

**HIGH-TEMPERATURE  
SUPERCONDUCTORS STUDIED  
BY NEUTRON SCATTERING AND  
ANGLE-RESOLVED PHOTOEMISSION  
SPECTROSCOPY (ARPES)  
EXPERIMENTS**



**JOËL MESOT**

## Remerciements

En premier lieu je souhaite remercier vivement la famille Latsis, les membres de sa Fondation, ainsi que le jury de l'Ecole Polytechnique de Zurich, d'avoir jugé mon travail digne du prix Latsis 2002. C'est pour moi un grand honneur de recevoir un tel prix et un encouragement à poursuivre mes recherches. Je remercie également le Professeur Albert Furrer pour m'avoir fait confiance et soutenu durant toutes ces années. Finalement, je tiens à saluer tous mes collaborateurs en Suisse, aux USA, ainsi qu'au Japon sans qui les travaux présentés ci-dessous n'auraient pu être menés à bien.

## Introduction

Les matériaux utilisés de nos jours par l'industrie électrique ou électronique sont composés d'éléments relativement simples : le cuivre pour le transport de l'électricité, le silicium pour les circuits intégrés, le Fer, Cobalt, Nickel, Manganèse ou un alliage de ces derniers pour les mémoires magnétiques de nos ordinateurs. La simplicité de ces matériaux rend leur utilisation relativement aisée, d'où un bas coût de fabrication. D'un autre côté, ces composants simples possèdent des limitations intrinsèques :

- Le transport d'électricité par fils de cuivre implique des pertes importantes.
- Le champ magnétique créé par les circuits à induction est limité.
- La technologie classique utilisée pour le stockage d'information atteindra dans quelques années sa densité limite.

...

Il est donc important de trouver des alternatives aux matériaux utilisés actuellement. Une voie prometteuse s'est ouverte avec la synthétisation d'une classe de complexes à base de métal et d'oxygène : les perovskites. En variant la composition chimique de ceux-ci, il est en effet possible de les transformer d'un isolant à un conducteur, éventuellement un supraconducteur. Pour plus de clarté, je me limiterai ci-dessous à ce dernier aspect.

## La supraconductivité

En 1911 G. Holst et K. Onnes, travaillant sur l'étude de la résistivité du mercure à la température de liquéfaction de l'hélium, découvrirent qu'elle s'annulait en dessous d'une température critique  $T_c = 4.15$  K ( $\approx -269$  degrés Celsius). Par la suite on étudia tous les éléments simples, et notamment les métaux qui se présentaient comme les meilleurs candidats pour l'observation de cet effet. On s'aperçut que tous les éléments n'étaient pas supraconducteurs, et, plus étonnant encore, que les meilleurs métaux (Cuivre, Or, Argent) ne présentaient aucune trace de supraconductivité ! Très rapidement une liste des éléments simples supraconducteurs fut établie, l'élément possédant la plus haute  $T_c$  étant le Niobium (avec 9.2 K). On chercha alors du côté des alliages : le Nitrure de Niobium (NbN) avec 17.3 K et  $Nb_3Ge$  avec 23.3 K (qui détint le record jusqu'en 1986) en sont de très bons exemples.

En 1957 Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS) publiaient, 46 ans après la découverte du phénomène, une théorie pouvant décrire la supraconductivité au niveau microscopique. Cela valut à ses auteurs de recevoir le prix Nobel en 1973. L'idée de base est qu'une partie des électrons s'attirent plus qu'ils ne se repoussent naturellement et se couplent en paires. L'origine de l'attraction est un phénomène lié à la vibration des atomes (que l'on appelle phonon). Les paires ainsi formées ont des moments magnétiques opposés et possèdent une énergie plus basse que les électrons séparés. Cet ensemble, n'ayant plus de raisons d'interagir avec son environnement, ne contribue plus à la résistance électrique.

## La révolution de 1986

En 1986, G. Bednorz et K.-A. Müller (IBM-Rüschlikon, CH) découvrirent un nouveau composé à base de Baryum, Lanthane, Cuivre et d'Oxygène (que l'on notera  $BaLaCuO$ ), un oxyde, qui devenait supraconducteur en dessous de 34 K ! Le record était battu et leur apporta le prix Nobel. Mais ce n'était qu'un début : neuf mois après, un composé à base d'Yttrium ( $YBaCuO$ ) avec  $T_c=92$  K, puis en 1993 (A. Schilling et H. R. Ott, ETHZ) un composé à base de Mercure et Calcium ( $HgCaCuO$ ) avec  $T_c=133$  K ( $\approx -140$  degrés Celsius) furent décou-

verts. La barrière de la température de liquéfaction de l'azote ( $77\text{ K} \approx 196\text{ Celsius}$ ) était largement dépassée. Ces découvertes offraient des perspectives économiques intéressantes, le prix de l'azote liquide étant nettement plus avantageux que celui de l'Hélium liquide et réveillaient les espoirs de pouvoir, un jour, découvrir un supraconducteur à température ambiante. De plus, la complexité de ces matériaux et leur comportement remettaient en cause la théorie BCS conventionnelle.

