Variation de $H_{c2}(T \to 0)$ avec le dopage dans les cuprates $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ et $Nd_{0.4}La_{1.6-x}Sr_xCuO_4$

Viviane Noiseux
Département de physique de l'Université de Sherbrooke
Sous la supervision de Louis Taillefer*
(Date : 24 avril 2016)

L'étude des différentes phases des matériaux présentant une phase supraconductrice ainsi que les interactions entre ces phases est nécessaire dans l'optique de comprendre l'origine de la supraconductivité et éventuellement obtenir des supraconducteurs à température ambiante ou plus élevée. Le champ magnétique critique supérieur (H_{c2}) est un des nombreux facteurs permettant l'étude des interactions entre les phases des supraconducteurs. L'étude de sa dépendance selon le dopage de différents cuprates, qui sont à ce jour parmi les matériaux les plus prometteurs pour l'obtention de supraconducteurs à hautes températures critiques, pourrait permettre une meilleure compréhension de la compétition entre les différentes phases. Les valeurs de H_{c2} à température nulle ont été extrapolées à partir des courbes du champ critique de solide de vortex ($H_{vs}(T)$) et ont permis de confirmer la présence de compétition entre la phase d'ordre de spin et la supraconductivité dans $La_{2-x}Sr_xCuO_4$.

I. INTRODUCTION

La course aux matériaux supraconducteurs à hautes températures critiques a mené à la découverte de différents types de matériaux ayant des caractéristiques bien différentes, mais ayant en commun la supraconductivité. Les cuprates, découverts dans les années 1980, font partie de ces matériaux. Ils font aujourd'hui partie des matériaux les plus en vogue dans la recherche sur la supraconductivité parce qu'ils sont ceux présentant des températures critiques les plus élevées, mais aussi parce la possibilité de les doper et ainsi faire varier leurs propriétés en fait des cobayes de choix pour l'étude plus en profondeur des phénomènes supraconducteurs. Les cuprates sont des matériaux formés de différents atomes, mais tous présentent des successions de plans de cuivre-oxygène, d'où l'origine de leur nom. La conduction électrique se fait via les plans de CuO_2, mais est fortement influencée par le réseau atomique environnant, notamment par la variation du dopage.

$La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO) et $Nd_{0.4}La_{1.6-x}Sr_xCuO_4$ (NdLSCO) ici étudiés sont des composés issus du La_2CuO_4 (LCO) qui ont été dopés en trous via l'addition de strontium (Sr). Le néodyme (Nd) ajouté au LSCO pour l'obtention de NdLSCO vient modifier la structure, et est donc une façon supplémentaire de modifier les propriétés de transport.

Dans cette étude, des mesures en champ magnétique ont été réalisées dans le but d'étudier les variations de H_{vs} dans différents échantillons. Cette étude a permis de remonter à H_{c2} et ainsi observer sa dépendance en fonction du dopage pour LSCO et NdLSCO.

* Présenté à Yves Grosdidier et Louis Taillefer dans le cadre du cours d'initiation à la recherche, PHQ662

II. THÉORIE

La phase supraconductrice d'un matériau se caractérise par l'absence de résistivité électrique et un diamagnétisme parfait. Cette phase minimise l'énergie du système mais disparaît avec la température et le champ magnétique lorsque l'énergie fournie est suffisante pour laisser place à la phase normale. Afin d'étudier les propriétés de transport à basses températures, il est nécessaire de supprimer la supraconductivité afin de restaurer l'état normal et ainsi accéder aux paramètres critiques correspondant aux transitions entre les phases normales et supraconductrices. Les paramètres critiques de champ magnétique et de température éliminant la phase supraconductrice sont nommés T_c et H_c et sont les paramètres ici étudiés.

A. Types de supraconducteurs

Il existe deux types de supraconducteurs, définis par le rapport entre deux paramètres très importants : la longueur de cohérence ξ_0 et la longueur de pénétration λ_0. On appelle supraconducteur de type I les matériaux où $\xi_0 \gg \lambda_0$ et de type II les matériaux où $\xi_0 \ll \lambda_0$.

