **62**, 7850 (2000)
- [86] A. Houghton, S. Lee and J. B. Marston, *Violation of the Wiedemann-Franz law in a large- N solution of the $t - J$ model*, **Phys. Rev. B** **65**, 220503 (2002)
- [87] G.-Z. Liu and G. Cheng, *Chiral symmetry breaking and violation of the Wiedemann-Franz law in underdoped cuprates*, **Phys. Rev. B** **66**, 100505 (2002)
- [88] W. Kim and J.P. Carbotte, *Transport properties in the d -density wave state : Wiedemann-Franz law*, **Phys. Rev. B** **66**, 33104 (2002)
- [89] P. J. E. M. van der Linden, K. Behnia, *Measuring thermal conductivity in extreme conditions : Sub-Kelvin temperatures and high ($27 T$) magnetic fields*, **Rev. Sci. Instrum.** **75**, 273 (2004)
- [90] J. P. Kauppinen *et al.*, *Coulomb blockade thermometer : tests and instrumentation*, **Rev. Sci. Instrum.** **69**, 4166 (1998)
- [91] J. P. Pekola *et al.*, *Thermometry by Arrays of Tunnel Junctions*, **Phys. Rev. Lett.** **73**, 2903 (1994)
- [92] Sh. Farhangfar *et al.*, *One Dimensional Arrays and Solitary Tunnel Junction in the Weak Coulomb Blockade Regime : CBT Thermometry*, **J. Low. Temp. Phys.** **108**, 191 (1997)
- [93] S. I. Vedenev *et al.*, *Temperature dépendance of the upper critical field of $Bi_2Sr_2CuO_x$ single crystals*, **Phys. Rev. B** **60**, 12467 (1999)
- [94] S. Ono *et al.*, *Metal-to-Insulator Crossover in the Low-Temperature Normal State of $Bi_2Sr_{2-x}La_xCuO_{6+\delta}$* , **Phys. Rev. Lett.** **85**, 638 (2000)
- [95] X. F. Sun *et al.*, *Magnetic-Field-Induced Localization of Quasiparticles in Underdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$* , **Phys. Rev. Lett.** **90**, 117004 (2003)
- [96] D. G. Hawthorn *et al.*, *Field-Induced Thermal Metal-to-Insulator Transition in Underdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_{4+\delta}$* , **Phys. Rev. Lett.** **90**, 197004 (2003)
- [97] X. F. Sun, K. Segawa and Y. Ando, *Metal-to-Insulator Crossover in $YBa_2Cu_3O_y$ Probed by Low-Temperature Quasiparticle Heat Transport*, **Cond. Mat.** **0403683**, v1 (2004)
- [98] H. Aubin *et al.*, *Evidence for Field-Induced Excitations in Low-Temperature Thermal Conductivity of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$* , **Phys. Rev. Lett.** **82**, 624 (1999)
- [99] S. I. Vedenev *et al.*, *Tunneling in Single-Layer $Bi_2Sr_2CuO_{6+\delta}$ Single Crystals in High Magnetic Field*, **J. Exp. Theor. Phys.** **92**, 851 (2001)
- [100] M. Kugler *et al.*, *Scanning Tunneling Spectroscopy of $Bi_2Sr_2CuO_{6+\delta}$: New Evidence for the Common Origin of the Pseudogap and Superconductivity*, **Phys. Rev. Lett.** **86**, 4911 (2001)

