N° d'ordre 118 Année 2014-2015



UNIVERSITE ABDELMALEK ESSAADI FACULTE DES SCIENCES et TECHNIQUES TANGER

Centre d'Etudes Doctorales : « Sciences et Techniques de l'Ingénieur » Formation Doctorale : « Sciences et Techniques de l'Ingénieur »

THESE DE DOCTORAT

Présentée

Pour l'obtention du

DOCTORAT EN SCIENCES ET TECHNIQUES DE L'INGENIEUR

Par : ABBASSI ABDELLATIF

Discipline : Génie Physique /Génie des Matériaux Spécialité : Electronique et Télécommunications

Titre de la Thèse : ETUDE DU SUPRACONDUCTEUR MAGNETIQUE $(BaFe_{2-x}Ni_xAs_2)$ EN RADIO ET HYPERFREQUENCES.

Soutenue le 07 Mars 2015 devant le Jury

Président :

Pr. KHALLADI Mohcine (Faculté des Sciences de Tétouan)

Rapporteurs:

Pr. EL RHALEB Houssaine (Faculté des Sciences de Rabat)

Pr. SARSRI Driss (ENSA de Tanger)

Pr. ROKY Khalid (Faculté des Sciences et Techniques de Tanger)

Examinateurs:

Pr. GHACHAM AMRANI Abdellatif (Faculté Poly- disciplinaire de Larache)

Directeur de thèse :

Pr. BRITEL Mohammed Reda (ENSA de Tanger)

Co-Encadrant de thèse :

Pr. DKIOUAK Rachid (Faculté des Sciences et Techniques de Tanger)

<u>Structure de recherche accréditée d'accueil :</u>
<u>Laboratoire des Technologies Innovantes</u>

Dédicaces

A la mémoire de mon Père qui m'a beaucoup soutenu pour accomplir mes études et transmis quelques unes de ses multiples vertus et de ses nobles qualités.

Remerciements

Une thèse, c'est une belle et émouvante aventure qu'on entame au début avec une certaine méfiance, une certaine illisibilité. Au fur et à mesure qu'on s y intéresse, on sent qu'elle constitue une partie de notre vie, un objectif à atteindre et une joie à vivre. Elle passe, parfois, avant notre vie professionnelle et familiale. Elle marque notre existence par de beaux souvenirs, en nous exaltant à aller au fond de nous même et à explorer d'interminables chemins et horizons tellement passionnants de recherche scientifique.

Mon intérêt avec le sujet de la supraconductivité a débuté en janvier 1986, en apprenant sur la chaine radio Medi 1, le discernement du prix Nobel aux deux imminents chercheurs scientifiques suisses Bednorz et Muller [10] pour leur découverte grandiose des premiers nouveaux supraconducteurs à Haute Température critique « SHTc » connus depuis lors sous le nom « oxydes de cuivre » ou les cuprates.

Ainsi, et dans un premier temps, je remercie DIEU, le tout puissant, qui m'a guidé et m'a éclairé la voie et le chemin droit tout au long de ce voyage, et que sans lui, ce travail n'aurait jamais pu voir le jour.

Je tiens à remercier également toute personne contribuant de près ou de loin à l'achèvement de cet humble travail.

Je remercie le Professeur **Michel SAINT-PAUL** de m'avoir accueilli dans l'Institut Néel du Centre National de recherche scientifique (CNRS de Grenoble), de m'avoir offert la possibilité de réaliser des mesures importantes et de bénéficier de sa méthodologie de recherche et de son précieux encadrement.

Je remercie Monsieur **C. GUTTIN** de l'Institut Néel du CNRS de Grenoble pour ses contributions dans la préparation et l'amélioration de notre dispositif de mesures en radio et hyperfréquences et Mr **Georges REMENYI** d'avoir expliqué le dispositif de mesures de la chaleur spécifique.

Je remercie tout d'abord mon directeur de thèse le Professeur **Mohammed Reda BRITEL** de l'ENSA de Tanger pour son considérable encadrement, ses conseils, ses remarques, ses profondes interprétations et ses critiques pertinents qui m'ont toujours conduit vers la bonne voie dans mes recherches.

Je remercie infiniment mon co-directeur de thèse, le Professeur **Rachid DKIOUAK** de m'avoir accueilli au sein du laboratoire LMGC de la FST de Tanger pendant ces années de thèse, de bénéficier de son inestimable encadrement et d'accomplir cet important travail de recherche.

A ces trois personnes, je réitère ma plus grande gratitude, reconnaissance, affection et mes plus sincères remerciements pour leur disponibilité, leur investissement, leur précieux encadrement et leurs encouragements. En travaillant à leur coté, ils m'ont permis de bénéficier de leurs compétences, de leur savoir faire et de leur grande rigueur scientifique. Ils m'ont profondément marqué autant par leur professionnalisme que par leurs valeurs humaines.

Pour ceci et pour tout le reste, je les remercie le plus sincèrement et le plus chaleureusement possible.

J'adresse également mes profonds remerciements aux membres du jury :

- Monsieur le Pr. **KHALLADI Mohcin**e de la Faculté des Sciences de Tétouan d'avoir accepté de présider mon jury ;
- Messieurs Pr. **EL RHALEB Houssaine** (Faculté des Sciences de Rabat), Pr. **SARSRI Driss** (ENSA de Tanger) et Pr. **ROKY Khalid** (FST de Tanger) d'avoir accepté de rapporter avec soin ce mémoire et d'y apporter leurs regards. Je leur suis reconnaissant pour le temps qu'ils ont accordé à la lecture de ce rapport et pour toutes leurs remarques pertinentes et enrichissantes qui ont permis de contribuer à l'amélioration et à la perfection de ce travail;
- Monsieur le Pr. **GHACHAM AMRANI Abdellatif** (Faculté Poly- disciplinaire de Larache) qui m'a honoré de sa présence parmi les membres du jury et d'avoir accepté d'examiner ce travail.
- Monsieur le Pr. **BELMLIH Mohammed** d'avoir été l'invité d'honneur et d'avoir pris part au sein du jury.

Je tiens à remercier mon compagnon de route doctorale Monsieur **Said EL BRAK** qui m'a prodigué de ses conseils, présenté son soutien incontestable dans la préparation de ce mémoire et mon ami **Abdellah DAOUDI** pour sa contribution de sagesse.

Je remercie mes chers amis de Grenoble **Hamid NOUARAT** et **JAHID**, l'algérien de Constantine, pour leur chaleureux accueil qu'ils m'ont toujours réservé.

Je tiens à remercier infiniment l'équipe de médecins cardiologues le Pr. Halima BENJELLOUN, le Dr Asmae TAMDY et le Dr CHMAOU de m'avoir guéri tout en leur souhaitant un large succès dans leur mission noble et humanitaire.

Finalement, je souhaite bien exprimer ma plus profonde gratitude à ceux qui ont cru en moi, encouragé et soutenu. Je pense particulièrement à ma chère Mère Chakouri FATIMA, ma chère femme Bouchane AICHA, mon frère Abbassi ABDELKRIM et sa femme Bouchane AMINA et leurs chers enfants (Amine, Fadwa, Othmane et Youness) et tous les membres de ma famille et de celle de mon épouse.

Enfin, je remercie ma fille ainée **HOUDA** et mes petites filles jumelles **FATINE** et **YASSMINE** qui sont les plus belles réussites de ma vie et à qui un jour je transmettrai mon expérience dans la recherche. Elles m'apportent chaque jour beaucoup de joie et bonheur.

Résumé

La récente découverte des supraconducteurs à base de fer a suscité beaucoup d'intérêt chez la communauté scientifique, notamment ceux de la famille $BaFe_2As_2$. Le composé parent $BaFe_2As_2$ présente simultanément les transitions de phase structurale et magnétique en dessous de la température $T_S = T_N = 138~K$. Suite à un dopage en électrons par une substitution des atomes de Fe par des ions en Co ou en Ni, les températures de ces transitions de phases structurale et magnétique diminuent et se séparent de sorte que $T_S > T_N$. Un certain nombre de travaux expérimentaux ont été récemment publiés concernant l'impédance de surface des supraconducteurs à base de fer $BaFe_{2-x}Co_xAs_2$ or $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$. Ces travaux nous ont fourni des informations pertinentes sur l'appariement supraconducteur dans ces matériaux.

Notre première contribution [166] a consisté en des mesures à ultrasons sur des cristaux supraconducteurs BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ présentant un dopage x = 0,07 (sous-dopé) et x = 0,15 (surdopé). Les constantes élastiques des modes transversal C_{33} et longitudinal C_{44} dans l'échantillon sousdopé BaFe_{1,93}Ni_{0,07}As₂ montrent un large ramollissement lié à la transition de phase structurale à des températures élevées. Des anomalies dans la vitesse du son et dans l'atténuation ultrasonore ont été observées lors de la transition à la phase supraconductrice à $T_c = 17 K$. L'atténuation ultrasonore présente un pic à la température de transition supraconductrice. Contrairement aux supraconducteurs classiques, les propriétés élastiques du cas sousdopé sont fortement affectées par les instabilités de structure en compétition avec les effets purement électroniques. Dans le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂, un grand comportement anisotrope est observé dans la dépendance en température de la vitesse du son et de l'atténuation par les deux modes longitudinal C_L et transversal C_T , et à la température de transition à l'état supraconducteur $T_c = 13K$. En dessus de T_c , un ramollissement de la constante élastique transversale C_T , lié à des instabilités de la structure du composé surdopé, a été observé. Ceci est en accord avec le ramollissement de \mathcal{C}_{66} , observé dans les cristaux BaFe_{2-x}Co_xAs₂ par le groupe japonais de Yoshizawa et al ^[169-171].

Notre seconde contribution [162-163] a été portée sur des mesures, par la technique en réflexion, de l'impédance de surface et de la conductivité électrique en fonction de la température dans l'intervalle de fréquences de 10 MHz à 1.5 GHz sur trois cristaux présentant des différents niveaux de dopages: le sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, l'optimalement dopé BaFe_{1.9} Ni_{0.1}As₂ et le surdopé BaFe_{1.88}Ni_{0.12} As₂. La variation de la longueur de pénétration magnétique en fonction de la température suit une loi $\sim T^2$. La conductivité réelle σ_1 augmente avec la baisse de la température en dessous de T_c . L'augmentation de la conductivité réelle σ_1 dans l'état supraconducteur est attribuée à une diminution rapide du taux de diffusion des électrons de conduction. Dans le sousdopé, l'établissement de l'ordre antiferromagnétique à $T_N \sim 50 \, K$ donne lieu à une augmentation anormale du temps de diffusion des électrons. La conductivité type Drude rend les parties réelle R et imaginaire X différente l'une de l'autre. Ce résultat témoigne de la coexistence de la supraconductivité et de l'antiferromagnétisme dans ce composé [163].

Un comportement similaire a été observé dans les mesures de A. Barannik et al^[185] sur des échantillons BaFe_{2-x}Co_xAs₂. Une forte variation du temps de diffusion des particules en fonction de la température a été observée dans de nombreux supraconducteurs non conventionnels.

Abstract

The recent discovery of iron based arsenide superconductors has attracted much interest, especially those of the BaFe₂As₂ family. The compound parent BaFe₂As₂ exhibits simultaneous structural and magnetic phase transitions below $T_S = T_N = 140 \, K$. Upon doping electrons via either Co or Ni substitution for Fe, these structural and magnetic phase transition temperatures decrease and became separated as $T_S > T_N$. A number of experimental works have been published recently concerning the surface impedance of iron based superconductors BaFe_{2-x}Co_xAs₂ or BaFe_{2-x}Ni_xAs₂, providing information on the superconducting pairing in these materials.

Our first contribution concerns ultrasonic measurements on superconducting crystals BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ with x = 0.07 and x = 0.15. The elastic constants C_{33} and C_{44} for the underdoped crystal BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ shows a large softening related to the structural phase transition at high temperatures. Anomalies in the sound velocity and the ultrasonic attenuation have been found at the superconducting phase transition $T_c = 17 \ K$. Ultrasonic attenuation exhibits a peak at the superconducting transition in contrast with the attenuation in conventional superconductors. The elastic properties of the underdoped crystal are strongly affected by the structural instabilities competing with the purely electronic effects in the elastic properties near the superconducting phase transition. In the overdoped crystal BaFe_{1.85}Ni_{0.15} As₂, large anisotropic behaviour is observed in the temperature dependence of the sound velocity and attenuation of the C_L longitudinal and C_T shear modes around the superconducting transition $T_c = 13 \ K$. Above the superconducting phase transition the softening of the C_T shear mode is related to structural instabilities.

Unconventional behaviour of the ultrasonic attenuation is observed in the superconducting crystals $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$. This result is in agreement with the softening of C_{66} observed in the $BaFe_{2-x}Co_xAs_2$ crystals above the superconducting transition by the japanese Group of Yoshizawa and al.

Our second contribution reports measurements of the temperature dependence of the surface impedance and electrical conductivity in three different superconducting crystals: underdoped BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, optimally doped BaFe_{1.9} Ni_{0.1} As₂ and overdoped BaFe_{1.88}Ni_{0.12} As₂ crystals in the frequency range 10 MHz-1.5 GHz using a single coil technique. The temperature dependence of the London penetration depth follows a T^2 law. The real conductivity σ_1 increases with decreasing temperature below T_c in agreement with the results obtained for the optimally Co doped BaFe_{2-x}Co_xAs₂ crystals. The increase of the real conductivity σ_1 in the superconducting state is attributed to a rapidly decrease of the quasiparticle scattering time. In the underdoped crystal BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, the establishment of the antiferromagnetic order at $T_N \sim 50~K$ gives rise to anomalous increase of electron scattering time. Drude type conductivity yields X and R differ from each other. This result gives evidence of coexistence of superconductivity and antiferromagnetism.

A similar behavior was observed in Co doped $BaFe_{2-x}Co_xAs_2$ by Cherpak and al. A strong temperature dependence of the quasiparticles scattering time is observed in many unconventional superconductors.

Table des matières

INTRODUCTION:1			
I.	Motivation :	1	
II.	Objectifs de l'étude des supraconducteurs magnétiques:	2	
III.	Recherches et réalisations scientifiques :	2	
1.	Mesures ultrasonores sur les supraconducteurs magnétiques:		
	1.1. Mesures ultrasonores sur le composé magnétique Ba(Fe _{1-x} Co _x) ₂ As ₂ :		
	1.2. Mesures par Spectroscopie Ultrasonore sur Ba(Fe _{1-x} Co _x) ₂ As ₂ :		
2.			
	2.1. Mesures électrodynamiques en hyperfréquences sur les supraconducteurs magnétiques:	3	
	2.2. Mesures de la longueur de pénétration magnétique :	3	
	2.3. Mesures d'impédance de surface sur des cristaux optimalement dopés:	3	
IV.	Approches de mesures et Contributions scientifiques :	4	
1.	Approche de mesure ultrasonore en RF:		
2.	Approche de mesures par induction magnétique en RF et HF:	5	
V.	Structure et plan de thèse :	6	
CH A I. 1.	APITRE I : GÉNÉRALITÉS SUR LE PHENOMÈNE DE SUPRACONDUCTIVI Introduction générale sur la supraconductivité :	 8	
2.	Historique de la supraconductivité:	8	
II.	Propriétés générales des supraconducteurs :		
1.	Résistivité nulle :		
2.	Effet Meissner et Ochsenfeld ou diamagnétisme parfait :		
3.	Grandeurs caractéristiques du supraconducteur :	11	
III.	Classification des supraconducteurs :	13	
1.	Supraconducteurs de type I :	13	
2.	Supraconducteurs de type II :	13	
3.	Différenciation par les longueurs caractéristiques :	14	
IV.	Les grandes théories de la supraconductivité :	15	
1.	Le modèle à deux fluides :		
2.	Théorie de Ginzburg-Landau :		
3.	La théorie microscopique BCS :	16	
4.	Modèle de Meissner adapté par London :		
V.	Gap supraconducteur :	18	
СНА	APITRE II : LES MATÉRIAUX SUPRACONDUCTEURS À BASE DE FER	20	
I.	INTRODUCTION:	20	
II.	Les différentes familles de supraconducteurs à base de Fer :	23	
1.	Les types de familles des composés à base de fer:		
2.	Structures cristallines des pnictures:		
3.	Synthèse des échantillons BaFe ₂ As ₂ :	26	
4.	Comparaison avec les cuprates :	27	
5.	Diagramme générique pour les composés BaFe ₂ As ₂ :	28	

6.	Les paramètres d'influence sur du diagramme de phases :	30
7.	Les pnictures supraconducteurs non conventionnels :	31
III.	Propriétés physiques des pnictures type 122:	31
1.	Caractéristique d'un métal corrélé :	
2.	Propriétés électroniques du Ba122 :	
IV.	Description des phases de transitions des pnictures :	
1.	Etat normal:	
2.	Transitions de phases magnétique et structurale :	
	2.1. Mesures de transport et thermodynamiques :	
· <u>-</u>		
	2.3. Mesures d'ARPES et d'oscillations quantiques :	
	2.4. Modèles magnétiques itinérant et localisé :	
3.	La Transition supraconductrice :	
3	3.2. Mesures du gap supraconducteur :	40
V.	Coexistence entre les phases antiferromagnétique et supraconductrice :	49
CONG	CLUSION:	50
СНА	PITRE III : TECHNIQUE DE MESURES	51
PAR	TIE A: TECHNIQUE DE MESURES ULTRASONORES	51
I.	Elasticité et propagation des ondes sonores dans les cristaux :	
1.	Cas d'un système cubique :	
2.	Cas d'un système tétragonal :	
3.	Cas d'un système orthorhombique :	33
II.	Propriétés d'une onde élastique dans un milieu cristallin :	55
III.	Modes de propagation des ondes ultrasonores :	58
1.	Le mode longitudinal : (de compression ou dilatation)	
2.	Le mode transversal (ou de cisaillement) :	
	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
IV.	Milieux de propagation des ondes ultrasonores :	
1.	Système isotrope :	
2.	Système anisotrope :	61
V.	Techniques pour la propagation des ondes ultrasonores :	62
1.	Principe de la méthode pulsée :	62
2.	Transducteur piézoélectrique de volume:	64
VI.	Mesure de vitesse avec une boucle à verrouillage de phase :	66
1.	Le schéma de principe et technique de mise en œuvre :	
2.	Le dispositif électronique:	
3.	Mesure de la vitesse ultrasonore :	
4.	Mesure de l'atténuation :	
VII.	Mesures de la chaleur Spécifique :	
1.	Chaleur spécifique lors transitions de phases dans les supaconducteurs:	
2.	Mesure de la chaleur spécifique :	
3.	Description du dispositif de mesures PPMS :	73
VIII.	Différents problèmes de mise en œuvre :	74
1.	Problèmes au niveau de l'excitation du transducteur :	
2.	Problèmes liés au collage:	74

3.	Problèmes liés à la préparation des échantillons :	75
4.	Etalonnage des équipements du dispositif expérimental :	75
5.	Critère de parallélisme des transducteurs :	75
PAR	TIE B: TECHNIQUES DE MESURES EN RADIO ET HYPERFREQUENCES	76
I.	Technique de mesure par induction magnétique :	76
1.	Notions sur l'induction magnétique :	
2.	Applications du principe d'induction magnétique dans des dispositifs de mesures:	
II.	Procédés de mesures par induction magnétique en RF et HF :	80
1.	Procédé de circuit de mesures LC résonant à 92 MHz:	80
	1.1. Equipements techniques du circuit de mesures et traitement:	81
	1.2. Technique de mise en œuvre pour les mesures à basses températures :	82
	1.3. Description de l'approche de mesure:	83
	1.4. Mesure de vitesse:	83
	1.5. Contraintes de mesures:	84
2.	Technique de mesure par induction magnétique avec les analyseurs:	85
2	2.1. Procédé de mesure par analyseurs d'impédance et de réseau :	85
2	2.2. Préparation des échantillons :	89
III.	Modèle de « Transformateur équivalent » :	90
	CLUSION:	
CON	CLUSION:	92
СНА	APITRE VI : RESULTATS DES MESURES EN ULTRASONS	93
I.	Présentation:	93
II.	Présentation des mesures élastiques :	94
III.	Les résultats de mesures ultrasonores :	96
1.	Echantillon sousdopé le BaFe _{1.93} Ni _{0.07} As ₂ :	98
	1.1. Dans l'intervalle de température 70K-200K:	
	1.2. Dans l'intervalle de température (20K-70K):	100
	1.3. Dans l'intervalle de température (5K-20K) :	101
2.	Echantillon surdopé le BaFe _{1.85} Ni _{0.15} As ₂ :	103
2	2.1. Dans l'intervalle de température 70K-200K:	104
2	2.2. Dans l'intervalle de température 13K -70K:	104
4	2.3. Dans l'intervalle de température 5K - 13K:	106
IV.	Analyse et mesures complémentaires :	107
1.	Variation de la vitesse ultrasonore dans l'échantillon surdopé:	
2.	Variation de l'atténuation dans l'échantillon surdopé:	107
3.	Mesure du gap supraconducteur :	
4.	Mesures thermodynamiques de la chaleur spécifique:	110
5.	Comparaison avec les résultats des mesures électromagnétiques :	111
6.	Comparaison avec des résultats similaires et interprétation :	112
CON	CLUSION :	115
	APITRE V : RESULTATS DE MESURE PAR INDUCTION MAGNETIQUE EN	11/
KAD	DIO ET HAUTE FREQUENCES	
I.	Résultats de mesure par un circuit LC résonant :	116
1. 2.	Echantillon sousdopé :	

3.	Comparaison des résultats :	119
II.	Mesures avec les analyseurs d'impédance et de réseau :	120
1.	Impédance de surface :	
2.	Longueur de pénétration magnétique :	123
3.	Conductivité complexe :	123
4.	Taux de diffusion des électrons de conduction:	126
III.	Résultats de mesures en RF et HF avec des analyseurs d'impédance et de réseau:	127
1.	Echantillon optimalement dopé :	
1	.1. Impédance de surface :	127
1	.2. Longueur de pénétration magnétique :	129
1	3. Conductivité complexe :	130
1	.4. Taux de diffusion des électrons:	131
2.	Echantillon surdopé :	132
2	.2. Longueur de pénétration magnétique :	133
2	.4. Taux de diffusion des électrons de conduction :	136
3.	Echantillon sous-dopé :	136
3	.1. Impédance de surface :	136
3	.2. Longueur de pénétration magnétique :	139
3	.3. Conductivité complexe de l'échantillon sousdopé :	140
3	.4. Taux de diffusion des électrons :	144
IV.	Influence du dopage en Ni sur les mesures hyperfréquences :	146
CON	CLUSION:	148
CON	CLUSION GENERALE:	150
REF	ERENCES BIBLIOGRAPHIQUES:	153

« Avec le temps et la patience, la feuille du murier devient de la soie. »

Proverbe chinois.

INTRODUCTION:

I. Motivation:

En 2008, la découverte d'une nouvelle famille de supraconducteurs à haute température critique SHTc, les supraconducteurs à base de fer, a relancé l'espoir de trouver une compréhension plus profonde de la supraconductivité. Le but principal c'est d'aboutir à la synthèse des échantillons de grande qualité, permettant d'élever la température critique à la température ambiante favorisant ainsi l'exploitation de leurs propriétés et de leurs performances dans des applications diverses à moindres couts.

Les étapes essentielles pour révéler le mécanisme de la supraconductivité consistent en la caractérisation des propriétés physiques des échantillons, l'étude des symétries du gap et des paramètres d'ordre. L'existence d'un ordre antiferromagnétique frustré et la compétition des phases magnétique et supraconductrice donne raison aux hypothèses qui les lient aux phénomènes responsables de la supraconductivité.

La connaissance précise dudit mécanisme permettra de profiter pleinement des propriétés remarquables de ces matériaux dans leurs applications industrielles si prometteuses, notamment dans la production, le stockage et la gestion de l'énergie électrique. En effet, cela permettra la mise en œuvre de nouvelles installations électriques à grand rendement, à coûts et à consommation d'énergie nettement réduits. D'autres éventuelles implications sont envisageables dans le domaine de l'environnement, dans le domaine médical (dans l'IRM, les dispositifs à imagerie par résonance magnétique), dans les modes de transport (Train à Grande vitesse TGV), ...etc

En hautes fréquences, la résistance de surface des matériaux supraconducteurs peut être rendue 10⁵ à 10⁶ fois plus faible que celle du cuivre pur utilisé à température ambiante. Les pertes d'énergie par effet Joule dans les composants hyperfréquences seront fortement réduites et les données du dimensionnement seront passablement modifiées. Cette possibilité permettra à atteindre une amélioration significative des performances en portée, en transmission, en gain pour les dispositifs radio et hyperfréquences.

Les circuits des dispositifs hyperfréquences concernés par le développement de ce mécanisme sont : le résonateur de ligne de transmission, les guides d'onde coplanaire, les lignes de retard, les filtres à microbandes, les antennes intelligentes pour les systèmes de radiocommunications, le revêtement anti-pollution radioélectrique, les dispositifs de détection RF et HF, les modulateurs et les magnétrons du radar, ...etc.

II. Objectifs de l'étude des supraconducteurs magnétiques:

L'étude des supraconducteurs magnétiques en radio et hyperfréquences est basée sur la mesure d'impédance de surface et de la longueur de pénétration magnétique, l'une des caractéristiques principales des supraconducteurs.

Notre objectif principal était d'observer la transition de phase supraconductrice, dans les nouveaux composés à base de fer, utilisant les sondes de mesures mis en œuvre à cet effet.

Mais, suite aux différents résultats obtenus, par les techniques de mesures ultrasonores et par induction magnétique, d'autres objectifs ont pris place, notamment la compréhension du mécanisme de la supraconductivité dans ces matériaux à base de fer.

Ce nouveau tournant nous a imposé de procéder par :

- Analyser le comportement des composés à base de fer en RF et HF,
- ➤ Pousser nos investigations en vue de déceler et d'établir le lien entre les différentes phases de transition présentes à savoir : structurale, magnétique et supraconductrice,
- Confronter les résultats observés dans l'analyse et la compréhension de l'émergence du mécanisme de la supraconductivité dans les pnictures de fer.

Des réponses aux questions soulevées ont été proposées et présentées dans les chapitres IV et V relatifs respectivement aux résultats des mesures ultrasonores et résultats de mesures en radiofréquences et hyperfréquences de la présente thèse.

III. Recherches et réalisations scientifiques :

1. Mesures ultrasonores sur les supraconducteurs magnétiques:

Les mesures ultrasonores consistent à des mesures, par la méthode des échos, la vitesse de propagations et l'atténuation des ondes élastiques longitudinales et transverses liées aux constantes d'élasticité. Les variations relatives de paramètres de mesures ultrasonores renseignent sur les transitions des phases structurales et supraconductrices.

1.1. Mesures ultrasonores sur le composé magnétique Ba(Fe_{1-x}Co_x) ₂As₂:

En 2012, M .Yoshizawa^[171] a observé par des mesures ultrasons une variation de la constante d'élasticité C_{66} dans des échantillons de composition suivante Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂. Cette variation montre un ramollissement dans la structure de ces composés associé à une transition structurale de la forme tétragonale à une forme orthorhombique. Le taux d'anomalie a été observé dans 90% des échantillons sous-dopés.

Ce groupe suggère l'existence d'une forte corrélation entre la transition supraconductrice et l'anomalie observée sur la constante élastique C_{66} (ou par son inverse S_{66} appelée flexibilité élastique). La fluctuation structurale, mesurée par C_{66} , joue un rôle important dans l'émergence de la supraconductivité dans les supraconducteurs magnétiques.

1.2. Mesures par Spectroscopie Ultrasonore sur Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂:

En 2010, Fernandes^[167] a observé, à l'issue des mesures par Spectroscopie Ultrasonore à Résonance (Resonant Ultrasound Spectroscopy) SUR, un ramollissement du module de cisaillement C_T à l'état normal en dessous de la température de Néel T_N . Il a attribué ce

ramollissement à un couplage magnéto-élastique et à des fluctuations nématiques qui prennent fin avec un durcissement observable à l'état supraconducteur. Il a suggéré que ce dernier effet est une conséquence indirecte de la compétition entre le magnétisme et la supraconductivité, et provoque la suppression de la distorsion orthorhombique.

2. Mesures radio et hyperfréquences sur les supraconducteurs magnétiques:

Les mesures hyperfréquences réalisées à ce jour sur les pnictures de fer, sont très limitées et concentrées dans des laboratoires spécialisés.

Les différentes techniques de mesures en RF et hyperfréquences consistent à mesurer la variation relative de l'impédance de surface à travers la mesure de variations relatives de la partie réelle R_s et la partie imaginaire X_s et d'en déduire les composantes de la conductivité réelle σ_1 et imaginaire σ_2 . La longueur de pénétration magnétique λ (ou la profondeur de pénétration de London) est l'une des propriétés caractéristiques des supraconducteurs , qu'on détermine à l'issue des mesures d'impédance de surface en RF et HF. Elle mesure l'étendue de la pénétration du champ magnétique à l'intérieur du supraconducteur. Sa valeur absolue est directement liée à la densité des électrons supraconducteurs n_s et sa valeur relative en fonction de la température est sensible à la symétrie du gap supraconducteur (Δ).

Nous citerons quelques études réalisées dont les résultats sont compatibles avec nos mesures en RF et HF sur des échantillons dopés en Nikel de type BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.

2.1. Mesures électrodynamiques en hyperfréquences sur les supraconducteurs magnétiques:

En 2010, Bobowski^[159] a étudié l'électrodynamique en hyperfréquence sur deux composés à base de fer dont l'un est dopé en trous le Ba $_{0.72}$ K $_{0.28}$ Fe $_2$ As $_2$ ($T_c \approx 30K$), et l'autre est dopé en électrons le Ba (Fe $_{0.95}$ Co $_{0.05}$) $_2$ As $_2$ ($T_c \approx 20K$) par la technique de cavité à perturbation résonante.

2.2. Mesures de la longueur de pénétration magnétique :

En 2011, les résultats de mesures de la longueur de pénétration, réalisées par le groupe américain de R. Prozorov^[49] du laboratoire AMES (USA) sur les matériaux dérivés BaFe₂As₂ avec un Résonateur tunnel diode auto-oscillant (TDR), ont révélé en dessous de la température critique : la présence de deux gaps supraconducteurs distincts, le développement d'une forte anisotropie du gap à partir du dopage optimal, une rupture des paires significative due aux charges du dopage; une dépendance de la longueur de pénétration magnétique ($\sim T^2$), un comportement intrinsèque de gap complet (exponentiel) pour le cas d'optimalement dopé, une compétition et une coexistence entre l'état magnétique ordonné et la supraconductivité dans le cas des composés sousdopés.

2.3. Mesures d'impédance de surface sur des cristaux optimalement dopés:

En 2012, Cherpack et Prozorov ^[185] ont publié des résultats de mesures sur l'impédance de surface en ondes millimétriques dans des cristaux optimalement dopés Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂. En 2013, ils ont reporté une seconde étude ayant pour objectif de déterminer le taux de diffusion des quasi-particules dans les supraconducteurs magnétiques.

IV. Approches de mesures et Contributions scientifiques :

Les différentes approches et mesures expérimentales, détaillées dans la présente thèse, ont été réalisées au CNRS de Grenoble à l'Institut Néel en France sous l'encadrement du Professeur Michel SAINT-PAUL.

Nous avons fait usage de deux approches qui différent par leur principe de mesures à savoir : la technique de mesures ultrasonores et la technique de mesures par induction magnétique en radio et hyperfréquences.

Les résultats issus de ces deux approches de mesures en radiofréquences présentent des performances et des précisions pertinentes, comparativement aux autres approches de mesures réalisées par les autres laboratoires. En effet, nos mesures par ultrasons et par induction magnétique en RF et HF nous ont permis d'observer plus profondément le comportement des trois échantillons : sous-dopé, optimalement dopé et sur-dopés dans les différentes phases de transitions. Les courbes de mesures, réalisées par ces techniques, détectent les mêmes anomalies et comportement, offrant ainsi une base de comparaison et de complémentarité dans leur analyse. Le cas de l'échantillon sous-dopé, présentant la présence d'une onde de densité de spin ODS (SDW -Spin Density Wave) et de la phase supraconductrice Sc, a été analysé d'avantage dans nos mesures RF et HF. Des techniques similaires en HF n'ont pas pu sonder la présence des phases ODS et supraconductrice, ni mettre en détail la transition de la phase antiferromagnétique vers la phase supraconductrice.

Ces résultats expérimentaux , originaux, étaient assujettis à une argumentation par des calculs théoriques des paramètres caractérisant les supraconducteurs tels que la chaleur spécifique et le gap supraconducteur, à une comparaison des courbes des mesures par nos deux approches, à une comparaison avec les résultats publiés par d'autres équipes utilisant les mêmes techniques à une étude comparative détaillée se référant aux résultats de mesures par les autres techniques telles que : la RMN, ARPES, spectroscopie RAMAN, Mössbauer, ...etc, dont le principe de mesures est complètement différent.

Pour mieux détecter le comportement de nos échantillons dans la transition supraconductrice, une résolution expérimentale de 10⁻⁴ a été obtenue sur les mesures de vitesse du son et de 10⁻³ sur les mesures d'impédance de surface.

Cette complémentarité d'études et d'interprétations comparatives constitue le point fort de notre méthodologie dans la présente thèse.

1. Approche de mesure ultrasonore en RF:

Nous avons réalisé nos mesures ultrasonores sur deux types de supraconducteurs, à base de fer, le BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ avec des concentrations différentes ^[166]: le sous-dopé 7% (x = 0.07) et le sur-dopé 15% (x = 0.15), dans l'intervalle de température de [5, 200 K].

Sur l'échantillon sous-dopé « BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ », les mesures ont été faites en mode longitudinal C_{33} et en mode de cisaillement C_{44} à 15 MHz et de 45 MHz. A des températures entre 200K et 60 K, nous avons observé que les constantes élastiques C_{33} et C_{44} montrent un grand ramollissement lié à la transition structurale du tétragonale à l'orthorhombique dans le cristal sous-dopé. L'achèvement de cette transition a été caractérisée par une augmentation

INTRODUCTION

des ces mêmes constantes élastiques jusqu'à la phase de transition à l'état supraconducteur dans l'intervalle de température entre 60 K et 20 K.

En dessous de 20 K, des anomalies dans la vitesse du son et dans l'atténuation ultrasonore ont été observées à la phase de transition à l'état supraconducteur pour l'échantillon sous-dopé dont la température de transition supraconductrice est $T_c=17K$. L'atténuation ultrasonore, mesurée avec l'échantillon sous-dopé, contrairement aux supraconducteurs classiques présente un pic à la transition supraconductrice à des fréquences radio de 15 MHz et de 45 MHz.

Sur le monocristal sur-dopé « BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂ » un minimum de la constante élastique \mathcal{C}_{66} a été observé à une température juste au-dessus de sa température de transition supraconductrice $T_c=13K$.

Vu que les variations de vitesse ultrasonore le long de l'axe \vec{c} pour les modes C_{33} et C_{44} sont très faibles, d'ordre 10^{-4} chez l'échantillon surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂, nous avons jugé utile d'effectuer des mesures dans le plan de base (ab) avec des modes longitudinal C_L et transversal C_T et de réaliser des mesures de la chaleur spécifique. Ce complément de mesures nous a permis de détecter le saut de la transition à la phase supraconductrice, et ce à une très faible échelle d'ordre 10^{-4} .

Des mesures complémentaires électriques et électromagnétiques ont été effectuées, aux fins de comparaison avec les résultats élastiques, dans le sous-dopé $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$ et le sur-dopé $BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As_2$. Le calcul théorique de la variation de vitesses de point de vue thermodynamique a été élaboré et a permis de déterminer le taux de cette variation pour le sous-dopé à l'ordre 2.10^{-3} et pour le sur-dopé à l'ordre 4.10^{-4} .

Les résultats expérimentaux issus des mesures élastiques ultrasonores, soutenus par les mesures électrique et électromagnétique et les calculs théoriques du gap supraconducteur et de la chaleur spécifique, ont permis de confirmer la présence d'un comportement non conventionnel de l'atténuation ultrasonore chez les cristaux supraconducteurs BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.

En conclusion, les résultats trouvés ou issus de l'interprétation des mesures ultrasonores sur ce type des supraconducteurs ferromagnétiques, illustrent directement la compétition entre les ordres ODS et SC dans les échantillons sous-dopés. Ils soulignent la relation entre le magnétisme et la supraconductivité, qui semble être une caractéristique générique des supraconducteurs à base de fer. Notre étude prend un large intérêt en adressant l'impact d'un ordre magnétique directement sur les propriétés supraconductrices, comme l'amplitude du gap et sa symétrie.

2. Approche de mesures par induction magnétique en RF et HF:

La technique radio et hyperfréquence que nous avons utilisée est particulièrement adaptée à l'exploration de la phase antiferromagnétique et la phase supraconductrice. Son principal avantage est lié à sa sensibilité en RF, ce qui la rend performante pour collecter les données inaccessibles par les autres méthodes de mesures citées ci-dessus. La technique de mesures en RF et HF montre une sensibilité accrue et se révèle bien adaptée à l'étude de l'impédance de surface des supraconducteurs.

INTRODUCTION

Avec les procédés basés sur l'induction magnétique, nous avons réalisé des mesures d'impédance de surface en radio et en hyperfréquences, à l'issue desquels nous avons pu déduire et observer les variations relatives des paramètres de conduction électrique à la transition supraconductrice dans trois échantillons présentant des concentrations de dopage différentes en Ni: sous-dopés, optimalement dopés et surdopés.

Nos résultats de mesures en RF et HF ont permis de décliner et de détecter, en outre, le comportement des cristaux sous-dopés aussi bien dans la phase antiferromagnétique que dans celle de la phase supraconductrice. En effet, nous avons pu observer dans les cas des échantillons sous-dopés une diminution significative du taux de relaxation magnétique en dessous de T_N (température de Néel) en dessous de laquelle l'échantillon transite de l'état paramagnétique à l'état antiferromagnétique AFM) et une forte baisse du taux de diffusion de quasi-particules en dessous de T_c (température critique en dessous de laquelle l'échantillon transite à l'état supraconducteur) dans la phase supraconductrice.

Contrairement aux cristaux optimalement dopés et surdopés, la transition supraconductrice est très élargie dans l'intervalle de température de 16-20 K pour les cristaux sous-dopés. Ce résultat est également en accord avec la large anomalie élastique, observée sur les mêmes cristaux dans nos mesures aux ultrasons en mode \mathcal{C}_{33} , caractérisée par un ramollissement dans leur structure (softening) dans la phase antiferromagnétique.

Notre résultat constitue une preuve de la coexistence de l'antiferromagnétisme et de la supraconductivité dans les composés sous-dopés.

Nos mesures d'impédance de surface révèlent une différence de comportements dans les échantillons sous-dopés, sur-dopés et optimalement dopés. Les anisotropies structurales, magnétiques et supraconductrices sont fortement dépendantes dans chaque échantillon, et diffèrent dans les trois cas étudiés.

V. Structure et plan de thèse :

Dans le chapitre I, les événements historiques les plus marquants de la supraconductivité sont rappelés, les propriétés essentielles des supraconducteurs et le développement des théories de la supraconductivité sont esquissés.

Dans le chapitre II, sont présentés les types de familles des supraconducteurs à base de fer, les structures cristallines des pnictures, la synthèse des ces composés à base de fer, la comparaison de ces composés avec les premiers supraconducteurs à haute température critique « Les cuprates », le diagramme générique pour les composés BaFe₂As₂, les propriétés physiques des pnictures type 122, la description des phases de transitions des pnictures : structurale, magnétique et supraconductrice, la coexistence entre les phases antiferromagnétique et supraconductrice.

Dans la section A du chapitre III, l'approche ultrasonore est présentée par: un rappel d'élasticité, la propagation d'une onde élastique dans un milieu cristallin, les techniques expérimentales relatives à la propagation des Ondes Ultrasonores, le procédé cryogénique.

La section B du chapitre III traite la technique de mesures par induction magnétique en radio et hyperfréquences et présente: les différentes techniques de mesures des

INTRODUCTION

supraconducteurs utilisant le principe d'induction magnétique, le procédé de mesures à base de circuit LC résonant à 92 MHz, la technique de mesure par induction magnétique avec des analyseurs d'impédance et de réseau et le modèle de « Transformateur équivalent » pour extraire les composantes réelle et imaginaire de l'impédance de surface Z_s .

Dans le chapitre IV, sont présentés les résultats de mesures par la technique ultrasonore à savoir : la vitesse ultrasonore, les constantes d'élasticité et l'atténuation sur l'Echantillon sous-dopé le BaFe_{1.93}Ni_{0.07} As₂ et sur l'échantillon surdopé le BaFe_{1.85}Ni_{0.15} As₂, le calcul du gap supraconducteur, la mesure de la chaleur spécifique de l'échantillon sur-dopé, des interprétations, des comparaisons et des discussions.

Dans le chapitre V sont exposés, les résultats de mesures par un circuit LC résonant à 92 MHz, les paramètres de mesures par induction magnétique en RF et HF sur deux échantillons sous-dopé et sur-dopé du BaFe_{2-x}Ni_xAs₂: Impédance de surface, Longueur de pénétration magnétique, Conductivité complexe, Taux de diffusion des électrons de conduction. Dans ce chapitre, nous reporterons aussi, les résultats de mesures par analyseurs d'impédance et de réseau en RF et HF sur les trois types de composés « sous-dopé, l'optimalement dopé et le sur-dopé » du BaFe_{2-x}Ni_xAs₂, une profonde Analyse expérimentale de l'état antiferromagnétique des cristaux sousdopés BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, et enfin la prospection de la dépendance du dopage en Ni des composés type 122 en fonction de la température par les mesures radio et hyperfréquences.

Dans la conclusion, un résumé détaillé et critique est présenté avec des éventuelles perspectives de mesures et d'applications.

Les réalités scientifiques les plus solides contiennent toujours, cependant, une part notable d'illusions. Les progrès de la science consistent surtout à la réduire.

> D'après Gustave Le Bon (Les incertitudes de l'heure présente)

CHAPITRE I : GÉNÉRALITÉS SUR LE PHENOMÈNE DE LA SUPRACONDUCTIVITÉ.

I. Introduction générale sur la supraconductivité :

1. Définition :

La supraconductivité est la propriété que possèdent certains matériaux de conduire le courant électrique sans résistance à condition que leur température soit inférieure à une certaine valeur appelée température critique (T_c). Ces matériaux supraconducteurs s'opposent également à la pénétration de tout champ magnétique externe.

2. Historique de la supraconductivité :

Le phénomène de la supraconductivité a été découvert par hasard en 1911, au cours de l'étude de la résistivité du mercure à la température de liquéfaction de l'hélium liquide, par le physicien Hollandais Kamerling Onnes. Il découvrit fortuitement que la résistivité de mercure s'annulait en dessous de 4.15 K ^[1]. Ce qui semblait être, au premier abord, juste une trouvaille anodine, va être à l'origine d'un big-bang en physique de la matière condensée, de la publication de milliers d'articles scientifiques, et de l'attribution de 13 prix Nobel dans ce domaine. Cette découverte intervient juste trois ans après qu'on ait liquéfié, pour la première fois, l'hélium. Cette propriété a été mise en évidence, au fil des années, dans d'autres métaux supraconducteurs tels que le plomb, l'étain, le vanadium, le cadmium, le molybdène, puis dans des alliages métalliques avec des températures de plus en plus élevées. Paradoxalement, des métaux, considérés comme bon conducteurs tels que l'or, l'argent ou le cuivre, ne sont cependant pas supraconducteurs.

En 1933, Meissner et Ochsenfeld ^[2] ont montré qu'un supraconducteur, refroidi à des températures inférieures à sa température critique, soumis à un champ magnétique expulse le flux magnétique de l'intérieur de son volume. Il s'agit de la deuxième propriété des supraconducteurs : le diamagnétisme.

En 1934, Görter et Casimir [3] ont proposé le modèle bi-fluide exprimant la densité totale électronique de conduction d'un supraconducteur n comme la somme de deux

contributions constantes et uniformes dans l'espace, une provenant des électrons normaux, de densité n_n et une autre provenant des électrons supraconducteurs, de densité n_s .

En 1935, Fritz et Heinz London $^{[4]}$ développèrent, en s'appuyant sur ces différentes observations, la première théorie phénoménologique satisfaisante de la supraconductivité, en ajoutant aux équations de Maxwell de l'électromagnétisme les résultats expérimentaux concernant la résistance nulle, le modèle à deux fluides de Görter et Casimir et l'effet Meissner. Ils déduisirent ainsi que le champ extérieur appliqué H_a ne disparaissait pas brutalement à la surface du supraconducteur, mais diminuait progressivement dans la profondeur des matériaux.

En 1950, V. L. Ginzburg et L. D. Landau ^[5] publièrent la théorie générale des transitions de phases du deuxième ordre qui a permis de mieux comprendre la supraconductivité. Ils introduisirent pour cela la notion du paramètre d'ordre supraconducteur qui est une fonction complexe dont l'amplitude donne la probabilité de présence des électrons supraconducteurs, et dont la phase conditionne la circulation du courant. Ils proposèrent que seuls les matériaux purs étaient identifiés comme supraconducteurs présentant un « diamagnétisme parfait » en dessous d'une valeur critique du champ magnétique. Mais déjà, en 1937, L.V. Schubnikov observait que certains alliages présentaient d'abord un diamagnétisme parfait jusqu'à une valeur et ensuite un diamagnétisme partiel jusqu'à une valeur du champ magnétique, nettement plus élevé ^[6].

Il a fallu attendre les travaux de A. A. Abricosov ^[7] publiés en 1957 pour comprendre qu'il existe deux types de supraconducteurs: les supraconducteurs de type I, ne présentant qu'un seul champ critique ; et les supraconducteurs de type II, pour lesquels on peut observer deux champs critiques H_{c1} et H_{c2} . En dessous de H_{c1} , le champs magnétique externe est totalement expulsé de l'échantillon. Mais, en dessous de H_{c2} , les lignes de champs externe traversent l'échantillon dans des tubes quantiques qu'on appelle des vortex. Au dessus de H_{c2} , le supraconducteur type II retrouve son état normal.

En 1957 Bardeen, Cooper et Schrieffer ^[8] ont présenté une description microscopique de l'état supraconducteur connue par la théorie (BCS) (cette appellation est formée des initiales des noms de ces chercheurs américains). Elle a permis de décrire l'interaction d'un gaz d'électrons de conduction, c'est-à-dire un liquide de Fermi, avec les vibrations élastiques du réseau cristallin qui sont les phonons. De nombreuses prédictions de la théorie BCS ont été vérifiées depuis sa formulation .Elle prévoyait, par exemple, une température critique maximale de 23 K.

En 1962, le physicien britannique Brian Josephson ^[9] a montré que des paires de Cooper peuvent franchir, par effet tunnel, une fine couche d'un isolant séparant deux supraconducteurs. Cet effet, spécifiquement quantique, appelé effet Josephson, constitue le point de départ d'une technologie des supraconducteurs hautement prometteuse notamment dans le domaine de l'électronique.

Au début des années 70 du $XX^{\text{ème}}$ siècle, la limite semblait être presque atteinte avec l'alliage Nb₃Ge qui plafonnait à 23,3 K.

En 1986, la supraconductivité a été relancée par la découverte par Bednorz et Muller ^[10] des nouveaux supraconducteurs à une température critique élevée à la valeur limite proposée dans la théorie BCS de 23 K qu'on a appelé des supraconducteurs à haute température critique

SHTc. La supraconductivité dans les céramiques $La_{1.85}$ $Ba_{0.15}$ CuO₄ atteint à l'époque T_c =30 K et après dans les oxydes mixtes de baryum de cuivre et d'yttrium ou YBaCuO dont les températures critiques dépassent même la température d'ébullition de l'azote de 77 K, introduit pour la cryogénie de ces éléments.

En 2001, le groupe du japonais J.Akimitsu $^{[11]}$ a découvert la supraconductivité dans le MgB_2 , un composé binaire simple bien connu, le premier à présenter deux gaps : l'un pour la bande 2D et l'autre pour la bande 3D .

L'année 2008, a été marquée par la découverte de nouveaux supraconducteurs à haute température critique à base de fer qu'on appelle les pnictures (en anglais « pnictides) par le groupe japonais de M. Hosono ^[12]. Cette nouvelle génération des supraconducteurs sera largement décrite dans le chapitre suivant de la présente thèse : Les matériaux supraconducteurs à base de fer.

II. Propriétés générales des supraconducteurs :

1. Résistivité nulle :

La « première signature » du caractère supraconducteur d'un matériau est sa résistivité nulle (Fig.1) en dessous d'une température critique T_c qui se traduit par une transition franche du matériau d'un état normal à un état supraconducteur. L'état supraconducteur est un nouvel état de la matière, qui correspond à un arrangement particulier du système des électrons. Le franchissement de la température critique correspond à une transition de phase.

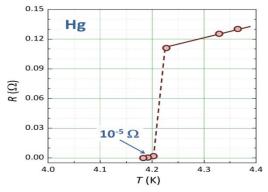


Figure1: Variation de la résistivité électrique du mercure Hg en fonction de la température ^[1].

2. Effet Meissner et Ochsenfeld ou diamagnétisme parfait :

La « deuxième signature » des matériaux supraconducteurs est leur aptitude à expulser un champ magnétique extérieur appliqué H_a (de faible amplitude), quand ils sont refroidis en dessous de leur T_c . Lorsqu'on refroidit un supraconducteur, et on lui applique un faible champ magnétique, les lignes de flux ne pénètrent pas dans le matériau. Le champ magnétique \vec{B} à l'intérieur du matériau est donc nul. Cette caractéristique appelée « effet Meissner » n'est pas une propriété d'un conducteur parfait qui est seulement caractérisé par sa résistance nulle. Meissner et Ochsenfeld^[2] ont expliqué que cette propriété des supraconducteurs est due à l'apparition des supercourants à la surface du matériau créant un flux magnétique \vec{B}_s qui s'oppose au champ magnétique extérieur suivant l'équation suivante:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H}_a + \vec{B}_s = 0 \tag{1}$$

Avec
$$\vec{B}_s = \mu_0 \vec{M}$$
 et $\vec{M} = \chi \vec{H}_a$,

L'équation (1) s'écrit :
$$\mu H_a (1 + \chi) = 0$$
 d'où $\chi = -1$ (2)

Une comparaison de comportement du supraconducteur et du conducteur parfait, en application d'un champ magnétique externe, sont présentées avec le phénomène de lévitation due à l'effet Meissner dans la (Fig. 2)

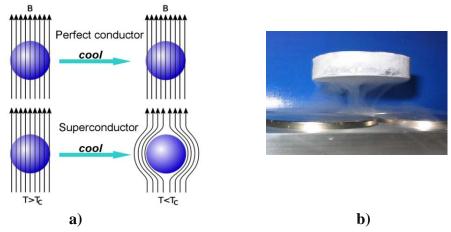


Figure 2: a) Effet Meissner dans une sphère supraconductrice refroidie dans un champ magnétique constant. **b)** Phénomène de Lévitation ^[2].

La propriété du champ critique dépend de la température et s'annule à T_c . Il suit approximativement une loi empirique en :

$$H_c(T) = H_c(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^2 \right] \tag{3}$$

La variation de $H_c(T)$ en fonction de la température est représentée dans la Fig.3.

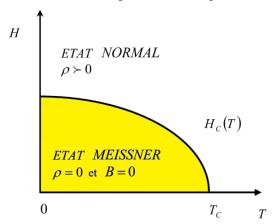


Figure 3: Variation du champ en fonction de la température $H_c(T)$, [15].

3. Grandeurs caractéristiques du supraconducteur :

Tout matériau supraconducteur est caractérisé par les grandeurs caractéristiques suivantes :

- \succ **Température critique** T_c : C'est la grandeur représentant la valeur de température au delà de laquelle la supraconductivité disparaît dans le matériau.
- \triangleright Champ magnétique critique H_c : c'est le champ magnétique maximum qu'on peut appliquer à un supraconducteur, au dessus duquel la supraconductivité disparaît et le matériau retrouve son état normal.

- **Densité de courant critique** J_c : c'est le courant maximal qu'on peut faire passer dans un supraconducteur au-delà duquel le matériau redevient un matériau normal et se met à chauffer et à résister comme tout autre métal .Elle dépend de B et de T.
- Surface critique: représentant le domaine supraconducteur tridimensionnel délimité par les trois valeurs critiques ($T < T_c$, $H < H_c$, et $J < J_c$) la Fig.4 [13].

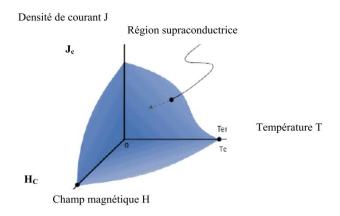


Figure 4: Illustration de la dépendance fonctionnelle de l'état supraconducteur en ce qui concerne le champ magnétique, la température et la densité de courant ^[13].

- Longueur de pénétration magnétique λ : quand un champ magnétique est appliqué à un supraconducteur, ce champ est expulsé vers l'extérieur et n'arrive à pénétrer que sur une petite épaisseur mesurée dite la longueur de pénétration.
- **Longueur de cohérence** ξ_c : c'est la taille sur laquelle s'étend la paire de Cooper ou la distance qu'il faut pour que l'onde supraconductrice se développe. C'est aussi la taille du cœur du vortex.
- Sap supraconducteur Δ : représente la différence d'énergie entre l'état supraconducteur et l'état normal. C'est l'énergie nécessaire pour passer de l'état supraconducteur à l'état normal en brisant les paires de Cooper. Elle tend vers zéro lorsque T tend vers T_c .
- Chaleur spécifique C_s : D'après Phillips et al. [14] à des basses températures et sous un champ nul, la chaleur spécifique d'un supraconducteur grimpe brusquement à Tc à une valeur maximale pour décroitre en dessous de sa valeur à l'état normal suivant une loi exponentielle $e^{(-\Delta/k_BT)}$, (fig.5).

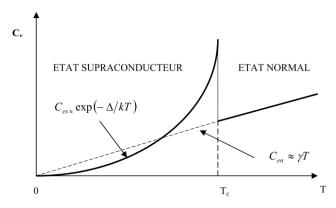


Figure 5 : Chaleur spécifique pour un métal dans un état normal et supraconducteur [14-15].

III. Classification des supraconducteurs :

Le diamagnétisme parfait n'existe qu'en dessous de certaines conditions de température et de champ magnétique. Un fort champ magnétique stabilisera l'échantillon dans son état normal. La manière dont le champ pénètre l'échantillon permet de différencier deux classes de matériaux supraconducteurs suivants :

1. Supraconducteurs de type I :

A cette catégorie I de supraconducteurs appartiennent les métaux purs (Hg, Pb, Sr,...) et les métalloïdes présentant une certaine conductivité à température ambiante. A basses températures, les vibrations moléculaires dans ces métaux sont ralenties et le flux d'électrons circule facilement sans résistance. Dans ces matériaux, la longueur de cohérence ξ_c est supérieure à la longueur de pénétration magnétique λ .

Sous l'effet d'un champ magnétique extérieur, ces composés supraconducteurs sont le siège de courants superficiels qui les rendent parfaitement diamagnétiques. Le champ magnétique est expulsé à l'extérieur par ces courants supraconducteurs circulant à la périphérie de l'échantillon et décroit exponentiellement à l'intérieur sur une longueur caractéristique λ dite longueur de pénétration de London.

Le diagramme de phases d'un supraconducteur de type I et la courbe d'aimantation en fonction de l'amplitude du champ H sont représentés dans la (fig.6). En dessous d'une valeur seuil du champ critique, $H_c(T)$, l'échantillon est dans l'état supraconducteur. Au dessus de $H_c(T)$, le matériau retrouve son état normal.

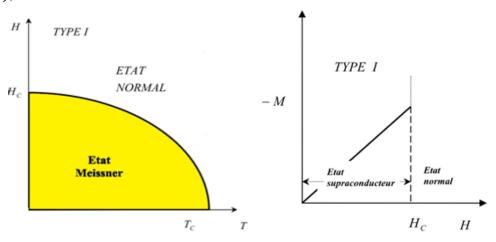


Figure 6 : Diagramme de phase et courbe d'aimantation en fonction du champ appliqué d'un supraconducteur de type I ^[15].

2. Supraconducteurs de type II :

Le type II des supraconducteurs est formé de composés métalliques, d'alliages et des éléments tels que Vanadium, Technétium et Niobium. Les matériaux de cette deuxième espèce possèdent deux champs magnétiques critiques H_{c1} et H_{c2} ; dépendant de la température. On y distingue trois états : un état normal, un état supraconducteur, et un état mixte où la phase normale coexiste avec la phase supraconductrice. En dessous de H_{c1} , le matériau est complètement à l'état supraconducteur par effet Meissner.

Lorsque le champ magnétique dépasse la première valeur critique H_{c1} , le supraconducteur se trouve dans un état mixte, caractérisé par la pénétration des lignes de

champs dans son intérieur à travers des tubes quantiques appelés vortex jusqu'à une deuxième valeur critique H_{c2} . En dessus de cette dernière valeur, le matériau retrouve son état normal dans lequel il est traversé dans sa totalité par le flux magnétique.

Dans la Fig. 7, est représenté le diagramme de phase d'un supraconducteur de type II avec deux champs critiques différents, notés H_{c1} et H_{c2} [15].

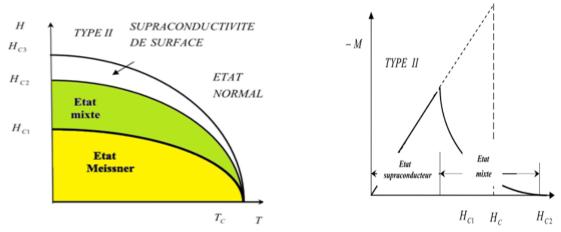


Figure 7 : Diagramme de phase et courbe d'aimantation en fonction du champ appliqué d'un supraconducteur de type II ^[15].

Les lignes de champ magnétique traversent les supraconducteurs de type II à l'état mixte, à travers des petits cylindres dont le cœur restant normal, qu'on appelle vortex. L'expulsion du flux magnétique n'est pas totale dans les supraconducteurs de type II.

3. Différenciation par les longueurs caractéristiques :

Le mécanisme de la supraconductivité dans le type I est identique à celui dans le type II. Dans les deux cas, le mécanisme est induit par une interaction attractive entre les électrons impliquant un phonon. Les deux types I et II ont des propriétés thermiques à peu près semblables lorsqu'ils effectuent la transition de l'état normal à l'état supraconducteur, en champ magnétique nul.

La différence entre les deux types de supraconducteurs est plutôt liée à deux longueurs caractéristiques d'un supraconducteur :

- \triangleright la profondeur de pénétration du champ magnétique λ
- \triangleright et la longueur de cohérence ξ .

La première provient du fait que, pour annuler l'induction magnétique B à l'intérieur d'un supraconducteur, il se produit des courants superfluides en surface. Ces courants circulent sur une épaisseur λ appelée longueur ou profondeur de pénétration du champ magnétique. Cette longueur a des valeurs comprise entre quelques nanomètres et le micron suivant les matériaux.

La longueur de cohérence ξ , est la distance sur laquelle peuvent varier les paires de Cooper. Elle a une valeur comprise entre une fraction de nm à quelques centaines de nm. Le rapport de ces deux longueurs caractéristiques est défini par le paramètre de Ginzburg-Landau $(k = \lambda / \xi)$ suivant :

- ✓ si $k < 1/\sqrt{2}$ $(\xi > \lambda)$: on a un supraconducteur de type I.
- \checkmark si $k > 1/\sqrt{2}$, $(\xi < \lambda)$: on a un supraconducteur de type II.

IV. Les grandes théories de la supraconductivité :

1. Le modèle à deux fluides :

La première description des supraconducteurs couronnée de succès fut le modèle à deux fluides, développé par Görter et Casimir en 1934. Selon le modèle à deux fluides, un supraconducteur se comporte comme s'il contenait des électrons de deux types différents : des électrons normaux, dont le comportement ressemble à celui des électrons dans les métaux normaux, et les supra-électrons qui possèdent des caractéristiques inhabituelles [3].

Les deux types d'électrons transportent du courant: les électrons normaux avec résistance et les supra-électrons sans résistance. Les électrons normaux transportent de la chaleur, mais le superfluide, supposé être parfaitement ordonné, n'a pas d'entropie et ne peut pas transporter de la chaleur.

Lorsque l'on passe au-dessous de la température critique T_c , la densité de superfluide n_s est supposée augmenter depuis zéro tandis que la densité de fluide normal n_n chute.