Un faible champ magnétique appliqué sur un échantillon supraconducteur est écranté par la présence de courants non dissipatifs dans l'échantillon. Dans les supraconducteurs de type I, la supraconductivité est complètement détruite lorsque le champ magnétique atteint la valeur critique H_c. Pour les supraconducteurs de type II, l'augmentation du champ magnétique externe jusqu'à un champ critique H_{c1} mène à l'apparition d'un état solide de vortex, c'est-à-dire un réseau de zones où le champ magnétique pénètre à l'intérieur de l'échantillon. Parce que ces zones ne sont plus supraconductrices, une cohabitation des phases normales et supraconductrices apparaît. Malgré la présence de ces zones de phase normale dans l'échantillon, le matériau demeure supracon-

ducteur puisqu'elles ne détruisent pas la supraconductivité dans tout l'échantillon, mais seulement au centre des vortex.

Effectivement, le matériel permet le confinement de lignes de champ magnétique de dimension de grandeur typique de λ_0. La fonction d'onde électronique qui caractérise la supraconductivité peut toutefois varier sur une échelle de grandeur ξ_0. Dans un supraconducteur de type II, comme $\xi_0 \ll \lambda_0$, cette fonction d'onde peut supporter l'interface entre les phases et n'est pas diffusée : la supraconductivité demeure. Dans un type I par contre, $\xi_0 \gg \lambda_0$ et la cohabitation de zones supraconductrices et normales est impossible.

Dans les supraconducteurs de type II, tels les cuprates, le champ magnétique critique inférieur, associé au champ magnétique où apparaît une cohabitation des phases normale et supraconductrice est H_{c1}. Il existe aussi un champ magnétique critique supérieur, H_{c2}, qui est associé à la disparition complète des zones de supraconductivité car la densité de vortex dans l'échantillon devient trop grande pour permettre l'existence de phases normales et supraconductrices. H_{c2} est donc un bon indicateur de la force de la phase supraconductrice. Il peut être relié à l'énergie de gap, soit la différence d'énergie entre les états de phase normale et de phase supraconductrice.

Expérimentalement, il est toutefois difficile d'avoir accès à la valeur de H_{c2}, d'une part parce que les champs nécessaires peuvent être très intenses, et d'autre part parce qu'il existe un intervalle de champ magnétique où les vortex ne sont plus immobiles, mais peuvent se déplacer : ils forment un liquide de vortex. Le mouvement des vortex dans l'échantillon a pour conséquence la dissimulation de la phase de supraconductivité en simulant la présence d'une phase normale dans tout l'échantillon. Le champ magnétique où les vortex deviennent mobiles et où la supraconductivité est diminuée est nommée H_{vs} et est compris entre les champs magnétiques critiques H_{c1} et H_{c2}. Pour des champs magnétiques supérieurs à H_{vs}, la résistivité est donc non nulle dû à la diffusion par les vortex de la supraconductivité. Le champ H_{vs} est plus facilement accessible expérimentalement, car la transition de résistivité à ce champ magnétique est plus évidente que la transition à H_{c2}. La figure 2 illustre des courbes de résistivité typiques dans le LSCO. Les H_{vs} y sont indiqués par des flèches, et correspondent au champ minimum nécessaire pour obtenir une résistivité non nulle, alors que H_{c2} est le champ maximum auquel la résistivité atteint sa résistivité de phase normale, ce qui est plus difficile à identifier.

B. Autres phases en compétition

Les cuprates sont une famille de matériaux présentant un diagramme de phase en dopage, ce qui est différent des supraconducteurs de type II conventionnels ne pouvant être dopés. La supraconductivité n'apparaît dans les cuprates qu'en dopant le composé parent, soit le LCO dans le cas présent. Un schéma du diagramme de phase du LSCO est présenté à la figure 1.

La zone supraconductrice (en gris) présente un dôme déformé dans le régime sous-dopé, c'est-à-dire à gauche du dopage maximisant la T_c (point rouge). Cette déformation coïncide avec les dômes d'ordre de charge (pointillé vert) et d'ordre de spin (pointillée bleu). Cela indique une possible compétition entre ces trois phases. La reconstruction de la surface de Fermi (FSR) illustrée sur cette figure est également vis-à-vis de la déformation du dôme supraconducteur, mais n'est pas une phase du matériau : ce n'est donc pas en compétition avec la supraconductivité. La FSR est toutefois intimement liée à l'ordre de charge. Déterminer la dépendance en dopage de $H_{c2}(T=0)$ est un moyen de vérifier la compétition entre ces phases, puisque qu'une compétition entraînerait une déviation dans la dépendance monotone de $H_{c2}(T=0)$. De plus, explorer $H_{c2}(p)$ à température nulle permet aux phases en compétition avec la supraconductivité de s'établir pleinement.