-
- [101] J. M. Harris *et al.*, *Measurement of Anisotropic Energy Gap in Single Plane $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$* , **Phys. Rev. Lett.** **79**, 143 (1997)
- [102] G. S. Boebinger, *Insulator-to-Metal Crossover in the Normal State of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Near Optimum Doping*, **Phys. Rev. Lett.** **77**, 5417 (1996)
- [103] J. P. Paglione *et al.*, *() to be published*
- [104] L. Taillefer, *private communication*
- [105] C. Proust, *private communication*
- [106] R. Raimondi *et al.*, *Electronic thermal conductivity of disordered metals*, **Cond. Mat.** **0402245**, v1 (2004)
- [107] D. R. Niven and R. A. Smith, *Electron-electron interaction corrections to the thermal conductivity in disordered conductors*, **Cond. Mat.** **0301451**, v2 (2004)
- [108] Proust *et al.*, *(2004) to be published*
- [109] A. v. Ettingshausen and W. Nernst, *Über das Auftreten electromotorischer Kräfte in Metallplatten, welche von einem Wärmestrome durchflossen werden und sich im magnetischen Felde befinden*. **Wied. Ann.**, **29** 343(1886).
- [110] E. H. Sondheimer, *The theory of the galvanomagnetic and thermomagnetic effects in metals*, **Proc. R. Soc. London, Ser. A** **193** 484(1948)
- [111] Y. Wang *et al.*, *Onset of the vortexlike Nernst signal above T_c in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ and $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{CuO}_6$* , **Phys. Rev. B** **64**, 224519 (2001)
- [112] F. J. Blatt, *Theory of Mobility of Electrons in Solids*, **Solid State Phys.** **4**, 199 (1957)
- [113] R. T. Delves, *Thermomagnetic effects in semiconductors and semimetals*, **Rep. Prog. Phys.** **28**, 249 (1965)
- [114] B. D. Josephson, *Potential differences in the mixed state of type II superconductors*, **Phys. Lett.** **16**, 242 (1965)
- [115] P. R. Solomon and F. A. Otter, *Thermomagnetic effects in superconductors*, **Phys. Rev.** **164**, 608 (1967)
- [116] R. P. Huebner and A. Seher, *Nernst Effect and Flux Flow in Superconductors. I. Niobium*, **Phys. Rev.** **181**, 701 (1969)
- [117] R. P. Huebner and A. Seher, *Nernst Effect and Flux Flow in Superconductors. II. Lead Films*, **Phys. Rev.** **181**, 710 (1969)
- [118] J. Lowell *et al.*, *Transport Properties of Dirty Type-II Superconductors in High Magnetic Fields*, **Phys. Rev.** **183**, 497 (1969)
- [119] H.-C. Ri *et al.*, *Nernst, Seebeck and Hall effects in the mixed state of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ thin films : a comparative study*, **Phys. Rev. B** **50**, 3312 (1994)
- [120] C. Capan *et al.*, *Entropy of Vortex Cores Near the Superconductor-Insulator transition in an Underdoped Cuprate*, **Phys. Rev. Lett.** **88**, 56601 (2002)

- [121] S. Tan and K. Levin, *Nernst Effect and Anomalous Transport in Cuprates : A Preformed-Pair Alternative to the Vortex Scenario*, **Cond. Mat.** **03022048**, v3 (2004)
- [122] N. P. Ong, *Geometric interpretation of the weak-field Hall conductivity in two-dimensional metals with arbitrary Fermi surface*, **Phys. Rev. B** **43**, 193 (1991)
- [123] V. J. Emery and S. A. Kivelson, *Importance of phase fluctuations in superconductors with small superfluid density*, **Nature** **374**, 434 (1995)
- [124] B. Dóra *et al.*, *Recent Advances in Unconventionnal Density Waves*, (2004) *unpublished*
- [125] K. K. Lee, *Nernst effect and the thermoelectric power in strongly coupled electron-phonon systems*, **Cond. Mat.** **0303074**, v3 (2003)
- [126] A. S. Alexandrov and V. N. Zavaristky, *Nernst effect in poor conductors and cuprates*, **Cond. Mat.** **0401272**, v3 (2004)
- [127] I.M. Lifshitz *et al.*, *The Theory of Galvanomagnetic Effects in Metals*, **Sov. Phys.-JETP****4**, 41 (1957)
- [128] M. Zeh *et al.*, *Flux-flow induced Nernst effect in superconducting YBaCuO films*, **Physica C** **167**, 6 (1990)
- [129] J.A. Clayhold, *Normal-state Nernst effect in a $Tl_2Ba_2CaCu_2O_{8+\delta}$* , **Phys. Rev. B** **50**, 4252 (1994)
- [130] F. Gollnik and M. Naito, *Doping dependence of normal- and superconducting-state transport properties of $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4\pm\delta}$ thin films*, **Phys. Rev. B** **58**, 11734 (1998)
- [131] Z. A. Xu *et al.*, *Vortex-like excitations and the onset of superconducting phase fluctuation in underdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$* , **Nature** **406**, 486 (2000)
- [132] Y. Wang *et al.*, *High Field Phase Diagram of Cuprates Derived from the Nernst Effect*, **Phys. Rev. Lett.** **88**, 257003 (2002)
- [133] N. P. Armitage, *Doping Dependence of an n-Type Cuprate Superconductor Investigated by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy*, **Phys. Rev. Lett.** **88**, 257001 (2002)
- [134] P. Fournier *et al.*, *Thermomagnetic transport properties of $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4+\delta}$ Films : Evidence for two types of charge carriers*, **Phys. Rev. B** **56**, 14149 (1997)
- [135] Balci *et al.*, *Nernst effect in electron-doped $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$* , **Phys. Rev. B** **68**, 54520 (2003)
- [136] V. Oganessian, I. Ussishkin, *Nernst effect, quasiparticles, and d-density waves in cuprates*, **Cond. Mat.** **0312588**, v1 (2003)
- [137] K. D. D. Rathnayaka, *Thermoelectric power of Manganin*, **J. Phys. E : Sci. Instrum.** **18**, 380 (1985)
- [138] Callen, *A Note on the Adiabatic Thermomagnetic Effects*, **Phys. Rev.** **85**, 16 (1952)