Cette description à deux fluides relativement simple fournit une base physique à la compréhension de la supraconductivité et subsiste dans une certaine mesure dans la théorie microscopique moderne BCS.

2. Théorie de Ginzburg-Landau :

La théorie de Ginzburg et Landau (G-L) est la première approche phénoménologique et macroscopique de la supraconductivité. Basée sur la théorie des transitions de phase de Landau, elle décrit la transition SC.

Dans cette approche, l'état SC est considéré comme un condensat d'électrons appariés, sans friction. Ces électrons sont décrits par une fonction d'onde macroscopique ψ qui s'annule pour T > Tc. Cette fonction d'onde complexe est le paramètre d'ordre de la phase SC ayant une amplitude et une phase bien définies. Dans l'état supraconducteur, les électrons sont décrits par une fonction d'onde macroscopique:

$$\psi = \sqrt{n_s} e^{i\Phi} \tag{4}$$

Elle décrit la cohérence de phase de toutes les paires des électrons SC. Au voisinage de la transition SC, l'amplitude du paramètre d'ordre $\psi(r)$ varie peu spatialement et l'énergie libre peut donc être développée en puissance de ce dernier. Le module $|\psi(r)|^2$ est directement relié à la densité d'électrons supraconducteurs $|\psi(r)|^2 = n_s$, où n_s est la densité locale des électrons supraconducteurs.

Dans cette théorie, on développe la déférence de densité d'énergie libre entre la phase supraconductrice (F_s) et la phase normale (F_n) en fonction des deux premiers termes pairs du développement de Taylor d'un paramètre d'ordre $\psi(\vec{r})$. Pour la transition supraconductrice, la norme du paramètre d'ordre représente la densité d'électrons condensés.

L'énergie libre de Ginzburg-Landau dans l'état supraconducteur à $\sim T_c$, s'écrit :

$$F_{s} = F_{n} + \int_{V} \left[\alpha(T) |\psi(r)|^{2} + \frac{\beta(T)}{2} |\psi(r)|^{4} + \frac{1}{2m^{*}} \left| \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - e^{*} A \right) \psi(r) \right|^{2} + \frac{B^{2}}{2\mu_{0}} \right] d^{3}r$$
 (5)

Où F_n est l'énergie libre dans l'état normal, V est le volume considéré, m^* et e^* sont respectivement la masse et la charge des porteurs $(e^* = 2e)$, A est le potentiel vecteur et B est l'induction magnétique locale. Cette formule fait aussi apparaître deux constantes phénoménologiques dépendantes à priori de la température, $\alpha(T)$ et $\beta(T)$.

Le système de G-L amène à définir deux longueurs caractéristiques : la longueur de cohérence de Ginzburg-Landau ξ_{GL} , qui représente l'échelle de longueur des variations spatiales du paramètre d'ordre, soit la plus courte distance sur laquelle ψ peut s'annuler, et la longueur de pénétration de Ginzburg-Landau λ_{GL} , donnant quand à elle l'échelle de distance des variations spatiales du potentiel vecteur \vec{A} , donc de l'induction magnétique locale \vec{B} (Figure 8).

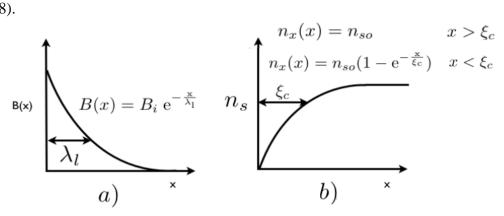


Figure 8 : Schéma de la longueur de pénétration du champ magnétique λ_L et de la longueur de cohérence ξ_c [16-17].

3. La théorie microscopique BCS:

La théorie de Landau étant une description complètement phénoménologique de la supraconductivité, n'a pas permis de résoudre complètement l'énigme de la supraconductivité conventionnelle. Electivement, il était impossible de comprendre le processus microscopique qui permettait de cerner l'origine de la condensation d'électrons en paires de Cooper. De plus, elle ne permit pas de comprendre la présence d'un gap d'énergie 2Δ dans le spectre d'excitation des électrons supraconducteurs tel que vu par exemple, par l'effet tunnel [18].

La solution vint dans les années 50, lorsque la théorie BCS $^{[19]}$ fut développée grâce à la seconde quantification et la description physique des états cohérents. La première piste de solution vint de L. Cooper $^{[20]}$, qui montra la possibilité d'obtenir un état lié pour deux électrons libres en présence d'une mer de Fermi et d'une interaction attractive non nulle. Cette solution permit d'obtenir, pour la première fois, la présence d'un gap d'énergie Δ autour de la surface de Fermi.

La théorie BCS a élaborée par trois physiciens américains Bardeen, Cooper et Schrieffer en 1957. Elle est la première théorie microscopique expliquant le mécanisme d'appariement des électrons qui induit la SC et s'applique particulièrement aux supraconducteurs conventionnels [3].

Elle repose sur le modèle du liquide de Fermi où les électrons sont en interaction par un potentiel attractif, illustré dans la fig.9. L'interaction entre les électrons et les modes de vibration du réseau cristallin (phonons) et susceptible d'engendrer un tel potentiel.

Figure 9 : le mécanisme d'appariement des électrons supraconducteurs par des phonons selon la théorie BCS et formation de paire de Cooper ^[8].

Un premier électron polarise le milieu en attirant les ions positifs environnants, cet excès local de charge attire à son tour un second électron. Si cette interaction est suffisamment forte pour surpasser l'interaction répulsive Coulombienne, il en résulte une attraction effective $e^* = 2e$. Cette entité constitue un état singulet de spin, c'est à dire deux particules de charges égales avec des moments de spin égaux mais de vecteurs d'onde opposés $\{\vec{k}\uparrow; -\vec{k}\downarrow\}$. Une paire de Cooper est assimilable à un boson, la supraconductivité s'apparente à une condensation de Bose-Einstein de paire de Cooper dans un seul niveau d'énergie.

L'état supraconducteur peut passer à l'état normal, soit en brisant les paires de Cooper, (la densité superfluide, tend vers zéro), soit par la présence d'hétérogénéités spatiales qui entrainent une perte de la cohérence de phase des paires de Cooper. La formation des paires fait apparaître un gap d'énergie au voisinage du niveau de Fermi à $T < T_c$. Dans une approximation de champ moyen et de couplage électron-phonon faible, il a été montré que le gap SC à température critique vérifie : $\Delta_0 = 1.76. \, k_B. \, T_c$.

Il y'a lieu de noter que la théorie BCS reste limitée aux premiers supraconducteurs et ne trouve pas son application dans le cas des supraconducteurs à haute température critique « SHTc », tels que les cuprates ou les pnictures dont le principe suit un appariement des électrons plutôt à des fluctuations orbitales et électroniques.

4. Modèle de Meissner adapté par London :

Les frères F. et H. London commencèrent avec l'idée qu'il était nécessaire de modifier les équations électrodynamiques usuelles afin de parvenir à décrire l'effet Meissner [4]; les équations de Maxwell demeurent cependant toujours valides.

C'était donc la loi d'Ohm qui devait être modifiée et pour ce faire, ils travaillèrent avec le modèle à deux fluides dont le principe est basé sur les électrons de conduction à l'état normal n_n et les électrons supraconducteurs n_s (avec n la densité totale des électrons en conduction $n = n_n + n_s$).

L'état supraconducteur est généralement décrit par un modèle deux fluides : une partie des électrons sont supraconducteurs (appariés) et les électrons excités thermiquement au dessus du gap sont normaux (désappariés, comme à l'état normal). A température nulle, tous les électrons sont appariés et la densité superfluide n_s est maximale. Elle diminue ensuite avec la température, ainsi la densité d'électrons "normaux" (non appariés) $n_n = n_s(0) - n_s$ devient non nulle, jusqu'à la température critique T_c , où la densité superfluide tombe à zéro tandis que le gap s'annule.

Les électrons supraconducteurs ne sont diffusés ni par les impuretés ni par les phonons et ne contribuent donc pas à la résistivité. Ils sont accélérés librement par un champ électrique avec une vitesse v_s . L'équation du mouvement peut-être écrite comme :

$$m \frac{dv_s}{dt} = e E (6)$$

La densité de courant supraconducteur est définie par :

$$J = n_{\rm s} e \, v_{\rm s} \tag{7}$$

La variation de courant obéit à l'équation suivante :

$$\frac{dJ}{dt} = n_s e^2 E/m \tag{8}$$

En substituant l'induction magnétique B dans l'équation de Maxwell :

$$rot E = \mu_0 \frac{\partial H}{\partial t}$$

On obtient:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(rot J + \frac{\mu_0 n_s e^2}{m} H \right) = 0 \qquad (9)$$

En intégrant l'équation (9), les frères London ont obtenu l'expression particulière suivante ne dépendant pas de temps:

$$rot J + \frac{\mu_0 n_s e^2}{m} H = 0$$
 (10)

Cette équation de London décrit l'électrodynamique d'un supraconducteur. La solution définitive a abouti à la formulation de la longueur de pénétration magnétique de London :

$$\lambda^2 = \frac{m}{\mu_0 n_s e^2} \tag{11}$$

Si on considère un supraconducteur infini et uniforme dans la région X > 0 et si on applique un champ magnétique H_o parallèle à la surface. Le champ à l'intérieur du supraconducteur est donné par une solution de cette équation:

$$H = H_0 \exp\left(-\frac{X}{\lambda}\right) \tag{12}$$

Le champ magnétique décroît exponentiellement à l'intérieur du supraconducteur sur une longueur, alors que la densité des électrons supraconducteurs n_s augmente.

Dans les approches expérimentales, on retient souvent de la variation relative $\Delta \lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ ou de l'expression suivante:

$$\left[\frac{\lambda(T)}{\lambda(0)}\right]^2 = \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^4\right]^{-1} \tag{13}$$

Où $\lambda(0)$ est la longueur de pénétration à T = 0 K.

V. Gap supraconducteur:

Dans les supraconducteurs conventionnels, plus T_c est grande, plus le gap est grand. Ce dernier reste uniforme dans toutes les directions, on dit qu'il est « isotrope ». Il existe une relation simple entre le gap à température nulle $\Delta(0)$ et à température critique supraconductrice : $\Delta_{BCS}(T=0) \approx 1,76~k~T_c$, avec k la constante de Boltzmann. Sa valeur tend vers zéro lorsque T tend vers T_c .

Pour les métaux et alliages simples, la supraconductivité est expliquée par un mécanisme d'attraction entre électrons à travers les phonons qui admet un gap d'énergie Δ (ou une fonction d'onde) avec une phase et une amplitude constante pour toutes les directions dans l'espace réciproque (symétrie "s").

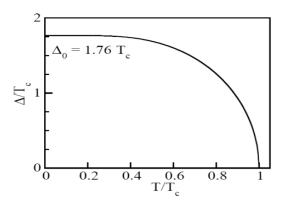


Figure 10 : Dépendance en température du gap supraconducteur dans la théorie BCS couplage faible [16].

Dans les supraconducteurs non conventionnels comme les cuprates, les pnictures et les fermions lourds, le gap peut être anisotrope et présenter des symétries aux formes les plus variées. Un descriptif détaillé concernant la classification et les types de symétrie du gap supraconducteur est donné dans l'article de référence [16].

Nous pouvons retenir que pour les cuprates, le gap Δ (ou la fonction d'onde supraconductrice) possède une symétrie de type "d", telle que représentée dans la figure11. Cette brisure de symétrie imposerait par conséquent des nœuds où le gap supraconducteur s'annulerait pour certaines directions privilégiées par rapport aux axes cristallins. Dans la symétrie "d", il existe une différence de phase de π entre l'axe a et l'axe b du cristal.

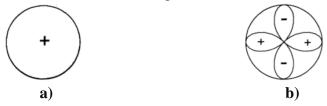


Figure 11: a) Symétrie 's' du gap supraconducteur suivant la théorie BCS et **b**) Symétrie 'd' du gap supraconducteur présentant des nœuds suivant la théorie des ondes de spin [17].

La symétrie d proviendrait du mécanisme d'attraction entre électrons impliquant des fluctuations magnétiques et fortement conditionnée par la présence d'une forte répulsion colombienne favorisant des symétries d'états liés déférentes de la symétrie "s" usuelle [21].

Cette interaction magnétique, de phase différente pour les paires d'électrons séparés d'une rotation de 90° dans l'espace réciproque, est schématisée dans la Figure 12.

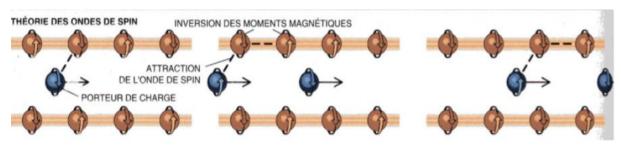


Figure 12: Mécanisme physique de l'appariement des électrons supraconducteurs pour la théorie des ondes de spin ^[17].

التاهافلان يُخِذُ التاليان التاهافيان التاها

لَقَدُ أَرْسَلْنَا رُسُلْنَا بِالْبَيِّنَتِ وَأَنزَلْنَا مَعَهُمُ الْكِئَلَبِ
وَالْمِيزَاتَ لِيَقُومَ النَّاسُ بِالْقِسْطِ وَأَنزَلْنَا الْحَدِيدَ فِيهِ
بَأْسُ شَدِيدٌ وَمَنفِعُ لِلنَّاسِ وَلِيَعْلَمَ اللَّهُ مَن يَصُرُهُ, وَرُسُلَهُ,
بِالْغَيْبِ إِنَّ اللَّهُ قَوِئُ عَزِيزٌ (و) وَلَقَدْ أَرْسَلْنَا فُوحًا وَإِبْرَهِيمَ
وَجَعَلْنَا فِي ذُرِيَّتِهِمَ اللَّهُ وَوَلُكِتَبَ فَمِتْهُم مُعْمَدٍ وَجَعَلْنَا فِي ذُرِيَّتِهِمَ اللَّهُ عَوْنَ () مُ مَّ قَفَيْنَا عَلَى الْمَانِ فَمِ اللَّهُ عَلَيْهِ وَكُلُومِيمَ
وَجَعَلْنَا فِي فُلُوبِ اللَّهِ عَنْ اللَّهُ عَلَيْهُم مُنْ اللَّهُ عَلَيْهِ اللَّهُ عَلَيْهُم أَلَيْ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْ وَاللَّهُ عَلَيْهُم مُنْ اللَّهُ عَلَيْهِ وَكَلِيلُ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهِ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهِ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهِ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ وَا اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُم اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهِ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُ عَلَيْهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ اللَّهُ عَلَيْهُ اللَّهُ اللَّهُ

« Et Nous avons fait descendre le fer, dans lequel il y a une force redoutable, mais aussi maintes utilités pour les gens. »

(Extrait de la traduction du Coran 57:25)

CHAPITRE II : LES MATÉRIAUX SUPRACONDUCTEURS À BASE DE FER.

I. INTRODUCTION:

Vingt ans après la découverte des cuprates, premiers supraconducteurs à haute température critique « SHTc », la mise en œuvre d'une nouvelle famille de supraconducteurs à base de fer par M.Hosono^[12] de l'Institut de Technologie de Tokyo, a relancé la recherche sur ce phénomène mal compris. Ils cherchaient un semi-conducteur transparent pour des écrans plats et au lieu de cela, ils découvrirent le premier composé à base de fer, appelé pnicture de fer, LaOFeP (1111) qui se révèle supraconducteur en remplaçant une partie des atomes d'oxygène par des atomes de fluor, à une température critique de transition de 7 K (ou –266 °C).

En 2008, ce groupe a substitué le phosphore P par l'arsenic As, le seuil de la supraconductivité est passé à 26 K, avec une concentration de dopage en fluor de x=0.11dans le $LaO_{1-x}F_xFeAs$ [22].

Cette température suffisamment élevée a attiré l'attention des physiciens du reste du monde et a relancé la recherche intensive dans ces nouveaux matériaux à base de fer. Avant fin mars 2008, des équipes chinoises disposaient déjà de composés similaires avec une température critique de transition supraconductrice juste au-dessus de 40 K. Un mois plus tard, la température critique était montée à 56 K dans le $SmO_{1-x}F_xFeAs$ [23] qui est considéré à ce jour la pnicture de fer ayant la plus grande température critique pour un dopage en fluor x=0.1. Cette ruée à la découverte des pnictures a donné lieu à la publication de milliers d'articles et à une littérature scientifique abondante.

Le vif intérêt, que porte la communauté scientifique à cette nouvelle famille des supraconducteurs à base de fer, est du aux raisons suivantes :

- la présence d'atomes de fer est en elle-même une surprise, le fer produisant habituellement des phases magnétiquement ordonnées incompatibles avec la supraconductivité.
- ces systèmes ressemblent aux cuprates, de par leur structure cristallographique et leurs diagrammes de phases, mais ils semblent moins corrélés et plus métalliques. Cela pourrait donc remettre en question une explication de la supraconductivité à partir d'un scénario à fort couplage entre les électrons.
- la grande complexité de la surface de Fermi de ces supraconducteurs au Fer a introduit un nouvel ingrédient qui leur confère une vraie originalité.
- ➤ de point de vue industriel, la nature métallique de ces nouveaux composés et leurs champs critiques élevés pourraient aider à la conception des câbles, de nouveaux composants plus faciles qu'avec les cuprates.
- les pnictures de fer sont des métaux présentant un ordre antiferromagnétique caractérisé par une onde de densité de spin en dessous de la température de Néel (T_N), alors que les premiers supraconducteurs à haute température critique (nommés SHTc) les cuprates sont, à l'état fondamental, des isolants de Mott-Hubbard avec un ordre antiferromagnétique. Dans ces deux familles règne un ordre antiferromagnétique : ceci pourrait indiquer le rôle du magnétisme dans le mécanisme de couplage des électrons dans la supraconductivité à haute température critique.
- Les nouveaux composés au fer ont brisé le monopole des cuprates sur la supraconductivité à haute température SHTc, dont les propriétés physiques, à des températures critiques élevées ne sont pas à ce jour élucidées. Armés de deux différents types de supraconducteurs, les chercheurs espèrent pouvoir comparer et découvrir des indices essentiels sur la nature de la supraconductivité à haute température.
- ➤ les pnictures sont plus prometteurs: ils présentent de bonnes propriétés mécaniques et leur supraconductivité résiste à de forts champs magnétiques et peuvent conduire des courants électriques intenses. Ce qui pourrait donner lieu à de multiples et diverses applications.

Les composés de la famille des pnictures présentent une phase antiferromagnétique (AF) apparaissant en dessous de la température de transition de Néel (T_N). Quand le système est déstabilisé par plusieurs moyens que nous préciserons ci-dessous, cet ordre magnétique à grande distance laisse place à une phase supraconductrice (SC) apparaissant en dessous d'une température appelée température critique (T_c). Pourtant, des différences importantes existent entre les familles des supraconducteurs à base de fer, que ce soit la nature de la phase AF, ou de la phase SC, ou de la phase métallique à haute température, mais aussi la façon dont la première phase de transition laisse place à la seconde. Ces similitudes et différences soulèvent plusieurs questions fondamentales et transversales à l'ensemble des supraconducteurs non conventionnels.

Nous savons que l'état quantique supraconducteur résulte, suivant la théorie BCS, d'une interaction entre des électrons, sans aucune médiation par les phonons. L'existence systématique d'une phase AF à proximité de celle SC laisse penser que les fluctuations magnétiques de spin pourraient jouer un rôle dans cette médiation, mais aucun consensus n'a permis de s'accorder à ce jour sur le mécanisme exact d'appariement. La nature de l'état magnétique pose toujours la question sur l'importance des corrélations électroniques dans le

cas des supraconducteurs à base de fer qui semble moins marquée que dans le cas des cuprates. L'état normal, considéré très exotique dans les cuprates notamment avec la présence d'un pseudogap, semble plus conventionnel dans les supraconducteurs en fer.

Les supraconducteurs à base de fer posent donc plusieurs questions qui touchent indirectement l'ensemble des supraconducteurs non conventionnels, tels que le mécanisme menant à la supraconductivité, le rôle du magnétisme, les conditions d'apparition de la supraconductivité, le lien avec la phase antiferromagnétique, la coexistence et/ou la compétitivité de l'antiferromagnétisme et de la supraconductivité, l'importance des corrélations électroniques et leur rôle dans les différentes zones du diagramme de phase.

Peut-être que la compréhension de ces nouveaux supraconducteurs à base de Fer, permettrait de proposer un cadre universel pour élucider le mécanisme des différents supraconducteurs exotiques. Bien que la plus part des familles des supraconducteurs au fer présentent le diagramme de phase générique, qui sera présenté ci-après, quelques exceptions remettent en question même la description universelle de la supraconductivité.

Dans le but d'étudier les propriétés physiques et de déceler les variations des paramètres dans les pnictures de fer à basse température, nous avons sélectionné des échantillons de la troisième famille des pnictures 122, classés suivant leur concentration en Ni en: sousdopés (7%), optimalement dopés (10%) et surdopés (12%).

Dans la figure 1, sont représentés les différents types de familles supraconducteurs qui ont été mis en œuvre et étudiés depuis un siècle environ par des imminents chercheurs. Les supraconducteurs à base de fer sont les plus récents, dont la diversité des structures cristallines, la structure de bandes, les phases de transitions, l'ordre antiferromagnétique... constituent des particularités spécifiques.

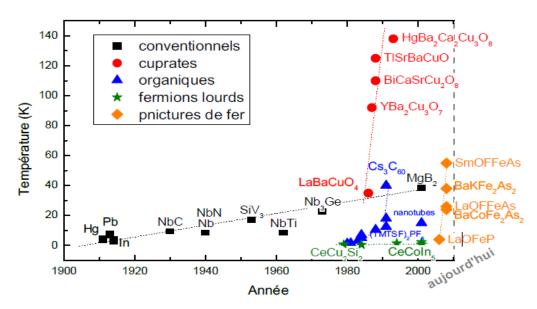


Figure 1 : Evolution de la température critique des composés supraconducteurs découverts en fonction des années [24].

Aujourd'hui, les questions fondamentales posées par ces matériaux n'ont pas encore toutes trouvé de réponses, mais elles ont permis de réaliser de nombreuses découvertes et avancées autant théoriques qu'expérimentales.

II. Les différentes familles de supraconducteurs à base de Fer :

L'élément principal de ces pnictures est évidement l'atome Fer. Le Fe est considéré comme la clé fondamentale du phénomène de supraconductivité observé dans ces matériaux. Les pnictures sont des composés d'éléments de la quinzième colonne du tableau périodique (N, P, As, Sb, Bi).

Nous présenterons les 5 familles des pnictures, leurs structures cristallines, le diagramme de phase générique, ainsi que les similarités et les particularités que présentent les diagrammes de phases de ces familles entre elles et avec les cuprates. En plus, nous montrerons les caractéristiques physiques des différentes phases rencontrées dans l'état normal, les transitions magnétique, structurale, et supraconductrice [25-26-34].

1. Les types de familles des composés à base de fer:

Les structures cristallines des cinq familles, représentées dans la figure 2, possèdent toutes en commun la présence de « plans » atomiques régulièrement espacés selon l'axe c et arrangés périodiquement suivant les axes a et b dans une structure où un atome M (M= Métal, Fe quand la structure n'est pas dopée)) est en coordination tétraédrique avec 4 atomes X (X=Pnictogène (P, As, Sb) ou Chalcogène (S, Se,Te)). Les structures cristallines variables qui séparent ces plans atomiques « MX » sont à l'origine de la classification de ces différentes familles de supraconducteurs à base de Fe dont le nom provient de manière corrélée des formules chimiques des composés et des stœchiométries respectives des différents éléments constitutifs.

On distingue alors : la 1^{ere} famille 11 (ex : FeSe, FeTe), la 2^{éme} famille 111 (ex : LiFeAs, NaFeAs), la 3^{éme} famille 122 (ex : BaFe₂As₂, SrFe₂As₂), la 4^{éme} famille 1111 (ex : LaOFeAs, SrFFeAs), et la 5^{éme} famille à « larges plans séparateurs » ; qui regroupe des composés dont la stœchiométrie des éléments constitutifs est variable et qui se caractérisent par une épaisseur prononcée des structures séparatrices des plans MX suivant l'axe c. Exemple : Sr₃Sc₂O₅Fe₂As₂, Sr₂ScO₃FeAs et le Sr₂VO₃FeAs.

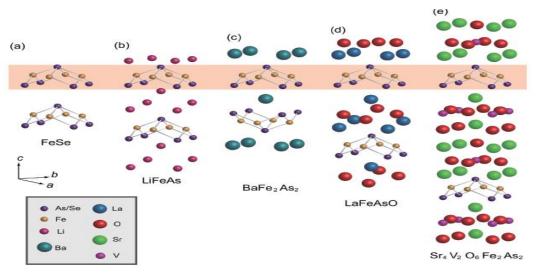


Figure 2 : Structures cristallines des 5 familles des matériaux supraconducteurs à base de Fe, dont les plans « MX » (FeAs) sont représentés en rouge; (d'après Paglione et al. [25]).

2. Structures cristallines des pnictures:

La structure cristalline des composés supraconducteurs à base de fer est formée de blocs Fer-Arsenic, appelés des tétrahèdres FeAs₄. Les structures des différentes familles sont formées d'alternance de couches quasi-2D de fer-Arsenic et de couches entretoise appelés « blocking layers » (Fig 3).

A température ambiante, les structures cristallines sont toutes tétragonales, de symétrie 4/mmm, c'est-à-dire que la maille est un parallélépipède rectangle à base carré. Les paramètres de maille dans les trois directions de l'espace a, b et c, sont repérés par un repère orthonormé (a,b,c), avec $a=b\neq c$. Quand le système est refroidi, le réseau connait une distorsion orthorhombique. La maille devient alors un parallélépipède à base rectangle avec $a\neq b\neq c$. L'ingrédient clé dans les composés à base de fer, dans cette distorsion, est le carré d'atomes de fer.

La stoechiométrie, dans les familles à base de fer, donne une à deux couches FeAs séparées par une couche de lithium Li, de barium Ba, de lantharne et d'oxygène, ou une couche composée pour la famille 5. La forme du tétrahédre FeAs₄ en fonction de température T_c a été discutée dans les travaux d'Ishida et al ^[26], mais elle a été exclue comme une tendance générale par Johnson et al. ^[27].

La figure 3 représente les differents composés supraconducteurs à base de fer avec leur températures critiques les plus élevées à pression ambiante. Un catalogue des pnictures en fonction des températures critiques élevées a été également dressé par Lumsden et Christianson^[28]).

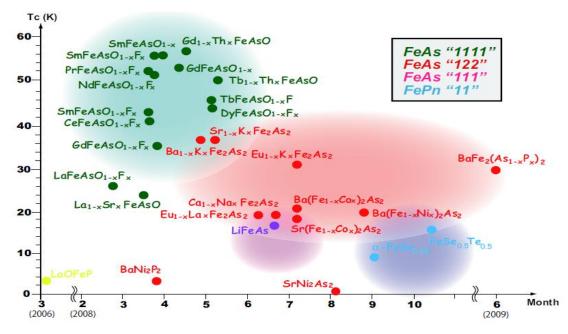


Figure 3 : Représentation des températures critiques maximales des differents composés à base de fer [29].

Un fait intéressant des supraconducteurs à base de Fe est la grande variété de transitions observée dans le diagramme de phase de chaque famille. En effet, cette grande variété est obtenue en jouant sur des paramètres aussi divers tels que les substitutions hétérovalentes/isovalentes réalisées interplan/intraplan, ainsi que la pression hydrostatique/uniaxiale, au sein d'un même composé.

La Figure 4 indique la base de maille en fer et la projection 3D des positions des atomes As par rapport aux plans constitués des atomes de fer, pour l'exemple de BaFe₂As₂ (famille 122). Pour ce composé, le diagramme de phase qualitativement similaire peut être obtenu par des substitutions hétérovalentes-intraplan (Fe/Co), hétérovalentes-interplan (Ba/K), isovalentes-intraplan (As/P), ou par application de pression dans divers types de cellules.

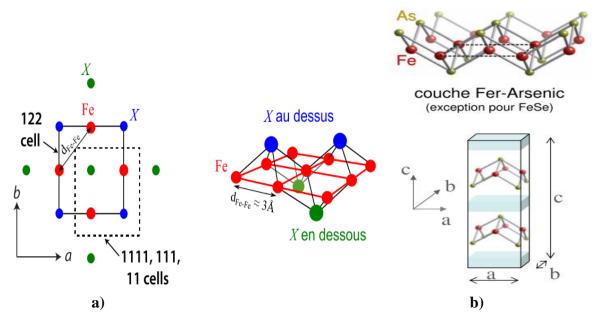


Figure 4 : a) Bases des mailles à 2 Fe des composés 122 (traits plein) et 11, 111, 1111 (pointillés) [27]. **b)** Projection 3D des positions des atomes X (As ou Se) par rapport aux plans Fe [30].

La Figure 5 présente la projection de la maille unitaire sur un plan Fe, cette maille appelée « maille à 2 Fe ». On voit que les atomes X sont placés tour à tour au-dessus et en dessous des plans à base de Fe.

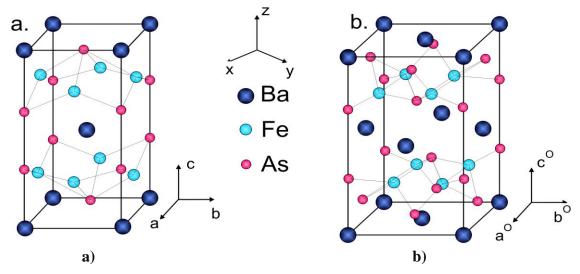


Figure 5: a). Structure cristallographique de BaFe₂As₂ dans la phase tétragonale. **b).** Structure cristallographique de BaFe₂As₂ dans la phase orthorhombique ^[33].

Pour certaines gammes de dopages, le système subit une transition structurale à la température T_S vers une phase orthorhombique du groupe d'espace Fmmm (figure 5). Cette transition structurale est suivie par la transition magnétique à la température T_N . La maille

orthorhombique est face-centrée, et elle est décrite dans une base tournée de 45° par rapport à la maille tétragonale. Il y a donc quatre nœuds par maille et une seule entité $BaFe_2As_2$ par nœud. La représentation de la maille élémentaire tétragonale non-primitive est donnée en figure 5a, et la maille élémentaire orthorhombique après la transition structurale est donnée dans la figure 5b.

Le composé Ba-122 présente une maille tétragonale ayant 1 Fe/maille, de hauteur c /2, présentée en rouge sur la figure 6. Lorsque l'alternance des atomes d'As au-dessus et au-dessous des plans des atomes de Fe est prise en compte, la maille élémentaire de ces composés comporte non plus un atome de fer par maille, mais deux. La maille est appelée, dans ce cas, 'body-centred'. Le dédoublement de la maille élémentaire implique un repliement de la première zone de Brillouin dans l'espace réciproque, alors deux fois plus petite. La figure 6 reporte la projection des représentations dans le plan des atomes de fer, et la disposition des spins anti-ferromagnétique dans le carré de Fe.

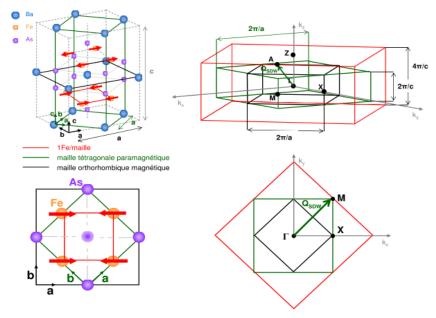


Figure 6 : Représentation cristallographique : Mailles cristallines avec 1Fe/maille (en rouge), tétragonale paramagnétique (en vert), orthorhombique magnétique (en noir) et projection dans le plan des atomes de Fe. Premières zones de Brillouin associées et projection dans le plan $(k_x, k_y)^{[31]}$.

En dessous de la température de transition magnétique T_N , un ordre antiferromagnétique s'établit dans le composé, que nous allons détailler dans le paragraphe § IV relatif à la transition structurale et magnétique.

3. Synthèse des échantillons BaFe₂As₂:

La synthèse de nos échantillons de mesures $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$ a été réalisé dans le Laboratoire Chinois de Pékin par la méthode de croissance d'auto-flux. Les éléments chimiques du composé sont dissous dans un solvant appelé flux, composé de FeAs, qui n'introduit pas d'autres éléments chimiques. Les réactifs de départ (le barium Ba, et les composés FeAs et NiAs) sont de haute pureté. Ils sont mélangés avec un ratio molaire 1:(4-x):x, puis chargés dans des creusets d'alumine, dont la réactivité avec les réactifs utilisés est très faible. Ils sont ensuite scellés dans des tubes de quartz sous vide et portés à une température 1180° C pendant 4 heures. Puis, ils sont lentement refroidis à 1000° C à vitesse de

5°C/heure puis à température ambiante par pas de 200°C/heure. Ce processus permet d'induire la cristallisation de ces mélanges.

La méthode d'auto-flux permet d'obtenir des échantillons monocristallins qui sont extraits, à la fin, mécaniquement du flux solide. Il s'agit des petits carrés lamellaires de 1 à 3 mm de large et de $200~\mu m$ d'épaisseur, sous forme de feuillets entassés. Les bords de ces feuillets correspondent à des liaisons Fe-As, et sont facilement orientés dans le monocristal suivant les axes a, b et c (figure 7).

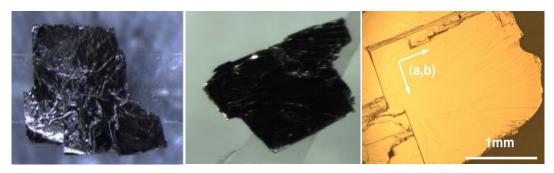


Figure 7: Structure lamellaire des monocristaux BaFe₂As₂ [32].

De sérieuses précautions sont prises dans la manipulation de ce mélange, afin d'éviter la toxicité de l'As.

4. Comparaison avec les cuprates :

Les premières études ont montré des analogies entre les deux familles de matériaux, notamment au niveau de leur structure lamellaire. Les cuprates possèdent des plans de cuivre et d'oxygène ou l'élément principale est le cuivre (Cu²⁺), les pnictures de fer, eux, possèdent des plans de fer et d'arsenic où l'élément clé est le fer (Fe³⁺) (figure 8).

De nombreuses différences ont été mises en évidence et confirment que plusieurs électrons du fer appartenant à des orbites différentes contribuent à la supraconductivité et au magnétisme dans les pnictures, alors qu'un seul électron semblait compter dans les cuprates. Dans ces deux familles règne un ordre antiferromagnétique à proximité de la phase supraconductrice, qui pourrait indiquer un rôle du magnétisme dans le mécanisme de couplage des électrons dans la supraconductivité à haute température critique.

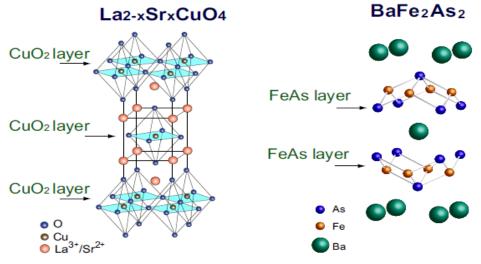


Figure 8 : Comparaison entre Cu-oxides et les Fe-pnictides (d'après Sadowskii [33]).

La nature de la supraconductivité et du magnétisme observés dans les pnictides est différente de celle des cuprates à HTSc. Contrairement aux cuprates, la supraconductivité des pnictures semble moins piégée dans les plans et bien plus libre tridimensionnellement. Son origine pourrait être liée au magnétisme des électrons des atomes de Fe.

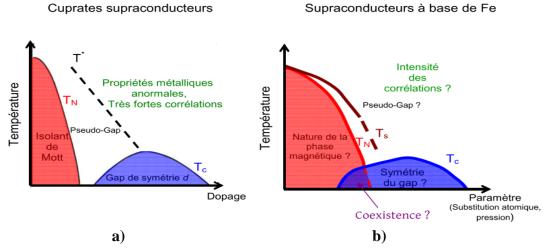


Figure 9: Comparaison des deux SHTc : **a**) diagramme de phase des cuprates supraconducteurs et **b**). Diagramme de phase des supraconducteurs à base de Fe ^[43].

5. Diagramme générique pour les composés BaFe₂As₂:

Le composé BaFe₂As₂ est le composé « parent» à x=0 (sans substitution atomique ou sans application de pression). Il présente une transition structurale et magnétique simultanée à la température $T_S \sim T_N \sim 140~K$, représentée dans les courbes de mesure de résistivité des échantillons BaFe_{2-x}Co_xAs₂, figure 10.

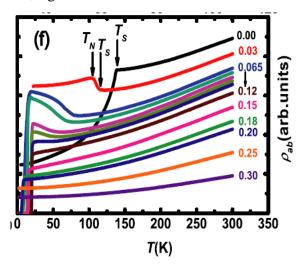


Figure 10 : Dépendance de la résistivité du BaFe_{2-x}Co_xAs₂ en fonction de la température et du dopage par électrons en Co $^{[34]}$. Dopage variant entre 0,03 et 0,3.

En jouant sur un paramètre comme la substitution atomique ou l'application de pression, les températures de transitions structurale et magnétique se séparent de telle sorte que la phase T_S prècède la phase magnétique T_N (avec toujours $T_S \ge T_N$). La transition supraconductrice est induite, après, dès atteinte de la température critique T_C .

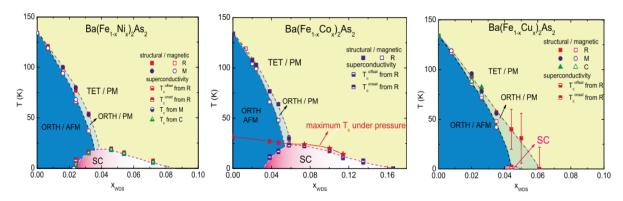


Figure 11 : Diagrammes de phases génériques des échantillons de la famille BaFe₂As₂, dopés en Nickel (Ni), en Cobalt (Co), et Cu (Extrait de la présentation L.Chauvière ^[35]).

Dans les diagrammes de phase représentés dans la figure 11, nous observons des zones dans trois composés la famille BaFe₂As₂ en fonction de dopage : tetragonale /paramagnétique, orthorhombique/antiferromagnétique, supraconductrice, de coexistence de l'état magnétique avec l'état supraconducteur, et une zone incommensurable (orthorhombique/paramagnétique).

Quand des échantillons sousdopés de cette famille sont refroidis, ils montrent d'abord une distorsion orthorhombique à la température de transition structurale T_s , puis une onde de densité de spin (ODS) en dessous de T_N et à la fin une transition à l'état supraconducteur SC à la température critique T_c . Le dopage en électrons par substitution de Cu en site Fe montre une très petite zone SC (voir figure 11) [40].

Dans la figure 12, sont représentés des diagrammes de phases indiquant des mesures réalisées récemment par les équipes chinoises sur des échantillons BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ (identiques à ceux que nous avons étudiés en radio et hyperfréquences) à différentes concentrations du dopant Ni ^[36-37].

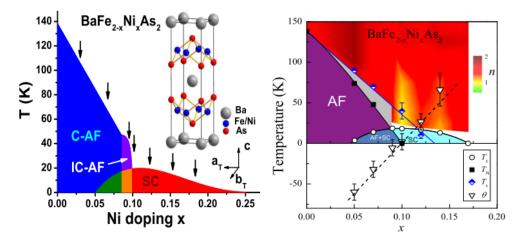


Figure 12 : a) Représentation de diagramme de phase et de la structure cristalline du BaFe_{2-x}Ni_xAs₂. Les flèches indiquent sept niveaux de dopage étudiés expérimentalement ^[36]. **b)** Diagramme de phase de BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ ^[37].

Tous les composés à base de fer, à l'exception du $FeSe_{1-x}Te_x$, ont des diagrammes de phase présentant une région de coexistence simultanée du magnétisme et de la supraconductivité. L'état normal est caractérisé par un état électronique observé à des températures en dessus de T_c .

6. Les paramètres d'influence sur du diagramme de phases :

Les composés parents des supraconducteurs à base de Fe peuvent être affectés de multiples façons et mener à la phase SC à travers un diagramme de phase soit par : le dopage en porteurs de charges ou par application de la pression, tels que représentés dans la fig.13.

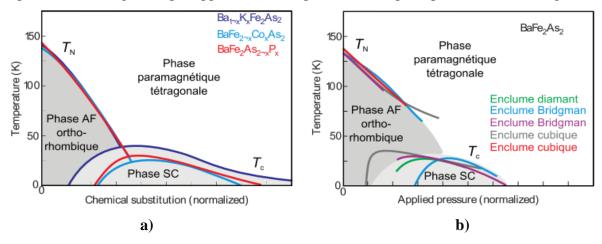


Figure 13: Diagrammes de phases obtenus dans la famille 122 (exemple de $BaFe_2As_2$) par différents moyens : **a**) Dopage hétérovalent /isovalent en site hors/intra plan et **b**) Application de pression. Les axes des abscisses ont été normalisées afin que la courbe des transitons AF (T_N) se superposent ^[26].

Ces diagrammes de phase ont été obtenus par des substitutions hétérovalentes intraplan (Fe/Co), hétérovalentes interplan (Ba/K), isovalentes intraplan (As/P) et par application de pression dans divers types de cellules.

Il a été mis en évidence que le dopage peut se faire par substitution de K en site Ba , par Rotter [38], permettant de libérer des trous supplémentaires mais aussi par substitution de Co en site Fe qui libère aussi des électrons supplémentaires [39-40] , figure 14.

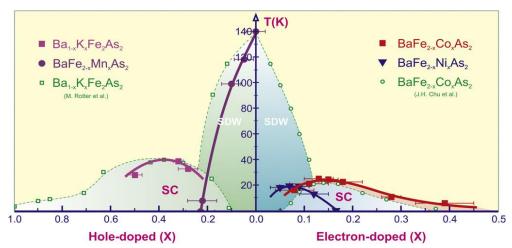


Figure 14 : Diagramme de phases pour des pnictures d'origine BaFe₂As₂ (122) dopés en trous et en électrons ^[38].

D'autres substitutions de P en site As et en site Fe ont été réalisées ^[41-42]. Elles ont induit aussi un diagramme de phase similaire, avec un dopage isovalent. Dans les deux cas, la supraconductivité apparait de façon inhomogène notamment dans les zones surdopées ^[43-44].

7. Les pnictures supraconducteurs non conventionnels :

Les composés à base de fer se distinguent des supraconducteurs conventionnels par les valeurs de ses températures de transition T_c , en plus d'un couplage électron-phonon trop faible pour expliquer de telles températures T_c et un gap n'étant pas isotrope de symétrie s.

Des discussions confirment que le couplage électron-phonon seul serait insuffisant pour être à l'origine de l'appariement des électrons dans les pnictures. Les calculs de Boeri et al. [45], de Mazin et al. [46], ainsi que des mesures de réflectivité optique de Mansart et al [47] montrent que la constante de couplage électron-phonon est 2 à 5 fois plus petite pour expliquer des températures élevées. Les valeurs mesurées de $\lambda \leq 0.2$ dans le LaO_{1-x}F_xFeAs et $\lambda \leq 0.35$ dans le BaFe₂As₂ et de $\lambda \leq 0.12$ dans le Ba(Fe_{1.92}Co_{0.08})₂As₂ , sont inférieures à celle dans un supraconducteur conventionnel. Cette différence, selon Boeri et al. [45], pourrait être attribuée au caractère multi-bande ou à un couplage anisotrope.

Plusieurs versions pour expliquer le mécanisme d'appariement dans les supraconducteurs à base de fer ont été proposées telles que les fluctuations magnétiques, les corrélations électroniques ou orbitales ^[48]. La transition de phase quantique, dans les pnictures de fer, a été expliquée par un état magnétique ordonné et un état non magnétique. Il a été proposé que le point critique magnétique pourrait avoir, comme origine, la compétition entre le caractère localisé et celui itinérant des électrons .

En dessus d'un seuil critique en champ magnétique H_{c1} , le champ magnétique pénètre dans les matériaux supraconducteurs à base de fer et il est ancré sous forme de vortex, tel que reporté ^[49-50].

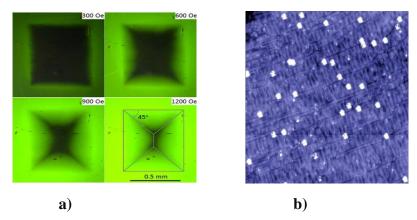


Figure 15. a) Pénétration du flux magnétique à 20 K dans un cristal Ba(Fe_{0.93}Co_{0.07})₂As₂. La dernière image montre une superposition schématique du profil de flux magnétique qui pénètre dans le supraconducteur ^[49].**b**) Vortex (en blanc) observés dans des supraconducteurs à base de fer ^[96].

III. Propriétés physiques des pnictures type 122:

1. Caractéristique d'un métal corrélé :

La famille du Ba-122 est la plus étudiée des pnictures de fer, dont les monocristaux sont de grande taille et leur synthèse est bien contrôlée.

Il a été communément confirmé que les propriétés de transport électronique dans les pnictures de fer sont régies par la couche de Fe-As. Le composé parent Ba-122 dopé en Co a un comportement métallique. Les mesures de résistivité électrique montrent un comportement

linéaire. A température ambiante, la valeur de la résistivité du composé parent est de $300\mu\Omega$ cm. Elle indique que les pnictures de fer type 122 sont, à l'état normal, des mauvais métaux ^[51].

La figure 15 présente des mesures de résistivité ρ , caractérisant la métallicité du système $BaFe_2As_2$, réalisées par le groupe français de Rullier-Albenque [52] sur un échantillon dopé en Co le $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As$, et par A.Olariu et al. [53] sur un échantillon dopé en Ni le $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$.

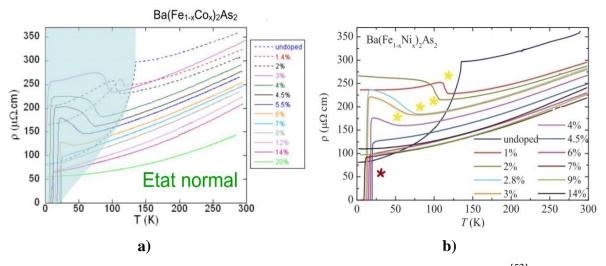


Figure 15: a) Mesures de résistivité électrique du composé $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2^{[52]}$. **b)** Mesures de la résistivité électrique du composé $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$ de la famille 122 ^[53]. Les étoiles (*) en jaune indiquent l'anomalie magnétique représentant la phase d'onde de densité de spin(ODS) et celle en rouge indique la transition SC pour x > 3%.

Le magnétisme statique et dynamique dans l'état normal semble révéler la présence de corrélations modérées. Des mesures par la technique de résonnance magnétique nucléaire (RMN), réalisées respectivement sur des composés $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ et $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$, le confirment [37-50]. Les résultats de mesures du déplacement de Knight « shift RMN» K(%) et de $1/T_1T$ sont représentés respectivement dans les figures 16 et 17.

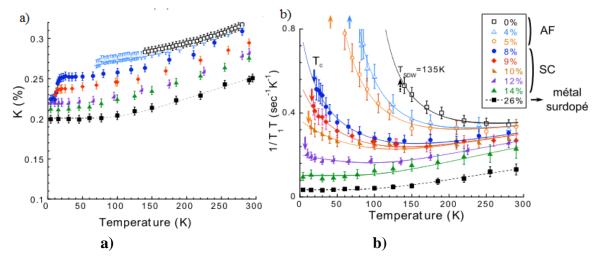


Figure 16: a) Mesure RMN statiques du déplacement de Knight K dans le composé Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ de la famille 122 ^[50]. b) Mesures RMN dynamiques de $1/T(T_1T)$ ^[50].

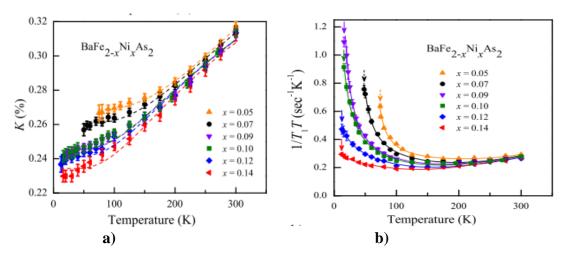


Figure 17: a) Mesure RMN statiques du déplacement de Knight K(%) dans le composé $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$ de la famille $122^{[37]}$. b) Mesures RMN dynamiques de $1/T_1T^{[37]}$.

En effet, ces mesures indiquent que les deux composés dopés en Co et en Ni sont des métaux corrélés antiferromagnétiquement. On constate que le déplacement de Knight « shift RMN », mesurant la susceptibilité magnétique des électrons à Q(0,0), varie peu en fonction de la température et en fonction du dopage au sein du diagramme de phase. Au contraire le paramètre $1/T_1T$, qui mesure les fluctuations magnétiques de basse énergie $(\omega_{RMN} \sim meV)$ indique l'existence d'un vecteur d'onde antiferromagnétique $Q(\pi,\pi)$ dans toute la zone de Brillouin.

La présence des fluctuations antiferromagnétiques est bien marquée, par des remontées de $1/T_1T$ à basse température. L'intensité varie notablement en fonction du dopage dans le diagramme de phase. A fort dopage (x > 14%), le déplacement de Knight K(%) et le $1/T_1T$ suit la même dépendance en température et satisfait la loi de Korringa stipulant qu'un métal usuel indique la disparition des fluctuations de spin antiferromagnétiques à des dopages élevés.

Avec un dopage plus faible, cette relation n'est plus valable ce qui traduit l'apparition d'importantes fluctuations antiferromagnétiques dans l'état normal qui deviennent de plus en plus intenses au fur et à mesure que le composé se rapproche de l'instabilité magnétique. Nous remarquons dans ces deux figures qu'à des taux de dopage plus faibles, le déplacement de Knight $1/T_1T$ diverge à basse température (Figures 16 et 17), indiquant que des fluctuations magnétiques de basse énergie apparaissent et deviennent de plus en plus intenses à l'approche de la phase AF.

En conclusion, les propriétés à l'état normal des supraconducteurs type BaFe₂As₂, montrent que ces matériaux sont des semi-métaux, multibandes, modérément corrélés et présentant des fluctuations de spin antiferromagnétiques. Ces caractéristiques sont très clairement différentes de celle de « l'isolant de Mott dopé » et égalisent les comportements électriques et magnétiques des cuprates dans les mesures ^[54-55].

2. Propriétés électroniques du Ba122 :

L'étude de la structure de bandes des composés supraconducteurs à base de fer montre que seules les orbitales de fer sont impliquées au niveau de Fermi. En effet des calculs de DFT (Density Function Theory) de structure de bandes rigides sur LaOFeA montrent que les orbitales p de l'arsenic sont de 1.6 eV en dessous du niveau de Fermi (Fig .18.a) [56]. Les

bandes profondes de l'As ne participent donc pas aux excitations électroniques de basses énergies. Par ailleurs, les orbitales d des atomes de fer génèrent cinq bandes qui croisent le niveau de Fermi, dont trois de type trou au centre de zone et deux de type électron en bord de zone.

La répartition en orbitales des bandes, représentée dans la figure 18b, montre l'hybridation des orbitales de fer. Dans la figure 18d, la coupe à énergie constante de la dispersion au niveau de Fermi, est constituée de poches trou circulaires en Γ , et de poches électron elliptiques en M.

Dans la première zone de Brillouin (ZB) associée à la maille tétragonale des pnictures, Γ est le centre de la zone et M représente les quatre extrémités de la zone. La dispersion électronique selon k_z est un point délicat, qui varie significativement selon les composés. Les composés 1111 sont bidimensionnels alors que les 122 sont de dimension 3D.

La véritable structure électronique des supraconducteurs à base de Fe possède généralement 4 (ou 5) surfaces de Fermi : 2 (ou 3) surfaces de Fermi de type trou au centre de la première zone de Brillouin et 2 surfaces de Fermi de type électron en coin de zone, figure 18e. Cette structure électronique se caractérise entre autres par un caractère multibande et multiorbital de la surface de Fermi issu presque exclusivement des orbitales 3d de l'atome de Fe et une dispersion non négligeable selon la direction transverse (axe c).

Dans les figures 18c et 18f, l'emboitement des bandes et des poches trou en Γ et électron en M (Nesting) est représenté. Il induit une instabilité de la surface de Fermi, représentée par un vecteur d'onde de spin Q_{ODS} (Onde de Densité de Spin), évoqués dans les travaux [46-57].

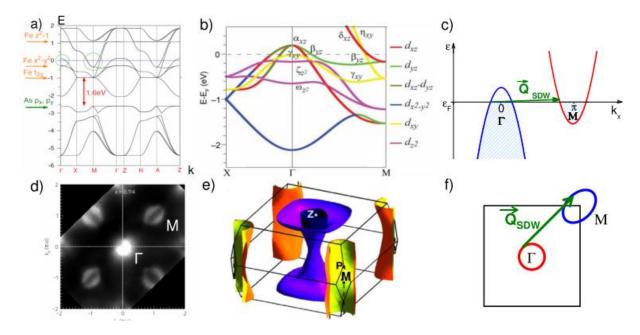


Figure 18 : Structure électronique des composés à base de fer. **a**) Structure de bandes globale illustrant que les orbitales des atomes d'As sont plus profondes ^[56].**b**)Contenu en orbitales des cinq bandes au niveau de Fermi ^[58].**c**) Schéma des bandes et poches électron et trou ^[31].**d**) Surface de Fermi du Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As mesurée par ARPES ^[59].**e**) Surface de Fermi du Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ calculée par LDA ^[60].

D'autres mesures de diffusion inélastique de neutrons montrent que ces fluctuations sont concentrées au vecteur d'onde $Q_{AF} = (\pi,\pi)$, et révèlent un emboitement des poches de trous et d'électrons au niveau de la surface de Fermi (Nesting), caractérisé par un vecteur d'onde considéré comme responsable de l'ordre antiferromagnétique AF [61].

Cependant, il a été suggéré, que si ces fluctuations sont plus fortes dans la zone sous-dopée et à l'approche de l'ordre AF et qu'elles survivent même dans la zone dopée, où l'ordre AF n'existe plus, et même quand le système devient SC, elles seraient à l'origine du mécanisme responsable de la supraconductivité.

Les résultats expérimentaux montrent l'existence de corrélations électroniques mais, en général, sont de nature plutôt faibles. Par exemple, le fait que des oscillations quantiques de Haas van Alphen soient observées dans la plupart des composés parents indique que les surfaces de Fermi sont bien définies et que les états électroniques sont cohérents : le système reste descriptible en terme de quasi-particules et de liquide de Fermi [62-63].

Des mesures de conductivité optique indiquent la présence d'effets collectifs importants, et donc de corrélations modérées dans LaFePO et BaFe₂As₂ [64].

Pour reproduire qualitativement la structure de bandes des supraconducteurs à base de Fe, il était nécessaire d'appliquer un facteur de normalisation important, (de l'ordre de 2 à 3 dans les calculs théoriques de DFT pour parvenir à retrouver quantitativement les masses effectives des quasiparticules [46]. Ceci indique la présence de corrélations électroniques qui ne sont pas prises en compte dans les calculs de DFT mais existent bien dans les systèmes expérimentaux. Des calculs de DFT, incluant l'influence des corrélations, parviennent à retrouver l'amplitude des moments locaux et la masse effective des quasiparticules [65].

Déterminer l'intensité et l'importance des corrélations électroniques présentes dans les supraconducteurs à base de Fe est l'une des principales questions que posent ces systèmes.

IV. Description des phases de transitions des pnictures :

1. Etat normal:

L'état normal des matériaux à base de fer présente les caractéristiques d'un métal corrélé. Le caractère métallique est observé dans l'ensemble du diagramme de phase par les mesures de transport électronique (Figure 19).

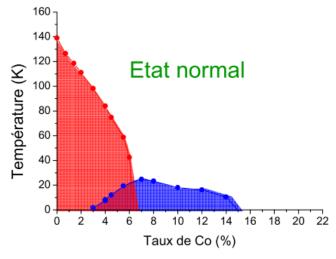


Figure 19: Diagramme de phase du composé Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ [52].

Dans la figure 15a, On observe que la résistivité est toujours finie et ne présente pas de divergence, en fonction de la température, qui pourrait signaler la localisation des porteurs de charge à l'approche d'un état isolant de Mott. La valeur absolue de la résistivité (\sim 3 m Ω .cm) est de deux ordres de grandeur supérieure à la résistivité du Cu métallique (1.7 m Ω .cm à 300K, [^{66]}) donnant lieu à leur qualification de « mauvais métaux ». Une première raison simple à cela provient de la faible concentration en porteurs de charges des plans FeAs, estimé à n \sim 0.13/Fe par la théorie dans BaFe₂As₂, quand on la compare à la concentration des porteurs de charge dans le Cu métallique (n=1/Cu) [^{67]}. Une seconde raison provient des corrélations qui seront discutées dans le paragraphe suivant.

2. Transitions de phases magnétique et structurale :

Les transitions de phases structurale et magnétique dans les supraconducteurs à base de fer ont été mises en évidence par plusieurs techniques, dont nous discuterons les résultats de quelques unes, à savoir :

2.1. Mesures de transport et thermodynamiques :

La transition magnéto-structurale se traduit également par un saut de chaleur spécifique et des anomalies dans la résistivité et la susceptibilité magnétique ^[68]. La dépendance en température de la chaleur spécifique montre une discontinuité claire à 138 K dans le composé parent BaFe₂As₂.

Lorsque le dopage augmente, le saut s'élargit et s'atténue progressivement. Une observation plus poussée révèle deux ruptures de pentes, associées chacune à T_S et T_N [52-68]. Les mesures de la résistivité et de la susceptibilité magnétique révèlent des anomalies similaires [40-52].

Des anomalies, accompagnant les chutes de résistivités/susceptibilité magnétique aux basses températures dans des composés 122, concernant les trois phases de transitions: structurale, magnétique et supraconductrice, ont été décelées et confirmées dans des mesures par diffusion RAMAN [31] et dans celles par la RMN [43].

2.2. Mesures magnétiques :

Des mesures par la technique de diffusion des neutrons ont sondé la présence des fluctuations magnétiques dans le composé parent LaOFeAs, et confirment que la phase magnétique est précédée en température, suivant un ordre bien précis, par une transition structurale dans les pnictures de fer, fig. 20.

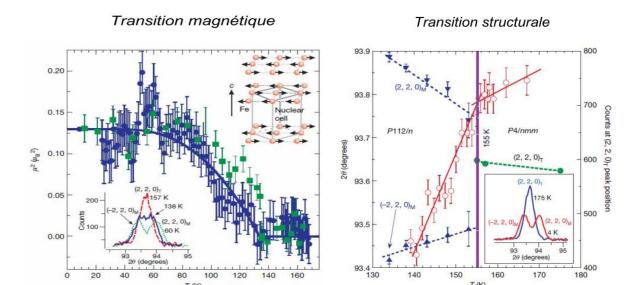


Figure 20: a) Transition magnétique observée par diffusion de neutrons b) structurale observée par diffusion nucléaire des neutrons dans le composé parent LaOFeAs^[69].

T (K)

La transition structurale se traduit physiquement par la contraction des liaisons Fe-Fe suivant une direction (direction suivant l'axe Fe-Fe) et l'expansion des liaisons Fe-Fe suivant la direction orthogonale. Du point de vue de la maille élémentaire, on passe d'une maille tétragonale à haute température (avec des paramètres de maille tels que a_T=b_T) à une maille orthorhombique à basse température (avec des paramètres de maille tels que $a_0 > b_0 = a_T \sqrt{2}$ et maille tournée de 45° par rapport à la maille tétragonale) (Figure 21). Cette distorsion structurale est cependant de faible amplitude : d=|bo - ao|/|bo + ao| < 1% [6].

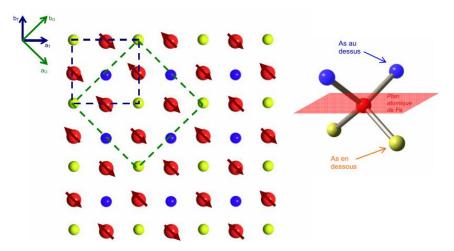


Figure 21 : Structure de l'ordre magnétique des atomes de Fe. Les axes et la cellule unité dans la phase tétragonale et la phase orthorhombique sont représentés en pointillés [43].

L'ordre magnétique s'installe à plus basse température une fois la transition structurale établie. Il correspond en un arrangement dénommé « stripe » (« bandes ») où les spins s'alignent, ferromagnétiquement selon la direction bo pour laquelle la distance Fe-Fe est la plus faible, antiferromagnétiquement et orientés selon la direction ao, dans figure 21. Le moment magnétique est généralement inférieur à $1 \mu B$, qui est inférieur à sa valeur dans le solide de Fe pur $(2 \mu B)^{[27]}$.