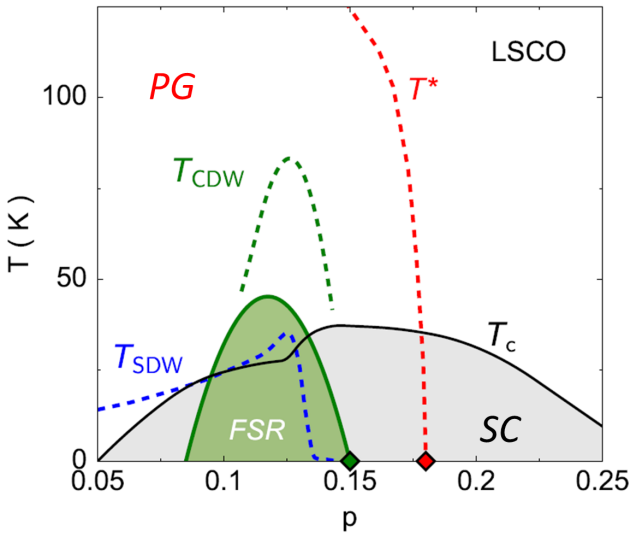

Figure 1: Diagramme de phase du LSCO à champ nul. T_{CDW} : température limitant de l'ordre de charge (pointillé vert), T_{SDW} : température limitant l'ordre de spin (pointillé bleu), T^* : température limitant le pseudo-gap (PG) (pointillé rouge), T_c : température limitant la supraconductivité (SC) (ligne pleine noire), FSR : zone reconstruction de la surface de Fermi (dôme vert)

L'étude de Grissonnanche et al[6] a permis de déterminer qu'à température nulle dans les cuprates, les champs H_{vs}(T=0) et H_{c2}(T=0) sont égaux. De plus, la théorie des liquides de vortex traduit bien la variation de $H_{vs}(T)$ dans les cuprates[8], malgré les différences qu'ont ces matériaux par rapport aux supraconducteurs de type II traditionnels. Il est donc possible d'extrapoler $H_{vs}(T)$ pour obtenir $H_{c2}(T=0)$ par un lissage suivant la formule implicite, tirée de Blatter et al. [1] :

$$\frac{\sqrt{h_{vs}(t)}}{1-h_{vs}(t)}\frac{t}{\sqrt{1-t}}\left(\sqrt{\frac{4(\sqrt{2}-1)}{1-h_{vs}(t)}}+1\right) = \frac{2\pi c_L^2}{\sqrt{G_i}} \qquad (1)$$

avec $h_{vs} = \dfrac{H_{vs}}{\mu_0 H_{c2}}$ et $t = T/T_c$. G_i et c_L sont les nombres de Ginzburg et de Lindemann respectivement et sont reliés à la courbure du lissage.

C. Résistivité

La résistivité électrique d'un matériau peut être déterminée par la mesure de la tension induite par un courant électrique appliqué à l'échantillon. Une mesure standard à quatre pointes est utilisée pour mesurer la résistivité parallèle au courant appliqué.

$$\rho_{xx} = \frac{\Delta V_{xx}}{I_{xx}} \frac{wt}{L} \tag{2}$$

où wt est la surface perpendiculaire à la circulation du courant et L est la distance entre les deux sondes de potentiel.

Lorsque le matériau est dans la phase supraconductrice, aucune différence de potentiel n'est mesurée entre les sondes de potentiel : la résistivité longitudinale est donc nulle. Lorsqu'un balayage en température est effectué, la mesure de la résistivité permet d'identifier la température critique du matériau. Si aucun champ magnétique n'est appliqué lors de cette mesure, la température critique obtenue est maximale, soit T_c. Au contraire, lorsque mesurée à température fixe, un balayage de champ magnétique de la résistivité permet d'identifier H_{vs}. Quelques isothermes de résistivité sont illustrés à la figure 2, permettant d'identifier les H_{vs} associés.