-
- [139] J. Dosdalet *et al.*, *The Hall coefficient of gold-silver alloys*, **J. Phys. F : Metal Phys.** **5**, 2109 (1975)
- [140] Frank Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, **Springer-Verlag**, (1992)
- [141] G. K. White, *The Thermal Conductivity of Gold at Low Temperatures*, **Proc. Phys. Soc. A**, **66**, 559 (1953)
- [142] J. W. C. de Vries, *Resistivity of thin Au films as a function of grain diameter and temperature*, **J. Phys. F : Metal Phys.** **17**, 1945 (1987)
- [143] D. E. Moncton, J. D. Axe and F. J. Disalvo, *Study of Superlattice Formation in 2H-NbSe₂ and 2H-TaSe₂ by Neutron Scattering*, **Phys. Rev. Lett.** **34**, 734 (1975)
- [144] Du *et al.*, *X-Ray scattering studies of 2H-NbSe₂, a superconductor and a charge density wave material, under high external magnetic fields*, **J. Phys. Cond. Mat.** **12**, 5361 (2000)
- [145] T. Yokoya *et al.*, *Fermi Surface Sheet-Dependent Superconductivity in 2H-NbSe₂*, **Science** **294**, 2518 (2001)
- [146] W. C. Tonjes *et al.*, *Charge-density-wave mechanism in the 2H-NbSe₂ family : Angle-resolved photoemission studies*, **Phys. Rev. B** **63**, 235101 (2001)
- [147] H. N. S. Lee *et al.*, *The Low-Temperature Transport Properties of NbSe₂*, **J. Appl. Phys.** **40**, 602 (1969)
- [148] D. J. Huntley and R. F. Frindt, *Transport Properties of NbSe₂*, **Can. J. Phys.**, **52**, 861 (1974)
- [149] <http://www.matsubo.ne.jp/image/PMI/KINDS.pdf>
- [150] K. Behnia, D. Jaccard and J. Flouquet, *On the thermoelectricity of correlated electrons in the zero-temperature limit*, **Cond. Mat.** **0405030**, v1 (2004)
- [151] C. Berthier, P. Molinié and D. Jérôme, *Evidence for a connection between charge density waves and the pressure enhancement of superconductivity in 2H-NbSe₂*, **Solid State Comm.** **18**, 1393 (1976)
- [152] J. M. E. Harper, T. H. Geballe and F. J. Salvo, *Heat capacity of 2H-NbSe₂ at the charge density wave transition*, **Phys. Lett.** **54A**, 27 (1975)
- [153] R. Corcoran *et al.*, *Quantum oscillations in the mixed state of the type II superconductor 2H-NbSe₂*, **J. Phys. Cond. Mat.** **6**, 4479 (1994)
- [154] B. Dora *et al.*, *Magnetothermopower and Nernst effect in unconventional charge density waves*, **Phys. Rev. B** **68**, R241102 (2003)
- [155] Y.N. Grin, Y. P. Yarmoluk and E. I. Gladyshevskii, *Sov. Phys. Crystallogr.* **24**, 137 (1979)
- [156] C. Petrovic *et al.*, *Heavy-fermion superconductivity in CeCoIn₅ at 2.3K*, **J. Phys. Cond. Mat.** **13**, L337 (2001)