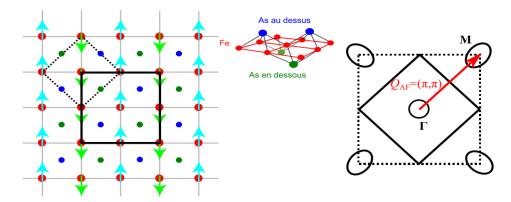


Figure 22 : a) Structure de l'ordre AF en « stripe » pour les pnictures de Fe et passage de la maille élémentaire de l'état normal tétragonal (pointillés) à celle de l'état magnétique orthorhombique (trait plein). **b)** Représentation schématique de l'espace réciproque, passage de la première zone de Brillouin paramagnétique (pointillés) à celle AF (trait plein) [64]..

Dans la figure 22, le vecteur d'onde AF, $Q_{AF} = (\pi,\pi)$ correspond au vecteur d'emboitement des poches de trous et d'électrons. L'ordre magnétique est expliqué par l'apparition d'un vecteur d'onde de l'ordre magnétique correspondant précisément au vecteur antiferromagnétique $Q_{AF} = (\pi,\pi)$, créant un emboîtement entre les poches de trous et d'électrons de la structure électronique, tel que représenté dans la fig. 22 [64]. Cela semble conforter que l'ordre magnétique provient d'une instabilité de type « onde de densité de spin » ODS entre les surfaces de Fermi trous et électrons.

Les caractéristiques de la phase magnétique, par des mesures de spectroscopie Mössbauer, confortent cette vision ^[53]. Elles indiquent la présence d'une onde de densité de spin commensurable dans le composé pur et incommensurable dans les composés sousdopés en Ni ou Co. La forme de la modulation évolue et se rapproche d'une sinusoïde en augmentant le dopage ou en abaissant la température, telle que indiquée dans la figure 23.

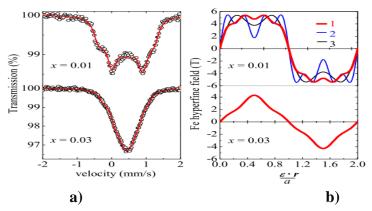


Figure 23 : a) Les courbes de spectres Mössbauerdans Ba $(Fe_{1-x}Ni_X)_2As_2$ obtenu à 4,2 K pour x=0,01 et 0,03. Les lignes continues sont des lissages indiquant une modulation incommensurable de moments des atomes Fe. b) Les modulations obtenus des spectres à gauche, avec des coefficients de Fourrier pour les composés sousdopés x=0,01 et 0,03 [53].

La majorité s'accorde que l'onde de spin est commensurable à dopage nul, puis devient faiblement incommensurable dès qu'il y a du cobalt ou du nickel dans le composé ^[70-71]. Dans d'autres mesures par RMN, l'ordre magnétique statique sur les atomes de Fe se traduit par la présence d'un champ interne au niveau du site ⁷⁵As, tout en confirmant que la phase magnétique du composé possède une nature métallique ^[72].

2.3. Mesures d'ARPES et d'oscillations quantiques :

Ces mesures ont permis de détecter l'emboitement des surfaces de Fermi des poches suite à une instabilité de vecteur d'onde $Q_{ODS} = (\pi, \pi)$, le repliement des bandes et l'ouverture d'un gap dans les excitations électroniques à basse énergie. L'emboitement est considéré imparfait entre un cercle et une ellipse, ce qui induirait que le gap d'onde de spin (ODS) est en principe anisotrope, tel que représenté expérimentalement (Fig.24), dans les mesures d'ARPES [73].

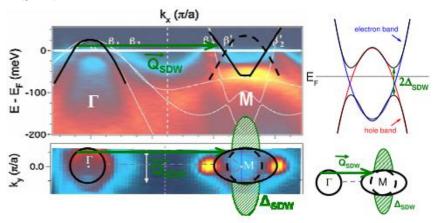


Figure 24 : Mesures d'ARPES sur lesquelles sont schématisés le repliement des bandes électroniques, ayant pour conséquence l'ouverture d'un gap ODS, et la reconstruction partielle de la surface de Fermi dans l'état magnétique ^[73].

Selon d'autres études, les transitions structurales et magnétiques sont fortement corrélées et plusieurs modèles suggèrent que la transition structurale serait induite par des interactions magnétiques ^[74-75-76]. Il est par exemple proposé que même si la transition structurale précède en température la transition magnétique, ce pourrait être l'approche de cette dernière qui induit la première par une transition nématique ne brisant pas la symétrie du composé ^[77].

2.4. Modèles magnétiques itinérant et localisé :

La question relative à la nature du magnétisme dans les pnictures de fer, a été posée dans la description de la phase magnétique. On sait que les électrons des couches atomiques incomplètes des atomes de Fe sont délocalisés et forment des bandes d'énergie, où la largeur e bande intermédiaire implique une compétition entre l'énergie cinétique de bande et les corrélations électroniques. La première délocalise les électrons (itinérance) et la seconde les localise. L'ordre magnétique des supraconducteurs à base de Fe a été expliqué par un modèle itinérant [34-46] et par un modèle de magnétisme localisé [67-75-78].

La vision itinérante suppose que l'état AF résulte de l'emboitement des poches d'électrons et de trous de la surface de Fermi conduisant à une instabilité de type « onde de densité de spin » de cette surface. Ce scénario est appuyé par le fait que l'état AF des 5 familles de supraconducteurs à base de Fe possède un caractère métallique, et que le vecteur d'onde de la structure de l'ordre AF correspond précisément au vecteur d'emboitement $Q_{AF} = (\pi,\pi)$ dans le cas des pnictures de Fe.

La vision localisée suppose au contraire que l'ordre AF provient de l'interaction d'échange entre des moments magnétiques localisés sur les atomes du réseau, comme c'est le cas dans

les cuprates. Le composé parent possédant 6 électrons de valence à répartir dans 5 orbitales, il correspondrait à un isolant de Mott dopé où le 6ème électron contribuerait à la métallicité.

Certaines études indiquent par ailleurs que les corrélations électroniques semblent augmenter avec le dopage en trou au fur et à mesure que l'on se rapproche du demi remplissage et donc du possible état de Mott ^[79-80].

Ces deux approches abordent le problème des corrélations électroniques différemment: la vision itinérante suppose de faibles corrélations, alors que celle localisée suppose des corrélations suffisamment fortes pour contraindre les électrons à se localiser, donnant lieu à une transition de Mott. Nous voyons donc resurgir ici la question récurrente de l'importance des corrélations électroniques dans les supraconducteurs à base de Fe. La réalité est peut-être intermédiaire, comme le suggère notamment les modèles qui montrent l'importance du couplage de Hund, lié au caractère multi-orbital de la structure électronique. Les études montrent que ce couplage de Hund caractérisant l'interaction entre différentes orbitales joue un rôle important, par opposition au couplage de Hubbard sur le site des cuprates où une seule bande est présente au niveau de Fermi [65-81]. Plusieurs études proposent ainsi que certaines orbitales ont un caractère plutôt itinérant, et d'autres plutôt localisé, impliquant des physiques différentes selon les orbitales considérées [79-82].

Le moment magnétique a été déterminé par d'autres techniques de mesures telles que la spectroscopie de Mössbauer, la RMN et par la diffusion de neutrons qui confirment que ce paramètre dépend du niveau de dopage [83-84]. A l'aide des mesures de résonance magnétique nucléaire, il a été détecté en outre un champs magnétique interne H_{int} sur l'échantillon BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ dont le moment magnétique se développe continuellement en dessous de la transition magnétique T_N et saturant à la valeur $S = 0.24 \,\mu B$, correspondant à un ordre de la transition à la phase supraconductrice(figure 25) [37].

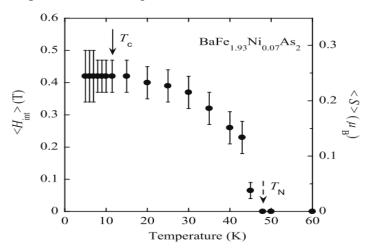


Figure 25: La dépendance en température du champ magnétique interne et du moment magnétique pour x = 0.07. Le flèches en traits continu et en pointillé indiquent la température de transition supraconductrice $T_{\rm c}$ et la température de la transition magnétique $T_{\rm N}^{[37]}$.

Ce résultat s'accorde avec celui d'une autre expérience de diffraction de neutrons $^{[7]}$, réalisée précédemment en 2010, montrant que le LaOFeAs possède un très petit moment magnétique à 137 K. Ce dernier croît au fur et à mesure que la température décroît, atteignant une valeur de 0.63 μB par atome de fer à 2K. L'apparition du moment magnétique sur les

atomes de fer a été attribué au déséquilibre, causé par l'apparition de l'ODS, entre les états occupés dotés d'un spin positif et ceux dotés d'un spin négatif.

Ordre orbital:

L'ordre orbital est proposé comme paramètre d'instabilité à l'origine de la transitionmagnéto-structurale. Ce caractère orbital des bandes électroniques indique aussi une anisotropie. Les propriétés électroniques des pnictures peuvent être déterminés par les orbitales d des atomes de fer. Pour comprendre l'anisotropie et les transitions électroniques inter-bandes permises, il faut prendre en considération la direction et la symétrie des orbitales.

La configuration chimique du fer Fe 2^+ est; $1s^2$ $2s^2$ $2p^6$ $3s^2$ $3p^6$ $3d^6$. Dans les couches incomplètes d des atomes de fer, il ya 6 électrons. Il y'a cinq orbitales d dégénérées de l'ion fer libre: d_{xy} , d_{xz} , d_{yz} , $d_{x^2-y^2}$, d_{x^2} , dans lesquelles se répartissent les électrons. Les directions x et y marquent le plan xy. Les atomes de fer sont situés au centre du tétraèdre de quatre atomes d'As.

Dans l'environnement d'un champ cristallin tétraédrique, la dégénérescence est levée et l'énergie est abaissée ou augmentée suivant la direction des moments des atomes de fer_, pointant ou non vers les orbitales 4p de l'As. La configuration chimique de l'As est : $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^3$. Les niveaux d'énergie des orbitales du fer se scindent alors en en deux groupes, t_2 et e. Les niveaux e contiennent les orbitales $d_{x^2-y^2}$ et d_{x^2} , doublement dégénérées. Les niveaux t_2 contiennent les autres orbitales, triplement dégénérées. Si on ajoute l'effet du champ tétragonal qui est faible, il y'a levée de dégénérescence, car les atomes de fer n'ont pas de voisins proches dans la direction z [85].

La représentation des niveaux d'énergie des orbitales du fer avec le champ des ligands et la symétrie locale est représentée dans la figure 26. En 2008, la notion d'hybridation de ces orbitales de fer avec les orbitales d'As et le couplage spin-orbite a été introduite par Wu et al. [86]. Les orbitales d_{xz} , d_{yz} sont aussi dégénérées dans l'état normal paramagnétique.

Pour remplir ces niveaux, il faut utiliser le principe d'exclusion de Pauli, qui empêche deux électrons de même spin de se trouver au même endroit et en même temps. Les interactions entre électrons sont la répulsion coulombienne intra-orbitale, incluant le couplage de Hund qui tend à maximiser le spin total et un terme inter-orbital. Dans le cas des composés supraconducteurs à base de fer, le remplissage de Hund donnerait un spin total beaucoup plus grand (S= 2). Les orbitales $d_{x^2-y^2}$ et d_{x^2} sont alors complètement remplies avec des électrons localisés, alors que les orbitales d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} sont partiellement remplies avec des électrons itinérants.

L'instabilité peut venir du fait que les moments locaux de spin interagissent avec les électrons itinérants des orbitales d_{xz} et d_{yz} dégénérées, ou de la répulsion coulombienne inter-orbitale. Ainsi, les électrons choisissent d'occuper une orbitale plutôt qu'une autre. On parle d'ordre orbital qui est proposé comme paramètre d'instabilité à l'origine de la transition magnéto-structurale [87].

La densité d'état à E_F a un fort caractère orbital et il a été proposé une configuration d'ordre ferro-orbitale (Fig. 26) [89]. Dès que l'ordre ferro-orbital à longue portée existe, les orbitales d_{xz} deviennent plus occupées macroscopiquement et la liaison x devient plus longue. Les directions x et y deviennent plus inéquivalentes. L'anisotropie des propriétés planaires a

été mise en évidence par des mesures de résistivité par les techniques d'ARPES, Scanning Tunneling Spectroscopy STM, et pourrait favoriser un ordre orbital [88-89].

L'ordre ferro-orbital a été suggéré pour expliquer l'origine de la transition magnéto-structurale [89].

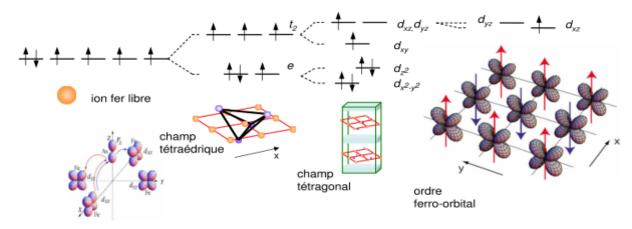


Figure 26 : Représentation des niveaux d'énergie des orbitales de l'ion de fer libre (dans un champs tétraédrique, avec une illustration de la direction des orbitales, dans un champ tétragonal [89].

La première zone de Brillouin de la phase tétragonale est représentée sur la fig.27 ainsi que la correspondance entre l'espace direct (positions des atomes) et l'espace réciproque (première zone de Brillouin).

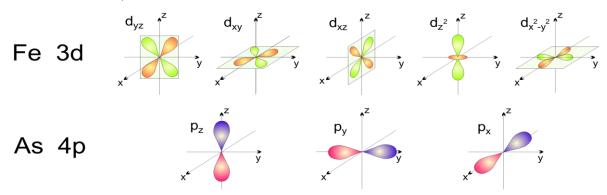


Figure 27: Orbitales 3d du fer et 4p de l'arsenic [55].

La structure électronique proche du niveau de Fermi est dominée par les électrons des couches Fe-As. Les atomes de fer possèdent six électrons dans leur bande 3d, alors que l'arsenic en possède un dans la couche 4p. Ces orbitales 3d et 4p, dans le repère choisi pour définir la première zone de Brillouin, sont représentées sur la fig. 27. Il existe une forte hybridation entre elles.

Les premières études théoriques de structure électronique des pnictures de fer considéraient uniquement deux orbitales du fer, d_{xz} et d_{yz} , dégénérées en raison de la symétrie d'ordre quatre. En effet, les combinaisons de ces orbitales sont dirigées le long des liaisons Fe-As, favorisant les sauts indirects Fe-As-Fe.

Cela favorise donc la mobilité des électrons des orbitales d_{xz} et d_{yz} . Le schéma de saut indirect est illustré à la fig. 28, et les calculs théoriques de densité d'état correspondant à un tel schéma simplifié ont été reportés ^[91-92])

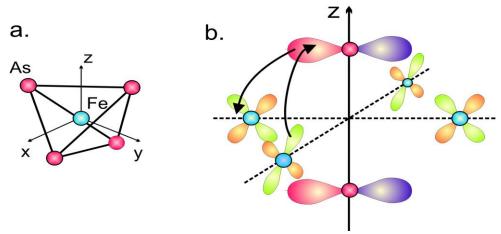


Figure 28: a) Configuration tétraédrique des atomes de fer. b) Exemple de saut indirect à travers les atomes d'arsenic. Les orbitales représentées pour les atomes de fer sont des combinaisons de d_{xz} et d_{yz} .b) les lignes pointillées sont les diagonales des axes x et y. (Extrait de la thèse de B. Mansart [55]).

La structure de bandes des pnictures de fer est encore sujette à des controverses. Cependant, un consensus apparaît sur les bases de cette structure à proximité du niveau de Fermi.

3. La Transition supraconductrice :

Tel qu'il a été cité précédemment, la phase supraconductrice SC se caractérise par des températures critiques élevées (jusqu'à 56K), mais aussi par un mécanisme d'appariement non conventionnel. Le mécanisme conventionnel proposé par Bardeen, Cooper et Schrieffer dans les supraconducteurs classiques (modèle BCS [93]) et mettant en jeu le couplage électrons-phonons ne s'applique pas en effet dans ces systèmes.

Pour connaître la nature du potentiel d'interaction induisant l'appariement électronique dans la phase supraconductrice, il faut déterminer l'ordre supraconducteur, et ce en mesurant les paramètres du gap supraconducteur, tels que la symétrie et l'amplitude du gap ^[94].

3.1. Paramètre d'ordre supraconducteur :

La transition de phase supraconductrice est liée à une brisure spontanée de l'invasion de jauge. Il est connu, que la fonction d'onde macroscopique de l'état supraconducteur, ou le paramètre d'ordre de Ginsburg-Landau est proportionnelle à l'énergie du gap supraconducteur $\Delta(k)$ [95].

Le paramètre d'ordre supraconducteur $\Delta(k)$ est caractérisé par son amplitude et sa phase. La symétrie du gap est le reflet de l'origine microscopique de l'appariement des électrons et peut être déterminé expérimentalement.

En ce qui concerne le mécanisme à l'origine de l'appariement des paires de Cooper, l'ingrédient principalement mis en avant permettant de remplacer les phonons dans la médiation de l'interaction attractive entre électrons est la présence des fluctuations magnétiques AF.

De telles fluctuations de basses énergies ont été observées, par les mesures RMN dynamiques, dans les zones du diagramme de phase où l'ordre AF laisse place à la phase SC et disparaissent dans la zone sur-dopée en dessous de T_c . Cela suppose leur possible

implication dans le mécanisme de la supraconductivité. Pourtant, si de telles corrélations entre phase SC et fluctuations magnétiques de basse énergies ont été observées dans la famille 122 dopé au Co ou au P ^[50-97]), cela n'est pas le cas dans la famille 1111 et la question reste donc toujours soulevée ^[98].

Des corrélations AF à courte distances ont été aussi observées par la technique de spectroscopie Mössbauer dans la famille 122 jusqu'à des températures 1.5 fois plus grande que T_N . Les mesures d'oscillations quantiques par effet Hass van Alphen tendent à conclure que les fluctuations de spins sont à l'origine de la modification de la structure de bande à travers le diagramme de phase, et donc de l'apparition de la supraconductivité [99].

Par ailleurs, des mesures de diffusion inélastique de neutrons (INS) montrent l'apparition d'une résonnance magnétique de spin en dessous de T_c [100]. Cette résonnance se caractérise par un pic d'intensité à un vecteur d'onde donné et à une énergie donnée, tel que observé dans la figure (29 .a) [61]. Cette observation a été vérifiée dans les 5 familles de supraconducteurs à base de fer et son énergie semble corrélée aux températures de transitions T_c dans la figure (29.b). Un mode d'excitation magnétique pourrait être relié aux fluctuations de spin et semble donc clairement associé à l'apparition de la supraconductivité dans ces composés.

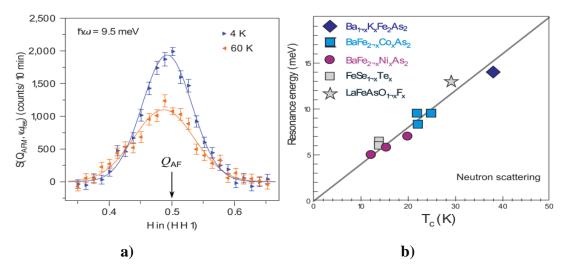


Figure 29 : a) résonnance magnétique de spin mesurée dans BaFe_{1.85}Co_{0.15}As₂ par INS en dessous et au-dessus de T_c à $\hbar\omega=9.5$ meV et $Q=Q_{AF}^{[61]}$. **b)** Dépendance linéaire entre l'énergie de la résonance neutrons et la température critique supraconductrice au sein des supraconducteurs à base de Fe [25].

L'ensemble de ces résultats montre l'importance probable des fluctuations de spins dans le mécanisme d'appariement des paires de Cooper.

Concernant la symétrie du gap, des mesures d'ARPES rendent compte d'un gap d'amplitude isotrope et de l'absence de nœuds dans les familles 122 et 1111, indiquant une symétrie de type s plutôt que d comme dans les cuprates [101-102]. La coexistence atomique entre la phase supraconductrice SC et antiferromagnétique AF observée dans certains composés interdit théoriquement la symétrie d où la phase est invariante sur toute la surface de Fermi [103-104].

De plus, les mesures RMN de 1/T1 montrent que le pic de cohérence de Hebel-Slichter des supraconducteurs conventionnels n'est jamais observé (Figure 30.b), ce qui reste incompatible avec une symétrie *s* de phase constante ^[105].

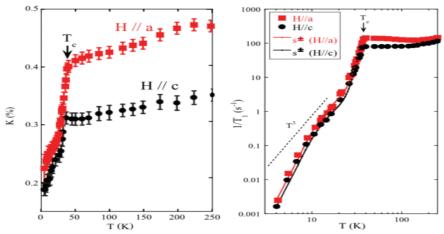


Figure 30 : Déplacement de Knight et $1/t_1$ en fonction de la température et du dopage x pour la famille 122 dopé en trous : Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ .Avec $H_0 \parallel$ axe c et \bot axe c. les courbes sont ajustées avec un modèle $s \pm$ en dessous de T_c [106] .

Afin d'expliquer ces différents comportements, la symétrie proposée généralement pour les supraconducteurs à base de Fe, est de type $s \pm où$ l'amplitude varierait peu mais où la phase pourrait prendre des valeurs positives et négatives (Figure 31.a) ^[46]. Cela est rendu possible par la présence de plusieurs poches de trous et d'électrons non connectées au niveau de Fermi. En effet, une généralisation de la théorie BCS montre que la supraconductivité est possible dans les systèmes possédant deux surfaces de Fermi, et que des interactions répulsives entre les différentes poches impliqueraient des signes opposés des deux gaps supraconducteurs ^[107].

De nombreux calculs théoriques concluent que lorsque l'ordre AF est supprimé, le couplage $s \pm$ est favorisé ^[108]. Mais du point de vue expérimental, il est compliqué d'avoir accès au signe du gap. Différentes expériences semblent cependant appuyer indirectement cette symétrie $s \pm$: un mode résonnant de neutrons est observé dans l'état supraconducteur de BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂ ^[28] à l'endroit même où il a été prédit pour une symétrie $(s\pm)$ ^[109-110].

L'amplitude est isotrope mais la phase change de signe entre deux surfaces de Fermi. La structure électronique est réduite à une poche de trous et une autre d'électrons.

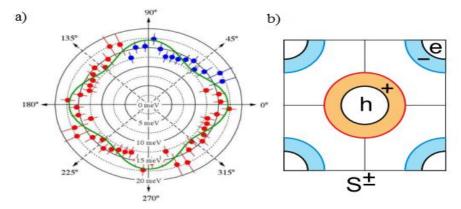


Figure 31 : a) Mesures par ARPES d'un gap isotrope dans la famille 1111 (Kondo et al. ^[111]). **b**) Schéma de la symétrie s± proposée pour les supraconducteurs à base de Fe ^[25].

De façon générale, la symétrie $s\pm$ est compatible avec la plupart des mesures expérimentales si l'on accepte que l'amplitude du gap puisse présenter une certaine anisotropie, (par exemple la courbe verte de la figure 31.a). Cette anisotropie pourrait dépendre non seulement de la surface de Fermi (ou poche) considérée [112-113]), mais aussi du taux de dopage [114] et de l'élément dopant [108]. Elle pourrait parfois faire apparaître des nœuds fortuits [112-113]). L'existence de tels nœuds a été suggérée par des mesures de conductivité thermique dans KFe₂As₂ [115] et dans BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂ [116] ou encore dans LaFePO [117].

Concernant les mesures par RMN, le taux de relaxation $1/T_1$ dans l'état supraconducteur montre que cette grandeur dépend de la température en loi de puissance T^n , avec $n \neq 1$ et variant selon les composés et les familles $(n=3 \text{ pour Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2^{[106]})$ et pour LaFeAsO_{0.6} ^[118]); n=5 pour Ba_{0.6}K_{0.4}Fe₂As₂ ^[119]) ; n=1 pour BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂. La variation serait exponentiellement activée pour un gap isotrope unique sans changement de signe s+. Les différentes lois de puissances sont compatibles avec une symétrie $(s\pm)$, mais les variations de cette loi de puissance entre les différents composés peuvent être la signature d'une hétérogénéité des phases SC à travers la grande famille des supraconducteurs à base de Fe ^[105]. La valeur n=1 indique une nouvelle fois la présence de nœuds dans le gap de ces composés particuliers de la famille 122.

3.2. Mesures du gap supraconducteur :

Energie du gap supraconducteur :

Différentes techniques ont été utilisées par différents laboratoires pour mesurer le gap supraconducteur. La plus part des mesures expérimentales citent deux niveaux d'énergie, ce qui correspond à deux gaps supraconducteurs, $\Delta_{1,sc}$ et $\Delta_{2,sc}$. Ces niveaux d'énergie, sont associés, soit à deux gaps supraconducteurs isotropes de symétrie s qui s'ouvrent sur des bandes différentes, soit sur un gap supraconducteur anisotrope qui s'ouvre et dont les valeurs maximale et minimale d'amplitude provoqueraient deux gaps $\Delta_{1,sc}$ et $\Delta_{2,sc}$. Les mesures de gaps $\Delta_{1,sc}$ et $\Delta_{2,sc}$ dans trois composés Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ de dopage optimal ($0.06 \le x \le 0.075$) à $T_c = 24K$, ont reporté des valeurs d'énergie d'environ $\frac{2\Delta}{k_BT_c} \sim 1.6 \ meV$, $3.5 \ meV$ et $6.8 \ meV$ respectivement.

Dans le modèle de BCS, pour le cas du MgB₂, deux gaps ont été mis en évidence, l'un est supérieur et l'autre est inférieur, la valeur du gap standard BCS est ; $\Delta_{1,sc} < \Delta_{BCS} < \Delta_{2,sc}$.

En effet, les mesures de spectroscopie tunnel montrent la présence de deux gaps supraconducteurs avec des différences suivant l'endroit de la surface de l'échantillon sondé (Fig.34.a et 35). Les mesures d'ARPES reportent deux gaps supraconducteurs isotropes de symétrie s, un autour de la poche de trou en Γ , et l'autre autour de la poche électronique en M, d'amplitudes différentes, fig. 35. Le gap en Γ est 1.5 fois plus grand que celui en M, fig.34b. Ces deux échelles d'énergie ont été aussi observées et mises en évidence dans les mesures de Spectroscopie Raman présentant deux configurations différentes, dont l'une sonderait la poche électronique présentant un gap de symétrie s^* , fortement anisotrope.

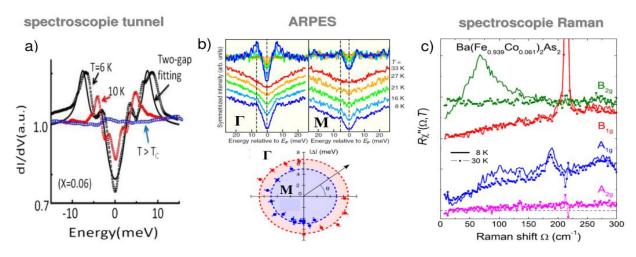


Figure 34 : a) Conductance différentielle (densité d'états en fonction de la différence de potentiel ^[120].**b)** Courbes de distribution d'énergie en température, en Γ et en M et dépendance de l'énergie des gaps ^[121].**c)** Réponse Raman dans différentes symétries dans l'état normal et supraconducteur ^[122].(extrait de la thèse L.Chauvière ^[31]).

Il a été également observé deux valeurs de gaps supraconducteurs, sur un monocristal $Ba_{0.6}K_{0.4}Fe_2As_2$ ($T_c=37~K$) en utilisant la technique de spectroscopie de photoélectrons ^[51]. Elles concernent eux nœuds supraconducteurs presque isotropes correspondant à: un gap maximal ($\Delta \sim 12~meV$) et un gap minimal ($\Delta \sim 6~meV$), fig.35.

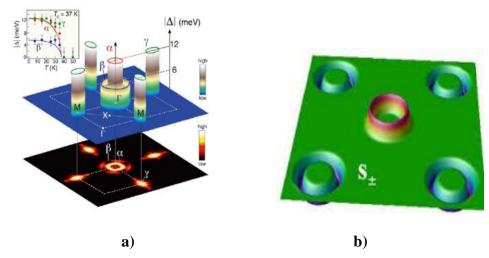


Figure 35 : a)-Mesures de gaps par ARPES sur un monocristal Ba_{0.6}K_{0.4}Fe₂As₂ [46]. **b)-** Mesure de la symétrie du gap $(s \pm)$ [51].

Les mesures de la longueur de pénétration de London, suivent approximativement un comportement en loi de puissance en température avec $\Delta\lambda \sim T^n$ (Fig.36.a). Les mesures de la chaleur spécifique et la réflexion Andreev par point contact (PCAR) indiquent la présence de deux gaps supraconducteurs (Fig.36.b et c).

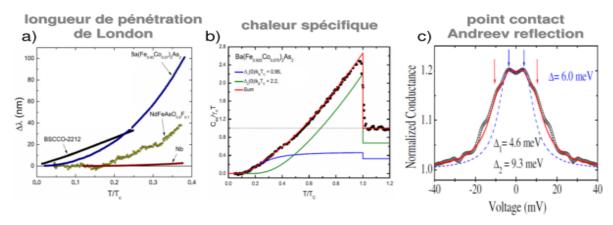


Figure 36 : a) Longueur de pénétration de London $\Delta\lambda(T) = \lambda(T) - \lambda(0)$ en fonction de la température pour différents composés ^[123] .b) Chaleur spécifique électronique indiquant un paramètre d'ordre à deux gaps ^[124].c) Courbe de conductance à basse température indiquant deux gaps ^[125].

Dans la table 1 ci-après, ont été récapitulées les différentes techniques ayant été utilisées pour sonder la présence de deux gaps supraconducteurs dans le composé. Les différents résultats de mesures suggèrent la présence de plusieurs gaps, qui pourraient correspondre à des différentes surfaces de Fermi.

technique	x (%)	T_c (K)	Δ_{SC}^1 (meV)	Δ_{SC}^2 (meV)	référence
•	7	22	-	7	(Massee et al., 2009)
spectroscopie	7	24	_	7.6	(Nishizaki et al., 2010)
tunnel	10	25	_	6.3	(Yin et al., 2009)
	6	14	4	8	(Teague et al., 2011)
ARPES	7.5	25.5	4.5	6.7	(Terashima et al., 2009)
spectroscopie Ra- man	6	24	4.6	7.4	(Muschler et al., 2009)
$\lambda(T)$	7	22.4	2.5	6.4	(Luan et al., 2011)
chaleur spécifique	5.8	24.3	2	5.2	(Hardy et al., 2010a)
	7	21.4	1.75	4	(Hardy et al., 2010b)
	8	20	1.65	3.75	(Gofryk et al., 2010)
PCAR	10	24	3.8	8.2	(Tortello et al., 2010)
μSR	7.4	22.5	3	6	(Williams et al., 2009)
spectroscopie infrarouge	8	22.5	-	6.2	(Lobo et al., 2010)
	6	25	-	5	(Nakajima et al., 2010)
	6	25	1.85	-	(Gorshunov et al., 2010)
	7.5	25	3.1	7.4	(Tu et al., 2010)
	7	23	3.1	7	(van Heumen et al., 2010)
	8	25	1.1	3.1	(Wu et al., 2010)
spectroscopie	10	22	3	8	(Fischer et al., 2010)
terahertz	8	22.5	1.9	6.8	(Perucchi et al., 2010)

Table 1 : Tableau des différentes techniques expérimentales pour la mesure des énergies de gap supraconducteur : Spectroscopie Tunnel, ARPE, Spectroscopie Raman, la longueur de pénétration de London $\lambda(T)$, la chaleur spécifique, Point Contact <u>Andreev Réflection</u> (PCAR), Muon spin Rotation (μ SR) et la Spectroscopie Infrarouge et Terahertz.(extrait de la thèse de Chauvière ^[31]).

V. Coexistence entre les phases antiferromagnétique et supraconductrice :

Dans les supraconducteurs conventionnels type I, le magnétisme et la supraconductivité sont antagonistes et ne peuvent coexister. La présence de l'un annulerait la présence de l'autre. (Effet Meissner). Dans les supraconducteurs conventionnels type II, il y'a apparition d'une phase mixte limitant la présence de magnétisme dans ce type de supraconducteurs.

Dans le diagramme de phase des composés de la famille 122, pour une gamme de dopage correspondant au coté sous-dopé du dôme supraconducteur, ces composés subissent à la fois la transition de phase magnétique et supraconductrice. Ces deux ordres coexistent qu'à basse température et dans le coté sous-dopé.

Les mesures de la susceptibilité magnétique montrent que le composé Ba-122 dopé en Co ou Ni est supraconducteur dans tout son volume. Les mesures RMN montrent que tous les atomes d'As ressentent le même magnétisme, qui présente une homogénéité dans le cristal ^[43-127]. L'ordre magnétique s'établit aussi sur tous les atomes de fer concernés par la supraconductivité. Cette coexistence des ordres magnétique et supraconducteur sur les atomes de fer, a été confirmée par des mesures µSR dans le Ba-122 dopé en Co ^[128], et dans le Ba-122 dopé en potassium ^[129].

La coexistence microscopique de ces deux ordres fait ressortir clairement leur interaction, pouvant soit être coopérative, l'un étant le précurseur ou le catalyseur de l'autre, ou compétitive. L'aspect de compétitivité semble le plus valable, puisque le magnétisme et la supraconductivité se développent à la fois des mêmes bandes électroniques de conduction, issues des orbitales d du fer. En effet, les mêmes électrons qui forment les moments magnétiques ordonnés participent au condensat supraconducteur. Les mesures à neutron ont mis en évidence la compétitivité de ces deux, en indiquant une diminution du paramètre d'ordre magnétique sous T_c [28-71].

Les résultats de mesure RMN par Chauvière et al montrent le lien fort entre la structure, le magnétisme et la supraconductivité qui semble etre une caractéristique générique des supraconducteurs à base de fer. D'autre part, il a été mis en évidence que les anisotropies structurales , magnétiques, et supraconductrices sont fortement liées suggérant ainsi une origine commune aux instabilités conduisant à ces transitions de phase. Les interactions coulombiennes interbandes semblent prédominantes dans le mécanisme d'appariement des électrons.

Dans la grande majorité des autres systèmes supraconducteurs à base de Fe, il existe une partie plus ou moins étendue du diagramme de phase où le magnétisme et la supraconductivité sont observés simultanément dans l'échantillon.

Les différentes mesures suggèrent une exclusion entre les phases SC et AF. Mais il peut aussi y avoir une vraie coexistence à l'échelle atomique. Les mesures locales de RMN sont des sondes sensibles au magnétisme et à la supraconductivité ; elles montrent l'existence d'une telle coexistence homogène. Le premier cas a été observé dans des composés de la famille 122 dopé au Co : Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ avec x = 5% et x = 6% [43-127]. Les mesures de RMN démontrent qu'alors que la totalité de l'échantillon est supraconducteur et antiferromagnétique simultanément (Figure 37).

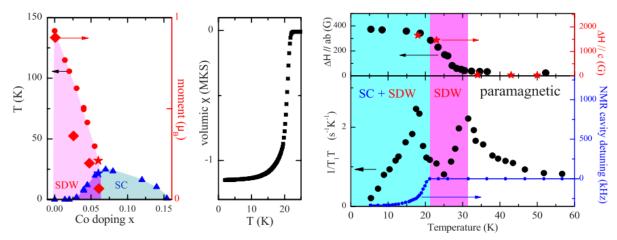


Figure 37 : Preuve de la coexistence homogène de la SC et du magnétisme dans le composé $Ba(Fe_{0.94}Co_{0.06})_2As_2$ obtenues par RMN. **a)** diagramme de phase des composés $Ba(Fe_{1.} xCo_x)_2As_2$. **b)** susceptibilité macroscopique à la transition SC. **c)** signature statique de la phase AF sur la largeur de raie RMN (haut) et signature dynamique des deux transitions SC et AF sur un même signal RMN (bas).

Par ailleurs, une telle coexistence homogène a été observée dans la même famille avec un dopage hors plan au K $^{[130]}$ ainsi que dans la famille 1111 dopée par du Co $^{[131]}$. Dans tous les cas, les moments magnétiques locaux mesurés sont très faibles (< $0.1\mu_B$) quand il y a coexistence, qui pourrait constituer une condition apparemment nécessaire à une coexistence homogène.

Cette coexistence pourrait être interprétée compte tenu du caractère multi-bande de ces composés et de leur surface de Fermi complexe, soit par :

- La contribution de deux bandes au magnétisme et de leur emboitement, alors que les trois autres contribuent à la supraconductivité (avec plusieurs gaps supraconducteurs potentiels) [79-132]. Ce seraient donc des électrons venant de poches différentes qui contribueraient à chacune des deux phases.
- ➤ L'emboitement imparfait des surfaces de Fermi, laissant des zones « non gapées » pouvant favoriser la SC. Si les poches d'électrons sont elliptiques et celles de trous sont circulaires, comme mesuré par plusieurs études d'ARPES [33], ce serait alors des électrons issus des mêmes poches qui contribueraient aux deux ordres AF et SC.
- Une telle coexistence entre le magnétisme et la supraconductivité n'est possible que dans le cadre d'une symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur de type (s±) [104].

CONCLUSION:

En conclusion de ce chapitre sur les propriétés des supraconducteurs à base de Fe, on en déduit que ces matériaux sont des semi-métaux, multibandes, modérément corrélés et qui présentent, dans la majorité, des fluctuations de spin antiferromagnétiques. Ces caractéristiques sont très clairement différentes de celles des cuprates supraconducteurs, dans leurs comportements électriques et magnétiques. Le défi dans la recherche en supraconductivité consiste en la compréhension des mécanismes d'appariement, et de déterminer quelles sont les conditions et les ingrédients pouvant induire ce phénomène à haute température.

Le bonheur est souvent la seule chose qu'on puisse donner sans l'avoir, et c'est en le donnant qu'on l'acquiert.

Voltaire (1694-1778)

CHAPITRE III: TECHNIQUE DE MESURES.

PARTIE A: TECHNIQUE DE MESURES ULTRASONORES.

I. Elasticité et propagation des ondes sonores dans les cristaux :

Par définition, un corps est élastique s'il retrouve son état initial lorsque les forces extérieures sont supprimées. Le retour à l'état de départ est l'œuvre des contraintes internes. Les contraintes et les déformations s'annulent simultanément au repos. Dans un corps élastique (non piézoélectrique), il existe une relation biunivoque entre contraintes et déformations.

Lorsque cet équilibre est perturbé par une force extérieure quelconque (application d'une contrainte mécanique par exemple), un élément de volume (appelé particule) se déforme. Suivant l'élasticité du milieu, cette particule va exercer une force plus ou moins importante sur les particules environnantes; par suite de leur inertie, ces dernières se mettent en mouvement avec un léger retard par rapport au mouvement de la particule initialement déplacée. Ce mécanisme se reproduisant de proche en proche, il en résulte une onde élastique se propageant dans tout le matériau.

Le comportement élastique de la plupart des substances est décrit correctement, dans l'hypothèse des petites déformations ^[133], par le terme du premier ordre du développement de Taylor de la relation :

$$T_{ij}(S_{kl}) = T_{ij}(0) + \left(\frac{\partial T_{ij}}{\partial S_{kl}}\right)_{S_{kl} = 0} S_{kl} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 T_{ij}}{\partial S_{kl} \partial S_{mn}}\right)_{S_{kl} = 0} S_{kl} S_{mn} + (1)$$

Puisque $T_{ij}(0) = 0$, et en posant: $C_{ijkl} = \left(\frac{\partial T_{ij}}{\partial S_{kl}}\right)_{S_{kl}=0}$, on aura:

$$T_{ii} = C_{iikl} S_{kl} \tag{2}$$

Les coefficients C_{ijkl} qui traduisent la relation linéaire la plus générale entre les tenseurs de rang deux (2) S_{kl} et T_{ij} sont les composantes d'un tenseur de rang appelé tenseur de rigidités élastiques. La loi de proportionnalité entre contraintes et déformations a été énoncée au XVIIe siècle par Hooke dans le cas simple de l'allongement d'un fil.

Un tenseur de rang 4 possède $3^4=81$ composantes. Les tenseurs S_{kl} et T_{ij} étant symétriques, les constantes élastiques définies par la relation (3) ne changent pas lors d'une permutation de deux premiers ou des deux derniers indices :

$$C_{ijkl} = C_{ijlk}$$
 et $C_{ijkl} = C_{jikl}$ (3)

La loi de Hooke (2) s'écrit en fonction des déplacements :

$$T_{ij} = \frac{1}{2} C_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{1}{2} C_{ijlk} \frac{\partial u_l}{\partial x_k}$$
 (4)

Comme $C_{ijkl}=C_{ijlk}$ et $C_{ijkl}=C_{jikl}$, les deux sommes de l'équation (4) sont égales :

$$T_{ij} = C_{ijkl} \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \tag{5}$$

Ces relations de symétrie ramènent de 81 à 36 le nombre des constantes élastiques indépendantes. En effet, un couple non ordonné d'indices (i,j) ne prend que six valeurs distinctes numérotées de 1 à 6 de la manière suivante :

$$(11) \leftrightarrow 1$$
 $(23) = (32) \leftrightarrow 4$ $(22) \leftrightarrow 2$ $(31) = (13) \leftrightarrow 5$ (6) $(33) \leftrightarrow 3$ $(12) = (21) \leftrightarrow 6$

Les modules élastiques indépendants, repérés par seulement deux indices α et β variant de 1 à 6, sont rangés dans un tableau carré 6 x 6 à 36 cases par l'expression suivante:

$$C_{\alpha\beta} = C_{iikl}$$

Ce tableau 6 x 6 des coefficients de constante élastique est défini comme suit :

$$(C_{\alpha\beta}) = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{41} & C_{42} & C_{43} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{51} & C_{52} & C_{53} & C_{54} & C_{55} & C_{56} \\ C_{61} & C_{62} & C_{63} & C_{64} & C_{65} & C_{66} \end{pmatrix}$$

Avec $\alpha \leftrightarrow (ij)$ et $\beta \leftrightarrow (kl)$ conformément à (6)

Exemples:

$$C_{14} = C_{1123} = C_{1132}$$

$$C_{56} = C_{1312} = C_{1321} = C_{3121} = C_{3112}$$

Cette notation, dite matricielle, peut être appliquée aux contraintes et déformations afin d'écrire la loi de Hooke sous la forme :

$$T_{\alpha} = C_{\alpha\beta} S_{\beta} \tag{7}$$

avec $\alpha, \beta = 1, 2, ..., 6$.

Il est possible d'inverser la loi de Hooke afin d'exprimer les déformations en fonction des contraintes :

$$S_{\alpha} = s_{ijkl} T_{kl} \tag{8}$$

Les s_{ijkl} sont appelées les *constantes de flexibilités* et forment un tenseur de rang 4 qui possède les mêmes propriétés de symétrie que le tenseur C_{ijkl} . Ce qui nous amène à un système d'équations dont la solution est :

$$S_{\alpha} = S_{\alpha\beta} T_{\beta} \tag{9}$$

Dans un cristal, une cause appliquée suivant une direction donne, en général, naissance à un effet orienté suivant une autre direction.

Toutes les contraintes T_{ij} appliquées sur un milieu continu ainsi que leurs effets, c'est-à-dire les déformations S_{ij} , sont décrites par un tenseur d'ordre 2.

1. Cas d'un système cubique :

Soit le repère X_1 , X_2 , X_3 . On définit alors les contraintes S_{ij} appliquées aux systèmes suivants, avec i direction normale au plan où s'applique la contrainte et j direction de la force, représentées dans la figure 1 :

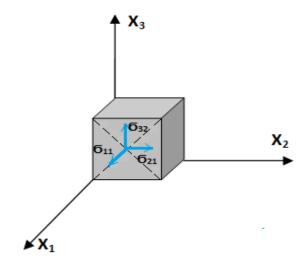


Figure 1 : Exemple de contraintes appliquées sur un système cubique bien orienté. $T_{X_3X_1}$ est la contrainte (N/m²) appliquée sur la surface perpendiculaire à l'axe X_1 et dans la direction X_1 . Cette notation de contrainte se réduit à T_{31} .

On considère le déplacement défini par (U_1, U_2, U_3) d'un élément du système précédent dans le repère (X_1, X_2, X_3) . Ce déplacement produit une déformation du milieu qui s'écrit sous la forme [1-4]:

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \frac{\partial u_k}{\partial x_j} \right)$$
 (10)

Le second ordre $\frac{\partial u_k}{\partial x_i}$. $\frac{\partial u_k}{\partial x_j}$ est infiniment petit et il est négligeable par rapport au premier terme $\frac{\partial u_i}{\partial x_j}$ de l'expression (10). Les composantes du tenseur des déformations se réduisent à :

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_i} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \tag{11}$$

Avec i, j = 1,2,3.

Seules six des neuf composantes sont distinctes car le tenseur S_{ij} est symétrique :

$$S_{ij} = S_{ji}$$

 S_{ij} = déformations transverses pour $i \neq j$,

 S_{ii} = déformations longitudinales.

Dans le domaine des petites déformations et pour un solide élastique, la loi de Hooke établit une relation linéaire entre les contraintes T_{ij} et les déformations S_{ij} :

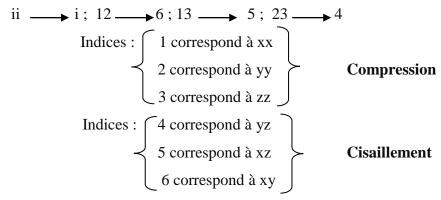
$$T_{ij} = C_{ijkl} . S_{kl}$$
 et $S_{ij} = S_{ijkl} T_{kl}$

i, j, k, l prennent les valeurs suivantes [1,2,3].

On définit alors les tenseurs d'ordre 4 des constantes élastiques (C_{ijkl}) et des constantes de flexibilité (s_{ijkl}).

En éliminant la rotation rigide qui n'engendre pas de déformation plastique, seules six composantes de ces deux tenseurs sont indépendantes. Nous avons alors $T_{ii} = T_{ii}$.

Si on considère la simplification suivante « Notation de Voigt » on a :



L'équation (1) simplifiée s'écrit alors :

$$T_i = C_{ij} S_i$$

avec i et j (1, 2, 3, 4, 5, 6);

$$S_{ij} = S_{ij} T_j$$

Avec [Sij] en m³/J

L'équation (1) simplifiée s'écrit alors :

$$T_i = C_{ij} S_j$$

avec i et j (1, 2, 3, 4, 5, 6)

$$S_{ij} = S_{ij} T_j$$

avec $[S_{ij}]$ – constante élastique en m³/J

et $[C_{ij}]$ - flexibilité élastique en J/m³.

Par ailleurs, suivant la symétrie du cristal, on peut réduire le nombre des composants des tenseurs d'ordre 4 des constantes C_{iikl} et S_{iikl} .

Dans l'approximation harmonique, nous citerons l'exemple d'un cristal cubique. Cet exemple, qui présente le plus d'éléments de symétrie, nous permet de bien saisir la relation entre l'orientation de la vitesse du son et des paramètres d'élasticité du milieu. En effet, ces éléments de symétrie réduisent le tenseur d'élasticité d'ordre 4 de 36 composants à 3 composants (C₁₁, C₁₂, et C₄₄), dont 2 sont indépendamment liés.

Vu que $C_{ij} = C_{ji}$, la matrice cubique sera comme suit :

CHAPITRE III: TECHNIQUE DE MESURES

Les cristaux du système cubique comportent au moins quatre axes A₃ et trois axes binaires directs qui sont pris comme axes de référence.

2. Cas d'un système tétragonal :

Dans ce cas, on distingue quatre modules sans indice 3 indépendants (C_{11} , C_{12} , C_{16} , C_{66}) qui s'ajoutent à (C_{13} , C_{33} et C_{44}), pour former le tableau suivant ^[133]:

$$C_{lphaeta} = egin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & & C_{16} \ C_{12} & C_{11} & C_{13} & & -C_{16} \ C_{13} & C_{13} & C_{33} & & & \ & & & & & C_{44} \ & & & & & & C_{44} \ & & & & & & C_{66} \ \end{pmatrix}$$

Pour les classes 422, 4mm, $\bar{4}$ 2m, 4/mmm, l'axe Ox_1 étant parallèle à un des axes binaires perpendiculaires à l'axe principal, la constante $C_{1112} = C_{16}$ s'annule car elle posséde un nombre impair d'indice 1.

3. Cas d'un système orthorhombique :

La matrice des coefficients élastiques de ce système comporte 9 termes indépendants. Elle est donnée par la matrice suivante :

$$C_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} \\ & & & C_{44} \\ & & & & C_{55} \\ & & & & & C_{66} \end{pmatrix} \quad \text{avec } C_{44} = \frac{c_{11} - c_{12}}{2}$$

II. Propriétés d'une onde élastique dans un milieu cristallin :

En restant toujours dans le cadre du système cubique, l'équation du mouvement de l'onde dans un milieu cristallin, déduite de l'équation dynamique de Lawe à l'équilibre [133-136] s'écrit:

$$\rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial X_j} \tag{12}$$

avec i, j (1, 2, 3)

Si le déplacement de la matière solide est U_i suivant l'axe X_i , l'équation précédente devient :

Pour i = 1:

CHAPITRE III: TECHNIQUE DE MESURES

$$\rho \partial^2 U_1/\partial t^2 = \frac{\partial T_{11}}{\partial X_1} + \frac{\partial T_{12}}{\partial X_2} + \frac{\partial T_{13}}{\partial X_3}$$
 (13)

En utilisant la loi de Hooke sous la forme de l'équation (5): $T_{ij} = C_{ijkl} \frac{\partial u_l}{\partial X_k}$, l'équation de mouvement devient : $\rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} = C_{ijkl} \frac{\partial^2 U_l}{\partial X_k \partial X_l}$ (14)

Tenant compte de l'équation (1), on aura :

$$\rho \partial^{2} U_{1}/\partial t^{2} = C_{11} \partial^{2} U_{1}/\partial X_{1}^{2} + C_{44} [\partial^{2} U_{1}/\partial X_{2}^{2} + \partial^{2} U_{1}/\partial X_{3}^{2}] + (C_{44} + C_{12})[\partial^{2} U_{2}/\partial X_{1}\partial X_{2} + \partial^{2} U_{3}/\partial X_{1}\partial X_{3}]$$
(15)

Pour une onde dirigée suivant la direction suivant la direction (1 0 0) avec un déplacement U_I de la forme :

$$U_1 = U_1^0 \exp i (kx_1 - \omega t)$$
 (16)

On a alors:

$$\rho \partial^2 U_1 / \partial t^2 = C_{11} \partial^2 U_1 / \partial X_1^2 \tag{17}$$

A travers cette relation, on déduit la constante élastique longitudinale :

$$C_{11} = \rho v_s^2 \tag{18}$$

Pour i = 2, l'équation devient :

$$\rho \partial^{2} U_{2} / \partial t^{2} = C_{11} \partial^{2} U_{2} / \partial X_{2}^{2} + C_{44} [\partial^{2} U_{2} / \partial X_{1}^{2} + \partial^{2} U_{2} / \partial X_{3}^{2}]$$

$$+ (C_{44} + C_{12}) [\partial^{2} U_{1} / \partial X_{1} \partial X_{2} + \partial^{2} U_{3} / \partial X_{1} \partial X_{3}]$$

Donc, pour une onde dirigée suivant la direction (100) avec une polarisation U_2 perpendiculaire de la forme :

$$U_2 = U_2^0 \exp i \left(kx_1 - \omega t \right)$$

On a alors:

$$\rho \partial^2 \, U_2/\partial t^2 \, = C_{44} \, [\partial^2 \, U_2/\partial X_1^2]$$

On en déduit la constante d'élasticité transverse (module de cisaillement) :

$$C_{44} = \rho v_s^2 \tag{19}$$

Avec $v_s = \omega/k$, est la vitesse du son, ρ est la masse volumique et ω ainsi que k sont les paramètres de l'onde sonore.

Exemples:

T est le mode transverse dont la polarisation est perpendiculaire à la direction de l'onde tandis que L est le mode longitudinal dont la polarisation est parallèle à la direction de l'onde.

Cas de la symétrie dans un système tétragonal :

Pour un système tétragonal, classes 422, 4mm, $\bar{4}$ 2m, 4/mmm [133-136].

Propagation	Polarisation	Vitesse de son
	[100] (L)	$\left(\frac{C_{11}}{p}\right)^{1/2}$
[100]	[010] (T)	$\binom{{\rm C}_{66}}{\rho}^{1/2}$
	[001](T)	$\left(\frac{C_{44}}{\rho}\right)^{1/2}$
	[110] (L)	$\left(\frac{C_{44} + C_{12} + 2C_{66}}{2\rho} \right)^{1/2}$
[110]	[1 1 0] (T)	$\left(\frac{C_{11}-C_{12}}{2\rho}\right)^{1/2}$
	[001] (T)	$\binom{C_{44}}{\rho}^{1/2}$
[001]	[110] (L)	$\left(^{\text{C}_{33}}/_{\rho}\right)^{1/2}$
[001]	Plan (001) (T)	$\binom{C_{44}}{\rho}^{1/2}$

Pour un système tétragonal, le tenseur de Christoffel s'écrit sous la forme [133-134] :

$$\begin{split} &\Gamma_{11} = c_{11}n_1^2 + c_{66}n_2^2 + c_{44}n_3^2 + 2c_{16}n_1n_2 \\ &\Gamma_{12} = c_{16}(n_1^2 - n_2^2) + (c_{11} + c_{66})n_1n_2 \\ &\Gamma_{13} = (c_{13} + c_{44})n_1n_3 \\ &\Gamma_{22} = c_{66}n_1^2 + c_{11}n_2^2 + c_{44}n_3^2 - 2c_{16}n_1n_2 \\ &\Gamma_{23} = (c_{13} + c_{44})n_2n_3 \\ &\Gamma_{33} = c_{44}(n_1^2 + n_2^2) + c_{33}n_3^2 \end{split}$$

Si la propagation a lieu dans un plan perpendiculaire à l'axe quaternaire $(n_1 = \cos \varphi, n_2 = \sin \varphi, n_3 = 0)$ le tenseur Γ_{il} se met sous la forme : $\Gamma_{il} = \begin{bmatrix} \Gamma_{11} & \Gamma_{12} & 0 \\ \Gamma_{12} & \Gamma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \Gamma_{33} \end{bmatrix}$.

Avec:

$$\begin{split} &\Gamma_{11} = c_{11}\cos^2\varphi + c_{66}\sin^2\varphi + c_{16}\cos2\varphi, \\ &\Gamma_{12} = c_{16}\cos2\varphi + (c_{11} + c_{66})\frac{\sin2\varphi}{2} \\ &\Gamma_{22} = c_{66}\cos^2\varphi + c_{11}\sin^2\varphi + c_{44}n_3^2 - c_{16}\sin2\varphi \\ &\Gamma_{22} = c_{44}\cos^2\varphi + c_{44}\sin^2\varphi + c_{44}\sin^2\varphi$$

L'équation séculaire est identique à celle d'un système cubique, il existe une onde transversale, polarisée suivant x_3 , de vitesse $V_3 = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$ et de deux ondes polarisées dans le plan (001) dont les vitesses V_1 et V_2 sont données [133-134]:

$$2\rho V_1^2 = \Gamma_{11} + \Gamma_{22} + \sqrt{(\Gamma_{11} - \Gamma_{22})^2 + 4(\Gamma_{12})^2}$$
 (20)

$$2\rho V_2^2 = \Gamma_{11} + \Gamma_{22} - \sqrt{(\Gamma_{11} - \Gamma_{22})^2 + 4(\Gamma_{12})^2}$$
 (21)

En remplaçant les Γ_{11} , Γ_{22} , Γ_{12} par les expressions en fonction de φ , nous obtenons :

$$2\rho V_1^2 = C_{11} + C_{66} + \sqrt{[(C_{11} - C_{66})\cos 2\varphi + 2C_{16}\sin 2\varphi]^2 + [(C_{11} + C_{66})\sin 2\varphi + 2C_{16}\cos 2\varphi]^2}$$

et

$$2\rho V_2^2 = C_{11} + C_{66} - \sqrt{[(C_{11} - C_{66})\cos 2\varphi + 2C_{16}\sin 2\varphi]^2 + [(C_{11} + C_{66})\sin 2\varphi + 2C_{16}\cos 2\varphi]^2}$$

Ou encore:

$$2\rho V_1^2 = C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (C_{11} + C_{66})^2 \sin^2 2\varphi + 2C_{16}(C_{11} + C_{12})\sin 4\varphi + 4C_{16}^2}$$

Et
$$2\rho V_2^2 = C_{11} + C_{66} - \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (C_{11} + C_{66})^2 \sin^2 2\varphi + 2C_{16}(C_{11} + C_{12}) \sin 4\varphi + 4C_{16}^2}$$

Pour les cristaux appartenant aux classes 422, 4mm, $\overline{4}$ 2m, 4/mmm avec annulation du c_{16} les équations de Christoffel [133-134] suivantes :

$$2\rho V_1^2 = C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (C_{11} + C_{66})^2 \sin^2 2\varphi}$$
Et
$$2\rho V_2^2 = C_{11} + C_{66} - \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (C_{11} + C_{66})^2 \sin^2 2\varphi}$$
Il en résulte :
$$V_1 = V_L = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (c_{11} + c_{66})^2 \sin^2 2\varphi}}{2\rho}}$$
 (22)
Et
$$V_2 = V_T = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 \cos^2 2\varphi + (c_{11} + c_{66})^2 \sin^2 2\varphi}}{2\rho}}$$
 (23)

La vitesse V_1 correspond à l'onde quasi-longitudinale et la vitesse V_2 correspond à l'onde quasi-transversale.

III. Modes de propagation des ondes ultrasonores :

Dans un solide, on distingue deux catégories d'ondes élastiques, les ondes de volume et les ondes de surface qui peuvent se propager selon des modes différents. Pour les ondes de volumes, il existe deux modes fondamentaux [133-134], représentés comme suit dans les figures 2 et 3.

1. Le mode longitudinal : (de compression ou dilatation)

Il est caractérisé par un vecteur de déplacement des particules de matière parallèlement et colinéairement à la direction de propagation de l'onde, figure 2. Le passage d'une onde longitudinale plane entraine une variation de la distance entre les plans parallèles contenant les particules. Le volume occupé par un nombre donné des particules varie. Ce type d'onde crée des zones de compression et de dépression successives et peut exister dans tous les corps solides, liquides et gazeux.

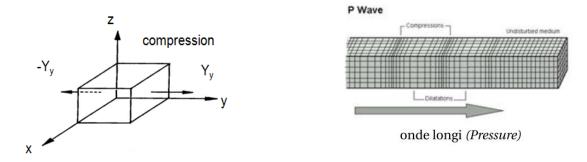


Figure 2: Représentation du mode longitudinal (compression).Onde longitudinale : polarisation et vecteur de propagation sont parallèles. L'onde est vue comme une succession de compressions et de dilatations.

2. Le mode transversal (ou de cisaillement) :

Le déplacement des particules s'effectue perpendiculairement au vecteur d'onde. Il engendre alors des contraintes de cisaillement, figure 3. Le glissement des plans parallèles ne donne lieu à aucune variation du volume. Ce mode de propagation existe uniquement dans les solides.

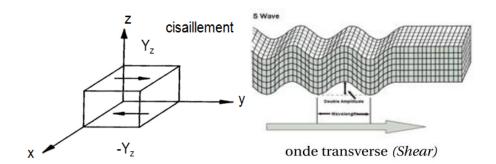


Figure 3 : Représentation du mode transversal (cisaillement).Onde transversale : polarisation et vecteur de propagation sont perpendiculaires. L'onde est vue comme une succession d'oscillations transversales.

IV. Milieux de propagation des ondes ultrasonores :

1. Système isotrope :

Un système est dit isotrope s'il présente les mêmes caractéristiques physiques dans toutes les directions. Quelle que soit la face du volume élémentaire soumis à une contrainte, l'allongement relatif et la variation transversale des dimensions seront les mêmes.