### **Quel est le mécanisme responsable pour la supraconductivité dans les oxydes ?**

La question alors posée est de savoir quelle est la source de supraconduction dans les oxydes de cuivre. Au lieu de laisser aux seuls phonons la responsabilité de l'attraction entre les électrons, on peut envisager d'autres causes, dont les interactions magnétiques. On remarque en effet que la phase supraconductrice côtoie une phase (antiferro)magnétique en variant la concentration électronique (dopage). L'augmentation du nombre d'électrons par dopage détruirait d'abord l'ordre magnétique statique laissant le champ libre au magnétisme dynamique (excitations magnétiques) favorables à l'émergence de la supraconductivité.

### **Mesurer les interactions**

Les phénomènes se produisant au niveau atomique doivent être décrit par la mécanique quantique. En simplifiant, nous dirons qu'un système microscopique, tel un ensemble d'atomes dans un corps solide, ne peut occuper que des niveaux d'énergie discrets (non-continus, ou quantifiés). Puisque la connaissance microscopique d'un matériau permet d'appréhender ses propriétés macroscopiques (transport électrique, aimantation...), les physiciens ont développé des outils permettant d'observer directement ces états quantiques.

Nous avons l'immense chance à l'Institut Paul Scherrer dans le canton d'Argovie de posséder plusieurs grands instruments de pointe permettant d'obtenir des informations microscopiques sur des composés couvrants des domaines aussi différents que la biologie ou la nanotechnologie. Ces instruments sont : la source à neutrons SINQ, la source à Muons et la source de lumière (synchrotron) SLS.

Dans les cas qui nous intéressent nous utilisons d'une part le fait que les neutrons et muons se comportent comme des aimants miniatures pour étudier les états microscopiques liés au magnétisme, d'autre part l'interaction du rayonnement synchrotron avec les charges électriques pour observer directement les états électroniques.

### **Trois exemples récents :**

A) Placé dans un faible champ magnétique externe, le supraconducteur se comporte comme un parfait diamagnétique : le champ est complètement exclu de l'échantillon. Notons que cet effet, à la base des trains à lévitation magnétique, représente une des rares manifestations directes, à un niveau macroscopique, de la mécanique quantique. Pour certains types de supraconducteurs, un champ magnétique plus intense peut pénétrer dans l'échantillon sous une forme quantifiée que nous appelons vortex. Par diffusion des neutrons, nous avons récemment réussi à observer directement la disposition spatiale (structure) des vortex magnétiques dans un des composés appartenant à la famille des oxydes de cuivre découverts par G. Bednorz et K.-A. Müller. Nos résultats montrent également que la structure des vortex subit une transformation de phase triangulaire à carrée en fonction du champ magnétique. Cette observation diffère de celles obtenues pour des composés simples et suggère que, pour les oxydes de cuivre, les théories classiques de la supraconductivité doivent être soit modifiées, soit abandonnées.

B) Dans l'état supraconducteur, la fonction spectrale (distribution en énergie des électrons) est caractérisée par l'ouverture d'une bande d'énergie interdite où les électrons ne peuvent se trouver, que l'on appelle 'gap' en anglais.

Les expériences réalisées à l'aide de synchrotrons de dernière génération permettent des mesures d'une telle précision que l'observation du gap supraconducteur et de son anisotropie est maintenant possible. Les mesures réalisées dans les composés au Bismuth BiSrCaCuO par plusieurs groupes indépendants ont démontré d'une manière particulièrement directe l'existence de directions cristallographiques où le gap s'annule. Ces résultats favorisent les théories reposant sur une origine électronique/magnétique de la supraconductivité dans ces composés.

C) Comme mentionné ci-dessus, les oxydes de cuivre non-dopés sont des isolants magnétiques. En fonction du dopage, le magnétisme *statique* disparaît pour laisser place au magnétisme *dynamique*. Les mesures de diffusion inélastique des neutrons montrent que, dans l'état supraconducteur, la réponse magnétique (susceptibilité) possède également une bande d'énergie interdite, indiquant l'existence d'une relation subtile entre les réponses électroniques et magnétiques dans ces matériaux.

### **Conclusion**

La quête de matériaux ayant de nouvelles propriétés électroniques ne fait que commencer. Les quelques exemples que je viens de vous donner démontrent que la complexité de ces composés est telle, que seule une approche combinant un grand nombre de techniques expérimentales et théoriques, permettra une compréhension microscopique de leurs propriétés. Dans le cas particulier des oxydes de cuivre supraconducteurs, le principal défi consiste à établir de manière univoque les relations existant entre la fonction spectrale, la susceptibilité magnétique et la réponse du réseau (vibration des atomes).