- [157] A. Bianchi *et al.*, *Possible Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov Superconducting State in CeCoIn₅*, **Phys. Rev. Lett.** **91**, 187004 (2003)
- [158] H. Won *et al.*, *Upper critical field and Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state in CeCoIn₅*, **Phys. Rev. B** **69**, 180504 (2004)
- [159] C. Capan *et al.*, *Anisotropy of Thermal Conductivity and Possible Signature of the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state in CeCoIn₅*, **Cond. Mat.** **0401199**, v1 (2004)
- [160] V. A. Sidorov *et al.*, *Superconductivity and Quantum Criticality in CeCoIn₅*, **Phys. Rev. Lett.** **89**, 157004 (2002)
- [161] M. F. Hundley *et al.*, *Anomalous f-electron Hall Effect in the Heavy-Fermion System CeTIn₅ (T = Co, Ir, or Rh)*, **Cond. Mat.** **0402076**, v1 (2004)
- [162] C. Petrovic *et al.*, *Effects of La substitution on the superconducting state of CeCoIn₅*, **Phys. Rev. B** **66**, 54534 (2002)
- [163] J. Paglione *et al.*, *Field-Induced Quantum Critical Point in CeCoIn₅*, **Phys. Rev. Lett.** **91**, 246405 (2003)
- [164] A. Bianchi *et al.*, *Avoided Antiferromagnetic Order and Quantum Critical Point in CeCoIn₅*, **Phys. Rev. Lett.** **91**, 257001 (2003)
- [165] R. Settai *et al.*, *Quasi-two-dimensional Fermi surfaces and the de Haas-van Alphen oscillation in both the normal and superconducting mixed states of CeCoIn₅*, **J. Phys. Cond. Mat.** **13**, L627 (2001)
- [166] J. S. Kim *et al.*, *Specific heat in high magnetic fields and non-Fermi-liquid behavior in CeMIn₅ (M=Ir, Co)*, **Phys. Rev. B** **64**, 134524 (2001)
- [167] A. Freimuth and M. Zittarz, *Spectral Flow and Vortex Dynamics in a Temperature Gradient*, **Phys. Rev. Lett.** **84**, 4978 (2000)
- [168] J. S. Kim *et al.*, *Specific heat of URu₂Si₂ in fields up to 42T : Clues to the hidden order*, **Phys. Rev. B** **67**, 14404 (2003)
- [169] A. de Visser *et al.*, *Thermal expansion and specific heat of monocrystalline URu₂Si₂*, **Phys. Rev. B** **34**, 8168 (1986)
- [170] J. Schoenes *et al.*, *Hall-effect and resistivity study of the heavy-fermion system URu₂Si₂*, **Phys. Rev. B** **35**, 5375 (1987)
- [171] C. Broholm *et al.*, *Magnetic excitations in the heavy-fermion superconductor URu₂Si₂*, **Phys. Rev. B** **43**, 12809 (1991)
- [172] S. A. Mentink *et al.*, *Gap formation and magnetic ordering in URu₂Si₂ probed by high-field magnétoresistance*, **Phys. Rev. B** **53**, R6014 (1996)
- [173] P. Santini *et al.*, *Field-Dependant Energy Scales in URu₂Si₂*, **Phys. Rev. Lett.** **85**, 654 (2000)
- [174] F. Bourdarot *et al.*, *Inflection Point in the Magnetic Field Dependence of the Ordered Moment of URu₂Si₂ Observed by Neutron Scattering in Fields up to 17T*, **Phys. Rev. Lett.** **90**, 67203 (2003)