La déformation mécanique d'un solide isotrope peut donc être caractérisée par deux grandeurs élastiques indépendantes C_{11} et C_{12} . Les autres termes de la matrice des élasticités sont liés à ces deux constantes par la relation [135]:

$$C_{11} = C_{22} = C_{33}$$
, $C_{12} = C_{13} = C_{23}$, $C_{44} = C_{55} = C_{66} = \frac{C_{11} - C_{12}}{2}$ (24)

Tous les autres termes sont nuls. Du fait de la présence des termes C_{11} et C_{13} , la matrice des constantes élastiques n'est pas diagonale. Par contre, elle le devient pour les termes $C_{44} = C_{55} = C_{66}$. Cette propriété est valable pour les classes de symétrie orthorhombique. Il s'en suit que les termes C_{11} et S_{11} ne sont pas inverses l'un de l'autre. Par contre, les termes C_{44} et S_{44} sont inverses l'un de l'autre car, pour un matériau élastique isotrope et aussi pour les matériaux céramiques piézoélectriques, seuls les termes diagonaux indicés 44,55 et 66 ne sont pas nuls. D'où:

$$S_{44} = (C_{44})^{-1}$$
, $S_{55} = (C_{55})^{-1}$ et $S_{66} = (C_{44})^{-1}$ (25)

Pour un matériau isotrope, les relations se réduisent à :

$$S_{44} = S_{55} = S_{66} = 2(S_{11} - S_{12})$$

Pour les matériaux isotropes, on utilise quelques fois les constantes de Lamé qui se déduisent des modules de rigidité par les relations suivantes :

$$\lambda = C_{12} = C_{13} = C_{23}$$
 et $\mu = C_{44} = C_{55} = C_{66} = \frac{C_{11} - C_{12}}{2}$

Dans un milieu isotrope illimité, les modules élastiques s'expriment en fonction des coefficients de Lamé λ et μ (exprimés en GPa) dans la relation suivante :

$$T_{ij} = \lambda S \delta_{ij} + 2\mu S_{ij} \tag{26}$$

Ce couple de constantes caractérisant l'isotropie du matériau est remplaçable par un autre : le module de Young (Y) et le coefficient de Poisson (v) ou par deux constantes élastiques C_{1111} et C_{1122} , en notation matricielle C_{11} et C_{12} . Ces coefficients sont reliés entre eux par :

$$Y = \mu \frac{3\lambda + 2\mu}{\lambda + \mu}$$
, $v = \frac{\lambda}{2(\lambda + \mu)}$ et $C_{12} = \frac{C_{11} - C_{12}}{2} = \mu$

Ondes élastiques de surface :

Lorsque le solide est isotrope, l'onde de volume ^[135] possède deux composantes: l'une longitudinale polarisée dans la direction de propagation, et l'autre transversale perpendiculaire à celle-ci, comme le montre la figure 4.

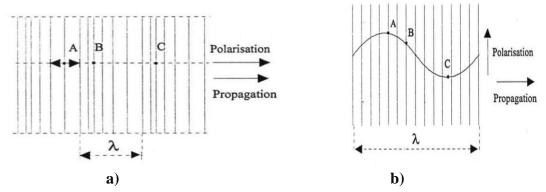


Figure 4 : a) Onde longitudinale: le déplacement des particules se fait dans la direction de propagation, les plans se déplacent l'un par rapport à l'autre en modifiant leur distance. **b)** Onde transversale: le déplacement des particules se fait perpendiculairement à la direction de propagation, les plans glissent l'un par rapport à l'autre en conservant leur distance.

Le terme ondes de surface s'applique en principe à toute déformation qui se propage n'ébranlant qu'une faible épaisseur de matière s'évaluant en prenant pour unité la longueur d'onde.

Parmi les ondes de surface [133-137-138], on trouve:

- Les ondes de Rayleigh,
- ➤ Les ondes de *Bleustein Gulyaev*,
- Les ondes de *Stoneley*,
- Les ondes de *Love*,
- Les ondes de *Lamb*.

Les ondes de surface de Rayleigh $^{[133-137]}$ est une onde guidée qui se propage juste en dessous de la surface libre de tout milieu. Elles se composent, dans les cas simples, d'un déplacement longitudinal et d'un déplacement transversal déphasés de $\pi/2$ qui s'annulent définitivement à une profondeur de l'ordre de deux longueurs d'onde 2λ $^{[133]}$.

Les ondes de surface Rayleigh peuvent être excitées et détectées sur des substrats piézoélectriques par des transducteurs interdigités (IDT) [133-139] dont les électrodes sont en

forme de peigne. Les détails concernant les ondes de surface et les « transducteurs des ondes surface » sont portés dans l'Annexe I.

2. Système anisotrope :

Un cristal soumis à une contrainte mécanique, suivant un axe donné, se déforme généralement de manière différente dans les autres directions. Ce comportement est dit anisotrope.

Dans un solide anisotrope tel qu'un cristal, l'équation de propagation admet trois solutions et donc trois ondes élastiques. Dans les systèmes anisotropes (cristaux...) qui sont les plus fréquemment étudiés, le nombre des constantes élastiques physiques indépendantes d'un solide anisotrope sont fortement réduites par les éléments de symétrie de ce dernier. Ainsi dans un cristal hexagonal par exemple, les composantes du tenseur élastique passent de 36 à 5 composantes grâce à ses éléments de symétrie [135].

Les ondes de volume se propagent dans tout milieu de dimension infini, le terme infini signifie que les dimensions du milieu sont grandes devant la longueur d'onde.

Lorsque le milieu est anisotrope, l'onde de volume possède en général trois composantes dont aucune n'est purement longitudinale, ou purement transversale ^[133-134]. Les polarisations de l'onde forment un trièdre direct (voir figure 5), celle dont la polarisation est la plus proche de la direction de propagation est dite quasi longitudinale, les deux autres sont appelées quasi transversales.

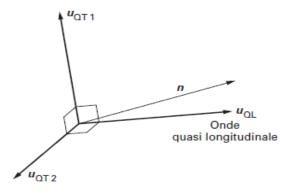


Figure 5. Propagation d'une onde plane dans un milieu anisotrope [133].

Dans une direction quelconque, trois ondes planes dont les polarisations sont orthogonales peuvent se propager avec des vitesses différentes. Chaque point d'un milieu traversé par un ébranlement est localement en mouvement, et le déplacement de chaque point matériel varie au cours du temps [139]. Dans la direction "i", le déplacement u_i sera alors fonction à la fois des coordonnées spatiales x_k (voir figure 3) et du temps:

$$u_i = u_i(x_k, t)$$

L'équation du mouvement résulte de la loi fondamentale de la dynamique :

$$\vec{F} = m\vec{\gamma} \tag{27}$$

L'action de la pesanteur étant négligée, écrivons que cette force communique, suivant l'axe i, l'accélération $\frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2}$ à la masse ρ de l'unité de volume.

Lorsque le corps n'est soumis à aucune force extérieure (on néglige les forces de pesanteur), la relation générale d'équilibre dans le cas de l'élasticité dynamique s'écrit:

$$f_i = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \tag{28}$$

Où f_i est la densité de force par unité de volume du corps sous contraintes internes T_{ii}.

V. Techniques pour la propagation des ondes ultrasonores :

Nous avons utilisé la méthode impulsionnelle qui présente certains avantages sur la méthode par onde entretenue. Le rapport de transformation électromagnétique du générateur piézo-électrique étant très faible, il faut lui fournir une puissance électrique importante (=1 Watt) et, s'il s'agit d'impulsions, la puissance moyenne peut être ramenée à des valeurs acceptables pour les mesures à basse température. De plus, le signal d'attaque et sa réponse sont alternés dans le temps, ce qui facilite le traitement de l'information. Nous allons décrire le principe de la méthode et montrer comment l'appliquer à la mesure de l'atténuation et de la vitesse du son.

1. Principe de la méthode pulsée :

La figure 6 illustre le principe de la méthode par transmission et de la méthode par réflexion. Les deux faces opposées de l'échantillon sont taillées rigoureusement parallèles entre elles. Sur chacune est collé un transducteur.

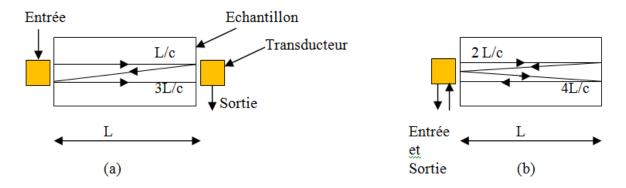


Figure 6: Représentation des deux configurations possibles utilisées dans la technique pulsée. **(a)** Méthode par transmission, **(b)** Méthode par réflexion ^[136].

Méthode par transmission :

Un transducteur est excité par le générateur : c'est l'émetteur. L'autre transducteur sert de récepteur (Fig.6.a).

Méthode par réflexion :

L'émission et la réception de l'onde mécanique se font sur le même transducteur (Fig. 6.b).

Le signal d'attaque est une impulsion de fréquence f et de largeur τ (en μ s) qui se répète avec une fréquence de répétition f_r . Nous allons considérer nos conditions expérimentales. On applique un signal RF de 10 volts de tension et de durée 1μ s sur l'émetteur (Fig.7).

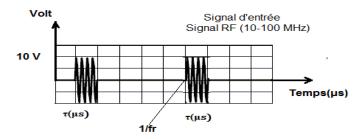


Figure 7: Représentation de l'amplitude et la durée du signal d'entrée, fr désigne la fréquence de répétition.

Le transducteur transforme l'énergie électrique en énergie mécanique. Au temps $t=L/v_s$, avec L longueur de l'échantillon et v_s vitesse de propagation, l'onde parvient à la deuxième face de l'échantillon ou elle est réfléchie, ne cédant qu'une faible partie de son énergie au récepteur (Fig. 6.a).

La répétition de ce processus jusqu'à l'absorption complète de l'énergie donne lieu à une figure d'échos. Chacun de ces échos correspond à un aller et retour de plus que le précédent. La même interprétation reste valable pour la méthode à réflexion. Chaque absorption d'un signal acoustique par le récepteur à l'instant t est représenté, comme l'indiquent les figures 8 et 9, par un écho dont l'amplitude varie avec l'énergie acoustique absorbée.

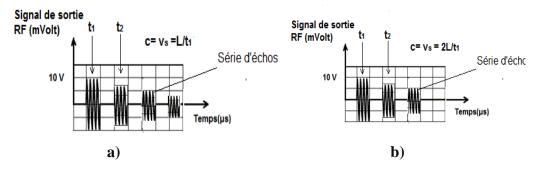


Figure 8 : Représentation des séries d'échos collectés à la sortie du transducteur récepteur par : **a)**- la méthode de transmission ;et **b)**- la méthode de réflexion.

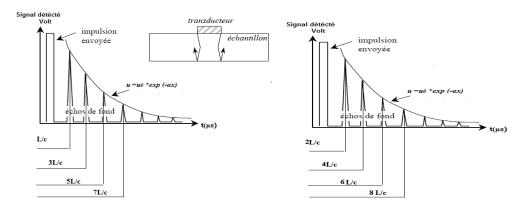


Figure 9 : Déduction de l'atténuation et de la vitesse du son par l'analyse des échos respectivement aux deux méthodes précédentes. α : Coefficient d'absorption linéaire.

La tension du signal RF à la sortie du récepteur est représentée par des échos de quelques mV. Ces derniers, amplifiés, permettent l'analyse suivante :

- La différence de temps entre deux échos est reliée à la vitesse de l'onde ;
- Le rapport de leurs amplitudes nous ramène au coefficient d'absorption.

Remarque:

La plupart des échantillons utilisés (Ex : BaFe_{2-x}Ni_xAs₂) sont massifs et plus ils sont grands, plus ils présentent des défauts. Ces défauts sont capables d'induire des signaux d'erreurs et d'atténuer la vibration de façon à ce que les échos collectés soient détériorés. Ceci constitue l'une des principales difficultés qui rend difficile l'analyse des échos. Il est donc préférable de travailler avec une cellule à deux transducteurs afin obtenir des échos moins perturbés et plus exploitables.

2. Transducteur piézoélectrique de volume:

Un transducteur de volume est constitué essentiellement, comme l'indique la figure 10, par un matériau piézo-électrique portant deux électrodes métalliques.

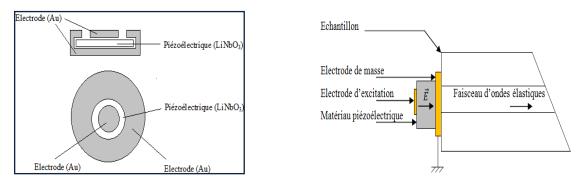


Figure 10: Cellule expérimentale de mesure à onde de volume.

Cette disposition alternée des électrodes et du système piézo-électrique des transducteurs est directement collée sur la surface juxtaposée de l'échantillon, tel que représentée dans la figure 12.

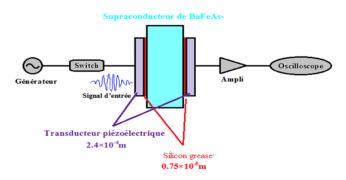


Figure 11 : Représentation de la disposition des transducteurs à onde de volume sur les deux faces de l'échantillon avec indication des épaisseurs des transducteurs (240 μm) et de la couche de graisse de silicone isolante (7,5 μm).

L'onde de volume générée dans les deux modes, longitudinal et transversal est la continuité de la vibration mécanique du matériau piézo-électrique du transducteur qui est transmise vers l'échantillon à travers l'électrode de masse. Le transducteur sera donc utilisé comme un résonateur mécanique dont la fréquence F est définie par :

$$F = (2n+1) \times \frac{v_s}{2h} \tag{46}$$

ou v_s est la vitesse du son et (n = 0, 1, 2, ...)

On pourra donc opérer avec toutes les harmoniques impaires $(F_1, F_3, F_5, ...)$ supérieures ou égales à la fréquence F_0 (n = 0 est la fréquence fondamentale).

Pour un mode longitudinal, $v_s = v_L = 5.10^5 \ cm/s$ et pour une fréquence $F = 15 \ MHz$, l'épaisseur du piézo-électrique sera donc :

$$h = v_L/_{2F} \approx 200 \, \text{2m}$$

Pour le mode transverse, la vitesse est inférieure à celle du mode longitudinal : $v_T < v_L$. Ceci signifie que pour la même fréquence fondamentale F_0 , l'épaisseur du piézo-électrique du transducteur devrait être inférieure à 200 μ m. Donc, à chaque type de mode ultrasonore, il faut adapter le type de transducteur correspondant, et ce en tenant compte de l'épaisseur de son matériau piézo-électrique.

Chaque matériau piézo-électrique est aussi caractérisé par son coefficient de couplage électromécanique. Ce coefficient de couplage nous renseigne sur l'orientation idéale qui permet d'obtenir un mode pur (longitudinal ou transverse), représenté dans la fig.12.

Nous avons utilisé dans notre étude, comme piézo-électrique, le LiNbO₃, en forme de pastille perpendiculaire à un axe principal Xi, sur lequel sont évaporés deux électrodes en or. Cet échantillon cristallin est de classe rhomboédrique et appartient à la classe 3m. Il est capable d'engendrer les modes fondamentaux selon son épaisseur.

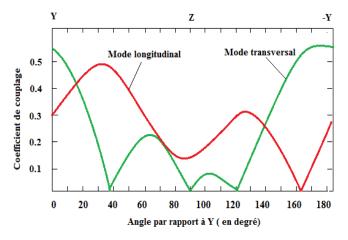


Figure 12 : Représentation de la variation du coefficient de couplage des deux modes purs en fonction d'un angle θ par rapport à l'axe Y, dans le plan YZ^[133].

Le coefficient de couplage pour la génération d'un mode pur est indiqué dans la fig.12. Pour un angle de 36° par rapport à l'axe Y, on constate une annulation du coefficient de couplage K_T associée au mode propre transverse, tandis que le coefficient de couplage K_L du mode propre longitudinal est maximal ($K_L = 0.49$). Dans ce cas, le transducteur (LiNbO₃) de coupe Y+36 est spécifique aux modes longitudinaux. Réciproquement, pour une coupe Y+163 spécifique aux modes transverses, le coefficient de couplage K_T est maximal ($K_T = 0.62$), alors que K_L est nul.

Pour éviter leur oxydation, les transducteurs sont couverts d'une couche d'or infiniment petite devant celle du piézo-électrique. Ainsi, pour une fréquence de 15 MHz, l'épaisseur du

transducteur Y+36 est de $200~\mu m$. Ces transducteurs sont disponibles commercialement avec les différentes coupes à modes purs possibles.

La direction et la polarisation de l'onde au niveau du transducteur sont bien déterminées et reposent sur la bonne orientation de l'échantillon. Le tout, en assurant une bonne adhésion des transducteurs sur les faces parallèles de l'échantillon.

Les vitesses des deux modes longitudinal et transversal sont calculées sur la base du rapport d'un aller et retour du signal à travers la longueur de l'échantillon L et le temps mesuré entre deux échos T par l'équation suivante :

$$v = \frac{2L}{T} \qquad (47)$$

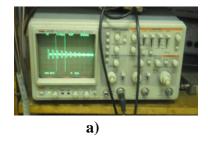
Les transducteurs piézoélectriques de volume, utilisés dans nos mesures ultrasonores, ont un diamètre 3 mm et une épaisseur 200 µm et sont conçus pour résonner à une fréquence fondamentale 15 MHz et à une harmonique impaire 45 MHz (multiple de la fréquence fondamentale).

La mesure de la vitesse du son dans un échantillon homogène est plus nette que dans un composite, vu qu'il n'y a pas de réflexion des échos parasites. La vitesse dépend de la longueur de l'échantillon (L). En cas d'un échantillon épais, les échos sont nettement séparés Fig.13.(a), alors qu'ils sont superposés et chevauchés dans un échantillon fin Fig.13.(b).

Dans des plaquettes fines, on peut mesurer la vitesse de propagation par la mesure de la fréquence. En effet, la différence des fréquences qu'on obtient à l'issue du développement de l'écho ultrasonore par la transformée de Fourrier permet d'aboutir à la vitesse par l'équation suivante :

$$\Delta f = f_2 - f_1 = \frac{1}{T} = \frac{v}{L}$$
 (48)

Dans la figure 14, sont représentés des échos issus de la mesure d'une lame en verre de longueur L = 5 mm (a) et dans une lamelle en verre fine de 1mm de longueur (b).



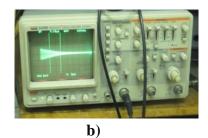


Figure 13 : Résultats de mesures des échos de vitesses sur des lames en verre avec des transducteurs à ondes de volume : **a)**- Sur une lame épaisse de longueur 5mm, **b)**- Sur une lamelle fine de longueur 1mm.

VI. Mesure de vitesse avec une boucle à verrouillage de phase :

1. Le schéma de principe et technique de mise en œuvre :

Dans la figure 14, est représenté le schéma de principe de mesures ultrasonores par des ondes de volumes.

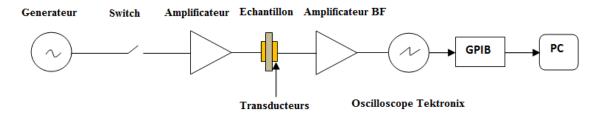


Figure 14 : Schéma du circuit de mesures en ondes de volume.

Les transducteurs piézoélectriques utilisés dans ces mesures ultrasons, sont illustrés dans la figure 15 relative à la mesure en œuvre.





Figure 15 : Photos illustrant les transducteurs ultrasonores de volume et l'emplacement du porte échantillon dans le calorimètre de la canne.

La mise en œuvre de notre mesure ultrasonore a consisté à coller, à l'aide d'une graisse « Huile de thiokol, Apiezon », de part et d'autre de l'échantillon deux transducteurs Tr1 et Tr2.

Les électrodes d'excitation et de réception de ces deux transducteurs sont connectées à deux connecteurs SMA qui sont vissés sur le porte échantillon. Le porte échantillon est refermé et placé sur le calorimètre de la canne. Les deux connecteurs SMA du porte échantillon seront par la suite connectés, à des lignes de transmission adaptées pour les mesures de température, figure 15.

Pour le relevé des basses températures, trois thermomètres sont placés et fixés sur le porte échantillon : une résistance de Germanium destiné à mesurer des températures T < 80 K ,une seconde à diode de silicium (Lake Shore) étalonné de 4 à 300K et un troisième a une résistance de platine destiné à mesurer la température 20-300 K. Ces thermomètres sont étalonnés et calibrés à l'avance, et testés à la température d'ambiante de 300 K à chaque mesure.

Une fois, le calorimètre de la canne est étanchéifié avec un joint de silicone, la canne est vissée par deux manchons et introduite progressivement dans le cryostat à Hélium liquide, dont le descriptif est donné en annexe II. Une vérification des différents équipements du dispositif électronique s'avère nécessaire à chaque manipulation. (Fig. 16).



Figure 16 : Equipements du dispositif électronique de mesures ultrasonores.

2. Le dispositif électronique :

Dans le montage détaillé dans la figure17, l'interrupteur AsGa, ayant un temps de commutation de 1-3ns, commandé par une logique, et l'amplificateur de puissance sont montés en série entre le générateur VCO (HP 8656) de fréquence variable 0.1-990MHz et l'échantillon. La cellule, comprenant l'échantillon, est mise en sandwich entre les deux transducteurs.

Le signal continu de fréquence $\omega_0/_{2\pi}$ et d'une tension d'une dizaine de volts délivré par le V.C.O (oscillateur à fréquence contrôlée) est transformé par le commutateur électronique AsGa en un train d'onde de même fréquence $\omega_0/_{2\pi}$, de largeur τ_0 et de fréquence $\omega_r/_{2\pi}$, puis amplifié avant d'atteindre l'échantillon.

Le signal au niveau du récepteur est amplifié par un amplificateur large bande (avec un gain maximum de 40dB). Un déphasage φ , lié au passage de l'onde dans l'échantillon, est observable au niveau du signal dernièrement amplifié. Ce signal, visualisé sur l'oscilloscope en forme d'échos (Fig.18), est transféré simultanément vers le multiplicateur pour la mesure de la vitesse et vers le détecteur d'enveloppe pour la mesure d'atténuation.

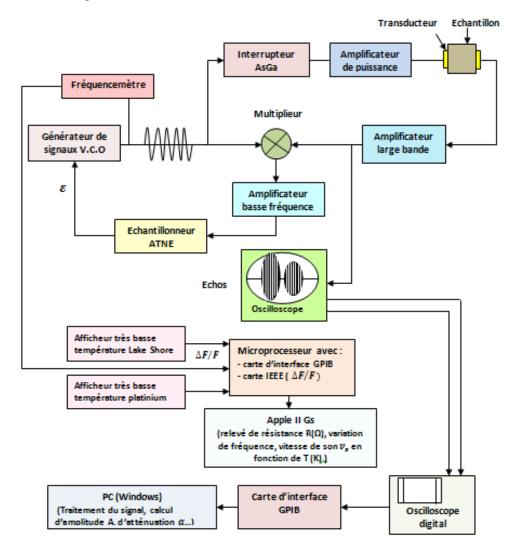
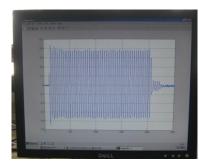


Figure 17: Dispositif électronique de mesure de la vitesse acoustique par la méthode impulsionnelle à boucle de verrouillage de phase.

Le signal est récupéré sur un autre oscilloscope digital « Tektronix (TDS20) » permettant l'acquisition, l'enregistrement et le traitement du signal par un programme adéquat sous l'application Matlab.





(a) Acquisition d'écho.

(b) Enregistrement et traitement du signal

Figure 18: Forme d'écho de mesure à onde ultrasonore à 30 MHz.

Nous obtenons un signal dont la forme d'écho est représentée dans la figure 19. L'amplitude moyenne du signal de la tension de réflexion ou d'absorption en fonction de température est calculée par une application du logiciel cité, entre 200K et 5 K.

Les valeurs moyennes des amplitudes de tension relevées en fonction de leur température correspondante sont ensuite transférées vers une application graphique permettant de faire le calcul et le tracer des dépendances : atténuation sonore, variation de tension, variation de la constante d'élasticité en fonction de la température.

3. Mesure de la vitesse ultrasonore :

Le signal à la sortie de l'amplificateur à large bande $\propto \cos(\omega_0 t + \phi)$ est multiplié avec celui provenant directement du V.C.O $\propto \cos(\omega_0 t)$. Le signal résultant, filtré par un amplificateur à basse fréquence, donnera une composante dépendant uniquement de la phase $(\phi = \omega^L/_C)$. Une boucle de contre-réaction à verrouillage de phase maintient la phase ϕ constante par l'ajustement de la fréquence à l'aide du V.C.O commandé par le signal d'erreur ϵ .

Le fait que la phase est contrôlable au niveau de l'échantillonneur, nous ramène à la maintenir généralement égale à $\pi/2$. La mesure de la variation vitesse du son est déduite directement par la mesure de la variation de fréquence de l'onde. On a :

$$\frac{\Delta v_s}{v_s} = \frac{\Delta F}{F} = \frac{\Delta \omega}{\omega} \tag{49}$$

On mesure alors leur variation relative. La résolution du dispositif dans de bonnes conditions est de l'ordre de 10^{-5} . La conversion de données de mesures analogiques en numérique, est réalisée avec une carte IEEE insérée dans le microprocesseur, permettant l'acquisition automatique des données toutes les 5 secondes.

4. Mesure de l'atténuation :

Jusqu'à présent on a vaguement parlé de l'atténuation, ou autrement dit, de l'absorption des ondes élastiques dans les solides. Il est temps de donner une définition adéquate de ce paramètre qui est directement lié aux différents phénomènes spécifiques à ce type de matériaux [133-135].

Soit une onde plane engendrée par le transducteur, qui se propagera ensuite suivant une direction x de l'échantillon. Cette onde est décrite par :

$$A(x,t) = A_0 expi(\omega t - kx)$$
 (50)

Avec $k^2 v_s = \omega^2$

Où $\omega = 2\pi F$ est la fréquence angulaire de l'onde et $k = 2\pi/l = 2\pi F/v_s$, k: vecteur d'onde, v_s : vitesse de phase (vitesse de l'onde) et l: longueur d'onde.

Cette onde plane, après avoir parcouru une certaine longueur, est amortie. La dissipation d'énergie est décrite par la nouvelle équation de l'onde :

$$A(x,t) = A_0 \exp(\omega t - kx)$$

$$A(x,t) = A_0 \exp(-\alpha_s x) \exp(\omega t - kx)$$
(51)

 α_s est le coefficient d'atténuation linéaire (cm⁻¹).

La seule connaissance de l'amplitude $A(x,t) = A_0 exp(-\alpha_s x)$ du signal A(x,t) entre deux positions x_1 , x_2 nous permet de définir l'amortissement α_s .

Pour $x_1 < x_2$ et avec x mesuré en cm, on a :

$$\alpha_S(cm^{-1}) = (1/(x_2 - x_1)). Ln(A(x_1)/A(x_2))$$
 (52)

Dans nos résultats, nous présentons l'atténuation en décibel (dB). L'équation (52) de α_S , convertie en dB, s'écrit alors :

$$\alpha_S(dBcm^{-1}) = (1/(x_2 - x_1)).20. \ln(A(x_1)/A(x_2))$$
 (53)

On peut définir ce coefficient d'amortissement, dont le terme de la puissance acoustique est p(x), par : $p(x) = p_0 \cdot exp(-l^{-1} \cdot x)$ (54)

La puissance acoustique (proportionnelle à la densité des phonons) varie entre deux positions x_1, x_2 . On a alors :

$$l^{-1}(cm^{-1}) = (1/(x_2 - x_1)). \ln(p(x_1)/p(x_2))$$
 (55)

$$l^{-1}(cm^{-1}) = \alpha_S(dBcm^{-1})/8.683 \tag{56}$$

 l^{-1} définit le libre parcours moyen de l'onde acoustique. Cette définition est fondamentale et elle est identique à celle utilisée pour les oscillateurs harmoniques (système à basse fréquence) :

$$l^{-1} = (Puissance moyenne dissipée) / (Flux moyen d'énergie)$$

$$l^{-1} = \langle P(t) \rangle / (1/2) \rho \omega^2 . A_0^2 . v_s$$

Où ρ est la densité volumique.

Certains auteurs utilisent la notion de facteur de qualité Q (friction interne) par analogie avec le système résonnant à basse fréquence, où l'énergie dissipée est faible :

$$Q = W$$
. Puissance instantanée/Puissance dissipée (57)

Avec:
$$p(t) = p_0 \exp[-(\omega/Q).t]$$
 et $Q^{-1} = l^{-1}.v_s/\omega$

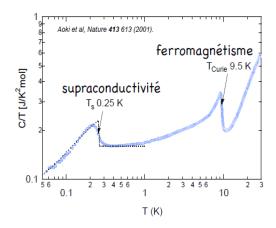
Parmi toutes ces définitions, nous retenons celle de α_s (dB/cm), accessible par la mesure de l'amplitude des échos, dans la méthode impulsionnelle.

VII. Mesures de la chaleur Spécifique :

Les notions théoriques concernant la chaleur spécifique sont reportées dans l'Annexe I. Dans ce paragraphe, nous présentons une description de mesures de la chaleur spécifique dans les transitions et le dispositif expérimental de mesures PPMS (Système de Mesures de Propriétés Physiques) [140].

1. Chaleur spécifique lors transitions de phases dans les supaconducteurs:

Lors d'un changement de phase, les propriétés physiques d'un corps subissent une discontinuité et en particulier sa chaleur spécifique. La mesure de la chaleur spécifique fournit donc un excellent moyen de mettre en évidence les transitions de phase à l'état solide (par exemple transition supraconductrice, transition ferromagnétique, etc...), figure 19.



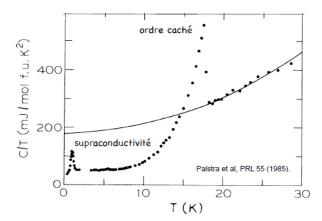


Figure 19: Mesures de la chaleur spécifique dans des échantillons supraconducteurs : le composé URhGe et le composé $URu_2Si_2^{[141]}$.

Si l'on chauffe un corps, on lui fournit de la chaleur et sa température s'élève ; il restitue cette chaleur si l'on abaisse sa température. Le corps a donc une certaine capacité thermique.

Cette capacité thermique est le produit de la masse du corps par sa chaleur spécifique. La chaleur spécifique reflète l'aptitude d'un corps à s'échauffer lorsqu'on lui fournit de l'énergie. Elle dépend de la température. Elle tend vers zéro si la température tend vers zéro et tend vers une valeur à saturation à haute température (loi de Dulong et Petit [142]). Dans les solides, on peut mettre en évidence plusieurs contributions pour la chaleur spécifique: vibrations du réseau, contribution des électrons, contribution du moment magnétique des atomes, etc...

2. Mesure de la chaleur spécifique :

Par définition, la chaleur spécifique d'un corps est :

$$C = \lim_{\Delta T \to 0} (\Delta Q / \Delta T),$$

Où ΔQ est la chaleur fournie au corps et ΔT sa variation correspondante de température. Si l'on utilise la méthode adiabatique, la mesure de la chaleur spécifique est donc en principe simple: on fournit une quantité d'énergie à un corps et on mesure la variation de température correspondante.

Dans le cas de la mesure de la chaleur spécifique, on fournit volontairement une certaine quantité d'énergie connue à un corps. Adiabatique signifie que le corps va "absorber" toute l'énergie qu'on lui communiquera volontairement et seulement celle-là, sans en "rejeter" ni en "recevoir" d'autre de l'extérieur. On parlera par la suite de conditions adiabatiques ou d'adiabaticité.

En pratique, les mesures de chaleur spécifique sont des mesures difficiles pour les raisons suivantes :

- La chaleur spécifique n'étant pas constante sur de grands intervalles de température, la quantité ΔT devra être petite. En conséquence, la quantité ΔQ devra être également petite et mesurée avec une précision suffisante.
- \triangleright La quantité ΔT sera petite mais devra également être mesurée avec une précision suffisante, d'où la nécessité d'avoir un thermomètre sensible et très bien étalonné.
- ➤ On devra, pour se rapprocher le plus possible des conditions adiabatiques, s'assurer que cette énergie est bien communiquée à l'échantillon et non pas perdue en partie

dans l'environnement à travers les différentes "fuites thermiques" inhérentes à tout système physique. De même, on devra s'assurer que l'échantillon ne reçoit pas d'énergie parasite de l'extérieur.

- ➤ Il faut assurer le meilleur couplage possible entre l'échantillon et le chauffage, ainsi qu'entre l'échantillon et le thermomètre, pour être sûr que ce dernier mesure bien la température de l'échantillon.
- Enfin, dans le cas d'une mesure en laboratoire, il faut avoir mesuré avec précision la chaleur spécifique des addenda (thermomètre, chauffage, colle, etc...) pour les soustraire des mesures et obtenir ainsi la chaleur spécifique de l'échantillon seul.

3. Description du dispositif de mesures PPMS :

Le PPMS est un système à basse température (de 340 mK à 400 K) et à champ magnétique intense (0 à 9T) permettant d'effectuer des mesures de transport électrique et thermique, de chaleur spécifique, de susceptibilité magnétique et constante diélectrique [140].

Ce système inclut un cryostat contenant un aimant supraconducteur et opérant avec de l'hélium liquide (4.2K ou -269°C). L'enceinte froide d'un cryostat repose sur une enceinte externe par le biais d'une structure faite d'un matériau à faible conductivité thermique et minimisant les contacts afin de réduire au maximum le transfert de chaleur par conduction. Le vide, maintenu entre les deux enceintes, élimine le transfert de chaleur par convection. Le dewar est un récipient conçu pour fournir une très bonne isolation thermique, l'excellente isolation se traduit par une lente ébullition de l'azote. Ce vase conserve bien le chaud ou le froid.

Nous utilisons la salle PPMS, pour mesurer la chaleur spécifique de nos échantillons, figure 20. Le module de contrôle au centre permet de stabiliser la température, changer le champ magnétique et faire les mesures requises dictées par l'ordinateur.



<u>Cryostat</u>: Au centre, l'enceinte d'He est séparée par un vide de l'enceinte d'azote liquide, elle-même séparée par un vide de l'enceinte extérieure.

Bain d'He⁴ superfluide Aimant à 2K superfluide

Figure 20: Salle du PPMS à l'institut Néel-CNRS Grenoble.

Le puck est composé de porte échantillon, sur lequel on fixe l'échantillon avec une petite couche de colle, figure 21. Il est muni de 4 filaments servant pour le chauffage de l'échantillon et de 4 filaments pour la mesure thermique, figure 21 (c).

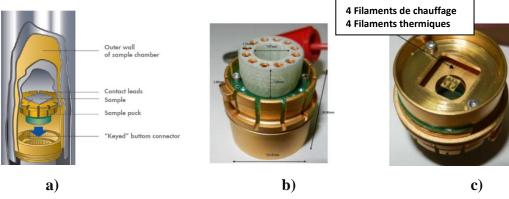


Figure 21: a)- Chambre d'échantillon dans le PPMS. **b**) -Vue de dessous du puck. **c**)- Vue de dessus du puck.

VIII. Différents problèmes de mise en œuvre :

Dans cette section, nous citons les différents obstacles qui nuisent à la sensibilité des mesures expérimentales en ultrasons. Ces obstacles interviennent au niveau du collage et de la préparation des échantillons. Ils introduisent des facteurs d'absorption supplémentaire dans la mesure de l'atténuation et une détérioration des échos qui influencent la mesure de la vitesse. Dans nos mesures ultrasonores, nous avons pris en compte l'impact de ces problèmes pour aboutir à des résultats pertinents.

1. Problèmes au niveau de l'excitation du transducteur :

Le faible couplage électromagnétique (K) du LiNbO₃ implique, que seulement 10% de la puissance électrique P_0 est transformé par le transducteur en une puissance élastique P_0 [[$P = P_0$. K^2]. Le diamètre (D) du transducteur doit être grand devant la longueur d'onde acoustique (λ) pour minimiser les effets de diffraction [143]:

$$\alpha_{\text{diff}} \approx \frac{2\lambda}{D^2}$$
 (58)

à 15 MHz, l'effet de diffraction est : $\alpha_{diff} \approx$ 0,5 $^{dB}\!/_{cm}$ pour D=2mm.

2. Problèmes liés au collage :

Il existe un problème de collage lorsqu'on travaille dans une large gamme de température avec des cellules à onde de volume, où le transducteur est collé sur l'échantillon. Ce collage est fonction de la température et il est soumis, de plus, aux contraintes thermiques qui provoquent une dégradation de l'onde qui s'accentue d'écho en écho. Ces effets induisent une atténuation supplémentaire du signal et une mesure de la variation relative $\Delta v_s/v_s$ erronée.

Pour minimiser ces erreurs inévitables dans ce genre de mesure, on utilise le cas idéal, pour lequel l'épaisseur du collage est très inférieure à la longueur d'onde λ , de façon à avoir le minimum de colle uniformément déposée sur l'interface du transducteur et de l'échantillon, tel que représenté à la figure 23.

Nous avons utilisé une colle à très basse température Nonaq (Fischer Scientific Co.) qui permet d'avoir de bons échos dans l'intervalle de température allant de 1 K à 200 K , pour les modes transverses, et dans toute la gamme de température pour les modes longitudinaux. L'effet de la graisse Nonaq est négligeable et a été déterminée à l'aide de mesures faites sur

un échantillon de quartz. La concordance des résultats observables avec les deux collages a été vérifiée.

3. Problèmes liés à la préparation des échantillons :

La géométrie interne et externe de l'échantillon à dimensions finies importe énormément dans la clarté des échos collectés et dans le coefficient d'absorption.

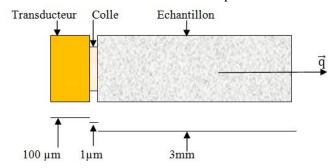


Figure 22: Schéma représentant l'échantillon collé au transducteur.

4. Etalonnage des équipements du dispositif expérimental :

Dans nos différentes mesures, nous avons procédé à l'étalonnage des équipements de nos dispositifs de mesures.

Nous avons préconisé d'effectuer des mesures sur des échantillons supraconducteurs conventionnels en plomb Pb ou du Niobium dont la température de la transition supraconductrice correspond respectivement à 7,2 K et à 9, 1 K. Tout écart des températures critiques de ces valeurs indiquées, nous conduit à revoir soigneusement le porte-échantillon, nos thermomètres sensibles de mesures, ou à vérifier les lignes coaxiales de liaison, ou les connexions de soudures au niveau de nos connecteurs SMA.

La descente en très basse température nous oblige de faire plonger d'une manière progressive la canne dans le cryostat, afin d'éviter tout saut en température, pouvant se répercuter dans les courbes de mesures.

Les précisions de relevé des paramètres en fonction de température est effectué à intervalle de 1K, et de l'ordre de 0,5 K entre 5 K et 30 K dans le voisinage de la transition à l'état supraconducteur de nos échantillons de mesures. Cette démarche nous a imposé à refaire nos mesures à plusieurs reprises, en vue de s'assurer de la stabilité des notre mesures.

5. Critère de parallélisme des transducteurs :

Il y' a lieu rappeler que les transducteurs sont des dispositifs sensibles à la phase du signal acoustique. Cette caractéristique est essentielle dans la mesure des vitesses ultrasonores, ce qui impose que le critère du parallélisme est primordial.

Si les faces du cristal sur lesquelles les transducteurs sont collés ne sont pas parfaitement parallèles, des interférences destructrices peuvent alors se produire ; ceci étant dû alors à la différence de parcours de l'onde ultrasonore entre les différentes parties du transducteur récepteur. Ce problème aura un impact sur la mesure de vitesse, mais il reste néfaste sur la mesure de l'atténuation [144].

Pour s'assurer de la fiabilité des résultats ultrasonores, il importe donc de s'assurer que le critère de parallélisme soit satisfait de la meilleure façon possible. Le meilleur moyen de réduire ses effets éventuels est de se restreindre au premier écho de transmission.



Le jour où je me suis aimé pour de vrai, j'ai compris qu'en toutes circonstances, J'étais à la bonne place, au bon moment...

Charlie Chaplin (1889-1997).

PARTIE B: TECHNIQUES DE MESURES EN RADIO ET HYPERFREQUENCES.

La partie B est consacrée, à la description de la technique de mesures par induction magnétique en radiofréquences RF et en hyperfréquences HF, aux procédés expérimentaux utilisés dans l'étude des propriétés des supraconducteurs à base de fer.

La technique de mesure par induction magnétique en RF et HF a deux avantages à savoir :

- Mesure par des courants induits ne nécessitant aucun contact électrique avec l'échantillon pouvant fausser les résultats de mesure.
- Etude des propriétés électriques de l'échantillon.

Avec nos dispositifs expérimentaux, basés sur le principe d'induction magnétique, nous avons pu mesurer les composantes réelle et imaginaire de l'impédance de surface sur trois échantillons classés suivant leur concentration en Nickel : sousdopés, optimalement dopés et sur-dopés. En plus, nous avons déduit les composantes de la conductivité complexe, la longueur de pénétration magnétique et les taux de diffusion des quasi-particules et de la relaxation magnétique.

Nos mesures en réflexion en radiofréquences, nous ont permis d'observer et d'étudier, en outre, le comportement de l'échantillon sous-dopé dans la phase antiferromagnétique en dessous de T_N et dans la phase supraconductrice en dessous de T_c . Ainsi, nous avons confirmé la coexistence des deux phases magnétique et supraconductrice dans le composé $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$.

I. Technique de mesure par induction magnétique :

1. Notions sur l'induction magnétique :

Lorsqu'on place un matériau conducteur ou supraconducteur dans une bobine à champ magnétique variable dans le temps, des courants induits se développent à l'intérieur de celuici sans en altérer les caractéristiques et s'opposent à toute variation de flux.

Ces courants induits sont appelés des courants de Foucault (CF) dans un conducteur normal et des supercourants dans un supraconducteur en dessous de sa température de transition T_c . Ils créent ainsi un champ magnétique dans l'échantillon qui a tendance à s'opposer au champ d'excitation.

L'analyse de cette variation fournit des informations pouvant être exploitées dans l'étude des propriétés physiques de l'échantillon en vue des applications scientifiques et dans le contrôle des objets en vue des applications industrielles.

Dans le cas de conducteur normal, l'application d'un champ magnétique externe fait apparaître des courants de Foucault qui circulent à la surface de ce conducteur, caractérisé par une conductivité électrique σ (en $S=\Omega^{-1}$) et une perméabilité magnétique μ (en Hm^{-1}), sur une épaisseur appelée profondeur de pénétration conventionnelle δ (en m), nommée épaisseur de peau. L'épaisseur de peau est définie:

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\omega \sigma \mu}} \qquad (1)$$

En dessous de T_c dans un supraconducteur, le champs est expulsé de l'intérieur de l'échantillon par des supercourants et décroit à une longueur de pénétration de London λ , définie comme suit :

$$\lambda_L = \sqrt{m/\mu_0 n_s e^2} \quad (2)$$

Cet effet, lié directement à la résistivité de l'échantillon, peut être mesuré essentiellement par deux catégories de mesures: les méthodes statiques en régime permanent et les méthodes dynamiques en régime transitoire [145].

Dans les deux méthodes, on utilise des bobines dans l'excitation et dans l'induction de champs dans des échantillons sans qu'aucun contact électrique ne soit nécessaire. Ceci est particulièrement efficace et nettement meilleur pour les échantillons corrosifs, friables, ou les échantillons de très haute pureté pour lesquels une soudure de contact fausserait les résultats ou s'avérerait impossible.

Dans la méthode statique, les mesures sont réalisées en régime permanent et consistent à mesurer l'auto-inductance d'une bobine ou à mesurer l'inductance mutuelle de deux bobines dont l'une entourant l'échantillon.

Rorschach et Herlin d'une part en 1951, Van der Berg et Van der Marel en 1956 d'autre part, étaient les premiers à faire des mesures de résistivité en étudiant la variation de l'inductance mutuelle de deux bobines [146-147]. Ces derniers, pour réaliser l'équilibre du pont de mesure, ont compensé la perte de flux dans les bobines coaxiales, dues à la présence de l'échantillon, par le changement du nombre de spires d'une des bobines, le nombre de tours étant proportionnel à $\sqrt{\rho/f}$, où ρ est la résistivité et f la fréquence.

En 1961, Zimmerman a mesuré la variation de l'inductance et de la résistance d'une bobine entourant un échantillon cylindrique de cuivre et d'un alliage Cu et d'un alliage Cu-Mn, par un pont de mesure [148]. La tension alternative est délivrée par un oscillateur de fréquence variant entre 7 et 200 Hz. Les auteurs ont tracé la courbe de variation de la résistivité entre 4,2 K et 1K [148].

Une expérience semblable a été décrite par E. W. Johnson et H. H. Johnson dont le but était cependant différent : il a mesuré la variation de la résistivité en fonction de la distance à la surface [149]. L'échantillon cylindrique de cuivre est placé dans une bobine (Fig. 1), dont la variation d'inductance est mesurée par un pont de Owen à des basses températures dans

l'azote [150]. Cette méthode a permis de mesurer aussi la conductivité en fonction de la profondeur de peau du métal à des valeurs comprises entre 300 µm et 3 µm.

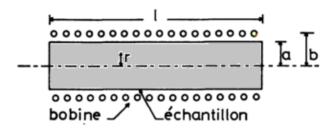


Figure 1: Coupe montrant la disposition de l'échantillon dans la bobine dans le cas de l'expérience décrite par Johnson [145-150].

Cet exemple constitue l'un des premiers ayant pu mettre en évidence par la méthode des courants de Foucault les différentes valeurs de la conductivité entre une profondeur de métal comprise entre $300~\mu m$ et $3~\mu m$, figure 2.

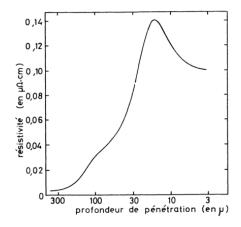


Figure 2 : Variation de la résistivité d'un échantillon de cuivre en fonction de la profondeur de pénétration ^[145-150].

Ce type de méthode a été ensuite utilisé pour mesurer la résistivité résiduelle de matériaux supraconducteurs par Burger et Deutscher [151-152], puis Lauriat et Perio [153] utilisant le même appareillage:

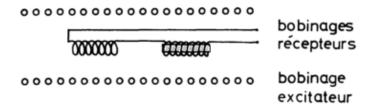


Figure 3: Coupe montrant la disposition de l'échantillon dans la bobine dans le cas de deux bobinages récepteurs montés en opposition [151-152].

Le champ alternatif $H=H_0e^{j\omega t}$ est produit par une première bobine, à l'intérieur de laquelle se trouvent deux bobinages secondaires récepteurs montés en opposition, tels que représentés dans la figure 3. En l'absence d'échantillon, ces bobines sont compensées de sorte que la tension mesurée aux bornes des bobines réceptrices est nulle. Ce dispositif a permis de mesurer avec une bonne approximation des résistivités comprises entre $15 \times 10^{-6} \ \Omega cm$,

et $10^{-8}\Omega cm$. Ce domaine a été étendu, par la suite, dans des mesures de résistivités plus réduites grâce à une meilleure compensation des bobines.

L'évolution de la technologie et la croissance des études dans les supraconducteurs SHTC, ont accéléré l'application et la mise au point de ces techniques dans de nouveaux dispositifs de mesure tels que : le Système de Mesures des Propriétés Physiques (PPMS), le susceptomètre AC et le résonateur à diodes de tunnel TDR dont nous détaillerons le principe et l'application dans le paragraphe suivant.

Nos premières mesures électriques en réflexion « échantillon en court-circuit (CC) » et en transmission « à travers l'échantillon » étaient marquées par des bruits « signaux parasites » ayant affecté la quasi totalité de nos données préliminaires, malgré que nous avons utilisé des contacts dédiés à cette approche (pogos).Le schéma de principe de mesure en court-circuit est illustré dans la figure 4.

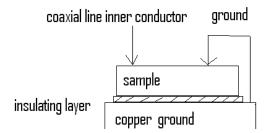


Figure 4: Schéma de mesure électrique avec l'échantillon en court-circuit [160].

D'ailleurs, avec l'aide du département de la microsoudure de l'institut de Néel, nous n'avons pas pu fixer les points de contact sur l'échantillon qui présente une surface corrosive, oxydable et fragile ^[154]. Le seul résultat de mesure électrique en CC que nous avons pu obtenir était à 30 MHz. Par la suite, nous avons opté pour les mesures par induction en RF et HF.

Pour les mesures d'ordre des GHz, les mesures sont généralement effectuées dans des cavités résonantes ^[155], ou dans des guides d'ondes ^[156] ou dans des dispositifs hotfinger ^[157] et QDR ^[158] permettant ainsi d'étudier les propriétés électriques des surfaces solides en hyperfréquences.

Comme résultat, nous avons pu observer le phénomène de transition à l'état supraconducteur de tous nos échantillons et étudié la phase antiferromagnétique en RF, confirmant ainsi la coexistence de la phase SDW et la supraconductivité dans le composé sousdopé. Il y'a lieu de signaler que de telles propriétés n'ont pas été détectés ni dans les mesures en HF avec des cavités résonantes par Bobowskiet al [159] ni dans celles dans une cavité résonante et un résonateur QDR par Cherpack et al [158].

2. Applications du principe d'induction magnétique dans des dispositifs de mesures:

Le principe d'induction magnétique est utilisé dans plusieurs dispositifs expérimentaux réalisés pour l'étude et la caractérisation des propriétés des matériaux en général et les matériaux supraconducteurs en particulier.

Parmi les dispositifs d'application d'induction magnétique, nous citerons la résonance magnétique nucléaire RMN, le résonateur à diode Tunnel TDR (Tunneling Diode Resonator),

le Superconducting Quantum Interference Device (SQUID), dont le principe est décrit en annexe III.

Avant de décrire notre dispositif expérimental, nous présentons quelques notions sur cette technique et sur quelques dispositifs basés sur le principe d'induction magnétique. Par la suite, nous détaillerons los dispositifs expérimentaux que nous avons utilisé dans la technique de mesures en réflexion.

II. Procédés de mesures par induction magnétique en RF et HF:

Nous avons mesuré l'impédance de surface en réflexion avec deux circuits dont le principe est basé sur l'induction magnétique :

1^{er} Circuit : circuit LC résonant à 92 MHz,

2^{éme} Circuit: circuit de mesure en RF avec un analyseur d'impédance et en haute fréquences HF avec un analyseur de réseau.

1. Procédé de circuit de mesures LC résonant à 92 MHz:

Nous avons utilisé dans le premier procédé de mesures par induction électromagnétique un circuit LC résonant à 92 MHz, ayant un facteur de qualité Q=80.

Ces mesures préliminaires ont concerné deux échantillons massifs : le sousdopé le BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ et le surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂. L'échantillon a été placé à l'intérieur de la bobine selon le plan (ab), dans le sens des lignes de champs magnétique.

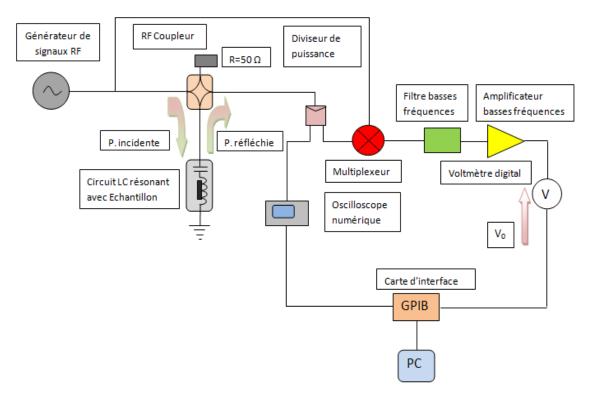


Figure 5 : Schéma détaillé de la technique de mesure par induction magnétique avec un circuit LC résonant à 92 MHz ^[160].

Dans la figure 5, sont représentés les équipements du circuit LC mis en œuvre pour mesurer la puissance en réflexion aux bornes du système « Bobine et échantillon ».

Notre dispositif permet de mesurer la résistance qui est convertie en fonction de la température T et de la tension V_0 toutes les 5 secondes. La conversion de la résistance en fonction de la température est réalisée avec un programme de lecture compatible avec la carte électronique d'acquisition et de conversion des données GPIB qui sert à interconnecter des instruments de mesure électronique (générateurs, oscilloscopes, etc.) et de réaliser des bancs de test automatiques.

Le multiplicateur permet de faire le produit du signal réfléchi $\cos(\omega t + \varphi)$ et le signal incident $\cos(\omega t)$ de telle sorte d'avoir $[\cos(\omega t + \varphi) \times \cos(\omega t)] = \cos(2\omega t + \varphi) + \cos(\varphi)]$. La composante alternative $\cos(2\omega t)$ est ensuite éliminée par le filtre basse bande .La composante obtenue est une tension à courant continu V_0 qui est mesurée par un voltmètre digital. Le dispositif permet donc de mesurer et de suivre les variations de V_0 et de la température.

La précision, la reproductibilité et l'analyse de notre technique ont été testées par des mesures sur un échantillon en Pb (Plomb-supraconducteur conventionnel) dont la résistivité chute à la température de transition à la phase supraconductrice $T_c = 9.2 K$.

1.1. Equipements techniques du circuit de mesures et traitement de données:

Les équipements ayant servi pour réaliser le montage de mesures avec un circuit résonant, tels qu'illustrés dans la figure 5, sont comme suit :

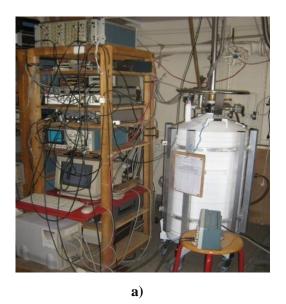
- ✓ Un générateur de signaux HP 8656 B de fréquence 0.1-990 MHz.
- ✓ Un échantillonneur –intégrateur de période 5 ns,
- ✓ Un coupleur RF de fréquence 5-1000 MHz,
- ✓ Un multiplexeur
- ✓ Un filtre passe-bande,
- ✓ Un amplificateur de basse fréquence
- ✓ Un amplificateur large bande, de fréquence 5-1000 MHz,
- ✓ Un multimètre Keithley 197 Autoranging Microvolt DMM,
- ✓ Une carte électronique GPIB,
- ✓ Un oscilloscope digital Tektronix TDS 20, 1000 Mhz.
- ✓ Des portes échantillons.

Système de cryogénie :

- ✓ 1 canne, munie de trois sondes thermiques de mesure en basses températures: un thermomètre en germanium GR-200, un thermomètre en patine (PT-100 Platine (30 < T < 873~K) reliés à un multimètre Keithley 197, et un thermomètre à diode en silicium DT (1,4~K < T < 475K) relié à un appareil de lecture (Lake shore Cryotronics 201).
- ✓ Un cryostat en Hélium de 100 litres (voir annexe III).
- ✓ 1 pompe primaire pour mettre du vide dans la canne.

Logiciels de traitement des données:

- ✓ Logiciel Kaleidagraph (tabulateur pour la conversion de l'amplitude de tension en coefficient d'atténuation, représentation graphiques),
- ✓ Matlab pour traitement des données de mesures issues de l'oscilloscope 'Tektronix';
- ✓ Labview pour automatisation, acquisition et traitement de données de mesures.



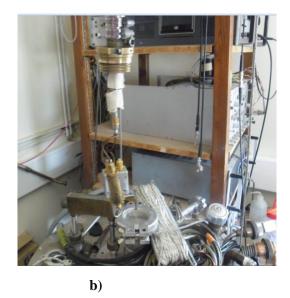


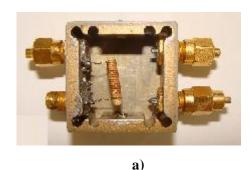
Figure 6: a) Equipements de mesure par induction magnétique **b)** Fixation et connexion du porte-échantillon au calorifuge de la canne cryogénique.

1.2. Technique de mise en œuvre pour les mesures à basses températures :

L'échantillon est collé sur l'extrémité d'une plaque de saphir avec une graisse spéciale adaptée aux basses températures et introduit à l'intérieur d'une bobine du circuit résonant, suivant la direction ab, indiquée dans la figure 7. Ce circuit est ensuite fixé à l'extrémité d'une ligne coaxiale semi-rigide insérée à l'intérieure de la canne avec le maximum d'étanchéité possible. La canne est, à son tour, introduite dans un cryostat d'hélium liquide.

Le champ magnétique est appliqué parallèlement au plan (ab) de l'échantillon. Dans cette géométrie, les courants d'écrantage apparaissent autour du cristal dans les axes de directions (ab) et c .Vu que la dimension de l'échantillon le long de l'axe c est très petite, la contribution de l'axe c est tellement faible par rapport à la contribution apportée dans le plan (ab).

L'autre extrémité de la bobine est directement mise à la masse du porte- échantillon. La mesure de la puissance en réflexion est assurée par le coupleur radiofréquences. Dans la petite bobine les échantillons sont placés dans un tube de polymère sur lequel la bobine est fixée (Figure 7).



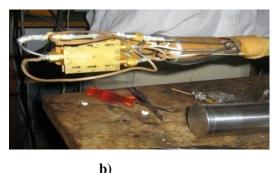


Figure 7: a)- Porte échantillon. b)- Partie de la canne de mesure avec le porte échantillon du dispositif de mesures en radio et hautes fréquences.

La transmission du signal incident du générateur de signaux et l'acquisition du signal réfléchi sont assurés par des câbles et des connecteurs SMA fixés sur le porte échantillon.

1.3. Description de l'approche de mesure:

Le procédé de mesure par induction magnétique, basé sur l'usage d'un circuit résonant à 92 MHz, permet de mesurer la variation de la puissance réfléchie, qui est proportionnelle à la tension réfléchie v_r et à la variation de la tension $\Delta P_r \propto \Delta v_r$.

Le signal incident, délivré par le générateur de signaux, a une tension :

$$v_i = V_I \times \cos \omega t \tag{3}$$

Le signal réfléchi, aux bornes du système « bobine et échantillon », est déphasé d'un angle φ , par rapport au signal incident, dont la tension est :

$$v_r = V_R \times \cos(\omega t + \varphi) \tag{4}$$

La tension v_i est multipliée avec la tension v_r . Le produit des deux signaux incident et réfléchi est donné par :

$$V_0 = V_I \times V_R \times \cos(\omega t) \times \cos(\omega t + \varphi)$$

$$V_0 = \frac{V_I \times V_R}{2} \times \left[\cos(2\omega t + \varphi) + \cos\varphi\right]$$

Les signaux basses fréquences à $\cos(2\omega t + \varphi)$ sont éliminés par le filtre basse bande, pour obtenir uniquement la composante continue V_0 :

$$V_0 = \frac{V_I \times V_R}{2} \cos \varphi \qquad (5)$$

La tension obtenue V_0 est proportionnelle au produit des amplitudes et au cosinus du déphasage. La variation de V_0 correspondra aux variations de V_R cos φ .

Si φ est nul on aura :

$$V_0 = \frac{V_I \times V_R}{2} \tag{6}$$

L'amplitude du signal incident V_I = constante , V_0 est donc proportionnelle à V_R . On mesure V_0 en fonction de la température au passage de la transition supraconductrice.

Si φ est maintenu constant (= $\pi/2$), la tension à courant continu $V_0 = 0$.

1.4. Mesure de vitesse:

Avec le multiplieur décrit ci-dessus et l'utilisation d'un circuit résonnant circuit LC, nous avons mesuré la variation de la tension continue dans la transition de phase supraconductrice de l'échantillon sousdopé $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$ à $T_C=17K$ et de celui du surdopé $BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As_2$ à $T_C=13K$.

Dans les mesures de la puissance réfléchie RF, la tension de réflexion V_r dépend de l'impédance de la ligne de transmission Z et de l'impédance caractéristique de ligne Z_0 ($Z_0=50~\Omega$).

De la théorie de transmission des lignes (TTL), nous avons :

$$\left|\frac{P_{\rm r}}{P_{\rm in}}\right| = \left|\frac{\overline{Z}_{\rm in} - Z_0}{\overline{Z}_{\rm in} + Z_0}\right| \tag{7}$$

Avec une ligne de transmission de longueur l, l'impédance mesurée du circuit LC avec l'échantillon est donnée par :

$$Z_{in}(l) = Z_0 \frac{Z_L + Z_0 \tan(\gamma l)}{Z_0 + Z_L \tan(\gamma l)}$$
(8)

Où $\gamma = \alpha + j\beta$ est appelé exposant de propagation, avec $\beta = \frac{2\pi}{\lambda}$.

Nous allons considérer que pour une ligne de transmission sans perte (équivalente à $\alpha=0$), l'impédance à l'entrée est donnée par :

$$Z_{in}(l) = Z_0 \frac{Z_L + Z_0 \tan(\beta l)}{Z_0 + Z_L \tan(\beta l)}$$
(9)

 Z_L est l'impédance du circuit LC résonant, l est la longueur de la ligne coaxiale (l=2m)et β est le vecteur d'onde électrique donné par :

$$\beta = \frac{\omega l}{V} = \frac{2\pi f.2}{3.10^8} = \frac{2\pi.3.10^7.2}{3.10^8} = \frac{4\pi}{10} \approx 3.3.\pi$$

Le rapport de la puissance réfléchie sur la puissance incidente est proportionnel au rapport d'impédance :

$$\frac{v_R}{v_I} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \tag{10}$$

A l'état supraconducteur, cette approximation indique que les petites variations de l'impédance du circuit LC avec l'échantillon Z_L , induisent une variation linéaire de la tension réfléchie suivant l'équation (10), et par conséquent une variation de la tension continue (ΔV_0).

Dans nos courbes de mesures, nous avons normalisé et représenté la variation de la tension continue et qui correspond, en fait, à une variation de la tension réfléchie v_R .

Nous pouvons déduire, en outre, la variation de la longueur de pénétration magnétique de l'échantillon à partir de la variation de la tension réfléchie [161]:

$$\frac{v_R}{v_R^N} \approx \frac{\lambda}{\delta_N} \tag{11}$$

avec δ_N et v_R^N étant respectivement l'épaisseur de peau et la tension réfléchie à l'état normal.

1.5. Contraintes de mesures:

Notre procédé de mesures par réflexion avec un circuit résonnant LC à 92 MHz, présente quelques limitations techniques de mesures. En effet, il ne permet pas de mesurer séparément la partie réelle et la partie imaginaire de l'impédance de nos échantillons. Toutefois, nous l'avons utilisé pour mesurer l'impédance de surface Z_S du système « Bobine+echantillon » et déduire la longueur de pénétration magnétique λ .

Pour pouvoir effectuer des mesures permettant d'extraire séparément les parties réelle et imaginaire avec notre système de mesure, il faudrait avoir deux multiplicateurs : un pour la lecture et l'autre en quadrature de phase.

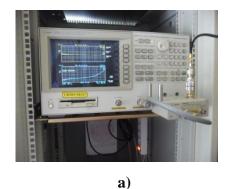
En vue de pallier aux insuffisances de cette technique et d'aboutir à un résultat nettement meilleur nous permettant de mesurer séparément les parties réelle et imaginaire de l'impédance de surface de nos échantillons, nous avons fait usage d'une seconde technique basée sur des mesures avec, un analyseur d'impédance pour les basses fréquences RF (Agilent /HP 4395A), et un analyseur de réseau (Agilent 8720B) pour les hautes fréquences HF. Les procédés de mesures sont détaillés dans le paragraphe suivant.

2. Technique de mesure par induction magnétique avec les analyseurs:

En vue de corriger les insuffisances de la technique précitée et d'aboutir à un résultat nettement meilleur en réalisant des mesures séparément des parties réelle et imaginaire, nous avons fait usage d'une autre technique de mesure par induction utilisant une simple bobine. Cette technique est basée sur des mesures par un analyseur d'impédance dont le spectre en fréquences est de 10 Hz à 500 MHz et par analyseur de réseau pour pouvoir mesurer à la fréquence de résonance de 1.5 GHz [162-163].

2.1. Procédé de mesure par analyseurs d'impédance et de réseau :

Les deux analyseurs disposent d'un voltmètre vectoriel intégrant deux multiplicateurs dont l'un mesure en phase la partie réelle (R) et l'autre mesure en quadrature de phase la partie imaginaire $(X_L = \omega L)$, tout en contrôlant automatiquement le déphasage fixé à $\varphi = \frac{\pi}{2}$.



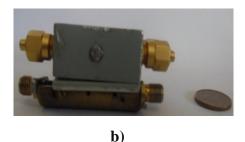


Figure 8 : a) Analyseur d'impédance Agilent /HP 4395A. **b)** Porte-échantillons pour les mesures en radio et hautes fréquences.

Pour assurer la précision dans nos mesures, nous avons procédé au calibrage des analyseurs tout en prenant en considération la compensation des effets de la ligne coaxiale de 3 mètres. La calibration a été faite avec des valeurs d'impédance 50Ω , court circuit et circuit ouvert en bout de la ligne coaxiale suivant la procédure de recommandée par le constructeur.

Le courant de sortie maximal de l'analyseur d'impédance est de 20 mA et il varie en fonction de fréquence de mesure de 10Hz à 500 MHz. Cet analyseur, indiqué dans la figure 8, présente une résistance de sortie variant de 110 Ω à 11 k Ω ±10% qui dépend de la bande de mesure. L'analyseur est équipé d'une carte GPIB. L'analyseur permet d'acquérir les mesures de L et R en montage série de la bobine de mesure.

Nous avons effectué des mesures non résonantes des composantes réelle (R) et imaginaire (L) de l'impédance de la bobine avec l'échantillon placé à l'intérieur dans la gamme de fréquences 1-100 MHz, représenté dans la figure 9. La puissance incidente radiofréquence a été fixée à -20dBm.

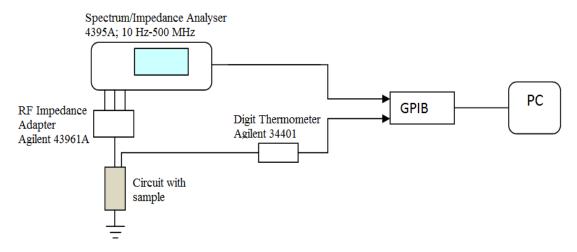


Figure 9: Schéma du circuit de mesure par induction magnétique en radiofréquences RF avec l'analyseur d'impédance [162-163].

L'échantillon est formé de plaquettes qui sont placées dans un tube en polymère à l'intérieur d'une bobine en cuivre de longueur 11 mm, de diamètre 2,6 mm, formée de 18 spires et d'inductance 0,2 µHenry. Cette bobine a été soudée à l'extrémité d'une ligne coaxiale à l'intérieur d'un terminal adaptateur. L'autre extrémité de la bobine est mise à la masse du porte-échantillon. Le champ magnétique radiofréquence est appliqué parallèlement au plan ab de l'échantillon.

Nous avons utilisé un ohmmètre digital (Agilent 34401). Un thermomètre de platine (résistance $1000~\Omega$ est fixée à proximité de l'échantillon. L'acquisition des données issues de l'analyseur d'impédance et de l'ohmmètre est assurée par une application Labview, via une carte GPIB, dont le principe est schématisé dans la figure 9.

Nous avons mesuré séparément l'inductance L_0 et la résistance R_0 de la bobine à vide (sans échantillon). Avec notre dispositif, nous avons mesuré l'inductance totale L, correspondant à l'inductance de la bobine et de l'échantillon. Pour représenter uniquement l'effet inductif de l'échantillon à la transition de phase à l'état supraconducteur, nous avons soustrait l'effet de la bobine de nos mesures en RF et HF, comme suit :

$$\Delta L = L - L_0 \tag{12}$$

Et

$$\Delta R = R - R_0 \tag{13}$$

Ces différences, représentant la variation relative d'inductance et de la résistance de l'échantillon, ont été normalisées par rapport à l'inductance de la bobine vide L_0 et à la résistance à l'état normal R_N à la température 25 K. Ces variations relatives au comportement de l'échantillon à l'état supraconducteur sont réécrites comme suit:

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \frac{L - L_0}{L_0} \tag{14}$$

Et

$$\frac{\Delta R}{R_N} = \frac{R - R_0}{R_N} \tag{25}$$

A l'état normal, l'échantillon se comporte plutôt comme résistif. L'effet inductif de l'échantillon n'apparait que durant la transition à l'état supraconducteur, c'est-à-dire, dès l'apparition des électrons supraconducteurs n_s en dessous de la température T_c .

Les variations relatives d'inductance et de résistance des échantillons $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$, ont été mesurées dans l'intervalle de température de 5 à 30K, avec un circuit non résonant monté en série avec l'analyseur d'impédance de période 5 s aux fréquences radio de : 10, 20, 60 et 100 MHz.

La définition classique de l'inductance *L* est comme suit:

$$L = \frac{d\phi}{dI} \tag{16}$$

L dépend de la variation du flux crée par la bobine.

Quand on met un échantillon à l'intérieur de la bobine, la variation de la fréquence Δf de résonance du circuit en série LC (condition de résonance $Lc\omega^2=1$) devient :

$$\Delta f = \frac{1}{2\pi\sqrt{(L+\Delta L)C}}$$
 (17)

La racine carrée peut être étendue en utilisant une expansion binominale afin de trouver une relation directe entre Δf et ΔL :

$$\frac{\Delta f}{f_0} \approx -\frac{1}{2} \frac{\Delta L}{L_0} \tag{18}$$

La variation de l'inductance ΔL correspond à une variation de la réactance et de la résistance de surface de l'échantillon (équation(24)) données par le modèle du transformateurs) et également à une variation de la longueur de pénétration magnétique $\Delta L \approx \Delta \lambda$. On aura l'équation d'approximation valable à très basse température T<<Tc (transition supraconductrice T_c):

$$\frac{\Delta L}{L} \approx \frac{\Delta X}{X} \approx \frac{\Delta \lambda}{\lambda} \tag{19}$$

Dans les mesures en HF et en résonance à 1.5 GHz, nous avons utilisé l'analyseur de réseau (HP8720B). Nous avons mesuré les variations de fréquence correspondant au maintien de la condition de résonance $\omega^2=1$. L'échantillon étant inséré dans la bobine L= 200 nH. Le principe de cette mesure est représenté dans la figure 10.

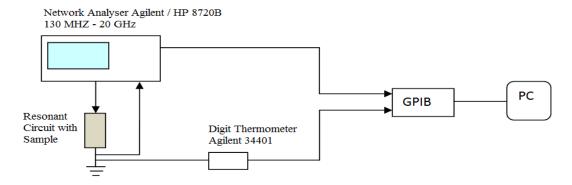


Figure 10 : Schéma de circuit de mesure par induction magnétique en haute fréquence HF avec l'analyseur de réseau HP8720B ^[162-163].

La fréquence de résonance de la bobine vide de 200 nH a été mesurée à 1.5 GHz. Ce qui nous a permis d'effectuer des mesures sur les trois échantillons en hyperfréquences.

L'effet capacitif (C = 50 fF) entre spires de cette bobine a été déterminé avec un facteur de qualité d'environ ~ 80, à la fréquence de résonance de 1.5 GHz. Il est représenté par :

$$Z_C = -\frac{1}{c\omega} \tag{20}$$

En effet, en hautes fréquences HF, plus on augmente en ω , plus Z_C tend vers une valeur finie, comme un circuit LC résonant.

En basses fréquences BF, l'effet capacitif est atténué et le circuit est considéré comme un circuit ouvert. Plus on diminue en ω , plus $Z_{\mathcal{C}}$ tend vers l'infini.

Nous avons mesuré la variation de la fréquence par rapport à la fréquence de résonnance manuellement, et ce en maintenant la réactance nulle. Nous avons mesuré point par point la variation de l'inductance en fonction de la température.

Plus on baisse la température en dessous de la transition supraconductrice, plus la densité des porteurs augmente. Cette augmentation de la densité induit une augmentation de l'effet inductif ΔL de l'échantillon.

La variation relative de l'inductance de l'échantillon ΔL par rapport à l'inductance de la bobine peut être lue comme une variation de la fréquence $\Delta f = f - f_0$ par rapport à la fréquence de résonance.

A 1.5 GHz, nous avons la condition de résonance:

$$Lc\omega^2 = 1$$
 (21)

En dérivant $\omega^2 = \frac{1}{Lc}$, nous obtenons :

$$\frac{d\omega}{\omega} \approx \frac{1}{2} \frac{\Delta L}{L}$$

ce qui implique:

$$\frac{\Delta L}{L} \approx 2 \frac{\Delta f}{f}$$
 (22)

L'expression de l'impédance de la bobine entourant l'échantillon est obtenue à l'aide du circuit équivalent d'un transformateur [164-165].

Dans ce modèle, le primaire du transformateur représente l'inductance de la bobine de mesure L_0 . Le secondaire est défini par une inductance L_2 qui est liée à des courants de Foucault induits dans l'échantillon. L_2 est le facteur géométrique et ne dépend pas des propriétés de l'échantillon. L'inductance mutuelle M entre l'échantillon et la bobine est définie par l'inductance mutuelle entre le primaire et le secondaire,

$$M = k\sqrt{L_1 L_2} \qquad (23)$$

où k est le facteur de couplage géométrique entre le primaire et le secondaire.

L'impédance du système « bobine +échantillon » est exprimée par [164]:

$$Z = R_0 + \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 R}{|Z_2 + j L_2 \omega|^2} + j \left[L_0 - \frac{k^2 L_0 L_2 \omega \{X + L_2 \omega\}}{|Z_2 + j L_2 \omega|} \right] \omega$$
 (24)

Où R et X sont les parties réelle et imaginaire de l'impédance de surface de l'échantillon,

 R_0 et L_0 sont la résistance et l'inductance de la bobine vide et ω est la fréquence angulaire du signal de mesure.

L'inductance de la bobine vide ($L_0=0.2$ H) a été mesurée à part. Le coefficient de couplage k et de l'inductance géométrique L_2 ont été évalués respectivement à partir des mesures dans l'état normal des échantillons, à une température au-dessus de la transition supraconductrice ~ 100 K à $k^2 \sim 0.1$ et $L_2 \sim 0.6$ nH, suivant l'équation suivante:

$$X_N = R_N = \sqrt{\mu_0 \rho_{dc} \omega/2}$$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide.

 $\rho_{dc} = 10^{-6} \Omega m$ est la résistivité de l'échantillon mesurée en courant continu [32].

Dans l'état supraconducteur R et X sont déduites respectivement des équations (12) et (13).

La précision de notre technique a été testée par des mesures sur une poudre de supraconducteur MgB₂. Des techniques de moyennement des données ont été utilisés.

La résistance mesurée ΔR est reliée aux parties réelle et imaginaire de l'impédance de surface Z_s du cristal par :

$$\Delta R = R - R_0 = \frac{M^2 \,\omega^2 \,R_e(Z_s)}{|Z_2 + j \,L_2 \,\omega|^2} \tag{25}$$

La variation d'inductance mesurée, $\Delta L = L - L_0$, est liée à l'impédance de surface Z_s du cristal par :

$$\Delta L = L - L_0 = -\frac{M^2 \omega^2 (I_m(Z_s) + L_2 \omega)}{|Z_s + j L_2 \omega|^2}$$
 (26)

La profondeur de peau δ est évaluée à ~50 µm à 100 MHz à l'état normal et la résistivité σ ~2 $10^5 \Omega^{-1} m^{-1}$ pour les cristaux BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.

L'inductance série L_0 et la résistance série R_0 de la bobine vide ont été mesurées en fonction de la température à des fréquences de 10, 20, 60 et 100 MHz et 1.5GHz.

L'inductance L et la résistance R de la bobine contenant l'échantillon ont été mesurées à la même température et aux mêmes gammes de fréquences. Les variations relatives de l'inductance série $\Delta L = L - L_0$, et la résistance série $\Delta R = R - R_0$ ont été déterminées à chaque température pour la même fréquence.

La partie réelle de l'impédance de surface est proportionnelle aux pertes de puissance aux fréquences radio. La partie imaginaire est définie par la réponse des porteurs de courant supraconducteurs et elle est caractérisée par la non dissipation de l'énergie stockée dans la couche de surface supraconductrice (équation (27)). La longueur de pénétration de London λ_L a été déterminée approximativement à 1 μ m à 100 MHz.

2.2. Préparation des échantillons :

Les échantillons présentent une structure poly-cristalline constituée des monocristaux uniques de taille environ $100 \mu m$, orientés de façon aléatoire dans le plan, sous formes de plaques disposées perpendiculairement suivant l'axe cristallographique c.

Pour nos mesures, et à l'instar des autres mesures L.Chauvière [31] et de Y. Laplace [43], nous avons du couper le gros cristal en fragments et cliver les échantillons. Ainsi, nous avons

pu obtenir et sélectionné, pour nos mesures, des échantillons de dimensions typiques de $1000x1000x100 \ \mu m^3$. La plus petite dimension de $100 \ \mu m$ est selon l'axe c.

Ces mesures ont été effectuées avec un circuit non résonant en radiofréquences et en hautes fréquences comprenant la bobine de mesure et l'échantillon.

L'acquisition et le traitement des données de mesures issues de l'analyseur d'impédance ont été automatisés et exploités via Labview.

Cette application n'a pas été mise en œuvre pour l'acquisition des données de mesures en haute fréquence à 1.5 GHz, dans les quelles les mesures, les réglages et l'acquisition de données ont été réalisés manuellement.

III. Modèle de « Transformateur équivalent » :

Pour déterminer quantitativement les caractéristiques de l'échantillon, il est nécessaire d'établir un modèle du couplage électromagnétique induit, permettant de quantifier les interactions de la bobine de mesure et de l'échantillon.

Parmi les solutions approchées existantes, on trouve celle reposant sur un modèle équivalent dit du « Circuit du transformateur idéal équivalent » qui est bien adaptée à la modélisation d'une bobine simple avec un échantillon placé à l'intérieur, par analogie à une sonde élémentaire constitué d'une bobine interagissant avec une cible plane semi-infinie d'épaisseur finie telle que mesurée par Y.Le Bihan et al [164] et A.C Bódi et al [165].

La modélisation de ce type de couplage électromagnétique entre la bobine et l'échantillon est présentée par un transformateur à deux enroulements primaire et secondaire, tel que représenté dans la figure 11.

Dans ce modèle, la partie primaire du transformateur est modélisée par l'inductance propre L_0 de la bobine d'excitation ($L_0{\sim}0.2\mu H$) et par sa résistance R_0 , et la partie secondaire est modélisée par l'inductance L_2 qui est liée aux courants de Foucault induits dans l'échantillon. L_2 est un facteur géométrique qui ne dépend pas des propriétés de l'échantillon. Z_2 représente l'impédance de surface de l'échantillon avec $Z_2 = R + jX$. Elle est donc une fonction complexe des propriétés géométriques et physiques de l'échantillon, k0 est le coefficient de couplage magnétique entre la bobine et l'échantillon, qui dépend de l'emplacement de l'échantillon à l'intérieur de la bobine. Le secondaire est défini par une inductance L_2 .

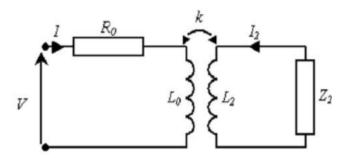


Figure 11 : Schéma équivalent du transformateur idéal.

L'énergie magnétique induite résultante W_m est définie par le produit de l'inductance L_2 par le courant I_2 circulant dans l'échantillon :

$$W_m = \frac{1}{2} L_2 |I_2|^2 \tag{27}$$

L'impédance de charge Z_2 peut être représentée par le rapport du champ électrique sur le champ magnétique:

$$Z_2 = \frac{E(0)}{H(0)} \tag{28}$$

où E(0) et H(0) sont respectivement le champ électrique et magnétique sur la surface de l'échantillon en z=0.

Suivant le modèle du schéma équivalent du transformateur représenté dans la figure 10, le primaire du système de couplage en courant alternatif AC est représenté par la bobine de mesure et son secondaire par l'image induite de la bobine et par l'impédance l'échantillon.

Les équations des circuits primaire et secondaire de ce système couplé en courant alternatif AC, sont:

$$\begin{cases} (R_0 + j\omega L_0)I_1 + j\omega MI_2 = V & (29) \\ j\omega MI_1 + [R + j(X + \omega L_2)]I_2 = 0 & (30) \end{cases}$$

Où M est l'inductance mutuelle entre la bobine et l'échantillon, k est le facteur de couplage efficace. L'inductance mutuelle est définie dans l'équation (23) par $M = k\sqrt{L_1L_2} = kL$. Le coefficient de couplage est considéré constant et inférieur à 1 et dépend uniquement de la géométrie de l'échantillon et de la bobine.

Le courant I_2 est déduit de l'équation (30) par :

$$I_2 = -j\omega \frac{M}{R + j(X + \omega L_2)} I_1 \qquad (31)$$

Le modèle équivalent se basant sur le couplage bobine/échantillon amène à une impédance complexe du circuit Z, correspondant à l'impédance du système « bobine et échantillon », suivante :

$$Z = \frac{V}{I_1} = R_1 + jX_1 \tag{32}$$

Si on remplace le courant I_2 de l'éq.(31) dans l'équation (29), on aura :

$$V = (R_0 + j\omega L_0)I_1 + j\omega M \left[-j\omega \frac{M}{R + j(X + \omega L_2)} \right] I_1$$

L'équation (32) devient alors équivalente à :

$$Z = \frac{V}{I_1} = (R_0 + j\omega L_0) + j\omega M \left[-j\omega \frac{M}{R + j(X + \omega L_2)} \right]$$
(33)

En simplifiant l'équation (33), on aura :

$$Z = (R_0 + j\omega L_0) + \frac{\omega^2 M^2}{[R + j(X + \omega L_2)]} = (R_0 + j\omega L_0) + \left\{ \frac{\omega^2 M^2 [R - j(X + \omega L_2)]}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} \right\}$$

L'équation définitive de l'impédance du système « Bobine et échantillon » s'écrit :

$$Z = R_0 + \frac{\omega^2 M^2 R}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} + j\omega \left[L_0 - \frac{M^2 \omega (X + \omega L_2)}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} \right]$$
(34)

En remplaçant l'inductance mutuelle par $M=k\sqrt{L_0L_2}$ dans l'équation (34), nous obtenons les équations déjà formulées dans le paragraphe précédent (24), (25) et (26) :

$$Z = R_0 + \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 R}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} + j\omega \left[L_0 - \frac{k^2 L_0 L_2 \omega(X + \omega L_2)}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} \right]$$

Où la partie réelle est exprimée par :

$$Re(\bar{z}) = R_0 + \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 R}{|R + j(X + \omega L_2)|^2}$$

Ou simplement:

$$Re(\bar{z}) = R_0 + \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 R_2}{R_2^2 + (X_2 + L_2 \omega)^2}$$

Et la partie imaginaire est exprimée par:

$$Im(\bar{z}) = \omega \left[L_0 - \frac{k^2 L_0 L_2 \omega (X + \omega L_2)}{|R + j(X + \omega L_2)|^2} \right]$$

Ou simplement:

$$Im(\bar{z}) = L_0 \omega - \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 (X + L_2 \omega)}{R^2 + (X + L_2 \omega)^2}$$

Ainsi, les parties réelle et imaginaire *R* et *X* de l'impédance de surface de l'échantillon sont déduites de l'équation (34).

CONCLUSION:

Dans nos mesures préliminaires par la technique en réflexion ou en transmission, nous avons testé une première méthode électrique consistant à mesurer la puissance de réflexion en court-circuitant l'échantillon ou en transmission directe. Cette méthode s'est avérée contraignante vu les signaux parasites causés par les contacts électriques et la fragilité de la surface de l'échantillon se répercutant sur les mesures d'impédance.

Le second dispositif circuit résonant à 92 MHz, basé sur le principe d'induction magnétique, nous a permis d'effectuer des mesures préliminaires de l'impédance de système « bobine et échantillon », d'observer la transition supraconductrice à travers la variation de la tension V_0 à un taux de précision de 10^{-3} sans autant parvenir à mesurer séparément les composantes réelle et imaginaire de l'impédance .

Le troisième procédé, par induction magnétique avec les analyseurs d'impédance et de réseau, présente des performances dans la qualité des mesures et des résultats observés. Les mesures de L et R ont été réalisées avec une bobine dans laquelle a été placé l'échantillon. Les échantillons de mesures ont été soigneusement sélectionnés et clivés à partir des gros cristaux originaux, pour avoir une surface de mesure propre permettant d'effectuer des mesures correctes et d'observer des variations d'ordre 10^{-5} .

Nos mesures en radiofréquences RF, par induction magnétique, nous ont permis d'observer le phénomène de transition à l'état supraconducteur BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ et d'étudier exceptionnellement la phase antiferromagnétique.

"Le mystère est la plus belle chose de la vie; c'est la source de tout art et de toute science."

Albert Einstein (1879-1955).

CHAPITRE VI: RESULTATS DES MESURES EN ULTRASONS.

I. Présentation:

Dans ce chapitre, nous exposons les résultats de nos mesures ultrasonores réalisées sur des supraconducteurs cristaux $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$ avec des concentrations de 7% (x = 0,07) et 15% (x = 0,15).

A des températures élevées entre 200 et 60 K, nous avons observé que les constantes élastiques relatives aux modes longitudinal C_{44} et transversal C_{33} montrent un grand ramollissement lié à la transition de phase de la structure tétragonale à la phase orthorhombique dans le cristal sous-dopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ (x = 0,07).

L'achèvement de la transition structurale a été caractérisée par une augmentation des constantes élastiques C_{33} et C_{44} jusqu'à la phase de transition à l'état supraconducteur dans l'intervalle entre 60K et 20 K.

En dessous de 20 K, des anomalies dans la vitesse et l'atténuation ultrasonores ont été observées à la phase de transition à l'état supraconducteur pour l'échantillon sousdopé dont la température de transition supraconductrice est $T_c = 17$ K. En effet, l'atténuation ultrasonore mesurée avec l'échantillon sousdopé présente un pic à la transition supraconductrice à des fréquences de 15 et à 45 MHz.

Pour le cristal surdopé (x = 0.15), un minimum de la constante élastique C_{66} a été trouvé à une température juste au-dessus de sa température de transition supraconductrice $T_c = 13$ K.

Vu que les variations de vitesse ultrasonore le long de l'axe \vec{c} pour les modes C_{33} et C_{44} sont très faibles d'ordre 10^{-4} pour l'échantillon surdopé, nous avons jugé utile d'effectuer des mesures dans le plan de base (ab) avec des modes longitudinal C_L et transversal C_T et de réaliser des mesures de la chaleur spécifique en utilisant le dispositif électronique de mesures PPMS. Ce complément de mesures nous a permis de détecter le saut de la transition à la phase supraconductrice à une faible échelle d'ordre 10^{-4} .

Nous avons également extrait et représenté les valeurs d'énergie du gap supraconducteur de l'échantillon surdopé à partir des valeurs de mesure de l'atténuation ultrasonore longitudinale à 15 MHz.

Les résultats des propriétés élastiques, issus des mesures ultrasonores sur les échantillons sousdopés et surdopés présentent une cohérence avec les résultats de mesures de l'impédance de surface obtenue par les techniques de mesures par induction magnétique et électrique rapportés dans la suite de ce mémoire de thèse. Le calcul théorique de la variation de vitesses de point de vue thermodynamique a été réalisé. Le taux de cette variation a été déterminé pour le cas du sous dopé et du surdopé respectivement de l'ordre de 2.10^{-3} et de 4.10^{-4} .

Les résultats expérimentaux issus des mesures élastiques ultrasonores, soutenus par les mesures électrique et électromagnétique et les calculs théoriques du gap supraconducteur et de la chaleur spécifique, permettent de confirmer la présence d'un comportement non conventionnel de l'atténuation ultrasonore pour les cristaux supraconducteurs BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.

II. Présentation des mesures élastiques :

En sciences des matériaux, les constantes d'élasticité des solides anisotropes sont des grandeurs physiques très importantes. Dans le cadre de la métallurgie physique, elles décrivent le potentiel interatomique et l'anharmonicité de ce dernier. Elles peuvent représenter une source d'informations considérables sur la plupart des processus métallurgiques ayant lieu au sein d'un matériau (transitions de phase, propriétés mécaniques...etc). La mesure de ces constantes peut constituer un moyen non destructif performant de caractérisation des matériaux.

Les ondes élastiques utilisées en caractérisation des matériaux sont des ondes ultrasonores de faible amplitude et de fréquence élevée (f > 200KHz). Les contraintes locales engendrées lors de passage de l'onde ultrasonore sont bien inférieures à la limite d'élasticité du milieu de propagation. En effet, l'étude de la propagation des ondes ultrasonores montre que la vitesse de propagation est directement liée aux propriétés d'élasticité du milieu étudié (voir chapitre III : partie A). L'idée de base, commune à tous les dispositifs, consiste à générer une onde ultrasonore de structure spatiale connue et à mesurer sa vitesse de propagation pour déterminer les constantes d'élasticité.

Dans les supraconducteurs, les mesures des constantes élastiques donnent des informations pertinentes sur la transition de phase structurale, et supraconductrice, notamment sur la symétrie et les déformations dans ces cristaux.

Plusieurs mesures des constantes élastiques^[170-171] ont été effectuées sur les pnictures de fer, notamment les monocristaux dopés tels que du LaFeAsO et du Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂. Les deux systèmes présentent des anomalies élastiques remarquables au dessus du T_S . Mais, il était difficile de déterminer quelle constante élastique est responsable des anomalies observées dans la symétrie du système LaFeAsO. Ce système présente une anisotropie et une superposition non orientée des plaquettes texturées de $100 \, \mu m$.

Parmi les études ultrasonores récemment réalisées sur des échantillons du Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂, on trouve les mesures du groupe américain de Fernandez et du groupe japonais de Yoshizawa. Les constantes élastiques dans ces cristaux montrent de grandes anomalies élastiques associées principalement à la transition de phase structurale et un comportement inhabituel. En effet, il a été constaté que la constante élastique C_{66} subit un ramollissement net, au cours de la phase de la transition structurale de la forme tétragonale à celle orthorhombique au fur et à mesure qu'on baisse la température dans l'état normal.

D'un autre coté, il a été également observé que le ramollissement lié à la constante élastique C_{66} diminue à mesure que les concentrations de Co augmentent [167-171]. La transition

de phase structurale disparaît à forte concentration en Co. Le ramollissement de la constante élastique C_{66} a été attribué à un comportement magnétique impliqué par un paramètre d'ordre nématique ^[167]. Un second mécanisme impliquant les fluctuations orbitales ^[169-171] a été aussi proposé stipulant que le quadripôle électronique formant la maille des atomes de fer, subit une dégénérescence des orbitales 3d des atomes de Fe à laquelle une déformation élastique ε_{xy} a été associée.

La diminution de la vitesse de son en fonction de la température est déterminée par la relation de Jahn-Teller [171] :

$$V = V_0 (1 - \frac{E_{JT}}{2(T - \theta)})$$
 (1)

Où V_0 est la valeur de la vitesse du son à haute température.

Une autre équation a été développé par M. Yoshizawa par l'expression suivante:

$$C_{66} = C_{66}^0 \left(\frac{T - T_c}{T - \theta} \right) \tag{2}$$

Où
$$T_c = \theta + E_{IT}$$

En remplaçant la valeur de $T_c = \theta + E_{JT}$ dans l'équation (2), on retrouve l'equation (1), où C_{66}^0 est la constante élastique à l'état normal. E_{JT} est l'énergie Jahn-Teller qui correspond au gain d'énergie due au couplage du quadripôle à la déformation élastique ε_{xy} et θ représente l'interaction quadripolaire inter-sites [169-171].

Les mesures de l'atténuation ultrasonore sont d'un intérêt particulier pour les supraconducteurs. Quand une onde sonore se propage à travers un métal, un champ électrique microscopique dû au déplacement des ions communique de l'énergie extraite de l'onde aux électrons. Dans un supraconducteur, en dessous de la transition supraconductrice, l'atténuation d'une onde sonore est plus faible que dans un métal normal [172].

Les dimensions typiques de nos cristaux de mesures sont 7x5x0.2 mm³. La plus petite dimension se trouve le long de l'axe cristallographique c. Les échantillons cristallins sont sous forme de plaquettes texturées qui sont perpendiculaires à l'axe cristallographique c, ils présentent une structure polycristalline composée de domaines de taille 100 µm environ, qui sont orientés de façon aléatoire dans le plan ab (voir chapitre III /partie A).

Dans la symétrie tétragonale, le mode C_{33} est un mode longitudinal élastique se propageant le long \vec{c} -axe cristallographique, de vecteur d'onde \vec{q} parallèle à \vec{c} et de vecteur déplacement \vec{u} parallèle à l'axe \vec{c} . Le mode de cisaillement C_{44} a un vecteur d'onde \vec{q} parallèle à \vec{c} et un vecteur déplacement \vec{u} perpendiculaire à l'axe \vec{c} . Le mode longitudinal C_L se propage dans le plan de base avec un vecteur d'onde \vec{q} parallèle au vecteur déplacement \vec{u} . Le mode de cisaillement C_T a son vecteur d'onde \vec{q} et son vecteur déplacement \vec{u} dans le plan de base, mais \vec{u} est perpendiculaire à \vec{q} , $(\vec{q} \perp \vec{u})$.

La technique d'écho pulsée a été utilisée avec des transducteurs LiNbO₃ à 15 et 45 MHz. La vitesse du son est mesurée par une détection de phase cohérente. L'amplitude du signal ultrasonore émis par le cristal a été soigneusement mesurée à l'aide d'une technique basée sur le traitement du signal, et la diminution de l'amplitude en fonction du temps a été prise comme une mesure de l'atténuation.

III. Les résultats de mesures ultrasonores :

Il a été démontré que le cristal BaFe₂As₂ présente 6 constantes élastiques dans la symétrie tétragonale ^[169-171]. Chaque constante élastique est liée à la vitesse du son correspondante au mode longitudinal (compression) ou transversal (cisaillement) par l'équation suivante $C = \rho V^2$, où ρ =6,5 g/cm³ est la masse volumique. Il n'était pas possible de déterminer toutes les constantes élastiques avec les échantillons disponibles vu leur structure plutôt polycristalline.

Les modes longitudinaux C_{33} et de cisaillement C_{44} sont des modes purs et se propagent le long de l'axe \vec{c} de la structure tétragonale. Les constantes élastiques ont été mesurées à l'état normal et sont C_{33} = 70 GPa et C_{44} = 20 GPa correspondant aux vitesses $V_{33} \sim 3000 \, m/s$ et $V_{44} \sim 1800 \, m/s$ à température ambiante.

Les modes longitudinal C_L et transversal C_T ont été générés dans la base de plan (ab) pour l'échantillon surdopé $BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As_2$. Dans ce cas, le vecteur d'onde et la polarisation se trouvent à la fois dans le plan de base. Etant donné que les cristaux sont texturés dans le plan ab, il en résulte que la mesure de la vitesse de propagation de C_L et C_T contient un mélange de plusieurs modes élastiques. Pour ce cas, les modes polarisés dans le plan de base ne sont ni purement longitudinal, ni purement transversal, si certaines constantes élastiques sont suffisamment faibles des approximations peuvent être envisagées.

Dans le cas d'une symétrie tétragonale, si le vecteur d'onde est dans la direction définie par $[\langle cos\varphi\rangle, \langle sin\varphi\rangle]$ dans le plan de base, les vitesses des modes quasi longitudinal \mathcal{C}_L et quasi transversal C_T sont déduites de l'équation de Christoffel [174].

$$V_L(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 \cos \mathbb{Q}\varphi)^2 + (c_{12} + c_{66})^2 \sin \mathbb{Q}\varphi)^2}{2\rho}}$$
(3)

$$V_T(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^2 \cos (2\varphi)^2 + (c_{12} + c_{66})^2 \sin (2\varphi)^2}}{2\rho}}$$
(4)

Dans le composé parent BaFe₂As₂, les constantes élastiques ^[167-171] de cisaillement C_{66} et C_{12} sont plus petits que C_{11} , il en résulte que la valeur moyenne de la vitesse du son V_L produite par les orientations aléatoires dans le plan de base peut être approchée par l'équation (5).

La valeur moyenne de la vitesse ultrasonore V_T du mode transversal C_T se propageant le long du plan de base avec des déplacements dans le plan de base est liée à des constantes élastiques de cisaillement C_{66} dans la direction de propagation pour $\varphi = 0$ et à l'élastique de cisaillement $(C_{11} - C_{12})/2$ dans la direction de propagation pour $\varphi = \pi / 4$.

Dans le cas $\varphi=0$, l'équation (3) permet de calculer le \mathcal{C}_{11} pour le mode longitudinal :

$$V_L(\varphi) = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}}$$
$$= \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 \cos(2\varphi)^2 + (C_{12} + C_{66})^2 \sin(2\varphi)^2}}{2\rho}}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{12} + C_{12} + C_{12} + C_{12} + C_{12}}{2}}} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{12} + C_{12} + C_{12} + C_{12} + C_{12}}{2}}}$$

$$= \sqrt{\frac{C_{11} + C_{66} + \sqrt{(C_{11} - C_{66})^2 + (C_{12} + C_{66})^2}}{2\rho}}$$

$$V_L(\varphi) = \sqrt{\frac{C_{11}}{2\rho}}$$
 (5)

L'équation (4) permet de calculer la constante élastique C_{66} pour le mode transversal :

$$V_{T}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos \mathbb{Q} \varphi)^{2} + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin \mathbb{Q} \varphi)^{2}}{2\rho}}$$

$$= \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos \mathbb{Q})^{2} + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin \mathbb{Q})^{2}}{2\rho}}$$

$$V_{T}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{66}}{\rho}} \qquad (6)$$

Dans le cas $\varphi = \frac{\pi}{4}$ (cas d'un cristal anisotrope), l'équation (3) permet de calculer la somme de trois constantes pour le mode transversal :

$$V_{L}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos(2\varphi)^{2} + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin(2\varphi)^{2}}{2\rho}}$$

$$= \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos(\frac{\pi}{2})^{2} + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin(\frac{\pi}{2})^{2}}{2\rho}}$$

$$= \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{12} + c_{66})^{2}}}{2\rho}}$$

$$V_{L}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} + \sqrt{(c_{12} + c_{66})^{2}}}{2\rho}}$$

$$(7)$$

L'équation (4) permet de calculer aussi le $C_T = (C_{11} - C_{12})/2$ pour le mode transversal :

$$V_{T}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos 2(2\varphi) + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin 2(2\varphi)}}{2\rho}}$$

$$= \sqrt{\frac{c_{11} + c_{66} - \sqrt{(c_{11} - c_{66})^{2} \cos 2(\frac{\pi}{2}) + (c_{12} + c_{66})^{2} \sin 2(\frac{\pi}{2})}}{2\rho}}$$

$$V_{T}(\varphi) = \sqrt{\frac{c_{11} - c_{12}}{2\rho}} = \sqrt{\frac{c_{T}}{\rho}}$$
(8)

La valeur moyenne de vitesse ultrasonore $V_T(\varphi)$ pour le mode transversal C_T avec le vecteur de propagation d'onde \vec{q} le long du plan (ab) et avec le vecteur de déplacement de la matière \vec{u} dans le plan (ab) est reliée aux constantes élastiques C_{66} , pour $\varphi = 0$ et $C_T = (C_{11} - C_{12})/2$ pour $\varphi = \frac{\pi}{4}$.

Les vitesses du son des modes longitudinal et transversal sont $V_L \sim 5000$ et $V_T \sim 1500$ m/s. Elles ont été mesurées expérimentalement entre 2 échos correspondant à une propagation de l'onde ultrasonore aller et retour à travers la longueur de l'échantillon L en un temps t et qui sont calculées ensuite par l'équation suivante :

$$V = \frac{2.L}{t} \tag{9}$$

Avec L- la longueur de l'échantillon environ 200 μ m. Les valeurs des constantes élastiques $C_{L}\sim 160$ GPa et $C_{T}\sim 14$ GPa , ont été calculées ensuite à partir des valeurs de vitesses trouvées ci-dessus $C=\rho V^{2}$, où $\rho=6.5$ g/cm³.

1. Echantillon sousdopé le BaFe_{1,93}Ni_{0,07} As₂:

Les variations de la vitesse du son pour les modes longitudinal C_{33} et transversal C_{44} ont été mesurées en fonction de la température chez l'échantillon sousdopé $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$.

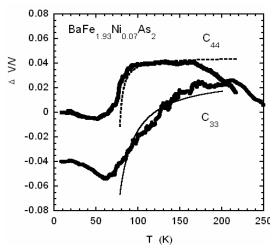


Figure 1: Variation relative de la vitesse du son du mode longitudinal C_{33} et du mode transversal C_{44} dans l'échantillon BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ [166] à 15 MHz.

Dans la figure 1, nous avons reporté la dépendance relative de la vitesse du son du mode longitudinal C_{33} et du mode de cisaillement C_{44} dans l'échantillon BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ mesuré à 15 MHz en fonction de la température. La ligne continue et celle en pointillés résultent de l'équation 1, avec ($E_{JT} = 60 \, \text{K}$, $\theta = 60 \, \text{K}$) et ($E_{JT} = 4.4 \, \text{K}$, $\theta = 75 \, \text{K}$), respectivement pour le mode longitudinal C_{33} et le mode C_{44} .

1.1. Dans l'intervalle de température 70K-200K:

Dans cet intervalle, nous observons un net ramollissement élastique au fur et à mesure qu'on abaisse la température. Toutes les constantes élastiques augmentent à la température de 200 K, ce qui est en accord avec les mesures réalisées par Yoshizawa et al [171].

À des températures élevées, on observe une diminution des variations des vitesses du son $\Delta V_{33}/V_{33}$ (mode longitudinal C_{33}) et $\Delta V_{44}/V_{44}$ (mode transversal C_{44}) en abaissant la température T jusqu'à un minimum au voisinage de 70 K correspondant à la température de transition structurale du tétragonale à l'orthorhombique en Fig.1. Cette diminution est conforme à l'équation (9). Les taux de variation des vitesses du son longitudinal et transversal sont respectivement de 8.10^{-2} et de 4.10^{-2} dans l'échantillon sous-dopé. Cette diminution est analysée par l'equation (1) de Jahn-Teller [169-171]:

Le minimum de la vitesse a été observé pour le mode longitudinal \mathcal{C}_{33} à la température 60 K. Il correspond à une transition de phase structurale de tétragonale à orthorhombique, ce qui est en concordance avec le résultat mesuré par Yoshizawa et al [171] sur un échantillon dopé en Co le Ba(Fe_{0,963}Co_{0,037})₂As₂.

Un autre minimum de vitesse a été observé pour le mode transverse C_{44} au voisinage de la température 70 K. Selon notre analyse, cela correspondrait à la transition de phase structurale tétragonale-orthorhombique. Ce minimum de vitesse n'a pas été observé dans les mesures du groupe japonais sur l'échantillon dopé en Co le Ba(Fe_{0,963}Co_{0,037})₂As₂, sachant que la constante élastique C_{44} a été mesurée suivant une direction de propagation parallèle à l'axe \vec{a} [100] et une polarisation transversale parallèle à l'axe \vec{c} [001] (T). Cela suggère que cette différence apparue pour le C_{44} est attribué à la différence des éléments de dopage Co et Ni dans les échantillons de mesures.

Le premier article de Yoshizawa et al $^{[169]}$ confirme que toutes les constantes élastiques montrent un grand ramollissement à partir de 200 K et qui prendra fin à la température de transition structurale T_s .

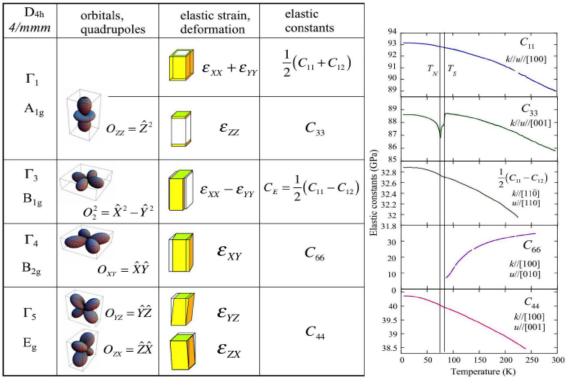


Figure 2 : a)- Représentation des Orbitales, des quadripôles, des déformations élastiques et des constantes élastiques. **b)-** Evolution des constantes élastiques de Ba(Fe_{0,963}Co_{0,037})₂As₂ en fonction de la température ^[171].

Une approximation de la décroissance des variations de vitesse au ramollissement de l'échantillon dans l'intervalle de températures 200 à 70 K a été réalisée et a permis de la décrire sous la forme suivante:

$$V = V_0 \left(1 - \frac{m_1}{2(T - m_2)} \right) \tag{10}$$

Où $m_1=E_{JT}$, et $m_2=\theta$ correspondant respectivement à l'Energie Jahn-Teller et à la température .

Un lissage de ces décroissances pour les modes longitudinal et transversal ont été effectués sur le graphe de fig.1. Les valeurs des paramètres obtenues avec nos deux échantillons dopés en Ni, reportées dans le tableau 1, sont du même ordre de grandeur que ceux trouvés avec le dopage en Co par le groupe japonais.

La valeur positive de θ indique un ordre ferroquadrupole à la transition structurale qui est observé pour le cristal sous-dopé. La température θ diminue avec l'augmentation de la concentration en Ni, ce qui est en accord avec les résultats obtenus sur des cristaux dopés en Co [169-171].

samples	modes	Superconducting temperatures	Jahn-Teller energy E _{JT} (K)	Inter-site quadripôle interaction θ (K)
BaFe1.93Ni0.07	C ₃₃	17	54	60
BaFe1.93Ni0.07	C_{44}	17	8.8	75
BaFe1.85Ni0.15	C_{T}	13	40	25

Tableau 1:Paramètres déduits de la dépendance en température de la vitesse du son avec le rapport Jahn-Teller.

1.2. Dans l'intervalle de température (20K-70K) :

Dans cet intervalle, la transition structurale a été achevée et elle est caractérisée par une augmentation des constantes élastiques C_{33} et C_{44} jusqu'à la transition à la phase supraconducteur aux environs~20 K.

La transition magnétique de l'échantillon sous-dopé devra être prise en considération dans cet intervalle. Malgré que cette transition ne soit pas visible sur les courbes des mesures ultrasonores, on arrive à la déduire.

M.R. Fernandes du département de physique et d'astronomie de l'Université Iowa (USA) a étudié les effets des fluctuations nématiques sur les propriétés élastiques des supraconducteurs d'arséniure de fer notamment dans les transitions de phase tétragonale-orthorhombique et antiferromagnétique [167]. Il pense que les changements dans les propriétés élastiques des systèmes FeAs, mesurées par la technique Spectroscopie Ultrasonore à Résonance (SUR), sont naturellement induits par des fluctuations nématiques avec des nouveaux degrés de liberté induisant le ramollissement de la maille de la structure tétragonale pour transiter à un état orthorhombique et antiferromagnétique. La transition à la phase supraconductrice est caractérisée par un durcissement de la structure du composé.

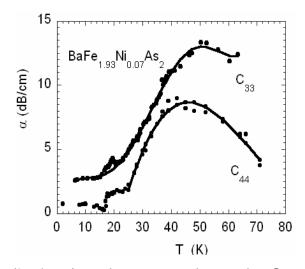


Figure 3 : Mesure de l'atténuation ultrasonore α des modes C_{33} et C_{44} à 15 MHz dans l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ [166].

Nous avons mesuré les variations des vitesses du son $\Delta V_{33}/V_{33}$ en mode longitudinal C_{33} et de $\Delta V_{44}/V_{44}$ en mode transversal C_{44} .Les atténuations correspondantes à ces deux modes sont ensuite déduites à 15 MHz et ont été représentées dans la figure 2. Les taux de variation des vitesses du son longitudinal et transversal sont respectivement de 1.8 10^{-2} et de 1.10^{-2} pour l'échantillon sous-dopé.

1.3. Dans l'intervalle de température (5K-20K) :

Dans cet intervalle, nous avons mesuré les petites variations des vitesses ultrasonores $\Delta V_{33}/V_{33}$ (mode longitudinal C_{33}) et $\Delta V_{44}/V_{44}$ (mode transversal C_{44} et les atténuations respectivement à 15 et 45 MHz.

Les variations des vitesses de propagation de l'onde ultrasonore ont nettement chuté à la transition vers la phase supraconductrice. Des pics d'atténuation correspondant à la diminution de la vitesse V_{33} ont été observés, pour le mode longitudinal à 15 et 45 MHz et pour le mode transversal à 15 MHz, au voisinage de la température critique $T_c \sim 17$ K de l'échantillon sousdopé. L'ordre de grandeur de ces pics d'atténuation du signal de propagation de l'onde ultrasonore à 15 et 45 MHz, pour le mode longitudinal C_{33} , est respectivement de 0.95 et 1.5 dB/cm, fig. 4.

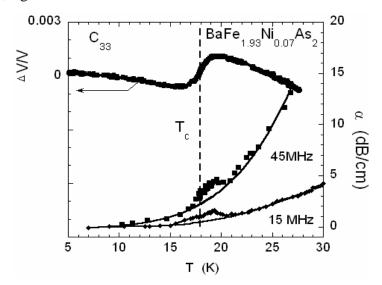


Figure 4: Variation relative de la vitesse du son et de l'atténuation ultrasonore α du mode longitudinal C_{33} dans le cristal sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ en fonction de la température et de la fréquence ^[166].

Dans la figure 4, nous reportons la dépendance relative de la vitesse du son du mode longitudinal C_{33} dans l'échantillon BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ mesuré à 15 MHz et de l'atténuation à 15 MHz et 45 MHz en fonction de la température.

Nos transducteurs sont conçus pour résonner avec un signal d'excitation à une fréquence fondamentale de 15 MHz et pour les autres harmoniques impairs multiples de la fréquence fondamentale telle que la fréquence de 45 MHz.

A l'issue de nos résultats, nous avons mis en évidence que l'atténuation est proportionnelle à la fréquence ($\alpha \cong \omega$). En effet, à la fréquence de 15 MHz, l'atténuation est de 5 dB/cm et à 45 MHz l'atténuation est trois fois supérieure. Plus la fréquence du signal d'excitation augmente, plus l'atténuation du signal d'onde de propagation augmente dans l'échantillon.

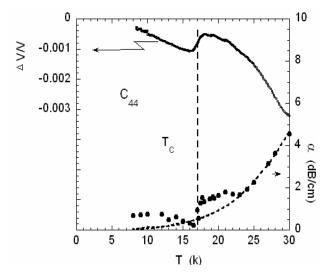


Figure 5 : Variation relative de la vitesse du son et de l'atténuation ultrasonore α du mode de transversal C_{44} mesurée à 15 MHz en fonction de la température ^[166].

Dans la figure 5 sont représentées pour le mode transversal C_{44} la variation de la vitesse ultrasononre et la courbe d'atténuation du signal de propagation de l'onde ultrasonore à 15 MHz dans l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂. Un pic d'atténuation, d'ordre de 1.2 dB/cm, est clairement observé aux alentours de $T_c \sim 17~K$. Le saut de la transition vers la phase supraconductrice s'est produit sur un intervalle plus étendu d'environ 5 kelvins, qui peut s'expliquer par la présence simultanée des porteurs de charge normaux n_n et des électrons supraconducteurs n_s et/ou par les fluctuations orbitales dues aux ODS. En effet, ce phénomène d'élargissement de la phase est uniquement présent chez l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ et il est absent dans l'échantillon surdopé comme nous allons voir dans le paragraphe suivant.

Pour analyser et déterminer la variation d'atténuation $\Delta\alpha$ à la phase de transition supraconductrice, nous avons lissé premièrement les courbes d'atténuation à 15 et 45 MHz (contribution hautes températures) et ensuite nous avons soustrait les valeurs d'atténuation supérieures à la courbe de lissage de celles d'atténuation à l'état normal. Ces valeurs de différence représentent les valeurs de variation d'atténuation $\Delta\alpha$.

A l'issue d'une analyse, nous avons déterminé la fonction lorentzienne correspondant à la variation d'atténuation suivante :

$$\frac{m_1}{(T-m_2)^2+1}$$
, où $m_1 = 1.5 \ dBm/cm$ et $m_2 = 18.8 \ K$.

Les variations d'atténuation à 15 et 45 MHz présentent deux pics dont les valeurs respectives sont 0.9 et 1.5 dB/cm. Un effet de relaxation dans nos mesures est à exclure, vu que les deux pics de variation d'atténuation se trouvent au même point de température ~ 18.8 K dans cette analyse.

Les résultats d'atténuation à 15 et 45 MHz obtenus des mesures par la méthode ultrasonore ont fait l'objet de comparaison avec les résultats de mesures d'impédance de surface par la méthode électrique réalisée sur le même échantillon surdopé à 30 MHz ,et sont représentés dans la Fig.6.

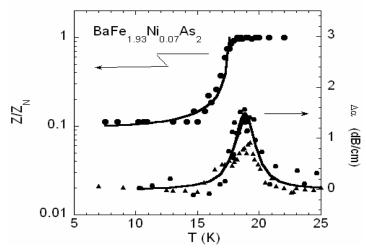


Figure 6 : Variation de l'impédance de surface normalisée, Z_S/Z_N , de l'atténuation $\Delta \alpha$ en fonction de la température pour l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ [166].

Dans la figure 6, sont reportées les dépendances de l'impédance de la surface normalisée, Z_S/Z_N , en fonction de la température à 30 MHz dans le plan ab de BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ et de la contribution de l'atténuation $\Delta\alpha$ obtenue à partir des données de la figure 1. Les courbes d'atténuations sont représentées pour la fréquence 45 MHz par des cercles pleins et pour15 MHz par des triangles pleins. La ligne continue est calculée par la fonction Lorentzienne:

$$\frac{1.5}{(T-18.8)^2+1}$$

Nous constatons qu'en dessous de 19K, le lissage d'impédance de surface Z/Z_N mesurée par la méthode électrique à 30 MHz présente la même allure que celui indiquant la variation d'atténuation ultrasonore à des fréquences de 15 et de 45 Mhz. Ce qui pourrait permettre de confirmer qu'il existe une forte corrélation entre les propriétés électriques et les propriétés élastiques dans le cristal sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂.

2. Echantillon surdopé le BaFe_{1.85}Ni_{0.15} As₂:

Nous avons observé dans cet échantillon surdopé que les variations de vitesse ultrasonore le long de l'axe \vec{c} avec les modes C_{33} et C_{44} sont très faibles et infiniment petites d'ordre 10^{-4} . Par conséquent, nous avons jugé nécessaire d'effectuer d'autres mesures ultrasonores des variations de vitesses dans le plan de base (ab) avec deux modes longitudinal C_L et C_{33} et un mode transversal C_T .

Le mode longitudinal C_L , a une direction de propagation dans le plan de base ab[110] dont le vecteur d'onde \vec{q} est parallèle au vecteur de polarisation \vec{u} relatif au déplacement de la matière [110](L) (\vec{q} // \vec{u}). Le mode transversal C_T a une direction de propagation dans le plan de base ab [110] dont le vecteur d'onde \vec{q} est perpendiculaire au vecteur de polarisation \vec{u} [110](T)($\vec{q} \perp \vec{u}$). Le mode longitudinal C_{33} est un mode pur dont la direction de propagation est le long de l'axe \vec{c} [001] avec le vecteur d'onde \vec{q} parallèle au vecteur de polarisation \vec{u} [001] (L) (\vec{q} // \vec{u}).

L'ensemble de ces mesures ultrasonores ont permis de détecter la transition supraconductrice T_c représentée dans la figure 7 et dans l'encadré.

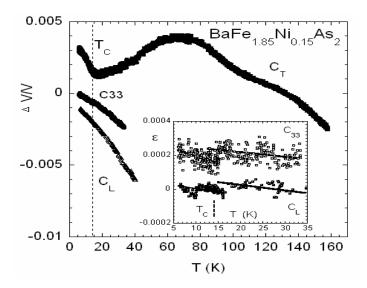


Figure7: Variation de la vitesse du son des modes longitudinaux C_L , C_{33} et transversal C_T dans le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15} As₂ [166].

Encadré: Représentation des différences entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées avec les lois empiriques.

Dans la figure 7 sont reportées les variations relatives des vitesses ultrasons des modes longitudinaux C_L , C_{33} et transversal C_T . Pour plus de clarté, les points des différents modes ont été représentés séparément.

Les dépendances empiriques en température de C_{33} et C_L sont calculées par les équations suivantes:

$$\frac{\Delta V_{33}}{V_{33}} = 0.000193 - 4.1 \times 10^{-5} T - 1.1 \times 10^{-6} T^2$$

Et

$$\frac{\Delta V_L}{V_L} = -0.00039 - 9.1 \times 10^{-5} T - 1.2 \times 10^{-6} T^2.$$

2.1. Dans l'intervalle de température 70K-200K :

On observe une augmentation de variation de la vitesse du son $\Delta V_T/V_T$ (mode transversal C_T), au fur et à mesure qu'on abaisse la température T jusqu'à atteindre un maximum au voisinage de 70 K dans la Fig.7.

Il était difficile de mesurer les autres constantes élastiques, à cause de sa structure polycristalline. Le taux de variation de la vitesse ultrasonore $\Delta V_T/V_T$ (mode transversal C_T) est de 8.10^{-3} .

2.2. Dans l'intervalle de température 13K - 70K :

Dans cet intervalle, nous observons une diminution de la variation de la vitesse correspondant au mode transversal C_T et une augmentation des variations de vitesses correspondant aux deux modes longitudinaux : C_{33} le long de l'axe \vec{c} et C_L le long du plan de base (ab).

Les résultats des mesures élastiques par la technique de Spectroscopie à Résonance Ultrasonore (SUR), réalisés par Fernandes et al $^{[167]}$ sur deux échantillons « un non dopé le BaFe₂As₂ et l'autre optimalement dopé BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂ », indiquent qu'en mode transversal l'effet de la constante élastique transversale C_S et celui de la constante élastique C_{66} sont similaires ($C_S \equiv C_{66}$). Les échantillons subissent une transition structurale de la forme

tétragonale à l'orthorhombique. Le ramollissement de C_S a été mis en évidence et représentées dans la fig.8 .Une diminution de la fréquence de résonance f^2 en fonction de la température a été observée, dans les résultats du groupe américain, indiquant la présence d'un ramollissement accentué de C_S . Ce résultat est identique à nos mesures de la constante $C_T(\Delta V_T/V_T)$ et qui montre un ramollissement accentué jusqu'à la température critique de transition supraconductrice $T_c \sim 13$ K.

Dans le cas de l'échantillon parent BaFe₂As₂, les mesures indiquent une interruption du ramollissement pouvant être expliqué par la transition simultanée structurale et magnétique à $T_s = 140 \text{K} \text{ (fig.8a)}^{[167]}$.

Dans le cas de l'échantillon optimalement dopé BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂, où aucune transition magnétique ni structurale ne sont présentes, le ramollissement continue à progresser à des températures plus basses jusqu'à ce qu'il soit tronqué par la transition supraconductrice Sc à $T_c \sim 22$ K (fig.8b).

Ce type de ramollissement est aussi observé dans le cas de notre échantillon surdopé et il est , lui aussi, tronqué à la température de transition supraconductrice $T_c \sim 13$ K.

En comparant nos mesures C_T du mode transversal avec celles de C_{66} du japonais Yoshizawa ^[171] et avec celles C_S de l'américain Fernandes ^[167], nous avons observé une diminution de notre constante C_T indiquant un taux de ramollissement du réseau à la phase tétragonale à 75% ^[171]. Le taux de ramollissement dans les mesures du groupe japonais est estimé à 80%.

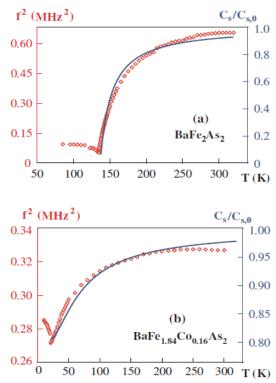


Figure 8: Variation du carré de la fréquence résonance f^2 mesurée par SUR en fonction de la température (les points rouges), et du module de cisaillement calculée $C_s \equiv C_{66}$ de la phase tétragonale (ligne bleue continue). **a)** Courbe de l'échantillon non dopé BaFe₂As₂. **b)** Courbe de l'échantillon optimalement dopé BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂, (d'après Fernandes et al [167]).

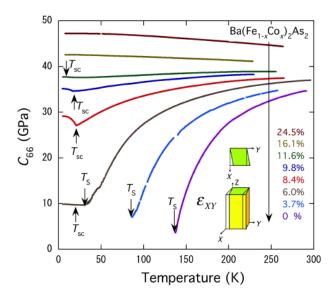


Figure 9 : Variation de la constante élastique C_{66} , mesurée en fonction de la température et de la concentration de dopage, pour l'échantillon Ba($Fe_{1-x}Co_x$)₂As₂. (Yoshizawa et al ^[171]).

Les trois résultats montrent une diminution de la constante élastique transversale jusqu'au point d'inflexion correspondant à la température critique supraconductrice caractérisant l'achèvement des phases des transitions structurale et magnétique et le début de la phase supraconductrice, tels que mis en évidence dans les courbes de mesures de Fernandes (figures 8) et de Yoshizawa (Figure 9).