-
- [175] H. Amitsuka and M. Yokoyama, *Inhomogeneous magnetism and hidden order in URu₂Si₂* , **Physica B** **329-333**, 452 (2003)
- [176] B. FÅk *et al.*, *Influence of sample quality on the magnetic properties of URu₂Si₂* , **J. Magn. Magn. Mat.** **154**, 339 (1996)
- [177] H. Amitsuka *et al.*, *Effect of Pressure on Tiny Antiferromagnetic Moment in the Heavy-Electron Compound URu₂Si₂* , **Phys. Rev. Lett.** **83**, 5114 (1999)
- [178] H. Amitsuka *et al.*, *Inhomogeneous magnetism in URu₂Si₂ studied by muon spin relaxation under high pressure*, **Physica B** **326**, 418 (2003)
- [179] K. Matsuda *et al.*, *Spatially Inhomogeneous Development of Antiferromagnetism in URu₂Si₂ : Evidence from ²⁹Si NMR under Pressure*, **Phys. Rev. Lett.** **87**, 87203 (2001)
- [180] N. Shah *et al.*, *Hidden order in URu₂Si₂* , **Phys. Rev. B** **61**, 564 (2000)
- [181] P. Chandra *et al.*, *The case for phase separation in URu₂Si₂* , **J. Phys. Cond. Mat.** **15**, S1965 (2003)
- [182] M. Yokoyama *et al.*, *Competition between hidden order and antiferromagnetism in URu₂Si₂ under uniaxial stress studied by neutron scattering*, **Cond. Mat.** **0311199**, v1 (2003)
- [183] F. Bourdarot *et al.*, *Pressure dependance of magnetism in URu₂Si₂* , **Cond. Mat.** **0312206**, v1 (2003)
- [184] P. Chandra *et al.*, *Hidden orbital order in the heavy fermion metal URu₂Si₂* , **Nature** **417**, 831 (2002)
- [185] C. R. Wiebe *et al.*, *Hidden orbital currents and spin gap in the heavy fermion superconductor URu₂Si₂* , **Cond. Mat.** **0310154**, v1 (2003)
- [186] K.H. Kim *et al.*, *A Hierarchically-Organized Phase Diagram near a Quantum Critical Point in URu₂Si₂* , **Cond. Mat.** **0304208**, v1 (2003)
- [187] N. Harrison, M. Jaime and J. A. Mydosh, *Reentrant Hidden Order at a Metamagnetic Quantum Critical End Point*, **Phys. Rev. Lett.** **90**, 96402 (2003)
- [188] N. Harrison *et al.*, *N. Harrison et al.*, **Physica B Metamagnetism, quantum criticality, hidden order and crystal electric fields in URu₂Si₂** , 346-347 (92)2004
- [189] J. Sakurai *et al.*, *Thermoelectric Power on Single Crystals of URu₂Si₂* , **Solid State Comm.** **97**, 689 (1996)
- [190] G. D. Mahan, *Good Thermoelectrics*, **Solid State Phys.** **51**, 81 (1998)
- [191] A. LeR. Dawson *et al.*, *Electrical transport in URu₂Si₂* , **J. Phys. Cond. Mat.** **1**, 6817 (1989)
- [192] A. Fert and P. M. Levy, *Theory of the Hall effect in heavy-fermion compounds*, **Phys. Rev. B** **86**, 1907 (1987)
- [193] H. P. van der Meulen *et al.*, *Field suppression of the heavy-fermions state in CeRu₂Si₂* , **Phys. Rev. B** **44**, 814 (1991)