2.3. Dans l'intervalle de température 5K - 13K:

A la température critique $T_c \sim 13$ K, le ramollissement de $(C_T \equiv C_{66})$ observé dans la transition de phase structurale dans notre échantillon surdopé est très fortement atténué. Dans la phase supraconductrice en dessous de T_c , une augmentation très accentuée de la constante élastique C_T du mode transversal mesuré dans le plan ab est observée. Elle correspond, en fait, à un durcissement du réseau au dessous de T_c et à la fin de la transition structurale [167].

Ce même comportement a été également observé par le groupe américain et par le groupe japonais dans la phase supraconductrice. D'autres mesures complémentaires sur des échantillons surdopés ont permis au groupe américain de confirmer que la constante transversale de cisaillement C_S augmente principalement en fonction du dopage (Fig.10).

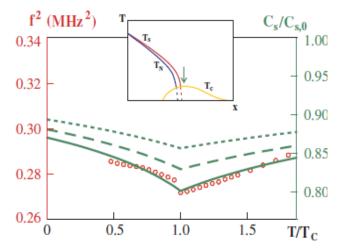


Figure 10: Variation du module de cisaillement C_s et du carré de la fréquence de résonance en fonction de la température et du dopage (d'après Fernandes et al $^{[167]}$).

Dans la figure 10, sont représentées la dépendance du module de cisaillement C_s et celle du carré de la fréquence de résonance en fonction de la température et du dopage. L'encadré de cette figure montre un schéma diagramme de phase (T,x) de Ba $(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, dont la valeur du dopage optimal est indiqué par la flèche verte. Dans le panneau principal, la ligne en trait plein se rapporte au système optimalement dopé. Les courbes en tirets et en pointillés se réfèrent à des composés surdopés. Les points rouges se réfèrent aux données SUR de la figure 8.b pour l'échantillon optimalement dopé $^{[167]}$.

IV. Analyse et mesures complémentaires :

1. Variation de la vitesse ultrasonore dans l'échantillon surdopé:

Les résultats de mesures relatifs aux modes longitudinaux C_L (le long du plan ab) et C_{33} (le long de l'axe \vec{c}), indiquent une croissance de ces constantes élastiques dans l'intervalle de (40-5) K, identiquement à ceux observés dans les mesures de Yoshizawa et al [171].

De faibles sauts relatifs aux modes longitudinaux C_L et C_{33} ont été détectés et sont d'ordre respectivement de $0.5\ 10^{-4}$ et de 1.10^{-4} . Ils sont représentés et calculés par l'écart ε observé dans l'encadré de la figure 11. La différence ε entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées ont été déterminées sur la base des lois empiriques en fonction de la température pour les deux modes longitudinaux C_{33} et C_L respectivement par :

$$\frac{\Delta V_{33}}{V_{33}} = 0.000193 - 4.1x10^{-5}T - 1.1x10^{-6}T^2$$

Et

$$\frac{\Delta V_L}{V_L} = -0.00039 - 9.1x10^{-5}T - 1.2x10^{-6}T^2$$

2. Variation de l'atténuation dans l'échantillon surdopé:

L'atténuation du signal par le mode longitudinal C_{33} a été mesurée à deux fréquences 15 et 45 MHz.

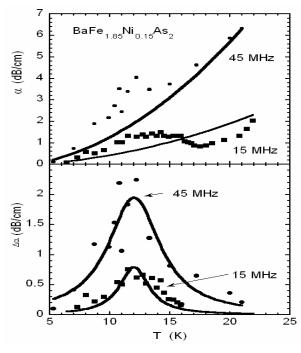


Figure 11: Variation relative de l'atténuation ultrasonore α du mode longitudinal C_{33} , et de la contribution de l'atténuation $\Delta \alpha$ mesurée à 15 et 45 MHz en fonction de la température ^[166].

Dans la figure 11, sont représentées, pour le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni _{0.15}As₂ autour de la transition supraconductrice Tc = 13K, la variation relative de l'atténuation ultrasonore α du mode longitudinal C_{33} et de la contribution de l'atténuation $\Delta \alpha$ à des fréquences de mesures de 15MHz (carrés pleins) et de 45 MHz (cercles pleins).

Une anomalie d'atténuation a été observée pour le mode longitudinal C_{33} en dessous de la transition supraconductrice s'étendant environ sur un intervalle de 5 K. Les pics de l'atténuation ultrasonore à 15 et 45 MHz du mode longitudinal C_{33} se situent au même point à $T_c \sim 12$ K, telle que illustrées dans la figure 15.

La contribution de l'atténuation $\Delta \alpha$ est obtenue après soustraction de la contribution à haute température suivante calculée à 45 MHz par :

$$\alpha_{back}^{45} = 0.00154T + 0.0147T^2$$

et à 15 MHz par :

$$\alpha_{back}^{15} = (0.00154T + 0.0147T^2)/3.$$

Pour mieux observer l'évolution de la transition supraconductrice dans notre échantillon surdopé à des fréquences de mesures 15 et 45 MHz, nous avons utilisé la méthode mathématique « des moindres carrés », qui consiste à déterminer des fonctions Lorentziennes en fonction des coefficients m_1 et m_2 , sous la forme suivante :

 $\frac{m_1}{(T - m_2)^2 + 7}$ $\frac{m_1}{(T - m_2)^2 + 2.3}$

Et

Les lignes continues, représentées dans la figure 11, sont calculées avec les fonctions Lorentziennes pour 15 et 45 MHz avec m_1 et m_2 respectivement égales à 13.7, 12 et 1.8, 12.

L'atténuation ultrasonore du mode de cisaillement C_T présente également un large pic centré autour de la température T_c =16K, due à une forte baisse de la vitesse de propagation ultrasonore pour l'échantillon surdopé.

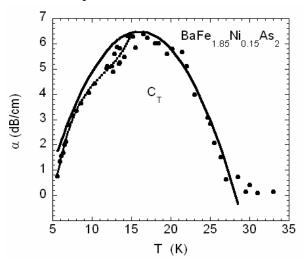


Figure 12 : Atténuation ultrasonore α du mode de cisaillement C_T dans le crystal sur-dopé BaFe_{1.85}Ni _{0.15}As₂ autour de la transition supraconductrice $T_c = 13K$. 0 dB est normalisé à la valeur à 30K.

Dans la figure 12, nous avons reporté la variation de l'atténuation ultrasonore α du mode transversal C_T pour le crystal sur-dopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂ autour de la transition supraconductrice $T_c = 13K$. La courbe d'atténuation en trait plein est calculée avec la loi:

$$6.5 - 0.044(T - 16)^2$$

La courbe en pointillés correspond aux données expérimentales calculées en dessous de 16K.

La dépendance de l'atténuation ultrasonore α du mode de cisaillement C_T suit une dépendance quadratique de la température $(T-16)^2$, telle qu'illustrée dans la figure 12.

Nous avons mesuré également l'atténuation α_L ultrasonore du mode longitudinal C_L à 15 MHz dont la direction de propagation et la polarisation sont dans le plan ab, avec leurs vecteurs en parallèle ($\vec{q} \parallel \vec{u}$). Les résultats de la mesure de l'atténuation longitudinale α_L seront confrontés, dans la suite, à des résultats de mesures électromagnétiques réalisées à la fréquence de 2 MHz (Fig.15) et ont servi à déterminer le gap supraconducteur de l'échantillon sur-dopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂.

3. Mesure du gap supraconducteur :

Les valeurs du gap, reportées dans la figure 13, ont été extraites à partir des données d'atténuation expérimentales de la figure 12, suivant l'expression suivante déduite de l'équation (10) du BCS :

$$\frac{E}{kT} = ln \left[\frac{2\alpha_N}{\alpha_S} - 1 \right] \tag{11}$$

où α_N est la valeur d'atténuation mesurée à T_c .

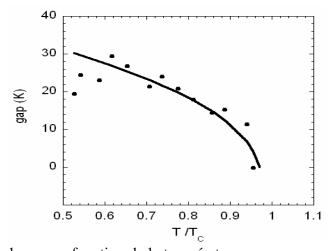


Figure 13 : Variation du gap en fonction de la température.

Dans la figure 13, est reportée la variation du gap en fonction de la température dont les valeurs ont été déduites de l'atténuation ultrasonore du mode longitudinal C_L dans le cristal $BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As_2$ mesuré à 15 MHz par l'équation (11).

La ligne continue est calculée en utilisant la loi :

$$\frac{E}{k} = 35 \sqrt{1 - \frac{T}{T_C}}$$

avec
$$\frac{E(0)}{kT_c} = 2.6$$
 et $T_c = 13.3 K$

Le gap $\Delta = E(0)/kT_c$ est grossièrement estimé à 2,6. Sa valeur est supérieure à la valeur standard ^[168] d'un gap type BCS 1,7. Ce résultat confirme que le cristal supraconducteur BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂ ne suit pas un comportement tel que prévu dans la théorie BCS.

D'un autre côté, la chute de l'atténuation ultrasonore α_L pour le mode longitudinal C_L dans l'échantillon surdopé en dessous de T_c a été attribuée à la dissipation visqueuse par les électrons supraconducteurs de conduction.

La viscosité η est extraite de l'équation suivante [172-173] :

$$\alpha_L = \frac{2\omega^2}{3\rho V_L^3} \eta \tag{12}$$

Où ρ est la masse volumique , V_L est la vitesse du son longitudinal et ω est la fréquence de l'onde ultrasonore.

La valeur de viscosité trouvée pour le cristal surdopé est $\eta_L \sim 10$ poise (g/cm. s). Cette valeur de la viscosité est comparée à celle trouvée dans le supraconducteur non conventionnel Sr_2RuO_4 , dans lequel le comportement exponentiel de l'atténuation ultrasonore, tel que prévu par la théorie de BCS, n'a pas été non plus observé. Il présente une dépendance de l'atténuation en fonction de la température et une anisotropie de la viscosité [173].

4. Mesures thermodynamiques de la chaleur spécifique:

Les mesures de la chaleur spécifique de ces composés ferromagnétiques ont été réalisées à l'aide du dispositif PPMS (Physical Property Measurement System- de Quantum Design). Cet appareil permet de mesurer automatiquement, en outre, les valeurs de la résistivité et de la susceptibilité magnétique des échantillons.

4.1. Pour le cristal surdopé :

Avec ce complément de mesures thermodynamiques de la chaleur spécifique par le PPMS, nous avons pu mettre en évidence le saut de la transition de la phase supraconductrice à une très faible échelle d'ordre 10^{-4} dans l'échantillon sur-dopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂.

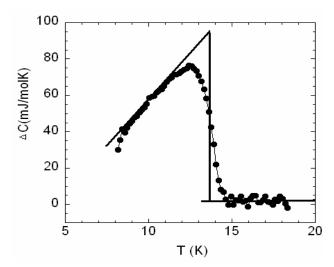


Figure 14 : Variation de la chaleur spécifique ΔC_P du cristal sur-dopé en fonction de la température.

Dans la figure 14, nous avons reporté la mesure de la chaleur spécifique ΔC_P pour le cristal sur-dopé BaFe_{1.85}Ni _{0.15}As₂ aux environs de la température de transition à la phase

supraconductrice T_c . La contribution de la haute température à l'état normal a été soustraite de cette mesure.

La courbe du saut de la chaleur spécifique passe par un point milieu coïncidant avec la température critique $T_c=13.5~\rm K$ du cristal sur-dopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂. Le saut de la chaleur spécifique est estimé à $\Delta C_p \sim 0.1~\rm J/K$ mol.

De la thermodynamique ^[177], on peut déduire une relation simple reliant le saut de la chaleur spécifique, la dépendance de la pression (dT_c/dp) et la variation de la vitesse ultrason $\Delta V_{33}/V_{33}$ du mode longitudinal C_{33} sous la forme suivante ^[174-175]:

$$\frac{\Delta V_{33}}{V_{33}} = -\frac{\rho V^2 \Delta C_P}{T_c V_m} \left(\frac{dT_c}{dp}\right)^2 \tag{13}$$

Avec $\rho = 6500 \ kg/m^3$ - la masse volumique,

 $V_m = 6 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mol}$ - le volume molaire.

La dérivée de la pression monoaxiale à T_c , est évaluée analogiquement à la dilatation thermique dans des supraconducteurs dopés en Co (système physique similaire), fortement anisotropes [176-177]. Cette dépendance de la pression monoaxiale le long de l'axe c est estimée à $\frac{dT_c}{dn} = 9\text{K/GPa}$ et la vitesse du son est évaluée à V=3000 m/s [176].

La valeur du saut trouvé expérimentalement $\frac{\Delta V}{V} \approx 0.0001$ et déterminé par l'équation thermodynamique est identique au saut de variation des vitesses ultrasonores des modes longitudinaux C_{33} et C_L , représentées par l'écart ε de ces vitesses dans l'encadré de la figure 7 ($\varepsilon \approx 0.0001$).

4.2. Pour le sousdopé :

L'équation (13) donne donc un saut de la vitesse relative ultrasonore :

$$\frac{\Delta V_{33}}{V_{33}} \sim 0.002 = 2.10^{-3}$$

Avec un saut de chaleur spécifique $\Delta C_p = 0.5$ J/mol K mesuré pour le cristal sous-dopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂. Cette valeur est comparable au saut trouvé pour le mode de C₃₃ dans le cristal sousdopé et le résultat du saut calculé par la formule thermodynamique $\frac{dV_{33}}{V_{33}}$ ~0.002 est de même grandeur que celui dans la figure 3. Ce qui confirme, en effet, la cohérence de nos mesures expérimentales aux ultrasons pour le mode C_{33} et notre résultat théorique trouvé à l'issue des calculs thermodynamiques.

5. Comparaison avec les résultats des mesures électromagnétiques :

Les mesures de la réactance par un circuit d'induction magnétique avec un analyseur d'impédance (détaillé dans le chapitre III/ partie B) à la fréquence de 2 MHz, reportées dans la figure15, détectent la même anomalie que celle relative à la variation d'atténuation longitudinale α_L dans la zone de transition à l'état supraconducteur ~13K pour l'échantillon surdopé,.

En effet, le saut de la phase supraconductrice se trouve à la même température critique ~ 13K aussi bien dans la courbe de la variation d'atténuation que dans celle de la variation d'inductance. La comparaison de ces deux résultats permet de confirmer l'existence d'une

forte corrélation entre les propriétés électromagnétiques et élastiques de l'échantillon surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15} As₂ dans la transition supraconductrice.

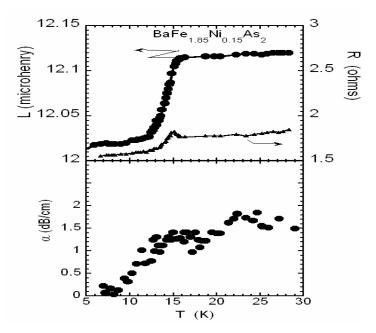


Figure 15 : Variation de l'atténuation, de la résistance et de l'inductance en fonction de la température [166].

Dans la figure 15, nous avons présenté la variation de l'inductance L(cercle plein), et les pertes radiofréquences RF (triangle plein) d'une bobine à l'intérieur de laquelle est placé le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂ mesurée à 2 MHz.Le champs RF est parallèle au plan de base (ab). Aussi, nous avons reporté la variation d'atténuation ultrasonore du mode longitudinal C_L mesuré dans l'échantillon surdopé à 15 MHz, normalisée par rapport à la valeur de la température la plus basse [166].

6. Comparaison avec des résultats similaires et interprétation :

Cette interprétation sera axée sur l'analyse de l'anomalie observée de l'atténuation ultrasonore durant la phase de la transition à l'état supraconducteur de nos échantillons de mesures [19-20]. Elle consiste à trouver le lien de l'interaction de l'atténuation de son avec les porteurs de charges électroniques à l'état normal et à l'état supraconducteur.

Pour une fréquence de \sim 1GHz, proche de nos fréquences de mesures expérimentales de 15 et 45 MHz, l'interaction électronique est estimée à $ql\sim$ 1 en dessous de T_c . q est le vecteur d'onde et l le parcours moyen de l'électron libre l est d'environ 1 μ m.

Dans les supraconducteurs conventionnels, il a été démontré que l'interaction entre les ondes ultrasonores et les porteurs de charges induit une chute exponentielle de l'atténuation ultrasonore.

Les pics de l'atténuation ultrasonore des modes C_{33} et C_{44} observés dans les mesures de l'échantillon sousdopé autour de T_c (figure 9) ne peuvent pas être facilement liés aux interactions avec les porteurs de charge électroniques. Ils ne pourraient pas donc être expliqués par la décroissance exponentielle de l'atténuation ultrasonore en fonction de la température en dessous de T_c , tel que décrit par le modèle BCS pour les supraconducteurs conventionnels.

Nous observons, par contre, des pics d'atténuation ultrasonore dans l'échantillon sousdopé centrés autour de T_c et s'étendant sur plusieurs degrés. Il y'a une discontinuité négative de la vitesse du son et un pic d'atténuation s'étendant sur quelques degrés kelvin. Ils peuvent être dus à des fluctuations orbitales et /ou magnétiques près de T_c . Cette anomalie a été intensivement observée dans le cas de l'échantillon sousdopé dans les mesures électromagnétiques, que nous avons associé à la phase onde de densité de spin ODS dans le Chapitre V. Des mesures d'atténuation à des fréquences plus élevées n'ont pas abouti, vu que les amplitudes des ondes se propageant dans le plan de base sont trop faibles en raison de la rugosité de la surface de l'échantillon, du défaut de parallélisme et du mauvais alignement des faces opposées des échantillons disponibles.

Un comportement anisotrope a été observé dans la dépendance de la vitesse et de l'atténuation ultrasonores des modes longitudinal C_L et transversal C_T en fonction de la température, notamment près de la transition supraconductrice $T_c = 13 \, K$ dans l'échantillon surdopé BaFe_{1.85}N_{i0.15}As₂. En effet, en dessus de la phase de transition supraconductrice, le ramollissement produit par le mode de cisaillement C_T est attribué à des instabilités structurales qui contribuent à une augmentation de l'atténuation jusqu'à une valeur maximale à 16 K. Cette valeur correspond en fait à un minimum de la vitesse du son.

Ce résultat est en accord avec le ramollissement de la C_{66} reporté par les différents groupes et discuté dans le paragraphe précédent. La notion de la constante de flexibilité élastique a été introduite et est considérée comme la somme de la contribution de deux anomalies : une liée à un comportement critique $S_{66,cr}$ et une autre liée à la contribution normale (principale) S_{66}^0 [169-171]:

$$S_{66} = S_{66}^0 + S_{66,cr} = S_{66}^0 \left(1 + \frac{E_{JT}}{T - T_c} \right) \tag{14}$$

Où $E_{lT} = T - \Theta$. Avec E_{lT} : l'énergie Jahn-Teller.

Dans la figure 16, est schématisée la déformation ε_{XY} que subit l'échantillon induisant la transition structurale de la forme tétragonale à la forme orthorhombique. Elle a été attribuée à des fluctuations orbitales qui se manifestent à l'issue d'une dégénérescence de la configuration d⁶ et à des fluctuations magnétiques des spins des atomes de fer [178-179].

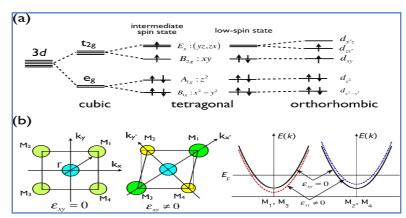


Figure 16: (a)- Représentation schématique d'un état fondamental de la configuration d⁶de ions Fe au cours de la transition structurale de la forme tétragonale avec un état de spin intermédiaire à la forme orthorhombique avec un état de spin-bas ^[178]. (b)- Représentation de la déformation ε_{xy} de la maille de fer et des moments magnétiques des atomes de fer ^[179].

Partant du principe que les déformations élastiques dans les échantillons à base de fer sont induites par des fluctuations magnétiques au niveau des quadripôles des atomes de fer, la constante de flexibilité S_{66} représentant la susceptibilité structurale dans les systèmes élastiques a été reliée, par M.Yoshizawa, directement à la susceptibilité magnétique χ dans les systèmes magnétiques, tel que illustrée dans la figure 17.

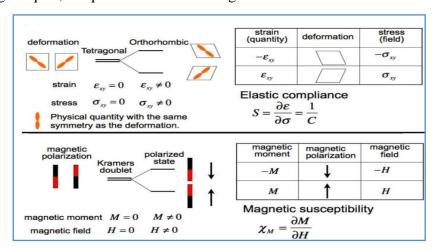


Figure 17: Correspondance schématique entre la constante de flexibilité S due à une déformation structurale et la susceptibilité magnétique χ_M dans les systèmes magnétiques (Extrait de l'article de Yoshizawa et al [171]).

Dans une étude du magnétisme et de la supraconductivité par la technique de diffusion Raman réalisée par L. Chauvière [31] dans la même famille des pnictures 122, il a été mis en évidence que la réponse Raman à basse température dans des cristaux sous-dopés (x = 0.055 et 0.06) diffère nettement de celle dans les échantillons sur-dopés (x = 0.07, 0.075 et 0.1).

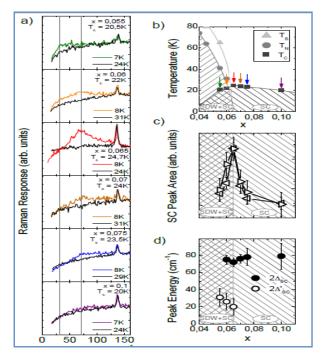


Figure 18 :a) Réponses Raman dans l'état normal et dans l'état supraconducteur en fonction de la température ^[31].

Dans la figure 18, sont reportés le diagramme de phase et les réponses Raman dans l'état normal et dans l'état supraconducteur du composé $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ en fonction de la température et $x=0.055,\,0.06,\,0.065,\,0.07,\,0.075$ et 0.1, réalisées par Chauvière et al ^[23].

Dans les deux premières réponses Raman pour les cas des échantillons sousdopés, il a été confirmé la coexistence de deux paramètres d'ordres relatifs à l'onde de densité de spin ODS et à la supraconductivité Sc ^[31].

CONCLUSION:

Les résultats de mesures ultrasonores, confirment la compétition entre les ordres onde de densité de spin ODS et supraconducteur SC dans l'échantillon sousdopé. Ils soulignent la relation délicate entre le magnétisme et la supraconductivité, qui semble être une caractéristique générique dans les supraconducteurs à base de fer.

Les présents résultats confirment que la phase de transition structurale de la forme tétragonale à la phase orthorhombique disparait quand la concentration en Ni dans les échantillons type $BaFe_2As_2$ augmente de x=0.07 à x=0.15. Les propriétés élastiques du cristal sousdopé sont fortement affectées par les instabilités structurales et par les effets purement électroniques près de la transition de phase supraconductrice.

La décroissance de la vitesse longitudinale, observée à la transition supraconductrice des échantillons sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ et surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂, a été confirmée également par les mesures thermodynamiques de la chaleur spécifique.

Des pics d'atténuations ultrasonores pour les modes de mesures élastiques longitudinal C_{33} et transversal C_{44} ont été observés dans les cristaux sousdopé et surdopé autour de la transition de la phase supraconductrice, et ce en contradiction avec les prédictions issues de la théorie BCS.

Un grand comportement anisotrope accentué est observé dans les courbes de mesures de la dépendance en température de la vitesse du son et de l'atténuation des modes longitudinal C_L et transversal C_T dans le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂ autour de la transition supraconductrice.

Au dessus de la transition de la phase supraconductrice, un ramollissement du mode transversal C_T a été mis en évidence dans le cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂.Un pic d'atténuation est observé à la température de 16 K correspondant à un minimum de la vitesse ultrasonore dans cet échantillon surdopé. Ce résultat est en accord avec les résultats de mesures du groupe japonais de M.Yoshizawa [14] et du groupe américain de R.M.Fernandes [10] qui ont observé un ramollissement similaire de la constante d'élasticité C_{66} dans les cristaux BaFe_{2-x} Co_xAs_2 en dessus de la transition supraconductrice.

Le taux de ramollissement du mode transversal C_T dans nos échantillons de mesures $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$ est beaucoup plus petit que celui dans les résultats de mesures de M.Yoshizawa pour le système dopé en Co le $BaFe_{2-x}Co_xAs_2$ [12-14].

La courbe d'atténuation du mode longitudinal C_L , généré dans le plan de base du cristal surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂, montre une chute_près de la température de transition à la phase supraconductrice T_c . Cette décroissance de l'atténuation pourrait être liée à l'appariement des électrons de conduction dans ces supraconducteurs.

Enfin, la valeur du gap supraconducteur extraite des valeurs expérimentales de nos mesures d'atténuation ultrasonore est supérieure à la valeur prévue par la théorie BCS, confirmant ainsi que les supraconducteurs à base de fer BaFe₂As₂ ne font pas partie des supraconducteurs conventionnels.

H^{ème}

Mais j'avais été précédé dans cette voie, au XIIIème siècle, par Pierre de Maricourt, auteur en 1269 du premier traité sérieux sur les aimants. Après avoir lu son œuvre, on peut faire trois remarques.

D'abord qu'en matière scientifique, on a souvent des prédécesseurs beaucoup plus anciens qu'on ne le pense à priori....

Louis Néel- prix Nobel en physique 1970 (Stockholm).

CHAPITRE V : RESULTATS DE MESURE PAR INDUCTION MAGNETIQUE EN RADIO ET HAUTES FREQUENCES.

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats expérimentaux de nos mesures de l'impédance de surface des supraconducteurs à base de fer en fonction des radiofréquences et des hautes fréquences.

Nous avons étudié, en radiofréquences et en hautes fréquences, trois types des échantillons supraconducteurs à base de fer de la famille du Ba-122 présentant une différence de concentration de dopage en Ni.

Les dispositifs de mesures ont été réalisés avec des équipements et des circuits du CNRS de Grenoble dont le principe de base est l'induction magnétique. En effet, le premier consiste en un circuit de mesures LC résonant et à base de boucle de verrouillage de phase, le second consiste en des mesures en Radiofréquences par un analyseur d'impédance. Le troisième concerne des mesures HF à 1.5 GHz par un analyseur de réseau.

Les dispositifs de mesures sont décrits et détaillés dans la partie B du chapitre III : Techniques de mesures par induction magnétique.

Les échantillons sélectionnés pour nos différentes mesures en RF et HF ont une concentration de 7%, 10% et 12%. Ils sont respectivement appelés sous-dopés BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, optimalement dopés BaFe_{1.9}Ni_{0.1} As₂ et surdopés BaFe_{1.88}Ni_{0.12} As₂, et sont indiqués dans le diagramme de phase, que nous avons détaillé dans le chapitre II.

I. Résultats de mesure par un circuit LC résonant :

Nous avons mesuré, avec notre dispositif LC résonant à 92 MHz dont le principe est décrit dans le chapitre III (partie B) à la figure 12, la variation relative de la tension dV_0/V_0 en fonction la température sur deux échantillons présentant une différence en dopage: le sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂, et le surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As₂.

L'inductance de la bobine a été mesurée à vide, sans échantillon, et son effet a été soustrait du résultat de la mesure faite avec la bobine contenant dedans l'échantillon supraconducteur. Cette approche nous a permis de montrer uniquement le comportement de l'échantillon supraconducteur. Ces mesures ont été réalisées dans l'intervalle de température allant de 5 à 35 Kelvin [160].

Les dimensions des échantillons mesurés sont de 7x5x0.2mm³.La température de transition de l'échantillon supraconducteur sous-dopé est $T_c = 17~K$, alors que celle de l'échantillon surdopé est $T_c = 13~K$ [32].Notre procédé de mesure est basé sur la technique de réflexion avec une ligne de transmission , terminée par une charge, qui n'est autre que le circuit résonant LC, d'impédance Z_L .

L'impédance d'entrée de cette ligne de transmission reportée au chapitre III (partie B) est donnée par :

$$Z_{\text{in}}(l) = Z_0 \frac{Z_L + Z_0 \tan(\beta l)}{Z_0 + Z_L \tan(\beta l)}$$

où Z_L est l'impédance du circuit LC résonant, Z_0 est l'impédance caractéristique de la ligne, l est la longueur de la ligne de transmission « ligne coaxiale » (l = 2m) et β est le vecteur d'onde électrique 3.3 π .

Le rapport de la tension réfléchie par rapport à la tension incidente est proportionnel au rapport d'impédance de cette ligne de transmission, suivant la relation :

$$\frac{v_R}{v_I} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \tag{1}$$

Dans les figures 1 et 2, nous représentons respectivement la variation relative de la tension dV_0/V_0 en fonction de la température pour l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_{2.}, et le surdopé BaFe_{1.85}Ni_{0.15}As_{2.}

1. Echantillon sousdopé :

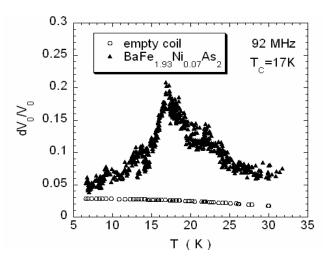


Figure 1: Variation relative de la tension dV_0/V_0 en fonction de la température, mesurée avec un circuit LC résonant à 92 MHz [160].

Pour le sousdopé, nous observons:

- La variation relative de la tension dV_0/V_0 , mesurée à un ordre de centième prés, présente une résonance électromagnétique à la température de transition $T_c = 17K$. La variation de V_0 correspond à une variation de la tension réfléchie v_R au niveau de l'échantillon
- En dessous de T_c , dV_0/V_0 chute brutalement. Cette chute est très importante d'environ 4 fois de grandeur par rapport à sa valeur à T_c . Elle est due à la baisse de la tension réfléchie v_R , autrement dit, à l'augmentation de l'absorption du signal incident par l'échantillon.

- La chute de dV_0/V_0 pourrait être expliquée par une chute de l'impédance de l'échantillon, suivant l'équation (1).
- La largeur de la transition à l'état supraconducteur de l'échantillon sousdopé est très importante d'environ 5 Kelvins, qui nous suggérons lier à la coexistence de deux phases, onde de densité de spin (ODS) et la phase supraconductrice (Sc). Cet élargissement a été observé dans nos autres mesures «RF, HF et dans les mesures ultrasonores » et fera l'objet d'une interprétation détaillée dans les paragraphes suivants.
- La phase de transition supraconductrice SC est précédée par une forte augmentation de dV_0/V_0 dans l'intervalle de température [17-25 K], due probablement à la phase de transition ODS.
- \triangleright En dessous de T_C , la longueur de pénétration magnétique λ (T) va baisser proportionnellement à la tension réfléchie, comme le montre la relation suivante de Gould [161]:

$$\frac{v_R}{v_R^N} \approx \frac{\lambda (T)}{\delta_N} \tag{2}$$

avec δ_N et v_R^N étant respectivement l'épaisseur de peau et la tension réfléchie à l'état normal

➤ Ceci est en accord avec la variation de la longueur de pénétration magnétique qui baisse en dessous de la température critique suivant la relation du modèle à des deux fluides (3) :

$$\lambda(T) \approx \lambda(0) / \sqrt{1 - (T/T_c)^4}$$
 (3)

Où la longueur de pénétration $\lambda(0)$ a été estimée à $\sim 7 \mu m^{[159]}$.

2. Echantillon surdopé:

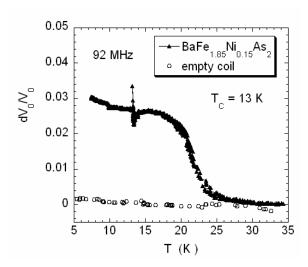


Figure 2 : Variation relative de la tension dV_0/V_0 en fonction de la température, mesurée avec un circuit LC résonant à 92 MHz ^[160].

Pour le surdopé, nous observons:

En dessous de la température T_C , la variation de la tension dV_0/V_0 mesurée est beaucoup moins significative. Ceci est du à la faible variation de la tension réfléchie v_R et à une très faible absorption du signal en dessous de T_c .

- La transition à la phase supraconductrice est très brève avec un saut observé en millième d'ordre $0.4 ext{ } 10^{-3}$ à $T_C = 13 ext{K}$, qui pourrait être expliqué par l'absence de la transition magnétique et de la transition structurale pour cet échantillon.
- La variation de l'impédance du circuit LC avec l'échantillon sera aussi très réduite, conformément à l'équation (1).
- La longueur de pénétration magnétique sera également réduite et suivra la même variation que la tension réfléchie, exprimée dans l'équation (2).
- ➤ Un tel pic de pertes RF a été observé au niveau des liaisons de jonctions Josephson à base des microcristaux supraconducteurs ^[180].

3. Comparaison des résultats :

En vue d'élucider le comportement de l'échantillon sousdopé à l'état supraconducteur , nous avons superposé nos résultats issus de l'approche de mesures par un circuit résonant LC avec d'autres résultats de mesures issus de deux approches suivantes , à savoir :

- Méthode ultrasonore, par la mesure de l'atténuation à 15 et 45 MHz,
- ➤ Méthode électrique par la mesure de l'impédance de l'échantillon en court-circuit à 30 MHz (voir figure 4 du chapitre III/partie B).

Pour ce faire, nous avons normalisé l'impédance du circuit LC avec l'échantillon à sa valeur à l'état normal et ce en normalisant la tension réfléchie à sa valeur à l'état normal à la température de 25 K. Ainsi, nous pouvons continuer notre raisonnement en termes d'impédance par \mathbb{Z}/\mathbb{Z}_N .

Dans la figure 3, sont représentées la variation de l'impédance normalisée Z_S/Z_N , en fonction de la température mesurée par la méthode électrique à 30 MHz, par la méthode magnétique avec un circuit LC résonnant à 92 MHz, et par ultrasons à 15 et 45 MHz pour l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂,(figure 7 du Chapitre IV).

Les lignes continues de lissage ont été calculées par l'équation (3) à T_c égale respectivement à 17.5 K et 18 K. Elles représentent respectivement les variations des longueurs de pénétration magnétique obtenues par les différentes méthodes « électrique, magnétique et acoustique ».

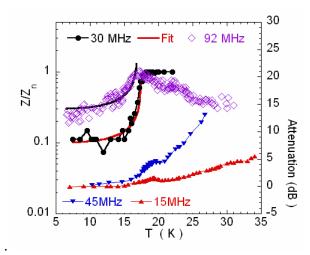


Figure 3: Variations de l'atténuation et de l'impédance normalisée Z_S/Z_N , en fonction de la température mesurées par la méthode électrique, magnétique et acoustique.

Nous constatons que les courbes de variation de l'impédance Z_S/Z_N , issues de deux techniques électrique et magnétique, suivent la même dépendance en température en dessous de T_c =17.5K.

Ce résultat expérimental de mesure par la méthode électrique avec un circuit non résonant à 30 MHz est cohérent avec celui issu de la mesure par induction magnétique avec un circuit résonnant à 92 MHz et en accord avec les résultats de mesures d'atténuations obtenus par l'approche ultrasonore à 15 et 45 MHz.

Le procédé de mesure par induction magnétique, nous a permis de mesurer la variation relative de la puissance réfléchie $\Delta V_0/V_0$, et d'en déduire la variation relative de la longueur de pénétration $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}\cong\frac{\Delta\lambda}{\delta}$, et ce en la normalisant par rapport à la profondeur de peau à l'état normal δ .

Ce procédé inductif ne permet pas une mesure directe de l'impédance de l'échantillon, ni de ses composantes réelle (R) et imaginaire (X). Par contre, cette approche permet de détecter la transition supraconductrice dans les deux échantillons de mesures tout en mettant en évidence leur comportement en dessous de T_c .

Le principe de la modélisation de notre circuit de mesure « bobine avec échantillon » par le schéma équivalent du transformateur [164-165], a été présenté dans le chapitre III (partie B). La bobine étant la primaire du transformateur. Le secondaire est formé par l'inductance associée aux courants induits dans l'échantillon.

II. Mesures avec les analyseurs d'impédance et de réseau :

Dans ce paragraphe, nous allons détailler les paramètres directement mesurés avec les analyseurs d'impédance et de réseau tels que : la variation d'inductance ΔL , la variation de la résistance ΔR , l'impédance de surface, la réactance X_s , la résistance R_s , les conductivités réelle σ_1 et imaginaire σ_2 , la variation relative de la longueur de pénétration $\Delta\lambda$ et le temps de diffusion des électrons τ^{-1} .

1. Impédance de surface :

En hautes fréquences, lorsqu'un conducteur est parcouru par un courant électrique, ou exposé à une onde électromagnétique « cas des lignes coaxiales », au fur et à mesure que la fréquence augmente, les charges électriques sont repoussées du centre vers la surface du conducteur pour le courant, tandis que pour l'onde électromagnétique, l'onde est expulsée vers la surface. Cet effet de peau est bien présent dans nos mesures, toutes méthodes confondues. En effet, lorsque une onde électromagnétique oscillante à la fréquence ω , arrivent à la surface d'un métal de conductivité σ les composantes électrique et magnétique qui décroissent en e^{-z}/δ . Autrement dit, le champ électromagnétique s'annule partout à l'intérieur de l'échantillon sauf à une épaisseur δ , appelée épaisseur de peau ou profondeur de pénétration de l'onde.

Le métal présente alors une impédance de surface caractéristique Z_s , définie comme le rapport des champs électrique et magnétique à la surface du métal :

$$Z_s = \frac{E_t}{H_t} = \frac{E_t}{\int_0^\infty J_t \, dz} \quad (4)$$

 E_t et H_t - représentent respectivement les composantes tangentielles des champs électrique E et magnétique E, évaluées à la surface du conducteur.

Les deux champs sont orthogonaux dans un milieu isotrope. J_t représente la densité de courant tangentiel, z étant la coordonnée normale à la surface.

Utiliser l'impédance de surface pour caractériser un conducteur est une très bonne façon de traiter la réponse d'un matériau à une excitation électromagnétique. L'étude de cette impédance permet d'élucider le processus de conduction dans les conducteurs normaux et dans les supraconducteurs tout en fournissant des informations sur leur structure électronique.

Cette impédance de surface mesurée dans la gamme des hyperfréquences est une quantité par définition complexe, s'exprimant sous la forme :

$$Z_{s} = R_{s} + iX_{s} = \sqrt{\frac{i\omega\mu_{0}}{\sigma}}$$
 (5)

Avec:

 R_s étant la partie réelle correspondant à la résistance de surface,

 X_s - la partie imaginaire correspondant à la réactance de surface.

Où $\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2$ - la conductivité complexe et μ_0 la perméabilité du vide.

Dans le cas d'un supraconducteur, R_s et X_s reflètent respectivement les pertes générées par les électrons normaux (quasi-particules) et l'inertie des électrons supraconducteurs (les paires de Cooper).

Nous rappelons que l'échantillon est de dimensions $1000x1000x100~\mu m^3$; il est placé à l'intérieur d'une bobine en cuivre de longueur 11 mm, de diamètre 2,6 mm , formée de 18 spires, et d'inductance 0,2 μH . La bobine est placée à l'extrémité d'une ligne coaxiale. Le champ magnétique radiofréquence est appliqué parallèlement au plan ab de l'échantillon. Les mesures non résonantes des composantes réelle (R) et imaginaire (L) de l'impédance de la bobine et de l'échantillon ont été effectuées avec l'analyseur d'impédance « Agilent 4395 » dans la gamme de fréquences de 1 -100 MHz .

Quant aux mesures à la fréquence de résonance à 1.5 GHz, elles étaient effectuées avec la même bobine et l'aide d'un analyseur de réseau vectoriel « Hewlett Packard 8720B ». La résistance et l'inductance de la bobine sont mesurées séparément avec et sans échantillon, afin de soustraire la contribution de matériau supraconducteur ^[181].

L'expression de l'impédance du système « bobine + échantillon » a été obtenue en se basant sur le schéma équivalent du transformateur idéal, développée par Y. Lebihan ^[164]ou par A.C. Bódi ^[165].

Dans ce modèle, le primaire du transformateur est le L_0 de la bobine de mesure. Le secondaire est définie par une inductance L_2 qui est liée à des courants de Foucault induits dans l'échantillon. L_2 est le facteur géométrique et ne dépend pas des propriétés de l'échantillon. L'inductance mutuelle M entre l'échantillon et la bobine est définie par l'inductance mutuelle entre le primaire et le secondaire, $= k^2 L_0 L_2$, où k est le facteur de couplage géométrique entre le primaire et le secondaire.

L'impédance du système « bobine et échantillon » a été donnée dans le chapitre III (partie B) par :

$$Z = R_0 + \frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 R}{|R + j(X + L_2 \omega)|^2} + j \left[L_0 - \frac{k^2 L_0 L_2 \omega \{X + L_2 \omega\}}{|R + j(X + L_2 \omega)|} \right] \omega$$
 (6)

Où R et X sont les parties réelle et imaginaire de l'impédance de surface de l'échantillon, R_0 et L_0 sont la résistance et l'inductance de la bobine vide et ω est la fréquence angulaire $(L_0 = 0.2 \mu \text{H})$.

Le coefficient de couplage k et le facteur géométrique L_2 ont été déterminés à l'état normal en haute température à $\sim 100 K$, $k^2 \sim 0.1$ et $L_2 \sim 0.6$ nH avec l'équation suivante :

$$X_N = R_N = \sqrt{\mu_0 \rho_{dc} \omega / 2} \tag{7}$$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide et $\rho_{dc}=10^{-6}\Omega m$ la résistivité de l'échantillon mesurée en courant continu de dans [32].

La précision de notre technique a été testée par des mesures sur une poudre de supraconducteur MgB₂ et des techniques de moyennement des données ont été utilisées et exploitées.

Les parties réelle $R_S = R_e(Z_S)$ et imaginaire $X_S = Im(Z_S)$ de l'impédance de surface Z_S de l'échantillon sont ensuite obtenues, à partir des variations relatives de la résistance ΔR et d'inductance ΔL mesurées, en utilisant les équations (8) et (9).

La variation de la résistance ΔR représente la résistance de surface de l'échantillon (ou partie réelle de l'impédance de surface) :

$$\Delta R = R - R_0 = \frac{M^2 \,\omega^2 \,R_e(Z_s)}{|Z_s + j \,L_2 \,\omega|^2} = \frac{k^2 L_0 L_2 \,\omega^2 R}{|R + j \,(X + L_2 \,\omega)|^2} \tag{8}$$

La variation d'inductance mesurée, $\Delta L = L - L_0$, représente la réactance de surface de l'échantillon (ou partie imaginaire de l'impédance de surface):

$$\Delta L = L - L_0 = -\frac{M^2 \omega^2 (I_m(Z_s) + L_2 \omega)}{|Z_s + j L_2 \omega|^2} = -\frac{k^2 L_0 L_2 \omega^2 \{X + L_2 \omega\}}{|R + j (X + L_2 \omega)|}$$
(9)

La profondeur de la peau δ a été évaluée à ~50 μm à 100 MHz à l'état normal, la résistivité a été rapportée à la conductivité de $\sigma \sim 2~10^5 \Omega^{-1} m^{-1}$ pour les cristaux BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ [32].

Les mesures d'inductance et de résistance nous ont permis de représenter les dépendances des variations d'inductance ΔL et de la résistance ΔR de l'échantillon, variables que nous avons normalisées respectivement à la valeur de l'inductance de la bobine vide L_0 et à la valeur de résistance R_N mesurée à 25 K dans l'état normal.

Les mesures de l'impédance de surface, des échantillons supraconducteurs $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$ de concentrations en nickel $x=0.07,\,0.1$ et 0.12, ont été réalisées et représentées en fonction de la température dans l'intervalle de températures de 5 à 30 K et en fonction des fréquences de 10 MHz à 1,5 GHz.

En haute fréquence, la bobine développe un effet capacitif et peut être considérée comme un circuit LC. Ainsi, à 1,5 GHz, nous avons mesuré une inductance $L=0.2~\mu H$, un facteur de qualité ~ 80 et déterminé une capacité C=50~fF(femtofarads). La variation de la fréquence a été suivie manuellement tout en maintenant la partie réactance nulle.

La puissance incidente est faible et aucun changement visible dans les mesures n'a été observé en augmentant la puissance incidente de -20 dBm à 0 dBm.. Les mesures ont été effectuées dans le champ magnétique terrestre ambiant.

2. Longueur de pénétration magnétique :

A l'état normal, la résistance normale est équivalente à la réactance, dont l'équation est exprimée par :

$$R_{N}(T) = X_{N}(T) = \sqrt{\omega \mu_{0} / 2\sigma_{N}(T)}$$
 (10)

A l'état supraconducteur, en dessous de la température critique ($T < T_c$), la partie imaginaire est exprimée par l'équation suivante :

$$X_s \approx \left(\frac{\omega \mu_0}{\sigma_2}\right)^{\frac{1}{2}} = \omega \,\mu_0 \lambda$$
 (11)

Et la partie réelle par:

$$R_s = \frac{1}{2}\omega^2 \mu_0^2 \sigma_1 \lambda^3 \tag{12}$$

A l'état supraconducteur, la réactance X_s est proportionnelle à la longueur de pénétration magnétique λ et à la fréquence ω , tandis que la résistance de surface est proportionnelle à λ^3 et à ω^2 [144].

Pour trouver la longueur de pénétration magnétique λ , nous avons normalisé X_s par rapport à la valeur de la résistance R_N à l'état normal à 25 K . Ce qui donne :

$$\frac{X_s}{R_N} = \frac{\omega \,\mu_0 \lambda}{\sqrt{\omega \mu_0 / 2\sigma_N(T)}} \tag{13}$$

La longueur de pénétration magnétique λ pourrait être déduite comme suit :

$$\lambda = \frac{X_s}{R_N} * \sqrt{\frac{1}{2\omega \,\mu_0 \sigma_n(T)}} = \frac{X_s}{R_N} * \sqrt{\frac{1}{4\pi f \,\mu_0 \sigma_n(T)}} \quad (14)$$

Etant donné que la réactance est reliée à la longueur de pénétration magnétique par l'équation (13), la variation relative de la longueur de pénétration magnétique $\Delta\lambda(T)$ est proportionnelle à la variation relative de la réactance $\Delta X_s(T)$ en dessous de T_c .

La variation relative $\Delta \lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ de température est calculée en utilisant l'équation suivante:

$$\Delta \lambda = \frac{\Delta X_s(T)/R_N}{\sqrt{4\sigma_N \mu_0 \pi f}} \tag{15}$$

 $\sigma_N = 1/\rho_N = 10^6 (\Omega * m)^{-1}$ est la conductivité à l'état normale.

La résistivité mesurée en continu vaut environ $\rho_N=10^6\Omega$. m représentant la valeur de la résistivité donnée dans les articles [32-192].

Les variations relatives de la longueur de pénétration de London $\Delta\lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ déduite de X/R_N en fonction de la température et de la fréquence sont représentées pour les trois échantillons de mesures.

3. Conductivité complexe :

Pour décrire la conductivité complexe, nous faisons appel au « modèle des deux fluides" précédemment décrit dans le premier chapitre I : Généralités sur la supraconductivité.

Il a été cité qu'en présence d'un champ électrique oscillant, un matériau supraconducteur en dessous de la température de transition T_c développe :

- > un effet résistif et inductif dû aux électrons non appariés (électrons normaux ou célibataires);
- > un effet purement inductif dû aux électrons appariés (électrons supraconducteurs ou paires).

En dessous de T_c , on trouve dans le matériau une certaine proportion d'électrons appariés ou des électrons supraconducteurs de densité n_s , les autres restant sont considérés "célibataires" ou électrons normaux de densité n_n [182].

En présence d'un champ électromagnétique, tous les électrons sont influencés, et ils se comportent en suivant les règles propres à leur état (apparié ou non). Partant de l'idée qu'une partie des électrons contribuait à la supraconductivité, on considère les électrons de conduction du supraconducteur comme un mélange de deux fluides.

Partant de cette situation, il a été en associé une conductivité complexe de forme suivante :

$$J = \sigma E = (\sigma_1 - j\sigma_2)E \tag{16}$$

En utilisant les densités d'état des électrons supraconducteurs et normaux respectivement, et en négligeant les collisions subies par les paires, il est possible de calculer les composantes réelle et imaginaire de la conductivité qui se présentent sous la forme :

$$\sigma_1 = \frac{n_n e^2 \tau}{m(1 + \omega^2 \tau^2)} \tag{17}$$

et

$$\sigma_2 = \frac{n_s e^2}{m\omega} + \frac{n_n e^2 \omega^2 \tau^2}{m\omega (1 + \omega^2 \tau^2)}$$
 (18)

Les composantes réelle σ_1 et imaginaire σ_2 de la conductivité sont reliées à l'impédance de surface Z_s par la relation suivante ^[176]:

$$Z_s = R_s + jX_s = \sqrt{\frac{j\mu_0\omega}{\sigma_1 - j\,\sigma_2}}$$
 (19)

En insérant dans l'équation (19), les expressions de conductivité réelle et imaginaire données par les équations (17) et (18), on trouve une impédance complexe où les parties réelle et imaginaire sont données par:

$$Z_{s} = R_{s} + jX_{s} = \sqrt{\frac{\omega\mu_{0}}{2|\sigma|^{2}}(|\sigma| - \sigma_{1})} + j\sqrt{\frac{\omega\mu_{0}}{2|\sigma|^{2}}(|\sigma| - \sigma_{2})}$$
(20)

Il en résulte que l'impédance de surface Z_s tend vers 0 lorsque la fréquence ω tend vers 0, ce qui justifie que l'impédance de surface joue un rôle pour des fréquences (au-dessus de quelques dizaines de mégahertz).

L'étape suivante est de déterminer le comportement de la conductivité complexe :

$$\sigma = \sigma_1 - j\sigma_2$$

La partie imaginaire σ_2 de la conductivité est associée à aux porteurs supraconducteurs tandis que la partie réelle, σ_1 , décrit la réponse des porteurs normaux au champ électrique présente dans l'épaisseur de peau.

Pour déduire les composantes réelle et imaginaire de la conductivité complexe, nous nous basons sur le calcul de l'admittance Y_s , représentant l'inverse de l'équation (19) :

$$Y_{s} = \frac{1}{Z_{s}} = \frac{1}{R_{s} + jX_{s}} = \frac{R_{s} - jX_{s}}{(R_{s} + jX_{s})(R_{s} - jX_{s})}$$

$$Y_{s} = \frac{R_{s} - jX_{s}}{(R_{s}^{2} + X_{s}^{2})} = \frac{R_{s}}{(R_{s}^{2} + X_{s}^{2})} - j\frac{X_{s}}{(R_{s}^{2} + X_{s}^{2})}$$

En inversant la relation d'impédance Z_s (17), l'admittance Y_s est exprimée par :

$$Y_s = \frac{1}{Z_s} = \frac{R_s}{(R_s^2 + X_s^2)} - j\frac{X_s}{(R_s^2 + X_s^2)} = \sqrt{\frac{\sigma_1 - j\sigma_2}{j\mu_0\omega}}$$

Pour trouver les composantes σ_2 et σ_1 , on élève l'admittance Y_s au carré :

$$Y_s^2 = \left[\frac{R_s}{(R_s^2 + X_s^2)} - j \frac{X_s}{(R_s^2 + X_s^2)} \right]^2 = \frac{\sigma_1 - j\sigma_2}{j\mu_0 \omega}$$

$$\sigma_1 - j\sigma_2 = j\mu_0 \omega \left[\frac{R_s}{(R_s^2 + X_s^2)} - j \frac{X_s}{(R_s^2 + X_s^2)} \right]^2$$

$$\sigma_1 - j\sigma_2 = j\mu_0 \omega \left[\frac{R_s^2 - X_s^2}{(R_s^2 + X_s^2)^2} - 2j \frac{R_s X_s}{(R_s^2 + X_s^2)^2} \right]$$

$$\sigma_1 - j\sigma_2 = 2\mu_0 \omega \frac{R_s \cdot X_s}{(R_s^2 + X_s^2)^2} + j\mu_0 \omega \frac{R_s^2 - X_s^2}{(R_s^2 + X_s^2)^2}$$

Les expressions finales de la conductivité réelle σ_1 et de la conductivité imaginaire σ_2 s'écrivent comme suit :

$$\sigma_1 = 2\mu_0 \omega \frac{R_s \cdot X_s}{(R_s^2 + X_s^2)^2} = 2\mu_0 \omega \frac{R_s \cdot X_s}{|Z_s|^4}$$
 (21)

$$\sigma_2 = \mu_0 \omega \frac{R_s^2 - X_s^2}{(R_s^2 + X_s^2)^2} = \mu_0 \omega \frac{R_s^2 - X_s^2}{|Z_s|^4}$$
 (22)

En vue d'analyser les résultats par rapport à l'état normal, nous avons normalisé les conductivités réelle σ_1 et imaginaire σ_2 par rapport à la conductivité σ_N à l'état normal " $\sigma_1(25K) = \sigma_N$ ". Les parties réelle et imaginaire de la conductivité sont obtenues à partir des mesures de X/R_N et de R/R_N à l'aide des équations suivantes de:

La conductivité réelle:

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_N} = 4 \frac{R.X/R_N^2}{[(R/R_N)^2 + (X/R_N)^2]^2}$$
 (23)

et la conductivité imaginaire :

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_N} = 2 \frac{(X/R_N)^2 - (R/R_N)^2}{[(R/R_N)^2 + (X/R_N)^2]^2}$$
(24)

Dans notre étude des conductivités des trois échantillons, nous avons opté à montrer l'évolution de la partie réelle σ_1 et de la partie imaginaire de la conductivité σ_2 par rapport à la conductivité $\sigma(0)$ quand tous les électrons sont superfluides. Ainsi, les conductivités sont normalisées et représentées comme suit :

$$\sigma_1/\sigma_N$$
 et $\sigma_2/\sigma(0)$, avec $\sigma_2(0) = \sigma_2(T=0)$ et $\sigma_N = \sigma_{HT} = \sigma_1(T=25K)$

Nos mesures de résistance au voisinage de la transition supraconductrice nous permettent de déduire $\sigma_1(T)$. Mais en dessous de 15K, notre résolution expérimentale sur la mesure de résistance R_S n'est pas suffisante pour extraire la résistance intrinsèque.

4. Taux de diffusion des électrons de conduction:

Le temps de diffusion des quasi-particules τ peut être extrait de la mesure de conductivité complexe obtenue par la méthode hyperfréquence détaillée ci-après. Pour ce faire, le modèle à deux fluides sera encore utilisé ^[183]. Dans ce modèle, la conductivité peut s'écrire de manière générale sous la forme complexe suivante:

$$\sigma(\omega, \tau) = \sigma_{1S} - j\sigma_{2S} + \sigma_{1N} - i\sigma_{2N} \tag{25}$$

Ou

$$\sigma(\omega,\tau) = \pi \frac{n_s e^2}{m^*} \delta(\omega) - j \frac{n_s e^2}{m^* \omega} + \sigma_{1N} - i \sigma_{2N}$$
 (26)

Où σ_{1S} et σ_{2S} sont les parties réelle et imaginaire de la contribution du superfluide à la conductivité, σ_{1N} et σ_{2N} sont les contributions du fluide normal et n_s est la densité.

En supposant que la contribution du fluide normal à la conductivité ait une dépendance en fréquence rappelant celle de Drude :

$$\sigma_{1N} - i\sigma_{2N} = \frac{n_n e^2}{m^*} \left[\frac{\tau}{1 + (\omega \tau)^2} - j \frac{\omega \tau^2}{1 + (\omega \tau)^2} \right]$$
 (27)

Rappelons ici que l'échantillon se trouve dans la limite ($\omega \tau \ll 1$), le terme σ_{2N} peut donc être négligé. L'expression donne :

$$\sigma_{1N} = \frac{n_n e^2 \tau}{m^*} \tag{28}$$

Où la conductivité réelle σ_1 est reliée uniquement à la densité du fluide normal n_n et du même coup seule la densité n_s contribue à σ_2 .

En supposant qu'à température nulle (T=0) toutes les quasiparticules sont superfluides, il est possible de trouver la densité totale n_t grâce à l'égalité :

$$\frac{n_n e^2}{m^*} (T) + \frac{n_s e^2}{m^*} (T) = \frac{n_s e^2}{m^*} (T = 0) = \frac{n_t e^2}{m^*}$$
 (29)

Ainsi,

$$\tau^{-1} = \omega * \frac{(\sigma_2(0) - \sigma_2(T))}{\sigma_1(T)}$$
 (30)

Dans l'état normal, τ^{-1} est donné par :

$$\tau_N^{-1} = \omega * \frac{\sigma_2(0)}{\sigma_{1n}(T)} \tag{31}$$

Dans les équations (30) et (31), la valeur de $\sigma_2(0)$ pourrait être déterminée par l'extrapolation à T=0 de $\sigma_2(0)$.

Pour calculer le temps de diffusion τ de quasiparticules, nous avons utilisé une approche se basant sur le modèle phénoménologique à deux fluides et qui donne une dépendance quadratique en température ^[184-185]. Dans le modèle à deux fluides, la dépendance de densité supraconductrice n_s de la température est liée à la longueur de pénétration de London par la relation suivante :

$$n_s = \lambda^2(0)/\lambda^2(T) \tag{32}$$

La densité du fluide normal n_n peut être exprimée par $n_n = 1 - n_s$, la densité totale de porteurs est égale 1. Il en résulte que la dépendance en température de n_n dans nos mesures suit une dépendance quadratique T^2 :

$$n_n \sim 1 - \lambda(0)^2 / \lambda(T)^2 \sim (T/T_c)^2$$
 (33)

Suivant le modèle à deux fluides, à basse fréquence $\ll 1$, σ_1 est approximativement proportionnelle au produit $n_n \tau$ (modèle Drude), et peut être écrite :

$$\sigma_1 \sim n_n \tau \sim (T/T_c)^2 \tau \tag{34}$$

Par conséquent, le taux de diffusion $\frac{\tau^{-1}}{\tau_N^{-1}}$ est lié à la conductivité normalisée σ_1/σ_N et s'ecrit sous la forme [157-185]:

$$\frac{\tau^{-1}}{\tau_N^{-1}} = \left[\frac{T}{T_C}\right]^2 \frac{\sigma_N}{\sigma_1} \tag{35}$$

Où τ_N^{-1} est le temps de diffusion des électrons à l'état normal à T_c .

III. Résultats de mesures en RF et HF avec des analyseurs d'impédance et de réseau:

1. Echantillon optimalement dopé :

1.1. Impédance de surface :

Nos mesures d'impédance de l'échantillon optimalement dopé BaFe_{1.9}Ni_{0.1}As₂ ont été effectuées à l'aide d'un l'analyseur d'impédance à des radiofréquences de 20, 60 et 100 MHz.

Nous présentons à la figure 4 les courbes de $\Delta L/L_0$ et de $\Delta R/R_N$ en fonction de la température. La variation de l'inductance et celle de la résistance sont normalisés respectivement, par l'inductance de la bobine sans échantillon L_0 et par la résistance de l'échantillon à l'état normal R_N à la température de 25 K.

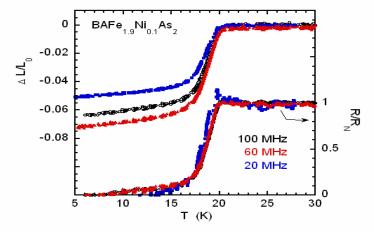


Fig.4: Variation de $\Delta L/L_0$ et de R/R_N de l'échantillon optimalement dopé en fonction de la température et de la fréquence RF ^[162].

Dans la figure 5, nous représentons les courbes de la résistance de surface et de la réactance de surface de l'échantillon optimalement dopé BaFe_{1.90}Ni_{0.1}As₂, déduites des valeurs de la figure 4 suivant les relations (8) et (9), en fonction de la température normalisées

par rapport à R_{SN} , R_S/R_{SN} et X_S/R_{SN} . R_{SN} est la valeur de la résistance de surface mesurée à l'état normal, avec $R_{SN} = X_{SN}$ en dessus de T_C .

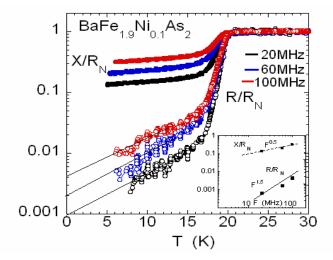


Figure 5: Dépendance de la réactance de surface X/R_N (symboles pleins) et de la résistance R/R_N (symboles ouverts) en fonction de la fréquence et de la température ^[162].

Encadré: Représentation des courbes de X/R_N et R/R_N en fonction de la fréquence à T=10K.

La valeur de la température de transition du supraconducteur peut être déduite à partir du changement de pentes sur la courbe de X_{SN} en fonction de la température. La température critique T_C a été déduite égale à 20 K.

Cette valeur de température critique se trouve très proche de valeur communément admise pour cet échantillon optimalement dopé ^[186]. La légère différence en température pourrait être due au problème de la thermalisation en relation avec la quantité d'hélium présent dans la canne. Nous avons pris en considération ce problème et nous l'avons solutionné en faisant à maintes reprises le pompage du gaz d'Hélium.

Interprétation des résultats de mesures :

- ➤ Dans les figures 4 et 5, la largeur de la transition à la phase supraconductrice de l'échantillon optimalement dopé, observée dans les mesures des composantes R_s et de X_s , reste uniforme, $(\Delta T_c^{20~MHz} = \Delta T_c^{60~MHz} = \Delta T_c^{100~MHz} \sim 3~K)$.
- Les deux paramètres mesurés en radiofréquences, R_s et X_s , décroissent rapidement audessous de Tc, ceci étant parfaitement en accord avec les prédictions de la théorie de Mattis-Bardeen ^[19]. Cette chute rapide de R_s est significative vu la disparition rapide des porteurs normaux qui participent à la dissipation au profit des porteurs supraconducteurs. Le comportement de R_s laisse deviner la présence d'une bande d'énergies interdites dans le spectre d'énergies du système du composé.
- ➤ En dessous de $T_c \sim 20$ K, la dépendance observée de X_s/R_N en fréquence est proportionnelle à $\omega^{0.5}$, et ce en concordance avec la théorie donnant $X_s \propto \omega$ et $R_N \propto \omega^{0.5}$. Une telle tendance à l'état supraconducteur a été aussi observée dans les résultats de mesures sur des cuprates en hyperfréquences [172].
- En moyennant les données, il a été observé une chute de R_s/R_N de 3 ordres de grandeur en dessous de la température de transition supraconductrice T_c . En effet, la variation observée R_s/R_N est proportionnelle à $\omega^{1.5}$ car la variation de la résistance de surface de l'échantillon à l'état supraconducteur est donnée par $R_s \sim \omega^2$, alors que la

- variation de la résistance à l'état normal est donnée par $R_N \propto \omega^{0.5}$. Des résultats similaires ont été observés par Trunin sur les cuprates [172].
- \succ Les valeurs de la résistance à $T \ll T_c$ dans les figures 1 et 2 sont plus grandes par plus d'un ordre de grandeur que celles rapportées sur le BaFe_{1-x}Ni_xAs₂^[185].
- ➤ Les valeurs de résistance de surface résiduelle, extrapolées dans la figure 6, ont la même tendance que celles rapportées par les résultats des mesures [159-185].

1.2. Longueur de pénétration magnétique :

Dans la figure 6, nous représentons les courbes de la longueur de pénétration magnétique en fonction de la température *T* pour différentes fréquences radio.

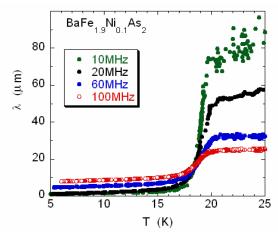


Figure 6: Dépendance de la variation de la longueur de pénétration de London λ en fonction de la température à différentes fréquences.

Dans la figure7, est représentée la variation relative de la longueur de pénétration de London $\Delta\lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ déduite de X/R_N en fonction de la température et de la fréquence.

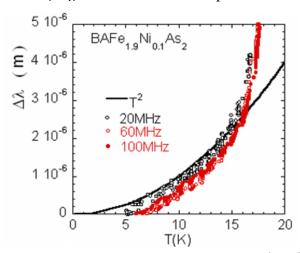


Figure 7: Variation de la longueur de pénétration magnétique $\Delta \lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ en fonction de la température à différentes radiofréquences.

Interprétations des résultats de mesures:

- \triangleright En dessous de T_c , nous observons que $\Delta\lambda$ suit une dépendance de la température $\sim T^2$ pour le cristal optimalement dopé.
- $ightharpoonup \grave{A}$ très basses températures $T \ll T_c$, $\Delta \lambda$ suit une loi de puissance $(T/T_C)^n$, avec n prenant des valeurs comprises entre $\sim 2-2.8$, attribué à l'effet d'une diffusion de forte brisure de paires de Cooper [49].

 \triangleright la longueur de pénétration magnétique dans un supraconducteur est une grandeur caractéristique du matériau, elle ne dépend pas de la fréquence en dessous de T_c .

1.3. Conductivité complexe :

Les dépendances des conductivités réelle et imaginaire normalisées σ_1/σ_N et $\sigma_2/\sigma(0)$ en fonction de la température et de la fréquence sont représentées dans la figure 9 suivante :

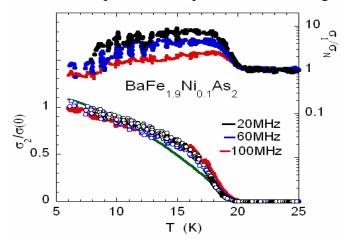


Figure 8 : Variation de la conductivité réelle et magnétique de la température et de la fréquence [162].

Dans la figure 8, nous avons reporté les dépendances en température et en fréquence radio de la conductivité réelle σ_1/σ_N (représentés en symboles pleins) et de la conductivité imaginaire $\sigma_2/\sigma(0)$ (représentés en symboles ouverts) de l'échantillon optimalement dopé. La ligne continue a été calculée avec : $1 - (T/20)^2$.

Interprétation des résultats de conductivité :

➤ La conductivité imaginaire normalisée $\sigma_2/\sigma_2(0)$ suit une dépendance de la température $\propto T^2$ et elle est liée à la longueur de pénétration de London [172-185] par :

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_2(0)} \approx 1 - \left(\frac{T}{T_C}\right)^2 \text{ et } \frac{\sigma_2}{\sigma_2(0)} = \frac{\lambda(0)^2}{\lambda(T)^2}$$
 (36)

- La conductivité réelle σ_1 augmente au fur et à mesure qu'on abaisse la température en dessous de T_C jusqu'à ce qu'elle atteint un maximum d'environ 10 fois de sa valeur normale. A des températures plus basses, la conductivité atteint 2 fois sa valeur normale. σ_1 a été calculée après l'élimination des pertes résiduelles.
- \triangleright Le pic observé de σ_1 diminue quand on augmente en fréquence de 20 à 100 MHz.
- \triangleright La partie imaginaire σ_2 est inversement proportionnelle au carré de la longueur de pénétration et de la fréquence ω . Un tel comportement est en accord avec la relation suivante proposée par le modèle à deux fluides ^[182].

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_N} = \frac{1}{\sigma_N \mu_0 \omega \lambda^2} \tag{37}$$

En dessous de T_C , σ_1 commence à augmenter à partir de σ_N , en dessous de $T_C = 20$ K en raison vraisemblablement des fluctuations supraconductrices. Elle présente un pic large centré à T=15 K. Ce maximum a été aussi observé dans des mesures sur YBaCuO ^[190]. Il est à noter que ce maximum ne peut pas être un pic de cohérence (qui est prédit par la théorie BSC) car il est trop éloigné de T_c . Il a été proposé pour les SHTC qu'un tel maximum sous T_c est associé à l'augmentation du taux de diffusion

des quasiparticules.

- La contribution des fluctuations supraconductrices à la conductivité et une possible variation du taux de diffusion des quasiparticules dans ces composés ont été examinées dans les cuprates et dans les supraconducteurs organiques [183].
- \triangleright La partie imaginaire de la conductivité σ_2 varie dès qu'elle atteint la température T_C , et augmente rapidement de façon quasi linéaire pour les plus basses températures.
- Nos résultats montrent une augmentation de σ_1 en dessous de T_C , en concordance avec les mesures sur des cristaux dopés en Cobalt reportées par Bobowscki [159], A.Barannick [185] et par Y.Wu [155].

1.4. Taux de diffusion des électrons:

Le taux de diffusion pour l'échantillon optimalement dopé a été déduit de σ_1/σ_N à 100 MHz et à 1,5 GHz en utilisant l'équation (35).

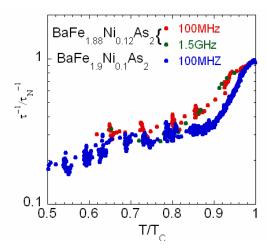


Figure 9: Variation du taux de diffusion des quasiparticules en fonction de la température et de la fréquence.

Dans la figure 9, on reporte la dépendance du taux de diffusion des quasiparticules en fonction de la température déduite de la conductivité σ_1 et de la fréquence de 100 MHz.

Interprétation:

- Nous constatons que le rapport $\frac{\tau^{-1}}{\tau_N^{-1}}$ relatif à la diffusion des électrons suit une dépendance T^2 , en accord avec l'équation (35).
- \succ Le temps de diffusion des électrons de conduction τ^{-1} dépend de la température et de la fréquence de mesure.
- \succ Le comportement à basse température de τ^{-1} confirme une supraconductivité non conventionnelle du composé BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.
- ▶ Une telle tendance de diminution du taux de diffusion des électrons dans le BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ en fonction de la température a été observée dans les mesures de A. Barannick et al ^[185] sur les cristaux dopés en Co le Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂. Nos résultats confirment une décroissance similaire du τ^{-1} en dessous de T_C dans les composés BaFe_{2-x}Ni_xAs₂, en accord avec les résultats de mesures de Y.Wu et al ^[157].

Discussion du cas optimalement dopé:

- Le composé BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ à dopage x= 0.01 est considéré, selon Zhou et al ^[37] Luo et al ^[196] et Y.Wu et al ^[157], le point quantum critique QCP caractérisé par la présence d'une transition structurale, par l'absence de la transition magnétique et par l'apparition de la transition supraconductrice à $T_C = 20 \text{ K}$.
- L'uniformité de nos résultats, dans la phase de transition supraconductrice n'indique aucune disparité dans ces composés à dopage optimal.
- Les résultats de nos mesures d'impédance de surface de monocristal BaFe_{1.9}Ni_{0.1}As₂ en fonction de la température présentent la même tendance que ceux d'impédance de surface, mesurés sur le même composé, avec une cavité résonante à 9,315 GHz (bande X) et avec un résonateur diélectrique quasi- optique QDR dans la bande Ka [157-192].

2. Echantillon surdopé :

2.1. Impédance de surface :

Nous avons suivi la même procédure dans nos mesures, décrite auparavant, pour l'échantillon surdopé dans l'intervalle de température de 5 à 30K.

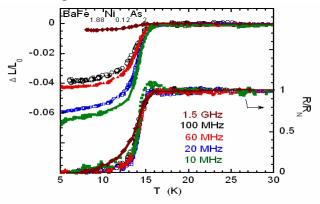


Figure 10: Dépendance de $\Delta L/L_0$ et de R/R_N en fonction de la température pour l'échantillon surdopé en RF et HF ^[162].

Dans la figure 10, on reporte la variation relative de l'inductance $\Delta L/L_0$ et de la résistance de l'échantillon surdopé en fonction de la température et en fonction de fréquence de 10 MHz à 1.5 GHz.

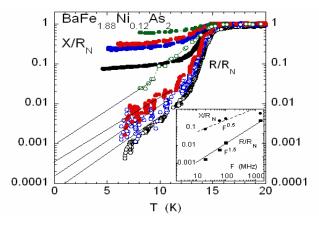


Figure 11 : Dépendance en température des composantes de l'impédance de surface X/R_N (symboles pleins) et R/R_N (symboles ouverts) du cristal surdopé BaFe_{1.88}Ni_{0.12}As₂.

Encadré: Dépendances en fréquence de X/R_N et R/R_N à T=10K.

Dans la figure 11, sont reportées les variations des parties imaginaires X_S/R_{SN} et les parties réelles R_S/R_{SN} de l'impédance de surface de l'échantillon surdopé, normalisées à la valeur de la résistance R_N à l'état normal (T=25K) en fonction de la température et en fonction de la fréquence de 10 MHz à 1.5 GHz.

Interprétation des résultats de mesures :

- Nous constatons que la largeur de la transition supraconductrice, observée dans les courbes de mesure de R_s , varie en fonction la fréquence ω . En effet, à 10 MHz, la largeur de R_s dans la transition supraconductrice est d'ordre ($\Delta T_c^{10~MHz} = 1.5~K$) et elle s'élargit au fur et à mesure qu'on augmente en fréquence.
- \triangleright En dessous de $T_c \sim 15$ K, la dépendance en fréquence de X/R_N observée est proportionnelle à $\omega^{0.5}$. Un telle tendance est attendue dans l'état supraconducteur.
- La variation R/R_N mesurée est proportionnelle à $\omega^{1.5}$. Il en résulte que la variation attendue $R \sim \omega^2$ a été vérifiée dans l'état supraconducteur pour l'échantillon de mesure, et ce en accord avec les résultats de Trunin [172] et sur les cuprates de Achkir [155].
- \triangleright Les valeurs de la résistance en dessous de T_c , dans les figures 14 et 15, sont plus grands que ceux rapportés par Bobowski ^[159] sur des échantillons de Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂.
- La réactance X est proportionnelle à la longueur de pénétration de London et à la fréquence " $X = \mu_0 \omega \lambda$ " dans l'état supraconducteur, et la résistance est proportionnelle à $R_N \sim \omega^{0.5}$ à l'état normal [172].
- Nos résultats de mesure en fréquences de la partie imaginaire sont compatibles avec les résultats de mesures sur les cuprates dans des cavités résonantes à différentes fréquences rapportés par Prozorov et al [49], Trunin et al [172] et Hardy et al [188].
- La largeur de transition supraconductrice mesurée précédemment à 2 MHz pour $R_s(T)$ et $X_s(T)$ est d'environ($\Delta T_c = 3K$). Cette largeur a été trouvée et confirmée par la mesure d'atténuation dans nos mesures ultrasonores détaillées dans le chapitre VI de cette thèse. La figure 15 du chapitre IV montre la cohérence de nos mesures électromagnétiques et ultrasonores sur l'échantillon surdopé, principalement au niveau de l'étendue de la largeur de la transition supraconductrice en dessous $T < T_c$.

2.2. Longueur de pénétration magnétique :

Les courbes relatives à la longueur de pénétration magnétique en fonction de la température T et de la fréquence ω sont représentées dans la figure 12.

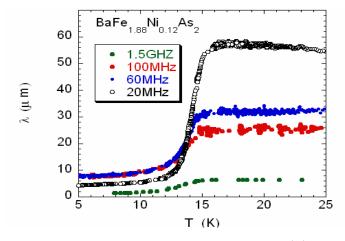


Figure 12: Dépendance de la longueur de pénétration de London $\lambda(T)$ en fonction de la température à différentes fréquences.

La variation relative de la longueur de pénétration de London $\Delta \lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ déduite de X/R_N en fonction de la température et de la fréquence est représentée dans la figure 13.

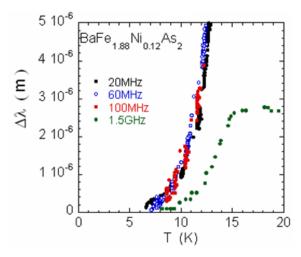


Figure 13: Variation de la longueur de pénétration de London λ en fonction de la température et de la fréquence.

Interprétations des résultats de mesures :

- $ightharpoonup À T > T_c/2$, nous observons que $\Delta \lambda$ suit une dépendance de la température $\sim T^2$ pour le cristal surdopé.
- $ightharpoonup \grave{A}$ très basses températures $T \ll T_c$, $\Delta \lambda$ suit une loi de puissance $(T/T_C)^n$ avec $n \sim 2-2.8$, qui est attribué à l'effet d'une diffusion avec une forte brisure de paires de Cooper, comme il a été rapporté par Prozorov et al [49].
- Notre résultat est compatible avec les résultats de mesures de la longueur de pénétration magnétique, obtenus par la technique de résonateur à diode de tunnel (TDR) sur des composés surdopés en Co le Ba($F_{e1-x}C_{ox)2}A_{s2}$ avec (x=0.074), rapportés par l'équipe de Prozorov ^[49]. Leurs résultats montrent une anisotropie de la longueur de pénétration magnétique et un comportement similaire en loi de puissance: $\lambda(T) = \lambda(0) + A(T/T_c)^2$ à des basses températures (inférieures à 0,3 Tc) avec A étant le seul paramètre libre du au niveau du dopage.
- Nos résultats sont aussi en accord avec les résultats de mesures de Bobowski et al [159], sur des composés dopés Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂, obtenus avec le TDR (Tunnel Diode Resonator). Ces résultats montrent que la longueur de pénétration magnétique étant une fonction de la température, et suit une proportionnalité similaire $\Delta\lambda(T) \propto T^n$ avec $n \sim 2-2.8$.
- ➤ Ils sont aussi compatibles avec les autres résultats de Bobowski et al [159] de mesures avec la technique AC suceptométrie à 12 KHz et par cavité résonnante à 940 MHz sur des échantillons ferromagnétiques dopés en potassium K et sur un échantillon dopé en cobalt Co.
- la longueur de pénétration magnétique dans ce supraconducteur est une grandeur caractéristique, elle ne dépend pas de la fréquence en dessous de T_c .

2.3. Conductivité complexe de l'échantillon surdopé :

Dans la figure 14, nous représentons les résultats des conductivités normalisées σ_1/σ_N et $\sigma_2/\sigma(0)$ en fonction de température dans la gamme de fréquences de 20 MHz à 1.5 GHz, avec σ_N -la valeur de la conductivité à l'état normal à 25 K.

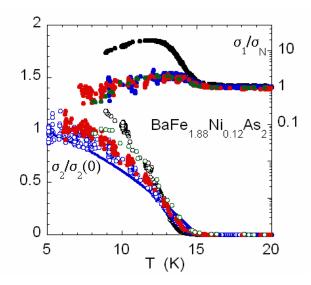


Figure 14: Variation de la conductivité normalisée réelle σ_1/σ_N (symboles pleins) et imaginaire $\sigma_2/\sigma_2(0)$ (symboles ouverts) en fonction de la température et de la fréquence ^[162].

Les dépendances de la conductivité normalisée réelle σ_1/σ_N et imaginaire $\sigma_2/\sigma_2(0)$ ont été représentées, en fonction de la température, respectivement par des symboles pleins et des symboles ouverts et en fonction de la fréquence par les couleurs : 20 MHz (noir), 60 MHz (bleu), 100 Mhz (rouge) et 1.5 GHz (vert). La ligne continue est calculée avec : $1 - (T/16)^2$.

Interprétation des résultats de conductivité :

- La conductivité $\sigma_2/\sigma_2(0)$ suit une dépendance de la température T^2 et elle est liée à la longueur de pénétration de London [172-185] par l'équation (36).
- La partie de la conductivité réelle σ_1 augmente avec la diminution de la température. En dessous de T_C , la conductivité présente un maximum d'environ 2 à 10 fois sa valeur normale, puis diminue ensuite pour des températures plus basses , en accord avec les mesures [185] sur des cristaux surdopés en Cobalt « BaFe_{2-x}Co_xAs₂ » mesurés à 40 GHz. Elle a été calculée après l'élimination des pertes résiduelles. Le principal effet de la soustraction de la perte résiduelle est de forcer la conductivité à se rapprocher de zéro à température nulle [189].
- La conductivité réelle σ_1 du cristal surdopé BaFe_{1.88}Ni_{0.12}As₂ montre un large pic à T_C à basse fréquence (20 MHz) en accord avec les mesures portées dans les articles ^[185]. L'amplitude du pic diminue quand on augmente en fréquence de 20 MHz à 1.5 GHz, comme dans les cuprates ^[172]. Mais, aucun pic n'a pu être observé en dessous de T_C dans la gamme de fréquences micro-onde 40 GHz de Barannick et al ^[185].
- En dessous de T_c , σ_1 commence à augmenter à partir de σ_N , en raison vraisemblablement des fluctuations supraconductrices, et présente un large maximum centré à T= 15 K. Ce maximum a été aussi observé dans YBaCuO. Il est à noter que ce maximum ne peut pas être un pic de cohérence (étant prédit par la théorie BSC) car il est trop éloigné de T_C . Il a été proposé dans les SHTC qu'un tel maximum sous T_C est associé à l'augmentation du taux de diffusion des quasiparticules [189]. La contribution des fluctuations supraconductrices à la conductivité et une possible variation du taux de relaxation inélastique des quasiparticules ont été examinées dans les cuprates [183] et dans les supraconducteurs organiques [155].
- \triangleright La conductivité imaginaire σ_2 varie dès qu'on atteint la température T_c , et augmente

rapidement de façon quasi linéaire.

2.4. Taux de diffusion des électrons de conduction :

Le taux de diffusions des électrons normaux est déduit de σ_1/σ_N à 100 MHz et à 1,5 GHz en utilisant l'équation (35).

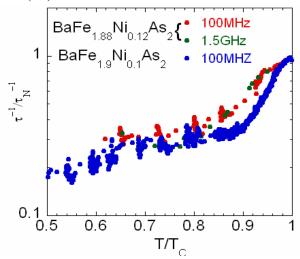


Figure 15: La dépendance en température du taux de diffusion de quasiparticules déduite de la conductivité σ_1 par Eq. (35).

Dans la figure 15, nous avons reporté la variation en température du taux de diffusion des électrons, déduit de la conductivité la conductivité σ_1 par Eq. (35) et normalisé à $\sigma_1(25K) = \sigma_N$ à 25 K.

Interprétations des résultats:

- ightharpoonup On constate que le rapport $\frac{\tau^{-1}}{\tau_N^{-1}}$ suit une dépendance T^2 , en accord avec l'équation (35).
- \triangleright Le temps de diffusion des électrons de conduction τ^{-1} dépend de la température et de la fréquence de mesures.
- ➤ Une telle tendance de diminution du taux de diffusion dans le BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ en fonction de la température a été observée dans les mesures de Barannick et al. ^[185] sur des composés dopés en Co « Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ ».

3. Echantillon sous-dopé:

3.1. Impédance de surface :

Nos premières mesures d'impédance de surface ont consisté à des mesures en radiofréquences RF de 10 à 100 MHz sur un échantillon propre sous-dopé #1 du composé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ à l'aide d'un analyseur d'impédance. Les résultats de mesures en radiofréquences pour l'échantillon sous-dopé le BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ sont portées sur la figure 16.

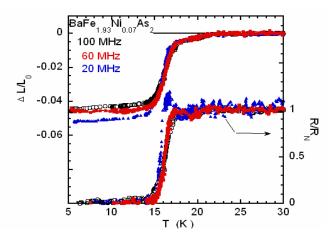


Figure 16: Dépendance de $\Delta L/L_0$ et de R/R_N en fonction de la température pour l'échantillon sous-dopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ [163].

La température de transition à l'état supraconducteur de l'échantillon sous-dopé^[2] le BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ est $T_c \sim 17~K$.

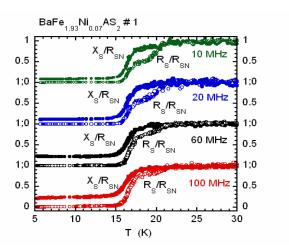


Figure 17: Dépendances en température de la résistance de surface R_S et de la réactance de surface X_S normalisées de l'échantillon #1 sous-dopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂.

Dans la figure 17, sont reportées les variations des parties imaginaires X_S/R_{SN} et les parties réelles R_S/R_{SN} de l'impédance de surface de l'échantillon propre #1, en fonction de la température et en fonction de fréquence de 10 MHz à 100 MHz.

Cas de l'échantillon sous-dopé massif :

Nos secondes mesures ont été effectuées sur un échantillon massif sous-dopé #2 BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ à des fréquences radio de 10, 20, 60 et 100 MHz et à la fréquence de 1.5 GHz, utilisant respectivement un analyseur d'impédance et un analyseur de réseau vectoriel. Ces résultats de mesures en radiofréquences et hautes fréquences sont portés sur les figures 18 et 19.

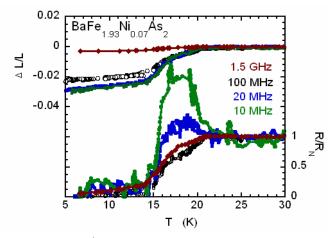


Figure 18: Dépendances de $\Delta L/L_0$ et de R/R_N en fonction de la température pour l'échantillon sous-dopé massif #2 BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ [163].

Les dépendances en température de la résistance de surface normalisée R_S/R_{SN} et de la réactance de surface normalisée X_S/R_{SN} de l'échantillon massif #2 sousdopé sont représentées dans la fig. 19 avec R_{SN} - la résistance de surface mesurée à l'état normal à 25 K.

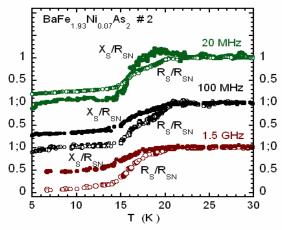


Figure 19: Dépendances en température de la résistance de surface R_S et de la réactance de surface X_S normalisées de l'échantillon #2 sousdopé.

Interprétation des résultats pour l'échantillon sous-dopé :

A l'issue de l'analyse des résultats de nos mesures sur les deux échantillons sous-dopés propre #1 et massif #2, nous avons déduit les interprétations suivantes:

- ➤ La largeur de la transition, détectée par les mesures des composantes d'impédance de surface R_s et X_s en radiofréquences et en hyperfréquences, se situe dans un intervalle plus étendu pour l'échantillon de 7%, d'environ 5 K [17 et 22K]. Cet élargissement est plus prononcé que dans les deux autres échantillons optimalement dopé et sur-dopé.
- Cette largeur de transition dans l'intervalle [17-22K], pourrait être expliquée par la coexistence ou la contribution de deux transitions successives que nous suggérons de scinder pour l'échantillon sous-dopé en : une transition Onde de densité de spin (ODS) dans l'intervalle de [17-22K] et une transition SC (Supraconductrice) dans l'intervalle de [4-17K].
- \triangleright La phase de transition supraconductrice SC pour les deux échantillons sous-dopé propre #1 et le massif #2, est précédée par une forte variation de R_s et de X_s dans

l'intervalle de températures [17-22 K], ce qui pourrait correspondre à la phase de transition ODS. Des pics de R_s et de X_s ont été observés dans l'échantillon massif #2, à des radiofréquences de 10 et 20 MHz, ce qui pourrait être expliqué par une résonance dans ce composé sous-dopé.

- Le pic observé au niveau de la résistance mesurée par la technique d'induction magnétique est en accord avec les mesures de résistivité rapportées par Zhou et al [197]. Ce pic a été aussi observé dans nos résultats de mesures obtenu sur ce même échantillon avec la technique du circuit LC résonant à 92 MHz [160].
- Pans ces composés sous-dopés, la largeur de la transition à l'état supraconducteur reste uniforme pour les fréquences de 10, 60,100 MHz et 1.5 GHz, d'environ($\Delta T_c^{10~MHz} = \Delta T_c^{60~MHz} = \Delta T_c^{100~MHz} = \Delta T_c^{1.5~GHz} \sim 2K$).
- \triangleright La dépendance en fréquence de X/R_N est proportionnelle à $\omega^{0.5}$ en dessous de $T_c \sim 17$ K, en accord avec la théorie.
- La variation R/R_N mesurée est proportionnelle à $\omega^{1.5}$ et elle est de 3 ordres de grandeur en dessous de la transition supraconductrice T_c . La résistance de surface de l'échantillon $R\sim\omega^2$ a été donc vérifiée.
- Les valeurs de la résistance à $T \ll T_c$ dans les figures. 1 et 2 sont plus grands que ceux rapportés par Barannick et al [185] et Bobowski et al [159] sur des échantillons de Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂.
- Nos résultats de mesure en fréquences de la partie imaginaire sont compatibles avec les résultats de mesures sur les cuprates dans des cavités résonantes à différentes fréquences de Trunin et al [172], Prozorov et al [49] et Hardy et al [188].
- ➤ Nos résultats sont en accord avec les résultats de mesures de Barannik et al. [185] sur le composé Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ à dopage (x=0.074).
- L'élargissement de la transition à la phase supraconductrice et les pics observés dans les mesures RF et HF pour $R_s(T)$ et $X_s(T)$ ont été également détectés et observés dans les mesures des atténuations ultrasonores sur l'échantillon massif sous-dopé, reportées dans les figures 5, 6 et 15 du chapitre IV [166].

3.2. Longueur de pénétration magnétique :

Les courbes relatives à la longueur de pénétration magnétique en fonction de la température T et de la fréquence sont représentées dans la figure 20.

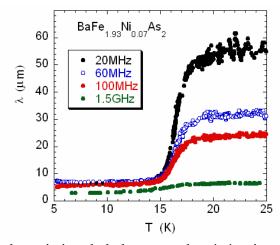


Figure 20: Dépendance de la variation de la longueur de pénétration de London λ en fonction de la température à différentes fréquences.

La variation relative de la longueur de pénétration de London $\Delta \lambda = \lambda(T) - \lambda(0)$ déduite de R/R_N en fonction de la température et de la fréquence est représentée dans la figure 21.

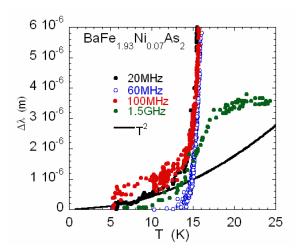


Figure 21: Dépendance de la variation de la longueur de pénétration de London $\Delta\lambda$ de la température en RF et HF fréquences.

Interprétation des résultats :

- $ightharpoonup \grave{A} T > T_c/2$, nous observons que $\Delta \lambda$ suit une dépendance de la température proportionnelle $\sim T^2$ pour le cristal sousdopé.
- $ightharpoonup À très basses températures <math>T \ll T_c$, $\Delta \lambda$ suit une loi de puissance $(T/T_C)^n$ avec $n \sim 2-2.8$, qui est attribué à l'effet d'une diffusion de forte brisure de paires de Cooper, comme il a été rapporté dans l'article [49].
- ➤ Dans l'intervalle [17, 21K], la variation de la longueur de pénétration est affectée par les fluctuations magnétiques précédemment décrites dans la mesure de réactance relative.
- Nos résultats de mesures sont en accord avec les résultats de Barannik et al [185] sur un échantillon sous dopé BaFe_{1.96}Ni_{0.04}As₂, à des fréquences X-band et K-band, dont la variation trouvée est $\Delta\lambda \propto T^n$ où n>2 en dessous de $T_c/3$.

3.3. Conductivité complexe de l'échantillon sousdopé :

Dans ce paragraphe, nous avons jugé nécessaire d'approfondir nos investigations et de porter une analyse de l'impédance de surface, de la conductivité et du taux de diffusion des électrons de conduction dans trois intervalles de mesure : au dessus de T_N et 100 K à l'état normal, entre T_N et 20 K à l'état antiferromagnétique et en dessous de 20 K à l'état supraconducteur.

Nous avons refait nos mesures d'impédance de surface sur deux échantillons sousdopés $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$ et $BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As_2$ en fonction de la température et dans la gamme de fréquences de 10 MHz à 1,5 GHz.

Nous rappelons que le sous dopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ présente une transition structurale à $T_S \sim 70$ K, une transition antiferromagnétique à $T_N \sim 50$ K et une transition supraconductrice à $T_C \sim 16$ K, mesurées par Yanchao et al ^[32].

Les dépendances en température des parties réelle R et imaginaires X de l'impédance de surface à l'état antiferromagnétique, des échantillons BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ et

BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As₂, ont été normalisées par rapport à la valeur de la résistance de l'échantillon mesurée R_{HT} à 100 K.

Les variations R et X pour l'échantillon $BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As_2$ ont été mesurées en fonction de la température aux fréquences de 10, 20, 100 MHz et 1.5 GHz et sont représentées dans la figure 22.

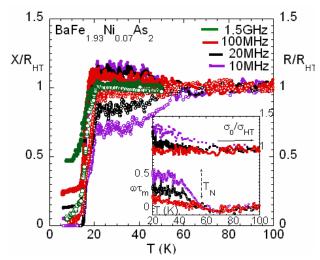


Figure 22: Variation des parties imaginaire X/R_{HT} (symboles pleins) et réelle R/R_{HT} (symboles ouverts) de l'impédance de surface dans le cristal sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ en fonction de la température et en fréquence. **Encadré:** Dépendance de la conductivité normalisée σ_0/σ_{HT} et de $\omega \tau_m$ en fonction de la température aux fréquences de 10, 20 et 100 MHz , avec ω =2 π f .

Les variations normalisées de *R* et *X* pour l'échantillon BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As₂ ont été mesurées aux radiofréquences de 20 et, 100 MHz et sont portées dans la figure 23.

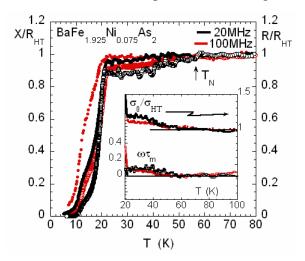


Figure 23 : Variation des parties imaginaire X/R_{HT} et réelle R/R_{HT} de l'impédance de surface dans les cristaux sousdopés BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As₂ en fonction de la température aux radiofréquences 20 MHz et 100 MHz. **Encadré:** Dépendance de la conductivité normalisée σ_0/σ_{HT} et de $\omega \tau_{\rm m}$ en fonction de la température aux fréquences de 20 et de 100MHz, avec ω =2 π f.

Au dessus de la température de Néel $(T_N < T \le 100 K)$:

À des températures élevées, au dessus de la température de transition magnétique T_N , l'impédance de surface est exprimée par :

$$Z = \sqrt{\frac{j\mu_0\omega}{\sigma_{HT}}}$$
 avec $X_{HT} = R_{HT} = \sqrt{\mu_0\rho_{dc} \,\omega/2}$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide et $\sigma_{HT}=1/\rho_{dc}$ est la conductivité dc à ~100 K, $\rho_{dc}\sim 0.2~m\Omega$. cm est la résistivité mesurée en courant continu ^[159].

Les deux parties de l'impédance de surface réelle R_{HT} et imaginaire X_{HT} sont égales en dessus de $T_N \sim 50 \ K \ (X_{HT} = R_{HT})$.

À 100K, la profondeur de la peau à 100 MHz est estimée à
$$\delta = \sqrt{2/\mu_0 \sigma_{HT} \omega} \sim 50 \ \mu m$$
.

En dessus de T_N dans l'état normal en haute température, le paramètre $\omega \tau_m$ est nul puisque les composantes réelle et imaginaire de l'impédance de surface sont égales $(X_{HT} = R_{HT})$.

\Leftrightarrow Etat antiferromagnétique dans l'intervalle de température $(T_C < T < T_N)$:

Dans l'état antiferromagnétique en dessous de la température de transition magnétique de Néel $T_N\sim 50$ K, il est observé que les parties réelle Ret imaginaire X de l'impédance de surface diffèrent l'une de l'autre et qu'il y'a une augmentation du temps de diffusion de relaxation τ_m induisant une variation de la conductivité complexe de type Drude suivant la relation :

$$\sigma = \sigma_0 / (1 + j\omega \tau_m) \tag{36}$$

où σ_0 - étant la conductivité en courant continu $^{[195]}$.

L'impédance de surface, dans l'état antiferromagnétique, est exprimée par :

$$Z = R + jX = \sqrt{\frac{j\mu_0(1+j\omega\tau_m)\omega}{\sigma_0}}$$
 (37)

Les paramètres $\omega \tau_m$ et σ_0/σ_{HT} sont déduits à partir des mesures des composantes normalisées de l'impédance de surface réelle R/R_{HT} et imaginaire X/R_{HT} , en utilisant les relations suivantes déduites de l'équation (37) :

$$\frac{\sigma_0}{\sigma_{HT}} = \frac{R_{HT}}{R} \frac{R_{HT}}{X} \tag{38}$$

et
$$\omega \tau_m = \frac{(X/R_{HT})^2 - (R/R_{HT})^2}{2 (R/R_{HT})(X/R_{HT})}$$
 (39)

Dans les encadrés des figures 25 et 26, nous avons représenté les résultats des paramètres $\omega \tau_m$ et σ_0/σ_{HT} en fonction de la température et à différentes radiofréquences .La conductivité σ_0 augmente légèrement avec la baisse de la température de T_N à 20K.

Dans l'état antiferromagnétique, il est constaté dans les encadrés des figures 25 et 26 que le temps de relaxation magnétique τ_m augmente avec la diminution de la température de T_N à 20 K.

Pour l'échantillon BaFe $_{1.93}$ Ni $_{0.07}$ As $_2$, les valeurs de la saturation du paramètre $\omega \tau_m$ à 10, 20 et 100 MHz ont été respectivement calculées à 0.12, 0.26 et 0.5 pour une température

autour de 20 Kelvins. Pour le deuxième échantillon BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As₂ de dopage de x=0.075, les valeurs de la saturation du paramètre $\omega \tau_m$ à 20 et 100 MHz ont été respectivement calculées à 0.12 et à 0.4 (Fig.23).

A une fréquence supérieure HF 1,5 GHz dans la phase antiferromagnétique, aucune différence entre *R* et *X* n'a pu être détectée par notre dispositif expérimental.

Etat supraconducteur dans l'intervalle de température $(T \le T_c)$:

En dessous de T_c dans l'état supraconducteur, on observe également que les parties réelle R et imaginaires X de l'impédance de surface diffèrent l'une de l'autre.

Les conductivités réelle σ_1 et imaginaire σ_2 ont été obtenues en inversant l'équation (19) et sont exprimées respectivement par les équations (23) et (24). Les valeurs normalisées des conductivités σ_1 et σ_2 par rapport à σ_{HT} à 20 K sont exprimées respectivement par les équations (23) et (24):

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_{HT}} = \frac{4 R. X / R_{HT}^2}{[(R/R_{HT})^2 + (X/R_{HT})^2]^2}$$

ET

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_{HT}} = 2 \frac{(X/R_{HT})^2 - (R/R_{HT})^2}{[(R/R_{HT})^2 + (X/R_{HT})^2]^2}$$

Où les conductivités σ_1 et σ_2 sont normalisées à la valeur $\sigma_1(20\text{K}) = \sigma_0(20\text{K}) \sim \sigma_{\text{HT}}$ à 20 K.

Les variations de σ_1/σ_{HT} et σ_2/σ_2 (0) sont représentées en fonction de la température à différentes fréquences dans la figure 24, avec $\sigma_2(0) = \sigma_2(T=0)$:

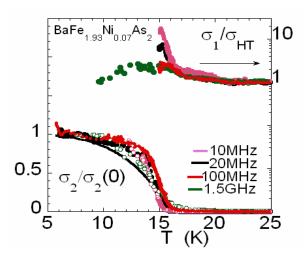


Figure 24 : Dépendances des conductivités réelle σ_1/σ_{HT} et imaginaire σ_2/σ_2 (0) en fonction de la température. La ligne continue σ_2/σ_2 (0) a été calculée avec [1-(T/16)⁴].

Interprétation des résultats:

- ➤ Une large variation des composantes réelle *R* et imaginaire *X* de l'impédance de surface est observée dans l'intervalle entre 16 K et 20 K pour l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂.Cette variation a été aussi confirmée dans les mesures du deuxième échantillon BaFe_{1.925}Ni_{0.075}As₂.
- La conductivité $\sigma_2/\sigma_2(0)$ suit une dépendance de la température $\sim T^2$ et elle est liée à la longueur de pénétration de London [172-185] par l'équation (36) :

$$\frac{\sigma_2}{\sigma_2(0)} \approx 1 - \left(\frac{T}{T_C}\right)^2 \text{ et } \frac{\sigma_2}{\sigma_2(0)} = \frac{\lambda(0)^2}{\lambda(T)^2}$$

- La conductivité réelle σ_1 augmente en dessous de $T_c \sim 16 \, K$ et a un maximum d'environ 2 à 10 fois sa valeur normale, puis diminue ensuite à des températures plus basses. Le maximum de σ_1 décroit au fur et à mesure qu'on augmente en fréquence de 10 MHz à 1.5 GHz.
- La forte augmentation de la conductivité σ_1 en dessous de T_c résulte de la diminution rapide du taux de diffusion des électrons de conduction qui dépend de la température, représenté dans la figure 25 [133-162].
- Nos résultats montrent une augmentation de σ_1 en dessous de T_c . Ils sont en accord avec les résultats de mesures sur des cristaux dopés en Cobalt BaFe_{2-x}Co_xAs₂ à 40 GHz, par Barannick et al [185]. Il a été reporté que cette forte hausse de la conductivité σ_1 résulte du taux de diffusion des électrons qui diminue rapidement aux températures plus basses.
- La conductivité réelle σ_1 du cristal sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂ montre un pic étroit à $T_c \sim 16 K$ à (20 MHz).
- Une dépendance lisse identique de la σ_1 en température présentant un maximum à proximité de T_c a été observée dans les deux cristaux soudopés, dans la gamme de fréquences de 10 à 100 MHz. Ce pic n'a pas été observé dans nos mesures à la fréquence supérieure de 1.5 GHz, ni dans celles à la fréquence micro-onde de 40 GHz par Barannick et al [185].
- Nos résultats confirment donc l'augmentation de σ_1 en fonction de la température et ce en accord avec ceux effectués sur les cuprates [186-193], sur le composé Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ [185] et sur le composé BaFe_{2-x}Co_xAs₂ [185].

3.4. Taux de diffusion des électrons :

Les variations en fonction de la température du taux de diffusion des électrons τ^{-1} caractérisant l'état supraconducteur et du taux de relaxation τ_m^{-1} caractérisant l'état antiferromagnétique ont été déduites de la figure 24 et sont représentées dans la figure 25.

Pour extraire le temps de diffusion de électrons τ , nous avons utilisé le modèle de deux fluides ^[182-184]. Le taux de diffusion des électrons τ^{-1} , dans l'état supraconducteur, est normalisé par rapport au taux de diffusion des électrons à la température de 16 K suivant la relation (35).

Dans l'intervalle de température 16 K à 20 K (figure 24), la conductivité imaginaire est nulle ($\sigma_2 \sim 0$). Tous les électrons sont normaux ($n_N \sim 1$). L'équation (35) pourrait être réduite à :

$$\frac{\tau^{-1}(T)}{\tau^{-1}(20K)} = \frac{\sigma_1^{-1}(T)}{\sigma_1^{-1}(20K)}$$

Le taux de diffusion $\tau^{-1}(20K)$ est égal au taux de relaxation à $\tau_m^{-1}(20K)$, déterminé avec l'équation (37).

Le taux de diffusion des électrons déduit de σ_1/σ_N aux différentes fréquences en utilisant l'équation (35) est représenté dans la figure 25. A la fréquence 1,5 GHz, le taux de diffusion a été arbitrairement déterminé à $\tau^{-1}(20K)\sim6.10^{10}s^{-1}$.

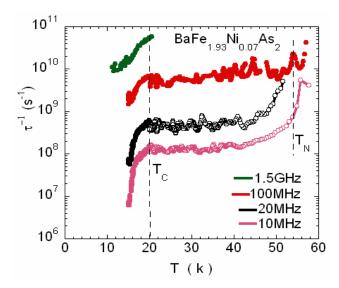


Figure 25: La dépendance en température du taux de diffusion des électrons de conduction pour l'échantillon sousdopé BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂.

Interprétations:

- ➤ Il est constaté que l'établissement de l'ordre antiferromagnétique à $T_N \sim 50 K$ donne lieu à une augmentation anormale du temps de diffusion des électrons τ^{-1} .
- L'augmentation de la conductivité réelle σ_1 dans l'état supraconducteur est attribuée à une diminution rapide du temps de diffusion des quasi-particules. Cette conductivité de type Drude rend X et R différente l'une de l'autre.
- \succ Le temps de relaxation τ_m^{-1} augmente qu'on augmente en fréquence. Il dépend de la température T et de la fréquence de mesures ω .
- \triangleright En dessous de T_N , nous observons une diminution très significative du taux de relaxation τ_m^{-1} , durant la phase antiferromagnétique, proportionnelle à \sim T.
- \triangleright Le temps de diffusion des électrons de conduction τ^{-1} dans la phase supraconductrice dépend aussi de la température et de la fréquence de mesure.
- \triangleright En dessus de T_c , nous observons une forte chute du taux de diffusion des électrons τ^{-1} proportionnel à $\sim T^3$. Ce résultat est aussi similaire aux résultats de Zhou et al ^[197] en dessous de T_c .
- ➤ Une telle diminution du taux de diffusion dans le BaFe_{2-x}Ni_xAs₂ en fonction de la température a été observée dans les cristaux dopés en Co le Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ par Barannick et al ^[185].
- Nos mesures en RF ont pu mettre en évidence la contribution et la coexistence de l'antiferromagnétisme à la supraconductivité et dans les échantillons sousdopés.

Discussion du cas sous-dopé:

La phase ODS est une phase métallique, qui est présente particulièrement dans les cas des échantillons sous-dopés 122, et elle est absente dans les cas de l'optimalement dopé et des surdopés. Les cuprates ne présentent pas le même diagramme de phase et possèdent une phase antiferromagnétique isolante de Mott dans l'état sous-dopé.

L'ordre magnétique est crée par les spins des atomes de fer, qui s'arrangent de façon antiferromagnétique le long de l'axe a et de l'axe c et ferromagnétiquement le long de l'axe b. Cet arrangement augmente la taille de la cellule unitaire dans le plan (a,b) car les axes a et

b deviennent inéquivalents. Dans la phase antiferromagnétique, les électrons de conduction sont organisés suivant un ordre antiferromagnétique formant une onde de densité de spin (ODS) colinéaire.

Areta Olariu et al ont sondé, par la technique spectrale de Mössbauer sur les atomes de ⁵⁷Fe, une onde de densité de spin incommensurable dont la forme de modulation se rapproche d'une sinusoïde qu'ils ont attribuée à des inhomogénéités magnétiques dans les composés sousdopés Ba(Fe_{1-x}Ni_x)₂As₂ ^[53].

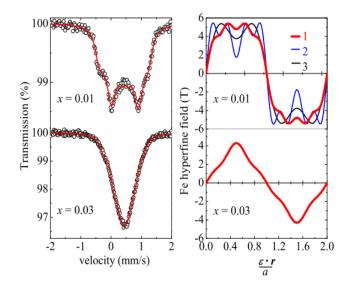


Figure 26. Gauche: Les courbes de spectres Mössbauer dans Ba(Fe_{1-x}Ni_x)₂As₂ obtenu à 4,2 K pour x = 0,01 et 0,03. **Droite:** Les modulations obtenues des spectres de la figure à gauche, avec des coefficients de Fourrier pour les composés sous-dopés x = 0,01 et 0,03. (d'après Olariu et al. [53]).

Dans la figure 26, sont reportées les courbes de spectres Mössbauer dans $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$ mesurées à 4,2 K pour x=0,01 et 0,03 par Olariu et al. ^[53]. Les lignes continues, dans la figure à droite, sont des lissages indiquant une modulation incommensurable de moments des atomes Fe. Les lignes rouges épaisses correspondent au lissage des spectres dans la figure à gauche.

Zhou a pu également détecter un champ magnétique interne H_{int} dans l'échantillon BaFe_{1.93}Ni_{0.07}As₂. Pour ce composé, il a été constaté que le moment magnétique $\langle S \rangle$, reporté dans la figure 25 au chapitre II, augmente continuellement en dessous de la transition magnétique T_N et se sature à T_c à une valeur de 0.24 μ_B , correspondant à un ordre de transition à la phase supraconductrice [37-197].

IV. Influence du dopage en Ni sur les mesures hyperfréquences :

Pour pouvoir étudier et comparer le comportement des échantillons à différents niveaux de dopage (sousdopé, optimalement dopé et le surdopé) en hyperfréquences, nous avons représenté les dépendances en fonction de la température les variations d'inductance et de la résistance de surface à des fréquences fixées respectivement en RF à 100 MHz et en haute fréquences à 1.5 GHz.

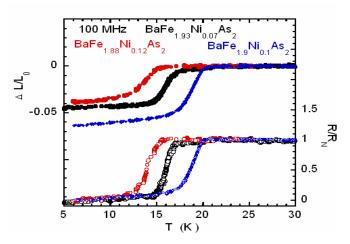


Figure 27 : Représentation de la résistance de surface et de l'inductance de surface en fonction du niveau dopage à la fréquence RF 100 MHz, pour les trois échantillons de mesures : sousdopé, optimalement dopé et surdopé.

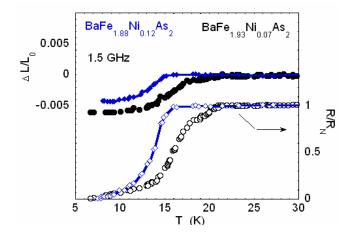


Figure 28: Variation de la résistance de surface et de l'inductance de surface en fonction du niveau dopage à la fréquence de HF 1.5 GHz, pour deux échantillons de mesures : sousdopé, et surdopé.

Dans les figures 27 et 28, nous avons reporté les dépendances en fonction de la température des variations d'inductance et de la résistance de surface à des fréquences fixées respectivement en RF à 100 MHz et en haute fréquences à 1.5 GHz.

Interprétations des résultats:

- Les trois composés développent, en dessous de T_c , une dépendance proportionnelle à la fréquence de la résistance de surface proportionnelle à la fréquence $\frac{R_S}{R}$ de $\omega^{1.5}$ et de la réactance $\frac{X_S}{R_N}$ de $\omega^{0.5}$.
- L'impédance de surface est plus sensible en RF et HF dans le cas du surdopé que dans les autres échantillons sousdopé et optimalement dopé, ce qui pourrait être lié à l'absence des transitions structurale et magnétique dans ce composé qui passe directement à la phase supraconductrice.
- L'impédance de surface est aussi sensible en RF et HF dans le cas du sousdopé, pouvant être lié à la présence de l'état antiferromagnétique et à l'onde de densité de spin (ODS) dans ce composé. Cette dernière coexiste avec la phase supraconductrice.

- ➤ Pour l'optimalement dopé, l'impédance de surface est moins sensible en RF et HF, et cela peut être expliqué par l'absence du magnétisme dans ce composé ^[197]. Il correspond au niveau de dopage point critique quantique (QCP) séparant les cas des deux systèmes sousdopé et surdopé.
- Ces résultats sont en accord avec les résultats de mesures expérimentales effectués par Achkir et al [157] et avec ceux en hyperfréquences sur les bismuths et les cuprates, à 14.4 GHz, 24.6 GHz et 34.7 GHz, réalisées par Trunin et al [194].

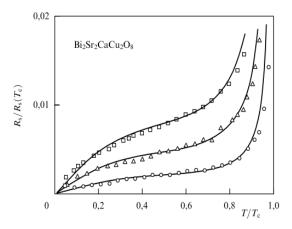


Figure 29: Variation en fonction de la température de la résistance de surface de Bi₂Sr₂CaCu₂O₈.

Dans la figure 29, est reporté le résultat de mesure de la variation de la résistance de surface du monocristal $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ en fonction de la température et en fonction de la fréquence par : cercles-14.4 GHz, triangles- 24.6 GHz et carrés-34.7 GHz [194].

CONCLUSION:

Avec les procédés basés sur l'induction magnétique, nous avons réalisé des mesures d'impédance de surface en radiofréquences et haute fréquences, à l'issue desquels nous avons pu déduire et observer les variations relatives des paramètres de conduction électrique à la transition supraconductrice dans les trois échantillons : optimalement dopés, surdopés ,et sousdopés [160-162-163].

Nos résultats de mesures en RF et HF ont permis de décliner et de détecter, en outre, le comportement des cristaux sousdopés aussi bien dans la phase antiferromagnétique que dans celle de la phase supraconductrice ^[163].

En effet, nous avons pu observer dans les cas des échantillons sousdopés une diminution significative du taux de relaxation magnétique en dessous de T_N dans la phase antiferromagnétique et une forte baisse du taux de diffusion de quasi-particules en dessous de T_c dans la phase supraconductrice. Ce résultat est similaire à la dépendance à la température en 1/T, mesurée par RMN par Zhou et al [37-197].

La transition supraconductrice est très élargie dans l'intervalle de température de 16-20 K pour les cristaux sousdopés, et ce différemment des cristaux optimalement dopés et surdopés $^{[163]}$. Ce résultat est également en accord avec la large anomalie élastique observée dans nos mesures ultrasons en mode C_{33} avec les mêmes cristaux, caractérisée par un ramollissement dans leur structure (softening) dans la phase antiferromagnétique $^{[166]}$.

Une inhomogénéité chimique des échantillons sous dopés peut expliquer l'élargissement de la transition supraconductrice. Il est à remarquer que la transition supraconductrice commence à 20K pour tous les échantillons sous dopé qui ont été mesurés. Ce comportement pourrait être attribué à la présence de l'ordre magnétique et de l'onde de densité de spin ODS caractérisant les supraconducteurs sousdopés.

Yoshizawa et al ont attribué ce comportement à des effets purement électroniques affectant fortement la structure des cristaux sousdopés BaFe₂As₂ dopés en Co et induisant des instabilités structurelles près de la transition supraconductrice ^[169].

Notre résultat constitue une preuve de la coexistence de l'antiferromagnétisme et de la supraconductivité dans les composés sousdopés BaFe_{2-x}Ni_xAs₂.

Nos mesures d'impédance de surface révèlent une différence de comportements dans les échantillons sousdopés, surdopés et optimalement dopés. Les anisotropies structurales, magnétiques et supraconductrices sont fortement dépendantes dans chaque échantillon, et diffèrent dans les trois cas étudiés.

À ce jour, le mécanisme de la supraconductivité dans les pnictures de fer demeure inexpliqué, bien que des discussions sur les fluctuations magnétiques [77-104] et sur les fluctuations structurales et orbitales ont été proposées [168-171].

CONCLUSION GENERALE:

L'exploration des propriétés caractéristiques des supraconducteurs en radio et hyperfréquences est considérée comme l'une des techniques performantes d'investigation scientifique dans le phénomène excitant de la supraconductivité. Cette méthode offre la possibilité de mesurer la longueur de pénétration magnétique, propriété fondamentale des supraconducteurs, à travers des mesures de l'impédance de surface de supraconducteurs en fonction de la température. Ce qui permet d'obtenir des renseignements sur la nature des quasi-particules dans l'état supraconducteur, leur dispersion, la densité des états et sur le mécanisme d'appariement supraconducteur dans ces matériaux.

Dans ce travail, nous avons contribué à répondre, à travers notre étude en radio et hyperfréquences, à un certain nombre de questions concernant le comportement des échantillons de la troisième famille des pnictures BaFe₂As₂.

Dans notre étude, nous avons opté pour deux choix, à savoir :

- Les échantillons de mesures,
- Les techniques de mesures radio et hyperfréquences.

Notre premier choix n'était pas arbitraire. Il a porté sur trois échantillons dopés en Ni le $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$, faisant partie de la $3^{\text{\'eme}}$ famille la plus étudiée des pnictures $BaFe_2As_2$ et ce pour ses qualités prometteuses. Ces échantillons présentent différents niveaux de concentrations (x):7% (sous-dopés), 10% (optimalement dopés) et 12% (sur-dopés), une différence dans les transitions de phases ainsi qu'une supraconductivité anisotrope .Ceci vise donc à balayer et à explorer tout le diagramme de phases de ce composé.

Concernant les techniques de mesures, nous avons cherché à réaliser nos mesures par les deux approches suivantes :

- la technique de mesure en ultrasons à des radiofréquences de 20 à 60 MHz,
- la technique de mesure par induction magnétique en réflexion.

La première a permis de mesurer en ultrasons, en modes longitudinal et transversal, la vitesse de propagation des ondes, les constantes d'élasticité et d'en déduire l'atténuation ultrasonore de même que le gap supraconducteur.

La seconde a été réalisée avec deux montages : un montage par induction magnétique à base d'un circuit LC résonant à 92 MHz $^{[160]}$ et un second par le même principe d'induction avec un analyseur d'impédance pour les mesures RF et un analyseur de réseau pour les mesures HF $^{[162-163]}$.

Notre méthodologie de mesure par induction magnétique en RF et en HF a consisté à mesurer, à l'instar des autres dispositifs de mesures HF, les variations relatives de la résistance de surface et d'inductance de l'échantillon. Ceci mène à extraire les composantes réelle et imaginaire de l'impédance de surface, celles de la conductivité complexe pour en déduire la variation relative de la longueur de pénétration magnétique ainsi que le taux de relaxation des électrons de conduction.

Le modèle, que nous avons appliqué dans cette méthodologie, correspond à celui du « Modèle équivalent de transformateur idéal», qui a l'avantage de modéliser la bobine de

mesure au primaire et l'échantillon au secondaire, et ce en s'inspirant des approches de Y.Lebihan et A.C. Bódi [164-165].

Nos résultats de mesures ultrasonores montrent un ramollissement dans la structure des composés à base de fer BaFe_{2-x}Ni_xAs₂. Ils sont similaires aux résultats obtenus, par la même technique de mesures sur des échantillons dopés en Co le Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂, par le groupe japonais de Yoshizawa^[169-170-171]. Une forte anomalie a été constatée dans les mesures d'élasticité ultrasonore dans les deux composés sousdopés et surdopés. Ce qui a nécessité un agrandissement de la zone d'anomalie, des mesures complémentaires telles que la chaleur spécifique et un calcul théorique du gap supraconducteur.

Le groupe japonais de Yoshizawa a attribué le comportement observé, dans les mesures ultrasonores, à des effets purement électroniques affectant fortement la structure des cristaux sousdopés BaFe₂As₂ dopés en Co et induisant des instabilités structurales avant la transition à la phase supraconductrice.

Nos mesures en RF et HF par induction magnétique avec des analyseurs d'impédance et de réseau ont abouti à des observations inédites à ce jour. En effet, elles ont permis de décliner et de détecter le comportement des cristaux sousdopés aussi bien dans la phase antiferromagnétique que dans celle de la phase supraconductrice.

Dans nos mesures, la variation de la longueur de pénétration dans ces échantillons à base de fer suit une dépendance thermique quadratique ($\sim T^2$) à basse température. Nous avons pu observer également dans les cas des échantillons sousdopés une diminution significative du taux de relaxation magnétique en dessous de T_N dans la phase antiferromagnétique et une forte baisse du taux de diffusion de quasi-particules en dessous de T_C dans la phase supraconductrice.

Nos résultats par induction magnétique en RF et HF joignent ceux issus des mesures par ultrasons pour confirmer et mettre en évidence la coexistence et la compétition d'une phase magnétique caractérisée par une onde de densité de spin ODS avec celle de la supraconductivité particulièrement pour les composés sousdopés. Ce constat semble être une caractéristique générique dans ce type des matériaux.

Nous avons également engagé un benchmark de nos résultats avec d'autres résultats issus de mesures par d'autres techniques différentes afin d'aboutir à un fil conducteur permettant la compréhension de l'émergence du mécanisme de la supraconductivité dans les pnictures de fer. D'ailleurs, le but est le même et unique : comprendre le mécanisme pour pouvoir hausser la supraconductivité à la température ambiante.

Nos mesures d'impédance de surface ont révélé une différence de comportement dans les trois cas d'échantillons étudiés. Des anisotropies structurales, magnétiques et supraconductrices sont présentes, fortement interdépendantes et différentes dans les trois cas étudiés.

Dans l'ensemble, le mécanisme de la supraconductivité dans les pnictures de fer demeure à ce jour inexpliqué bien que des discussions et des propositions sur les fluctuations magnétiques et sur les fluctuations structurales et orbitales aient été effectuées.

Avant de clore la présente thèse, il serait utile d'envisager quelques perspectives relatives à des travaux futurs sur les supraconducteurs à base de fer. En effet, des mesures en

RF et en HF, en soumettant l'échantillon à un fort champ magnétique continu, pourraient aboutir à des observations avantageuses concernant le comportement et l'émergence de la supraconductivité dans ces matériaux.

Par ailleurs, il serait intéressant d'adopter les techniques de mesures précédentes, notamment par induction magnétique, sur des échantillons cuprates pour aboutir à la compréhension des supraconducteurs à haute température critique « SHTc » d'une manière générale.