- [194] J. Flouquet *et al.*, *The heavy fermion compound CeRu₂Si₂ : Magnetic instability, lattice quasicollapse and metamagnetism*, **Physica B** **215**, 77 (1995)
- [195] J. Flouquet *et al.*, *Itinerant metamagnetism of CeRu₂Si₂ : bringing out the dead. Comparison with the new Sr₃Ru₂O₇ case*, **Physica B** **319**, 251 (2002)
- [196] J.-M. Mignot *et al.*, *Electrical resistivity and magnétoresistance of CeRu₂Si₂ under pressure*, **Phys. Rev. B** **40**, 10917 (1989)
- [197] P. Haen *et al.*, *Metamagnetic-Like Transition in CeRu₂Si₂ ?*, **J. Low. Temp. Phys.** **67**, 391 (1987)
- [198] S. Raymond *et al.*, *Switching of the magnetic interactions from antiferromagnetism to ferromagnetic in the heavy-fermion compound CeRu₂Si₂ under high magnetic field*, **J. Phys. Cond. Mat.** **10**, 2363 (1998)
- [199] H. Aoki *et al.*, *Transition of f Electron Nature from Itinerant to Localizes : Metamagnetic Transition in CeRu₂Si₂ Studied via the de Haas-van Alphen Effect*, **Phys. Rev. Lett.** **71**, 2110 (1993)
- [200] T. Sakakibara *et al.*, *Absence of a first-order metamagnetic transition in CeRu₂Si₂* , **Phys. Rev. B** **51**, 12030 (1995)
- [201] M. Sera *et al.*, *Thermal conductivity of single-crystalline CeRu₂Si₂* , **Phys. Rev. B** **56**, 13689 (1997)
- [202] A. Amato *et al.*, *Transport Properties under Magnetic Fields of the Heavy Fermion System CeRu₂Si₂ and Related Compounds (Ce,La)Ru₂Si₂*, **J. Low. Temp. Phys.** **77**, 195 (1989)
- [203] H. Jin *et al.*, *Thermoelectricity in heavily overdoped LSCO*,(2004) *to be published*
- [204] R. Bel *et al.*, *Test of the Wiedemann-Franz Law in an Optimally Doped Cuprate*, **Phys. Rev. Lett.** **92**, 177003 (2004)
- [205] R. Bel, K. Behnia and H. Berger, *Ambipolar Nernst Effect in NbSe₂*, **Phys. Rev. Lett.** **91**, 66602 (2004)
- [206] R. Bel *et al.*, *Giant Nernst Effet in CeCoIn₅* , **Phys. Rev. Lett.** **92**, 217002 (2004)
- [207] R. Bel *et al.*, *Thermoelectricity of URu₂Si₂ : giant Nernst effect in the hidden-order state*, **Cond. Mat.** **0407147**, v1 (2004)
- [208] H. Jin *et al.*, *Thermoelectricity and metamagnetism in CeRu₂Si₂* ,(2004) *to be published*

Résumé

L'effet Nernst a connu, ces quinze dernières années, un regain d'attention, en particulier en raison de son comportement dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique dopés aux trous. En effet, on observe dans ces composés la persistance tant en température qu'en champ magnétique d'un signal Nernst fini en dehors de la phase supraconductrice, alors que ce dernier n'est censé être non nul, dans le cas de métaux simples, que dans la phase vortex.

Ce résultat a revêtu une certaine importance en ce sens qu'il appuyait expérimentalement, parmi d'autres résultats, un scénario de type paires préformées et excitations de type vortex dans la phase normale des cuprates dopés aux trous.

Cependant, l'interprétation de l'effet Nernst souffre d'un manque de données expérimentales dans d'autres systèmes à électrons fortement corrélés. C'est initialement ce qui a motivé le travail de cette thèse, qui rassemble des résultats obtenus de 2001 à 2004 au Laboratoire de Physique Quantique - ESPCI à Paris, et qui est majoritairement constitué de mesures d'effet Nernst dans une autre classe de composés à électrons fortement corrélés : les fermions lourds.

Plus particulièrement, nous avons mesuré l'effet Nernst à pression nulle dans une fenêtre de température comprise entre 1,5K et 50K et pour des champs magnétiques de 0 à 12T, dans trois composés : CeCoIn_5 , URu_2Si_2 et CeRu_2Si_2 . Ces mesures constituent, à l'heure actuelle, les seules mesures d'effet Nernst effectuées sur des fermions lourds.

Dans les trois cas, nous avons découvert dans la phase métallique l'émergence d'un effet Nernst géant dont l'amplitude dépasse de plusieurs ordres de grandeur la taille du signal attendu dans un métal simple, et qui atteint celle caractéristique des vortex dans la phase mixte des cuprates, à savoir quelques $\mu\text{V}/\text{KT}$.

Plus particulièrement, CeCoIn_5 héberge un effet Nernst *néгатif* très important dans la partie non liquide de Fermi de son diagramme de phase, associée à la présence d'un point critique à $B_c=5\text{T}$. Cependant, l'effet Nernst que nous avons mesuré ne présente aucune anomalie à B_c , mais plutôt dans la limite $B = 0\text{T}$, où le coefficient Nernst atteint $1\mu\text{V}/\text{KT}$.

L'émergence d'un effet Nernst *positif* important dans URu_2Si_2 coïncide avec l'entrée dans la phase *ordre caché*, et encore ici c'est à bas champ que le coefficient Nernst atteint son maximum de $4\mu\text{V}/\text{KT}$, qui constitue le plus grand effet Nernst jamais mesuré dans une phase métallique.