Enfin, il s'avère nécessaire de relier les résultats expérimentaux obtenus avec les différentes techniques de mesures, en vue de conjuguer les efforts de recherche et d'unifier les concepts pour parvenir à l'éclaircissement du phénomène de la supraconductivité.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES:

- [1] H. Kamerlingh Onnes, Van Wetenschappen (Amsterdam) 14 (1911) 113-818.
- [2] W. Meissener and R. Ochsenfeld, Nature Wissenschasten 21 (1933) 787.
- [3] C. J. Gorter et H. G. Casimir, Phys. Z. 35, 963 (1934); Z. Techn. Phys. 15, 539 (1934).
- [4] F. and H. London, Proc. Roy. Soc. (London), A149 (1935) 71.
- [5] O.L. Ginzburg, L. D. Landau, Zn. Eksperim. Teor. Fiz., 20 (1950) 1064.
- [6] J.N. Rjabinin and L.V. Schubnikov, Phys. Z.Sowj., 6 (1935) 605-607.
- [7] A.A. Abricosov, Sov. Phys. JETP, 5 (1957) 1174.
- [8] J. Bardeen, L.N. Cooper, J.R. Schreiffer, Phys. Rev., 108 (1957) 1175.
- [9] B. D. Josephson, Phys. Lett. 1 (1962) 251.
- [10] J.G. Bednorz, K. A. Muller, Z. Phys. B, 64 (1986) 189.
- [11] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani and J. Akimitsu: Nature 410, 63 (2001).
- [12] H. Hosono. J. Phys. Soc. Jpn. The Physical Society of Japan. (2008).
- [13] C. Kittel, «physique de l'état solide », pp. 357-360, Ed. Dunod, Paris, (1983).
- [14] N.E. Phillips, Phys. Rev., 134 (1964) A385-A391.
- [15] M. Mahtali. Thèse de doctorat en science. Université Mentauri-Constantine. Date de soutenance (2007).
- [16] P. Dienier. Thèse de doctorat. Université Josef Fourier. Grenoble I. Date de soutenance 8 décembre 2008.
- [17] J. Gaudet .Mémoire présenté grade de Maître es sciences (M.Sc).université Sherbrooke. Février 2014.
- [18] I. Giaever. Phys. Rev. Lett.5,147–148(1960).
- [19] J. Bardeen, L. Cooper et J Robert Schrieffer. Physical Review108(5), 1175 (1957).
- [20] L.Cooper. Physical Review104(4), 1189 (1956).
- [21] N. E. Bickers, D. J. Scalapino et S. R. White. Phys. Rev. Lett.62,961–964(1989).
- [22] Y. Kamihara, T. Watanabe, M; Hirano, and H. Hosono. *Journal of the American Chemical Society*, 130(11): 3296–3297. (2008).
- [23] R. Zhi-An, L.Wei, Y. Jie, Y. Wei, S. Xiao-Li, C. Zheng, C. Can, X. L. Dong, L. Sun, F. Zhou, and Z.X. Zhao.. Chinese Physics Letters, 25(6):2215. (2008).
- [24] Department of Energy (Transferred by <u>RJB1</u>/Originally uploaded by <u>Materialscientist</u>) http://www.ccas-web.org/superconductivity/#image1
- [25] J. Paglione, and R.L. Greene, Nature Physics. (2010).
- [26] K. Ishida, Y. Nakai, and H. Hosono et al en 2009. A Progress Report. *Journal of the Physical Society of Japan*, 78:062001. (2009)
- [27] D. C. Johnston, Advances in Physics 59, 803-1061. (2010).
- [28] M.D. Lumsden and A.D. Christianson. Journal of Physics: Condensed Matter, 22:203203. (2010).
- [29] Image courtesy of Department of Energy Basic Energy Sciences.
- [30] Brouet, M. Marsi, B. Mansart, A. Nicolaou, A. Taleb-Ibrahimi, P. Le Fèvre, F. Bertran, F.Rullier-Albenque, A. Forget & D. Colson, Phys. Rev. B 80, 165115.(2009).
- [31] L. Chauvière. Thèse. Université Paris Diderot. Date de soutenance 27octobre 2011.
- [32] Y. Chen, Xingye Lu, Meng Wang, Huiqian Luo and Shiliang Li. Superconducting. Sci. Technol. 24 (2011) 065004-065008.).
- [33] Sadovskii M. V. (2008). Physics-Uspekhi. 51, 1201–1227.
- [34] J. Dai, Q. Si, J.-X. Zhu, and E. Abrahams . Proceedings of the *National Academy of Sciences*, 106 : 41180. (2009).
- [35] L. Chauvière, Y. Gallais, M. Cazayous, M.A. Méasson, A. Sacuto, D. Colson & A. Forget, Phys. Rev. 84, 104508.(2011).
- [36] H. Luo, Z. Yamani, Y. Chen, X. Lu, M. Wang, S. Li, T. A. Maier, S. Danilkin, D. T. Adroja, and P. Dai. arXiv:1206.0653v2 [cond-mat.supr-con].11 Jul. (2012).
- [37] R. Zhou, Z. Li, J. Yang, D.L. Sun, C.T. Lin & Guo-qing Zheng. *Nature Communications* 4:2265 DOI:10.1038 /n. comms 3265/www.nature.com/nature communications. (15 Aug 2013).
- [38] M. Rotter, M. Pangerl, M. Tegel & Dirk Johrendt, Angew. Chem. Int. 47, 7949-7952.(2008).
- [39] A. S. Sefat, R. Jin, M. A. McGuire., B. C. Sales, D. J. Singh & D. Mandrus. *Phys. Rev. Lett.* 101, 117004. (2008).

- [40] N. Ni, A. Thaler, J. Q. Yan, A. Kracher, E. Colombier, S. L. Bud'ko & P. C. Canfield, *Phys. Rev.* B 82, 024519.(2010).
- [41] S. Jiang, H. Xing, G. Xuan, C. Wang, Z. Ren, C. Feng, J. Dai, Z. Xu & G. Cao, J. *Phys. Condens. Matter* 21 382203 .(2009).
- [42] S. Sharma, A. Bharathi, S. Chandra, V. Raghavendra Reddy, S. Paulraj, A. T. Satya, V. S. Sastry, A. Gupta & C. S. Sundar, *Phys. Rev. B* 81, 174512. (2010).
- [43] Y. Laplace. Thèse de doctorat. Université Paris XI Orsay. Date de soutenance le 6 décembre (2011).
- [44] V. Zinth, T. Dellmann, H.-H. Klauss & D. Johrendt . *Angewandte Chemie International Edition*. 50, 7919–7923. (2011).
- [45] L. Boeri, O. V. Dolgov, and A. A. Golubov. Physical Review Letters, 101:026403. (2008).
- [46] I. I. Mazin, D. J. Singh, M. D. Johannes & M. H. Du, Phys. Rev. Lett. 101, 057003. (2008).
- [47] B. Mansart, D. Boschetto, A. Savoia, F. Rullier-Albenque, F. Bouquet, E. Papalazarou, A.Forget, D. Colson, A. Rousse & M. Marsi, *Phys. Rev. B* 82, 024513 .(2010).
- [48] C. Liu, A. D. Palczewski, R. S. Dhaka, T. Kondo, R. M. Fernandes, E. D. Mun, H.Hodovanets, A. N. Thaler, J. Schmalian, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield & A. Kaminski, *Phys. Rev. B* 84, 020509(R) (2011).
- [49] R. Prozorov and V G Kogan. Rep. Prog. Phys. 74 124505. (2011).
- [50] F.L. Ning, K. Ahilan, T. Imai, A. S. Sefat, R. Jin, M. A. McGuire, B. C. Sales, D. Mandrus, P. Cheng, B. Shen & H.-H. Wen, *Phys. Rev. Lett.* 104, 037001.(2010).
- [51] H. Ding., L. Zhao, H. Liu, W. Zhang, J. Meng, X. Jia, G. Liu, X. Dong, G. F. Chen, J. L. Luo, N. L. Wang, W. Lu, G. Wang, Y. Zhou, Y. Zhu, X. Wang, Z. Zhao, Z. Xu, C. Chen, and X. J. Zhou, arXiv:0807.0398; Europhys. Lett. 83, 47001 (2008);
- [52] F. Rullier-Albenque, D. Colson, A. Forget & H. Alloul, Phys. Rev. Lett. 103, 057001. (2009).
- [53] A. Olariu, P. Bonville, F. Rullier-Albenque, D. Colson & A. Forget, arXiv:1106.1332v1.(2011).
- [54] P.A. Lee, N. Nagaosa and X.-G Wen., Rev. Mod. Phys. 78, 17–85. (2006).
- [55] B.Mansart .Thèse.Université Paris Sud XI. Date de soutenance 1octobre 2010 .
- [56] M. Han, Q. Yin, W. Pickett, and S. Savrasov. Physical Review Letters, 102:107003. (2009).
- [57] D. J. Singh, and M.-H. Du. Physical review Letters, 100:237003.(2008).
- [58] J. Zhang, R. Sknepnek, and J. schmalian. Physical Review B, 82:134527. (2010).
- [59] R. H. Liu, T. Wu, G. Wu, H. Chen, X. F. Wang, Y. L. Xie, J. J. Ying, Y. J. Yan, Q.J Li, B.C. Shi, W.S. Chu, Z.Y. Wu, and X.H. Chen.. *Nature*, 459:64.(2009).
- [60] Y. Texier, Y. Laplace, P. Mendels, J. T. Park, Friemel G., Sun D. L., Inosov D. S., Lin C. T. & Bobroff J. EPL (*Europhysics Letters*). 99, 17002. (2012).
- [61] D.S. Inosov, J.TPark, P. Bourges, D. L. Sun, Y. Sidis, A. Schneidewind, K. Hradil, D. Haug, C. T. Lin, B. keimer, and V. Hinkov.. *Nature Physics*, 6/178.(2009).
- [62] S. E. Sebastian, J. Gillett, N. Harrison, P. H. C. Lau, D. JSingh, Mielke C. H. & Lonzarich G. G. *Journal of Physics: Condensed Matter*. 20, 422203. (2008).
- [63] J.G. Analytis, R.D. McDonald, J.-H. Chu, S. C. Riggs, A. F. Bangura, C. Kucharczyk, M. Johannes, and I. R. Fisher.. *Physical Review B*, 80:064507.(2009).
- [64] M. M. Qazilbash, J. J. Hamlin, R. E. Baumbach, Lijun Zhang, D. J. Singh, M. B. Maple & D. N. Basov, *Nature Physics* 5, 647 650 .(2009).
- [65] Z.P. Yin, K. Haule and G. Kotliar, Nature Materials 10, 932–935.(2011).
- [66] D. Griffiths, 7 Vol. Electrodynamics, Alison Reeves, Introduction to Electrodynamics .(1981).
- [67] F. Ma, Z.-Y. Lu & T. Xiang, Front. Phys. China, 5(2), 150. (2010).
- [68] J. H. Chu., J. G. Analytis, C. Kucharczyk & I. R. Fisher, *Phys. Rev. B* 79, 014506. (2009).
- [69] C. De La Cruz, Q. Huang, J. W. Lynn, L. Jiying, W. Ratcliff, J.L. Zarestky, H.A. Mook, G.F. Chen, J.L. Luo, N.L. Wang & D. Pengcheng, *Nature* 453 7197 899-902. (2008).
- [70] M. G. Kim, A. Kreyssig, Y. B. Lee, J. W. Kim, D. K. Pratt, A. Thaler, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, B. N. Harmon, R. J. M. G.Mc Queney & A. I. Goldman, *Phys. Rev. B* 82, 180412(R). (2010).
- [71] D. K. Pratt, M. G. Kim, A. Kreyssig, Y. B. Lee, G. S. Tucker, A. Thaler, W. Tian, J. L. Zarestky, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, B. N. Harmon, A. I. Goldman & R. J. McQueene, *Phys. Rev. Lett.* 106, 257001 (2011).
- [72] Kitagawa K., N. Katayama, K. Ohgushi, M. Yoshida & M. Takigawa, J. Phys. Soc. Jpn. 77 114709 .(2008).
- [73] P. Richard K. Nakayama, T. Sato, M. Neupane, Y.-M. Xu, J. H. Bowen, G. F. Chen, J. L. LUO, N. L. Wang, X. Dai, Z. Fang, H. Ding, and Takahashi. *Physical Review Letters*, 104: 137001. (2010).

- [74] A. Jesche, N. Caroca-Canales, H. Rosner, H. Borrmann, A. Ormeci, D. Kasinathan, H. H. Klauss, H. Luetkens, R. Khasanov & A. Amato. *Physical Review B*. 78, 180504. (2008).
- [75] T. Yildrim. Physical Review Letters, 101:057010. (2008).
- [76] D. J Singh, & M.-H. Du, Phys. Rev. Lett. 100, 237003. (2008).
- [77] A. Cano, M. Civelli, I. Eremin, and I. Paul.. Physical Review B, 82:020408. (2010).
- [78] Q. Si & E. Abrahams, Phys. Rev. Lett. 101, 076401.(2008).
- [79] L. De Medici, S. R. Hassan & M. Capone, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 22, 53. (2009).
- [80] P. Werner, M. Casula, T. Miyake, F. Aryasetiawan, A. J. Millis & S. Biermann S. *Nat. Phys. advance online publication*. (2012).
- [81] K. Haule & G. Kotliar, New J. Phys. 11 025021. (2009).
- [82] E. Bascones, B. Valenzuela & M. J. Calderón. Phys. Rev. B. 86, 174508. (2012).
- [83] P. Bonville, F. Rullier-Albenque, D. Colson & A. Forget, Euro. Phys. Lett. 89 67008. (2010).
- [84] C. Lester, J. H. Chu, J. G. Analytis, S. C. Capelli, A. S. Erickson, C. L. Condron, M. F. Toney, I. R. Fisher & S. M. Hayden, *Phys. Rev. B* 79, 144523. (2009).
- [85] M. Kruger, Fischer, C. Renner, S. Ono & Y. Ando, Phys. Rev. Lett. 86, 4911-4914. (2001).
- [86] J. Wu, A. Castro Neto. Physical Review Letters, 101:126401. (2008).
- [87] K.-W. Lee & W. E. Pickett, Euro. Phys. Lett. 89 57008 .(2010).
- [88] F. Chen, M. Xu, Q. Q. Ge, Y. Zhang, Z. R. Ye, L. X.Yang, J. Jiang, B. P. Xie, R. C. Chen, M. Zhang, A.F. Wang, X. H. Chen, D. W. Shen, J. P. Hu & D. L. Feng. *Phys. Rev.* 1, 021020. (2011).
- [89] R.H. Liu, T. Wu, G.Wu, H.Chen, X.F. Wang, Y.L. Xie, J.J. Ying, Y.J. Yan, Q.L. Li, B.C. Shi, W.S. Chu, Z.Y. Wu and X.H. Chen. *Nature*, 459: 64. (2009).
- [90] T. Li. Journal of Physics: Condensed Matter, 20:425203. (2008).
- [91] S. Raghu, X-L. Qi, C-X. Liu, D. J. Scalapino, and S-C. Zhang. Phys. Rev. B, 77(22):220503. (2008).
- [92] Y. Ran, F. Wang, H. Zhai, A. Vishwanath, and D-H. Lee.. Phys. Rev. B,79(1):014505, Jan 2009.
- [93] J. Bardeen, L.N. Cooper & J.R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175–1204. (1957).
- [94] P.J. Hirschfeld, M.M. Korshunov, and I. Mazin. Reports on Progress in Physics, 74:124508. (2011).
- [95] C. C. Tseui and J. R. Kirtley.Pairing symmetry in cuprate superconductors. *Review of Modern Physics*, 72 :969. (2000).
- [96] Y.Yin,M. Zech, T. Williams, X.F. Wang, G. Wu, X. Chen and Jenny Hoffman. 2009.physics.harvard.edu/talks/
- [97] Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, S. Kasahar). a, T. Shibauchi, Y. Matsuda & T. Terashima, *Phys. Rev. B* 81, 020503(R). (2010).
- [98] Y. Nakai, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano & H. Hosono. New J. Phys. 11, 045004. (2009).
- [99] H. Shishido, A.F. Bangura, A.I. Coldea, S. Tonegawa, K. Hashimoto, S. Kasahara, P.M.C. Rourke, H. Ikeda, T. Terashima, R. Settai, Y. Onuki, D. Vignolles, C. Proust, B. Vignolle, A. McCollam, Y. Matsuda, T. Shibauchi, and A. Carrington, A.. *Physical Review letters*, 104: 057008. (2010).
- [100] A. D. Christianson, E. A. Goremychkin, R. Osborn, S. Rosenkranz, M. D. Lumsden, C. D. Malliakas, I. S. Todorov, H. Claus, D. Y. Chung, M. G. Kanatzidis, R. I. Bewley & T. Guidi, *Nature* 456, 930-932. (2008).
- [101] H. Ding, P. Richard, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Arakane, Y. Sekiba, A. Takayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, Z. Wang, X. Dai, Z. Fang, G. F. Chen, J. L. Luo & N. L. Wang, Euro. *Phys. Lett.* 83 47001. (2008).
- [102] K. Terashima, Y. Sekiba, J.H. Bowen, K. Nakayama, T. Kawahara, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, L. J., Li, G. H., Cao, Z.-A., Xu, and T. Takahashi.. Proceedings 2009 of the National Academy of Sciences of the United States of Amarica, 106:7330. (2009).
- [103] J. Zhao, Q. Huang, C. de la Cruz, S. Li, J.W. Lynn, Y. Chen, M. A. Green, C. F. Chen, G. Li, J. L. Luo, N. L. Wang, and P. Dai.. *Nature materials*, 7:953. (2008).
- [104] R. M. Fernandes, D. K. Pratt, W. Tian, J. Zarestky, A. Kreyssig, S. Nandi, M. G. Kim, A.Thaler, N. Ni, P.C. Canfield, R. J. McQueney, J. Schmalian & A. I. Goldman, *Phys. Rev. B* 81, 140501(R).(2010).
- [105] L. Gao, Y. Y. Xue, F. Chen, Q. Xiong, R. L. Meng, D. Ramirez, C. W. Chu, J. H. Eggert & H. K. Mao, Phys. Rev. B 50, 4260–4263.(1994).
- [106] Z. Li, D. L. Sun, C. T. Lin, Y. H. Su, J. P. Hu & G. Zheng, *Phys. Rev. B* 83, 140506(R).(2011).
- [107] H. Suhl, B. T. Matthias & L. R. Walker. Physical Review Letters. 3, 552–554. (1959).
- [108] Wang & E. W. Hudson, *Nature Physics* 5, 213 216. (2009).

- [109] M. M. Korshunov, I. Eremin, D. V. Efremov, D. L. Maslov & A. V. Chubukov, *Phys. Rev. Lett.* 102, 236403. (2009).
- [110] T.A. Maier, S. Graser, P.J Hirschfeld and D.J. Scalpino. Physical Review B, 83:220505. (2011).
- [111] T. Kondo, A. F. Santander-Syro, O. Copie, C. Liu, M. E. Tillman, E. D. Mun, J. Schmalian, S. L. Bud'ko, M. A. Tanatar & P. C. Canfield. *Physical Review Letters*. 101, 147003. (2008).
- [112] K. Kuroki, S. Onari, R. Arita, H. Usui, Y. Tanaka, H. Kontani, and H. Aoki. *Physical Review Letters*, 101 :087004. (2008).
- [113] S. Graser, Maier T. A., Hirschfeld P. J. & Scalapino D. J. New Journal of Physics. 11, 025016. (2009).
- [114] M. A. Tanatar, N. Ni, C. Martin, R. T. Gordon, H. Kim, V. G. Kogan, G. D. Samolyuk, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield & R. Prozorov. *Physical Review B*. 79, 094507.(2009).
- [115] J. Dong, H. J. Zhang, G. Xu, Z. Li, G. Li, W. Z. Hu, D. Wu, G. F. Chen, X. Dai, J. L. Luo, Z. Fang & N. L. Wang, Euro. *Phys. Lett.* 83 27006 .(2008).
- [116] K. Hashimoto, M. Yamashita, S. Kasahara, Y. Senshu, N. Nakata, S. Tonegawa, K. Ikada, A. Serafin, A. Carrington, T. Terashima, H. Ikeda, T. Shibauchi & Y. Matsuda, *Phys. Rev. B* 81, 220501(R) .(2010).
- [117] Fletcher J. D., A. Serafin, L. Malone, J. G. Analytis, J.-H. Chu, A. S. Erickson, I. R. Fisher & A. Carrington, *Phys. Rev. Lett.* 102, 147001.(2009).
- [118] H. Mukuda, N. Terasaki, H. Kinouchi, M. Yashima, Y. Kitaoka, S. Suzuki, S. Miyasaka, S. Tajima, K. Miyazawa & P. M. Shirage . arXiv Preprint arXiv:0806.3238. (2008).
- [119] M. Yashima, H. Nishimura, H. Mukuda, Y. Kitaoka, K. Miyazawa, P. M. Shirage, K. Kiho, H. Kito, H. Eisaki & A. Iyo. arXiv Preprint arXiv:0905.1896. (2009).
- [120] M. L. Teague, G.K. Drayna, G. P. Lockhart, P. Cheng, B. Shen, H.-H. Wen, and N.-C. Yeh.. *Physical Review Letters*, 106:087004. (2011).
- [121] K. Terashima, Y. Sekiba, J.H. Bowen, K. Nakayama, T. Kawahara, T. Sato, P. Richard, Y.-M. Xu, L. J. Li, and T. Takahashi. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the USA*, 106:7330. (2009).
- [122] B. Muschler, W. Prestel , R. Hackl, T. P. Devereaux, J. G. Analytis, J.-H. Chu, and I. R. Fisher. Bandand momentum-dependent electron dynamics in superconducting Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ as seen via electronic Raman Scattering. *Physical Review B*, 80:180510. (2009).
- [123] R.T. Gordon, N. Ni, C. Martin, M.A. Tanatar, M.D. Vannette, H. Kim, G.D. Samolyuk, J. Schmalian, S. Nandi, A. Kreyssig, A.I. Goldman, J.Q. Yan, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, and R.Prozorov, Phys. Rev. Lett. 102, 127004 (2009).
- [124] F. Hardy, T. Wolf, R. A. Fisher, R. Eder, P. Schweiss, P. Adelmann, H. Lohneysen, and C. Meingast. *Physical Review B*, 81:060501.(2010).
- [125] D. A. Torchetti, M. Fu, D. C. Christensen, K. J. Nelson, T. Imai, H. C. Lei & C. Petrovic. *Phys. Rev. B*. 83, 104508. (2011).
- [126] J. D. Fletcher, A. Serafin, L. Malone, J. G. Analytis, J.-H. Chu, A. S. Erickson, I. R. Fisher & Carrington A. *Physical Review Letters*. 102, 147001. (2009).
- [127] M.-H. Julien, H. Mayaffre, M. Horvatić, C. Berthier, X. D. Zhang, W. Wu, G. F. Chen, N. L. Wang & J. L. Luo, *Euro. Phys. Lett.* 87 37001. (2009).
- [128] P. Marsick, K. Kim, A. Dubroka, M. Rössle, V. Malik, L. Schulz, C. Wang, C. Niedermayer, A. Drew, M. Willis, T. Wolf, and C. Bernhard. *Physical Review Letters*, 105:057001. (2010).
- [129] J. Park, D. Inosov, C. Niedermayer, G. Sun, D. Haug, N. Christensen, R. Dinnebier, A. Boris, A. Drew, L. Schulz, T. Shapoval, U. Wolff, V. Neu, X. Yang, C. Lin, B. Keimer, and V. Hinkov. *Physical Review Letters*, 102: 117006. (2009).
- [130] R. Urbano, E. L. Green, W. G. Moulton, A. P. Reyes, P. L. Kuhns, E. M. Bittar, C. Adriano, T. M. Garitezi, L. Bufaiçal & P. G. Pagliuso, *Phys. Rev. Lett.* 105, 107001. (2010).
- [131] T. Nakano, S.Tsutsumi, N. Fujiwara, S.Matsuishi & H. Hosono. Phys. Rev. B. 83, 180508. (2011).
- [132] A. B. Vorontsov, M. G. Vavilov & A. V. Chubukov, *Phys. Rev. B* 79, 060508(R). (2009).
- [133] E. Dieulesaint et D. Royer Ondes Elastiques dans les Solides ; Application au traitement du signal Masson et Cie, Editeurs 1974.
- [134] Michel Brissaud.. PPUR presses polytechniques, 2007 448 pages. 2007.
- [135] D. Royer, E. Dieulesaint . Tome 1 Propagation libre et guidée Ed. Masson, Paris, 1996.
- [136] M.R. Britel. Thèse de doctorat. Université Joseph Fourier. Grenoble. date soutenance 12 juil.1994.
- [137] I.A. Viktorov Rayleigh and Lamb waves New York: Plenum Press, p.3 (1967).
- [138] H. Uberall Surface Waves in Acoustics Physical acoustics, Mason Thurston, vol X.
- [139] C. Kittel. « Introduction à la Physique de l'état solide ». Édition Dunod. QC 176 K62. (1998).

- [140] http://www.lot-qd.de/files/downloads/qd/eu/PPMS Brochure eu.pdf.
- [141] D. Aoki, A. Huxley, E. Ressouche, D. Braithwaite, J. Flouquet, J-P. Brison, E. Lhotel and C. Paulsen. Nature 413, 613-616 (11 October 2001).
- [142] A. T. Petit et P. L. Dulong. Vol. 10, 1819, p. 395–413.
- [143] R. Truell, C. Elbaurn, C. B. Chick. Academic Press Inc. New-York (1969).
- [144] I. Marjorie. Thèse de doctorat. Faculté Sherbrooke, Québec, Canada, Apr. 1999.
- [145] F. Ehrburger Dolle. Revue de physique appliquée. CNRS Mulhouse. TOM 7. Juin 1972.
- [146] H. E. Rorschach, M. A.Herlin. Phys. Rev., 1951, 81,467.
- [147] G. J.Van Der Berg, L. C.Van Den Marel, cité par A. N. Gerritsen, dans Encyclopedia of Physics, S. Flügge, Vol. XIX, 137 (Springer Verlag, Berlin, 1956).
- [148] J. E. Zimmerman, "Measurement of electrical resistivity of bulk metal", Rev. Sci. Inst., 1961, 32, 402.
- [149] E. W. Johnson, H. H. Johnson . Rev. Sci. Inst., 1964, 35, 1510.
- [150] B. Hague, "Alternating current bridge methods", Sir Isaac Pitman and Sons Ltd (London 1957), p. 600.
- [151] G. Deutscher. Thèse 3^{éme} cycle, Faculté des Sciences, Orsay.
- [152] J. P.Burger, G. Deutscher. Physique (Physique Appliquée), 1965, 26, 177 A.
- [153] J. P.Lauriat, P. Perio . Rev. Phys. Appl., 1968, 3, 185.
- [154] F. Sirois. Thèse de doctorat. Ecole Polytechnique de Montréal. 2002.
- [155] D.B.Achkir. Thèse de doctorat. F.Sciences, U.Scherbrooke, Québec, Canada, Apr. 1997.
- [156] D.C. Dube, S.C, Mathur and U.Sinba.S.J.Jang and A.S. Bhalla. IEEE 7th International Symposium. 1990.
- [157] Y. Wu, S. Luo, X.B. Jiang, F. Zhou, L.X. Cao, Y.S. He, N.T. Cherpak, V.N. Skresanov, A. Barannik. J Supercond Nov Magn) 26:1221–1225.(2013).
- [158] N. Cherpak, A. Barannik, Y. Filipov, Y. Prokopenko and S. Vitusevich, IEEE Trans. Appl. Supercond. 13, 3570 (2003).
- [159] J. S. Bobowski, J. C. Baglo, James Day, P. Dosanjh, Rinat Ofer, B. J. Ramshaw, Ruixing liang, D.A. Bonn, W. N Hardy, Huiqian Luo, Zhao-Sheng Wang, Lei Fang, and Hai-Hu Weng, Phys. Rev. B, 52, 094520, (2010).
- [160] A. Abbassi, M. Saint-Paul, R. Dkiouak, M. R. Britel , Zhao-Sheng Wan, Huinqian Luo, Xingye Lu, Cong Ren, and Hai-Hu Wen. Advanced Electromagnetics, Vol.1.N°2 , Aug. 2012.
- [161] A. Gould, E.M. Jackson, K. Renouard, R. Crittenden, S.M. Bhatat, N.D.Spencer, L.E. Dolhert, and R.F. Wormsbecher, Physica C 156, 55-558, (1988).
- [162] M. Saint-Paul, C. Guttin, A. Abbassi, Z.S. wang, H. Luo, X. Lu, R. Cong, H.H. Wen, K. Hasselbach, Solid State Communications 185 (2014) 10-13.
- [163] M. Saint-Paul, C. Guttin, A. Abbassi, Z.S. wang, H. Luo, X. Lu, R. Cong, H.H. Wen, K. Hasselbach. Solid State Communications. 15 May 2014. http://dx.doi.org/10.1016/j.ssc.2014.05.009.
- [164] Y. Le Bihan, NDT & E International **36** (2003) 297-302.
- [165] A.C. Bódi, T. Kokkomäki, S. Leppävuori, J. Väyrynen. Physica C 253 (1995).
- [166] M. Saint-Paul, A.Abbassi, Z.S. wang, H. Luo, X. Lu, R. Cong, H.H. Wen, K. Hasselbach. Elseiver. Physica C 483 (2012) 207–212.
- [167] R.M. Fernandez, L. H. VanBebber, S. Bhattacharya, P. Chandra, V. Keppens, D. Mandrus, M. A. McGuire, B. C. Sales, A. S. Sefat, and J. Schmalian, Phys. Rev. Lett. 105, (2010) 157003-157007.
- [168] T. Goto, R. Kurihara, K. Araki, K. Mitsumoto, M. Akatsu, Y. Nemoto, S. Tatematsu, and M. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. 80, (2011) 0737021-0737024.
- [169] M. Yoshizawa, R. Kamiya, R. Onodera, and Y. Nakanishi arXiv: 1008.1479v3 [cond-mat.supr-con] 11 Aug 2010.
- [170] M. Yoshizawa, D. Kimura, T. Chiba, S. Simayi, A. Ismayil, Y. Nakanishi, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima and S. Uchida, J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) 024604.arXiv:1111.0366v1 [cond-mat.supr-con] 02 Nov 2011.
- [171] M.Yoshizawa and S. Simayi, Modern Physics Letters B Lett. B 2012.26. by 196.12.241.147 on 02/14/13 on Vol. 26, No. 19 (2012) 1230011 (23 pages) World Scientific Publishing Company.
- [172] B. Luthi, M. Cardona, P. Fulde, K. von Klitzing and H. J. Queisser (Springer Verlag 2005).
- [173] C. Lupien, W.A. MacFarlane, Cyril Proust, and Louis Taillefer, Z.Q. Mao and Y. Maen, Phys. Rev. Lett. 86, (2001) 5986-5989.
- [174] S. L. Bud'ko, N. Ni, and P. C. Canfield, Phys. Rev. B 79, (2009) 220516(R)-220520(R).
- [175] B. Zeng, G. Mu, H. Luo, and H. Hu Wen, Sci. China Phys. Mech. Astron. 53, (2010) 1221-1224.
- [176] M.R. Trunin and A.A. Golubov. Chapter 3, 159-233 (Taylor & Francis, London and New York, 2003).

- [177] L.R. Testardi, Phys. Rev. B 12, (1975) 3849-3854.
- [178] F. Krüger et al. Phys. Rev. B 79 (2009) 054504.
- [179] Y. Yanagi et al. Phys. Rev. B 81 (2010) 054518.
- [180] V.A. Gasparov, R. Huguenin D. Pavuna, and J. Van der Maas, Solid State Com., 69 1147-1151, (1989).
- [181] P. Rodiere, T. Klein, L. Lemberger, K. Hasselbach, A. Demuer, J. Kacmarcik, Z. S. Wang, H. Q. Luo, X. Y. Lu, H. H. Wen, F. Gucmann and C. Marcenat. Phys. Rev. B 85 (2012), 2145061-2145067.
- [182] D. A. Bonn, Ruixing Liang, T. M. Riseman, D. J. Baar, D. C. Morgan, Kuan Zhang, P. Dosanjh, T. L. Duty, A. MacFarlane, G. D. Morris, J. H. Brewer, W. N. Hardy, C. Kallin, and A. J. Berlinsky, Phys. Rev. B 47 (1993) 11314.
- [183] S. René de Cotret. Mémoire pour maître es sciences (M.Sc.). Sherbrooke, Québec, 22 juillet 2013.
- [184] A. Hosseini, R. Harris, Saeid Kamal, P. Dosanjh, J. Preston, Ruixing Liang, W. N.Hardy, et D. A. Bonn. Physical Review B60(2), 1349 July (1999).
- [185] A. Barannick, N. T. Cherpak, M. A. Tanatar, S. Vitusevich, V. Skresanov, P. C. Canfield, and R. Prozorov. Phys. Rev. B 87 (2013) 014506.
- [186] M. Wang, 1 H.Luo, J. Zhao, C. Zhang, M. Wang, K. Marty, S. Chi, J.W. LynnA. Schneidewind, S. Li and Pengcheng Dai. PHYSICAL REVIEW B 81, 174524 (2010).
- [187] J. Kortus, Oleg V. Dolgov, Reinhard K. Kremer, and Alexander A. Golubov.. Phys. Rev. Lett., 94(2) :027002, 2005.
- [188] W. N. Hardy, D. A. Bonn, D. C. Morgan, Ruixing Liang, and Kuan Zhang. Phys. Rev Lett., 70(25):3999, Jun 1993.
- [189] S.Tamara Nunner et P. J. Hirschfeld. Physical Review B72, 014514 (2005).
- [190] T.Klein, P.Rodière, and C.Marcenat .Comment . Phys. Rev. B 86.006501 (2012).
- [191] M.Martin Rotter. Thèse "High-Temperature Superconductivity in Doped BaFe₂As₂". Ludwig-Maximilians-Universität München. Fort Sill (USA).2010.
- [192] A. Barannik et al. Tech. Phys. 48(5), 621–625(2003).
- [193] N.T. Cherpak, A.A. Barannik, R. Prozorov, M. Tanatar, and A.V. Velichko. Low Temperature Physics/Fizika Nizkikh Temperatur, v. 39, No. 12, pp. 2013
- [194] M.R. Trunin" Yspekhi fisicheskix naouk. Tom 168, N°9. september 1998;
- [195] D. P. Choudhury, H. Srikanth, S. Sridhar, P. Canfield, Phys. Rev. 58, (1998), 14490.
- [196] H. Luo, Rui Zhang, Mark Laver, Zahra Yamani, Meng Wang, Xingye Lu, Miaoyin Wang, Yanchao Chen, Shiliang Li, Sung Chang, Jeffrey W. Lynn, Pengcheng Dai, Phys.Rev.Lett. **108** (2012) 247002.
- [197] R. Zhou,1 Z. Li,1 J. Yang,1 D. L. Sun,2 C. T. Lin,2 and Guo-qing Zheng1. APS /123-QED. http://arxiv.org/abs/1308.35 39 v1 [cond-mat.sup-con] 16 Aug 2013.

ANNEXE I

« LES ONDES ULTRASONORES »

I-Ondes ultrasonores de surface :

Le terme des ondes de surface s'applique en principe à toute déformation qui se propage en n'ébranlant qu'une faible épaisseur de matière s'évaluant en prenant pour unité la longueur d'onde. Parmi les ondes de surface figurent :

- Les ondes de *Rayleigh*,
- ► Les ondes de *Bleustein Gulyaev*,
- Les ondes de *Stoneley*,
- Les ondes de *Love*,
- Les ondes de *Lamb*.

Les ondes acoustiques de surface sont générées et détectées sur des solides piézoélectriques par des transducteurs interdigités (IDT) dont les détails sont traités dans le paragraphe « transducteurs des ondes surface ».

1. Ondes de Rayleigh:

Les ondes de Rayleigh se propagent à la surface de tout milieu semi-infini [3,4]. Dans le cas d'un milieu isotrope, le déplacement des particules est elliptique et est situé sur un plan perpendiculaire à la surface de propagation (plan sagittal). Il résulte de la composition d'une onde longitudinale de polarisation parallèle à la surface et d'une onde transversale perpendiculaire à celle-ci. Ces deux ondes se propagent à la même vitesse (dite vitesse de Rayleigh) indépendamment de la fréquence d'excitation.

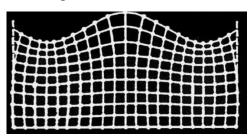


Figure 1: Mouvement des particules dans le plan sagittal et ondulation de la surface lors d'un parcours par une onde plane sinusoïdale.

2 Ondes de Bleustein – Gulyaev:

Ces types d'ondes se propagent à la surface des matériaux piézoélectriques sous certaines conditions de symétrie avec une polarisation rectiligne, perpendiculaire au plan sagittal. La surface reste plane, et l'atténuation de l'amplitude du déplacement des particules est exponentielle dans le matériau (Fig.2).

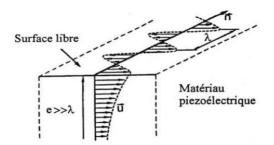


Figure 2 : Onde de Bleustein - Gulyaev.

3. Ondes de Stoneley (1924):

Ces ondes peuvent se propager à l'interface de deux milieux inhomogènes semi infinis sous certaines conditions. Ainsi ce type d'ondes ne peuvent se propager à l'interface de deux solides que pour certains paramètres élastiques, alors que la propagation est toujours possible à l'interface liquide solide.

4. Ondes de Love (1911) :

C'est une onde transversale parallèle à la direction de propagation, dispersive qui se propage dans un milieu constitué d'une couche et d'un substrat, sous certaines conditions de symétrie et de vitesse des matériaux, comme le montre la figure 3. Love a montré que la propagation de cette onde n'est possible que si la vitesse de la composante transversale de l'onde de volume dans le substrat est supérieure à celle dans la couche (V>V'). La présence de la couche (généralement métallique) joue le rôle de guide acoustique.

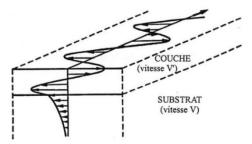


Figure 3 : Onde de Love.

5. Ondes de plaque:

Les ondes de plaque apparaissent lors de la vibration des plaques minces dont l'épaisseur est comparable, voire plus petite que la longueur d'onde [1]. L'onde de Lamb est une onde de plaque. On distingue les ondes symétriques pour lesquelles les déplacements des faces de la plaque s'effectuent de façon symétrique par rapport à un plan méridien (Fig.4.a), et les ondes antisymétriques dont les déplacements des faces sont dans le même sens (Fig.4.b). Il existe plusieurs modes possibles qui sont liés à la fréquence et à l'épaisseur de la plaque. Lorsque celle-ci devient très épaisse, la distinction entre ondes de Lamb et de Rayleigh est difficiles, car les ondes de plaques se réduisent à deux ondes se propageant sur les deux faces de la plaque et se comportent comme des ondes de Rayleigh [4].

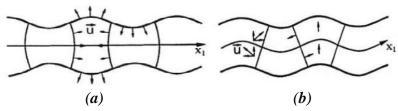


Figure 4 : Ondes de Lamb: (a) ondes symétriques ; (b) ondes antisymétriques.

II- Transducteur à Ondes de Surface :

Les transducteurs qui servent à générer ou à détecter des ondes de surface de type Rayleigh et Lamb sont dans la plupart des cas composés de deux électrodes en forme de peigne déposées sur un substrat piézoélectrique. Une structure de ce type de transducteur, dans sa forme la plus simple, est montrée sur la Figure 5.

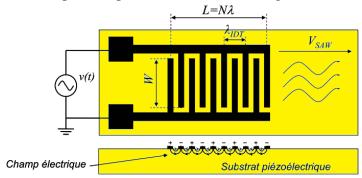


Figure 5 : Structure d'un transducteur en peigne à ondes acoustiques de surface

Ce transducteur appelé aussi inter-digité (IDT : Interdigital Transducer) a une forme en peigne de ses électrodes. Les doigts de peigne sont entrelacés et déposés sur un substrat piézoélectrique.

En appliquant un signal électrique sur le transducteur, un champ électrique est produit entre les peignes de polarité différente. Il engendre des compressions et des dilatations au voisinage de la surface en donnant, grâce à l'effet piézoélectrique, la naissance d'une onde mécanique se propageant vers l'extérieur du transducteur en forme d'une onde de surface.

L'énergie acoustique est confinée à la surface du solide et se propage sans dispersion, avec des pertes très faibles qui dépendent principalement de la qualité de la surface. Les composantes longitudinale et transversale d'une onde de surface pénètrent dans le substrat et s'annulent à une profondeur de l'ordre d'une longueur d'onde. Réciproquement, une onde se propageant vers un transducteur en peigne est transformée en un signal électrique absorbé par une impédance de charge.

La périodicité des doigts du transducteur, exprimée par un espacement périodique d, et la périodicité de l'onde de surface de vitesse V_{SAW} et de longueur d'onde λ_{IDT} ($\lambda_{IDT} = 2d$) doivent vérifier les conditions d'interférence constructive, afin de former une caractéristique de filtre passe bande de fréquence centrale f_0 exprimé par:

$$f_0 = \frac{V_{SAW}}{\lambda_{IDT}} = \frac{V_{SAW}}{2d}$$

La largeur de bande est égale à :

$$B = \frac{1}{\tau} = \frac{V_{SAW}}{L} = \frac{V_{SAW}}{2Nd}$$

La forme de la caractéristique en bande passante est définie par la forme de l'enveloppe de recouvrement W des doigts du transducteur. Si le recouvrement W est constant (cf. Figure 5), une réponse impulsionnelle de forme rectangulaire est produite, ce qui correspond au module de la fonction de transfert de forme $(\sin x)/x$. En modifiant la géométrie du recouvrement, on peut obtenir la réponse fréquentielle désirée. Toute déformation qui se propage en n'ébranlant qu'une épaisseur de la manière (dont l'ordre de grandeur égal à la longueur d'onde) entre dans le cadre des ondes de surface.

Les particules de matière du milieu de propagation se déplacent en une composante perpendiculaire à la surface et une composante plus faible, parallèle à la direction de propagation. La vitesse de propagation des ondes de Rayleigh le long de la direction z dans le matériau piézo-électrique (LiNbO₃) de coupe Y est de 3488 m/s.

Les transducteurs à ondes de Rayleigh, sont des transducteurs à électrodes interdigitales (Fig.6). Ils sont formés d'une paire de deux électrodes métalliques en forme de peignes, souvent en or ou en argent, disposés de part et d'autre d'un film « échantillon », formant ainsi l'émetteur et le récepteur. Le tout est déposé sur le substrat piézo-électrique

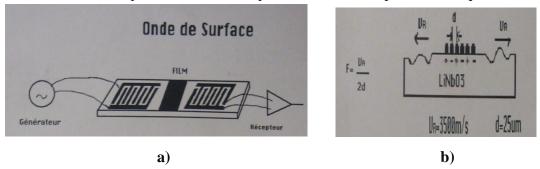


Figure 19: (a)- Cellule expérimentale de mesure à onde de surface. b)-Type de Lamelle piézoélectrique.

Le principe de fonctionnement de ce système ne diffère pas beaucoup de celui des ondes de volume. Une tension appliquée entre les deux électrodes crée un champ électrique qui engendrera des compressions et des dilatations au voisinage de la surface. Ces déformations du substrat piézo-électrique sont fortement ressenties au niveau du film. Ainsi, les vibrations recueillies par le transducteur tiennent compte de l'effet du film dans la détermination de la vitesse et l'atténuation de l'onde de surface. En connaissant la vitesse et l'atténuation de l'onde de surface du substrat piézo-électrique avant l'évaporation du film, on arrive à soustraire la vitesse et l'atténuation associées à l'échantillon.

Remarques:

La fréquence de vibration de l'onde de surface est liée à la distance interdigitale det à la vitesse v_s de l'onde : $F = (2n+1) \times \frac{v_s}{2d}$, où (n=0,1,2,....)

A la fréquence fondamentale F_0 et pour des harmoniques impaires, les excitations au niveau de chaque paire de doigts s'ajoutent. C'est un effet cumulatif qui caractérise les fréquences de résonance.

Pour une fréquence maximale limitée à F_0 de quelque GHz, et avec une distance interdigitale minimale de $d=d_0/2$ (avec d_0 : largeur d'un doigt de peigne $d_0=25 \ mathref{mm}$), on aura une vitesse de propagation de : $v_s=3000 \ m/s$.

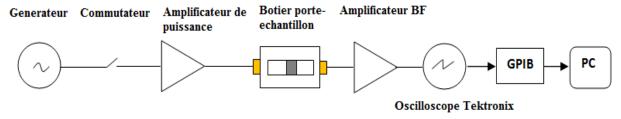


Figure 19: Schéma du procédé de mesures en RF par la technique des ondes ultrasonores de surface.

ANNEXE II

« DISPOSITIF CRYOGENIQUE DE MESURE EN BASSES TEMPERATURES »

La vitesse et l'atténuation des ondes sonores dans un milieu uniforme présentent plus d'intérêt lorsqu'elles sont mesurées en fonction d'une ou plusieurs variables thermodynamiques (P,V,T). Parmi ces trois variables, la seule accessible par notre appareillage n'est autre que celle de la température. Un balayage de température de l'ambiante à 4 K est rendu possible par des dispositifs cryogéniques de l'Institut Néel.

Nous avons utilisé un dispositif expérimental cryogénie à hélium d'une capacité de 100 litres schématisé dans la figure 1, qui est composé d'une enceinte fixe au sein de laquelle un deuxième système est implanté.

Pour des mesures spécifiques sous un champ magnétique, telle que la magnétoélasticité, ces dispositifs cryogéniques sont parfois équipés des bobines supraconductrices incorporées.

Une canne à 1K, de diamètre extérieur 50 mm, constituée par une partie facilement démontable, le calorimètre, à l'intérieur duquel est montée la cellule de mesure contenant le porte-échantillon. Un système de pompage d'hélium accède directement au sein du calorimètre. L'étanchéité à la jonction calorimètre-canne est assurée par une colle de silastène.

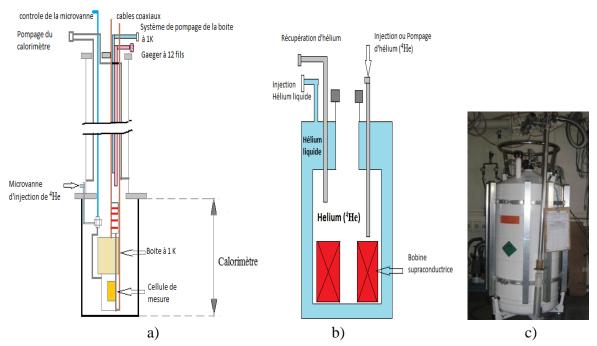


Figure 1: a)- Dispositif cryogénique utilisé pour les mesures en ultrasons et hyperfréquences : (a) Coupe de la canne de mesure à 1K. **b)** - Cryostat d'⁴He contenant une bobine supraconductrice dans laquelle une canne à 1K est introduite. **c)**- Cryostat d'He de capacité 100 litres.

Cette canne, utilisable sur le cryostat de la figure 1 et aussi sur les bidons de stockage de l'He liquide, est équipée de deux câbles coaxiaux (RF) de 2,2 mm de diamètre, ainsi que de trois thermomètres : un résistif à Germanium destiné à mesurer des températures T < 80 K ,un second à diode de silicium (Lake Shore) étalonné de 4 à 300K et un troisième ayant une résistance en platine destiné à mesurer la température 20-300 K et d'une résistance de chauffage. Le tout est fixé sur une cellule de mesure, elle-même est fixée sur un support de cuivre. Ce support assure une conductivité parfaite de la chaleur qui permet d'avoir une bonne cohérence entre la température de l'échantillon et celle des résistances.

La boite à 1K possède la particularité d'améliorer le refroidissement de 4,2K (température de l'⁴He liquide) vers les 1K. Son fonctionnement impose un approvisionnement en ⁴He par la microvanne, ainsi qu'un accès vers un système de pompage.

Pour éviter l'apport en chaleur, toutes les amenées provenant du sommet de la canne sont thermalisées à 4,2K.

ANNEXE III

« APPLICATIONS DU PRINCIPE D'INDUCTION MAGNETIQUE DANS DES DISPOSITIFS DE MESURES. »

1. Application dans la Résonance Magnétique Nucléaire:

Le principe de la technique de résonance magnétique nucléaire RMN, basé sur l'induction magnétique, permet de mesurer les propriétés des supraconducteurs sous un champ magnétique. L'échantillon est placé dans ce dispositif à l'intérieur d'une bobine.

Le dispositif expérimental de la RMN est constitué des bobines supraconductrices produisant le champ magnétique statique nécessaire à la RMN, de chaines d'émission et de réception de signaux RF et HF, des amplificateurs, des modulateurs/démodulateurs et des cartes d'acquisition des données. L'échantillon est placé à l'intérieur d'une bobine, tel que représenté dans la figure 1.

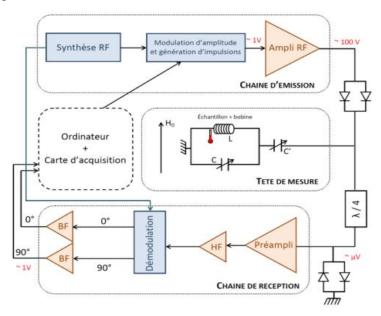


Figure 1 : Schéma du dispositif électronique expérimental de la RMN.

2. Le Résonateur à Diode Tunnel (Tunnel Diode Resonator TDR):

Le Circuit de résonance à diode tunnel (Tunnel Diode Resonator ou TDR) est utilisé comme sonde de la longueur de pénétration de London λ . Le résonateur à diode tunnel (TDR) , schématisé dans la figure 2 ..

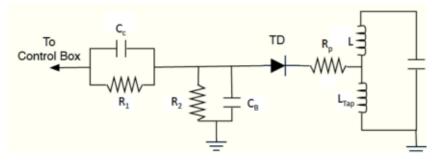


Figure 2 : Schéma de principe du Circuit diagram TDR, [18].

Il fonctionne comme un simple prolongement d'un circuit bouchon LC. Il comprend une inductance idéale et un condensateur reliés, oscillant sans perte d'énergie. Tous les composants réels ont une certaine perte de résistance. Si une résistance négative, égale à la résistance des composants de l'oscillateur, est ajoutée en parallèle avec ce circuit ces pertes peuvent être compensées.

La fréquence de résonance de la bobine vide est :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}} \tag{1}$$

L est l'inductance de la bobine vide et C est la capacité du condensateur du circuit bouchon. L'inductance de la bobine est exprimée en termes de flux magnétique, avec H étant le champ magnétique à l'intérieur de la bobine produit et V_c le volume de la bobine.

$$\phi \approx HV_c$$
 (2)

Si l'échantillon est placé à l'intérieur de la bobine, il faut soustraire son volume V_S dans l'équation (4) et ajouter le volume d'échantillon V_S multiplié par B « le champ magnétique au tour de l'échantillon » :

$$\phi' = H(V_c - V_S) + BV_S$$
 (3)

Le champ magnétique à l'intérieur de l'échantillon est la somme du champ magnétique appliqué *H* à partir du circuit TDR et l'aimantation M de l'échantillon lui-même.

$$B = H + 4\pi M \tag{4}$$

Si on remplace (4) dans l'équation (3), on retrouve le flux total à l'intérieur de la bobine :

$$\phi' = HV_c + 4\pi V_S M \tag{5}$$

L'inductance totale de la bobine, avec l'échantillon dedans, peut s'écrire :

$$L^{'} = \frac{d\phi^{'}}{dI} = \frac{d\phi^{'}}{dH} \frac{dH}{dI} = \frac{dHV_c}{dI} + 4\pi V_S \frac{dM}{dH} \frac{dH}{dI} = L + \Delta L$$
 (8)

Cela nous permettra de rapporter ΔL à la susceptibilité magnétique χ de l'échantillon :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{4\pi V_S}{V_C} \chi \tag{6}$$

Par conséquent $\Delta f/f$ peut être directement liée à la susceptibilité magnétique χ par :

$$\frac{\Delta f}{f} \approx \frac{4\pi V_S}{V_C} \chi \tag{7}$$

3. Le Susceptomètre AC:

Un susceptomètre AC consiste en un pont d'inductance mutuelle. Il comprend un bobinage secondaire formé de deux bobines enroulées en sens inverse et montées en série, figure 3. Entre ces deux enroulements est placée une bobine primaire qui est parcourue par un courant d'excitation alternatif. Le champ magnétique issu de la bobine primaire génère des courants induits de sens opposé dans les deux moitiés du bobinage secondaire. Le bilan est nul si la symétrie est parfaitement réalisée.

Lorsqu'un échantillon est placé entre la bobine primaire et l'une des deux parties du bobinage secondaire, l'interaction entre le champ magnétique et l'échantillon déséquilibre le pont.

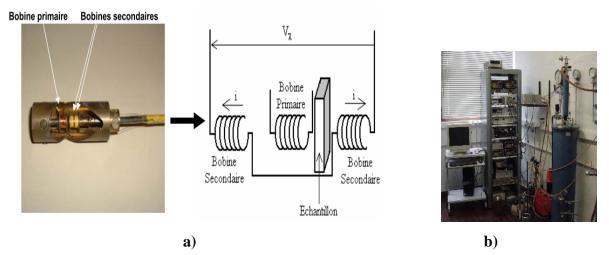


Figure 3 : a) Principe du susceptomètre AC par induction mutuelle. b) Dispositif de mesure de susceptibilité magnétique.

Cette variation de flux, proportionnelle à la susceptibilité AC du matériau, est représentée sous la forme :

$$\chi_{AC} = \frac{dM}{dH} = \chi' - i\chi'' \tag{8}$$

Le susceptométre permet des mesures absolues de la partie imaginaire et de la partie réelle de la susceptibilité magnétique d'un échantillon.

Un exemple de mesure de susceptibilité AC sur un échantillon supraconducteur est donné dans la figure 4:

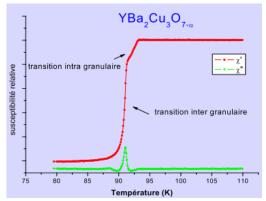


Figure 4 : Exemple de mesure des composantes de la susceptibilité magnétique par un susceptomètre AC d'un supraconducteur d'YBaCuO .

4. Superconducting Quantum Interference Device SQUID:

Le SQUID est un dispositif de mesures magnétiques qui permet de déterminer avec une grande précision l'aimantation d'un matériau et du champ magnétique extérieur dans un large intervalle de températures. Il est basé sur deux propriétés fondamentales de la supraconductivité: l'effet tunnel Josephson et la quantification du flux magnétique dans une boucle de détection supraconductrice.

Le circuit de détection se compose d'une bobine de détection supraconductrice couplée par induction à l'échantillon. La bobine de détection est reliée par des fils supraconducteurs à la bobine d'entrée du SQUID, de façon que le courant dans la bobine de détection agisse par induction sur le senseur du SQUID. L'étage électronique radiofréquence du SQUID produit une tension directement proportionnelle au courant circulant dans la bobine d'entrée. En ce sens, le SQUID agit comme un convertisseur parfait de courant à tension.

Grâce à l'état quantifié de la boucle supraconductrice et au comportement des jonctions Josephson, le SQUID est capable de détecter des modifications de champ magnétique de l'ordre de 10^{-15} T (Tesla), en fonctionnant jusqu'à des champs d'intensité de l'ordre de 5 T. Le SQUID est l'élément permettant la mesure de champs magnétiques avec la plus grande sensibilité et il est exploité dans le dispositif MPMS qui sert à mesurer automatiquement des propriétés intrinsèques des échantillons telles que la résistivité, la chaleur spécifique, la susceptibilité magnétique.

Cet appareil a été utilisé avec nos mesures ultrasonores dans la mesure de la chaleur spécifique, décrite dans la partie A de ce chapitre.

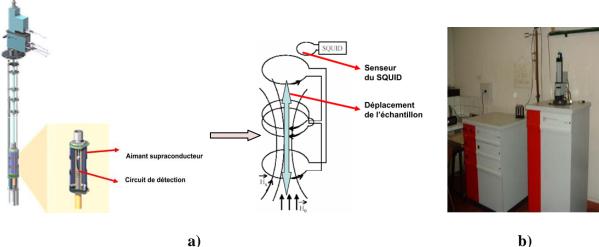


Figure 5 :a) système du PPMS et illustration de principe du circuit de **b**) Quantum Design (MPMS XL5).

Le principe de mesure de ce dispositif consiste à déplacer un échantillon dans des bobines de détection, à une température donnée et dans un champ magnétique homogène. Les bobines sont très exactement compensées.

Lorsqu'on introduit un échantillon dans le système de détection, le champ magnétique est perturbé et produit une variation de flux magnétique, qui induit un courant au sein des bobines. Ce courant ne peut s'amortir, car les fils sont supraconducteurs. On réalise ainsi en déplaçant l'échantillon d'un bout à l'autre des bobines, une intégration de flux. Un transformateur de flux permet de transmettre le signal issu du gradient-mètre au SQUID. Le SQUID se comporte comme un convertisseur flux-tension.

Exemple de mesures :

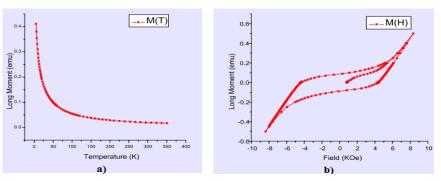


Figure 5: a) Mesure de l'aimantation en fonction de la température. **b)** Mesure de l'aimantation en fonction de champ magnétique.

5. Générateur de champ magnétique pulsé:

La technique du champ magnétique pulsé est l'une des différentes méthodes utilisées pour obtenir des champs magnétiques intenses supérieurs à 20 T de longue durée, basées sur une bobine bitter et une bobine hybride, inventée par Kapitza en 1924.

Le champ magnétique est obtenu par la décharge d'un banc de condensateurs (10 cellules de 60 condensateurs) préalablement chargé sous une tension inférieure ou égale à 24 kV, figure 6.

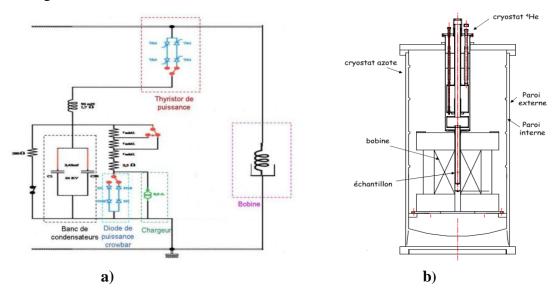


Figure 6 : a) Schéma de principe du générateur de champ magnétique pulsé, b) cryostat à azote liquide avec la bobine de champ et le cryostat à hélium liquide.

A l'instant t=0, le banc de condensateurs chargés sous une tension V est connecté aux bornes de la bobine, d'inductance L et de résistance r, par une batterie de thyristors. Le courant croît alors sinusoïdalement dans le circuit jusqu'à atteindre une valeur I_{max} au bout de T/4 où $T=2\pi\sqrt{LC}$ est la période propre du circuit (où C est la capacité électrique des condensateurs).

Quand le courant atteint la valeur maximum I_{max} , la tension aux bornes des condensateurs s'inverse puisqu'elle est en quadrature de phase avec le courant. Les diodes de puissance, montées en parallèle avec la batterie de condensateurs, se mettent alors à conduire

et toute l'énergie magnétique contenue dans la bobine est dissipée par effet Joule à travers sa résistance. Le courant décroit exponentiellement avec un temps caractéristique :

$$\tau = L/rT \qquad (9)$$

Le champ magnétique est proportionnel à ce courant, dont l'allure est représentée la figure 7.

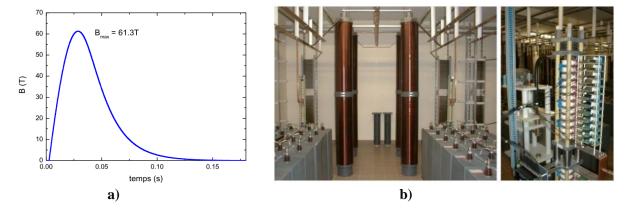


Figure 7 : a) Profil du champ magnétique pulsé en fonction du temps. **b)** Le générateur de champ magnétique pulsé du Laboratoire National des Champs Magnétiques Pulsés de Toulouse.

La fermeture du circuit est réalisée par un ensemble de thyristors de puissance groupés en un montage série parallèle. Chaque thyristor est commandé par une impulsion de courant traversant sa gâchette et obtenue par la décharge d'une petite capacité. Cette décharge est ellemême provoquée par l'amorçage d'un petit thyristor déclenché optiquement par un rayon lumineux transmis par fibre optique.

Au cours d'un tir, la variation du champ magnétique est mesurée par une bobine pickup, située à proximité de l'échantillon dont l'axe est parallèle au champ figure 9.b. Une bobine pickup consiste en un enroulement de quelques spires de fils de cuivre. Tous les dispositifs sont doublés afin de permettre une utilisation dans les deux sens (champ up et champ down).

D'après la loi de Faraday, tout champ magnétique variable crée une tension induite dans toute boucle fermée perpendiculairement au champ. Le champ varie au cours du temps et une tension , qui lui est proportionnelle, est induite aux bornes de la bobine :

$$e = -\frac{d\emptyset}{dt} = -S\frac{dB}{dt} + B\frac{dS}{dt}$$
 (10)

où S est l'aire de la boucle.

A la fin du pulse, une impulsion optique déclenche l'ouverture des thyristors optiques de puissance. Cette méthode de décroissance est appelée méthode Crowbar.