Enfin, c'est le métamagnétisme de CeRu_2Si_2 qui semble particulièrement affecter l'effet Nernst, puisque celui-ci présente, à H_M , un changement de signe particulièrement prononcé et coïncidant avec le maximum de chaleur spécifique.

Par ailleurs, une des caractéristiques générales frappantes de cette émergence est qu'elle coïncide, dans les trois composés, avec la présence d'un angle de Hall également très élevé, et dont, en particulier dans CeCoIn_5 et CeRu_2Si_2 , la structure est assez proche de celle de l'effet Nernst.

La présence de ce signal reste encore aujourd'hui particulièrement intrigante, en particulier en l'absence de mesures systématiques sur d'autres composés aux fermions lourds. Cependant, mais de façon très schématique, nous avons montré que la renormalisation de la masse pouvait être un ingrédient à l'origine de cet effet Nernst géant. De plus, pour chacun des composés des pistes peuvent être avancées pour déterminer l'origine de cet émergence : proximité d'un point critique quantique, fluctuations antiferromagnétiques, ondes de densité... Nous discutons en fin de cette thèse les divers scénarios et proposons des mesures futures afin de confirmer ou d'infirmer ces diverses propositions.

Abstract

During these last fifteen years, Nernst effect has attracted much attention. This was particularly due to its behavior in high T_c superconducting hole doped cuprates. Indeed, it has been reported in these compounds that a finite Nernst effect persists, in magnetic field and in temperature, outside of the superconducting phase, although Nernst effect is supposed to be, in the case of simple metals, nonzero only in the vortex phase.

This result was of importance because it supported experimentally, among other results, a scenario of preformed pairs and vortex-like excitations in the normal phase of the hole doped cuprates.

However, the interpretation of the Nernst effect suffer from a lack of experimental datas in other strongly correlated electrons systems. This has initiated the work of this thesis, which contains results obtained from 2001 to 2004 in the Laboratoire de Physique Quantique - ESPCI in Paris, and which consists mostly in measurements of Nernst effect in another class of strongly correlated electrons compounds : the heavy fermions.

More precisely, we performed measurements of Nernst effect at zero pressure for temperatures lying between 1.5K and 50K and for magnetic fields below 12T, in three different compounds : CeCoIn_5 , URu_2Si_2 and CeRu_2Si_2 . These measurements are, nowadays, the sole results of Nernst effect available on heavy fermions compounds.

In the three cases, we discovered in the metallic phase the emergence of a giant Nernst effect which amplitude (some $\mu\text{V}/\text{KT}$) is by several order of magnitude higher than what is expected in a simple metal, and which reaches the characteristic size of the vortex signal in the mixed phase of cuprates.

More precisely, CeCoIn_5 hosts a very large *negative* Nernst effect in the non Fermi liquid part of its phase diagram associated to the presence of a quantum critical point at $B_c = 5\text{T}$. However, the Nernst effect does not show any anomaly at B_c , but much more in the $B = 0$ limit where the Nernst coefficient reaches $1\mu\text{V}/\text{KT}$.

The emergence of a strong *positive* Nernst effect in URu_2Si_2 is concomitant to the entrance in the so called *hidden order* phase. Here again, the Nernst coefficient reaches its maximum of $4\mu\text{V}/\text{KT}$ at low field, and is the largest Nernst effect ever measured in a metallic phase.

Finally, the Nernst effect seems to be strongly affected by the metamagnetism in CeRu_2Si_2 . Indeed, it presents, at the metamagnetic transition, a change of sign which coincides with the maximum in specific heat.

Very strikingly, in the three compounds, the emergence of a large Nernst effect coincide with the presence of a large Hall effect ; moreover, especially in CeCoIn_5 and CeRu_2Si_2 , the structure of Hall and Nernst effect are quite similar.

The existence of this signal still remains intriguing, particularly in absence of systematic measurements in other heavy fermions compounds. However, but in a very simple way, we showed that the mass renormalisation might be an ingredient at the origin of this giant Nernst effect. Moreover, for each compound, several scenarios can be proposed to explain this emergence : proximity to a quantum critical point, antiferromagnetic fluctu-

ations, density waves... We have discussed at the end of this thesis several scenarios and proposed possible measurements to confirm or infirm this propositions.