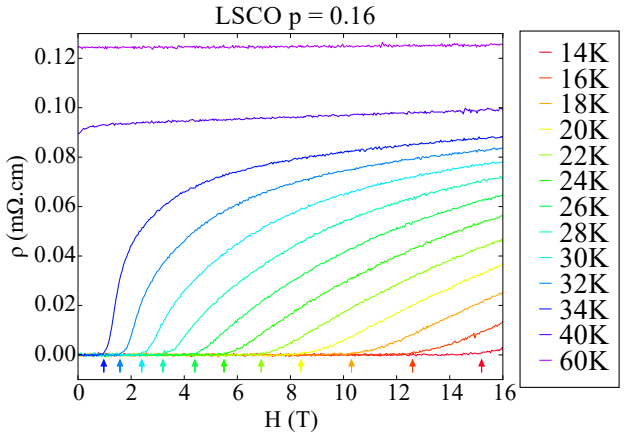

Figure 2: Isothermes de la résistivité électrique longitudinale pour un échantillon de LSCO p=0.16. Les flèches indiquent les positions associées aux valeurs de H_{vs} pour la température correspondante. Les courbes obtenues à plus basses températures ne présentent pas d'état normal sous le champ magnétique disponible de 16T. Les valeurs de H_{vs} ne peuvent donc pas être obtenues pour ces températures. Les courbes à 40 et 60K ne présentent pas de phase supraconductrice car les températures sont plus élevées que la température critique à champ nul.

D. Effet Seebeck

Un gradient de chaleur appliqué sur un échantillon provoque un déplacement global des charges d'une extrémité à l'autre du gradient par la différences des vitesses thermiques des électrons selon le gradient. Un champ électrique opposé au déplacement des charges et proportionnel au gradient thermique est alors établi pour annuler le courant créé par le gradient thermique. Dans la phase normale, la tension induite par le champ électrique peut donc être mesurée. C'est cette tension, divisée par le gradient de température entre les sondes de potentiel, qui correspond au coefficient de Seebeck.

$$S = -\frac{\Delta V_{xx}}{\Delta T_{xx}} \tag{3}$$

De la même façon que la résistivité, la tension induite dans le matériel chutera et demeurera nulle lors de la transition de la phase normale à la phase supraconductrice. C'est une façon équivalente pour déterminer $H_{vs}(T)$. Par contre, cette approche est sensible à la charge des porteurs ; son signe peut donc varier en fonction du champ appliqué avant de passer à la phase supraconductrice. Cette méthode possède aussi l'avantage d'être indépendante des dimensions des échantillons.

III. MÉTHODE

16 échantillons de LSCO sur une gamme de dopage p variant de 0.085 à 0.25 ainsi que 6 échantillons de NdLSCO sur une gamme de dopage p variant de 0.15

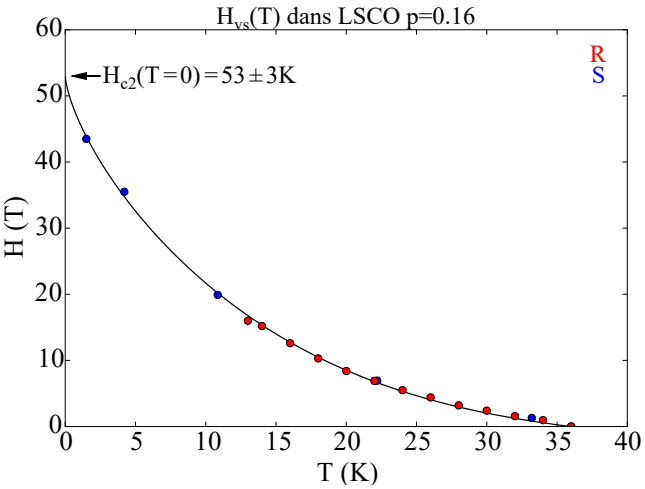

Figure 3: Graphique typique du champ magnétique critique H_{vs} en fonction de la température. Ce graphique correspond aux valeurs d'un échantillon de LSCO dopé à 16%. La courbe noire est le lissage de $H_{vs}(T)$ via la formule 1 sur les point en résistivité R (rouge). Les points bleus correspondent à des valeurs obtenues en effet Seebeck (S). Le $H_{c2}(T = 0)$ obtenu correspondant à cet échantillon est de (53 ± 3)T.

a 0.24 ont été analysés. Des valeurs de $H_{vs}(T)$ ont été obtenues par analyse des isothermes de résistivité électrique ou du coefficient de Seebeck selon le champ magnétique appliqué pour chaque échantillon et ont permis l'extrapolation des $H_{c2}(T = 0)$, via la formule 1[1], en fixant la température critique. Une courbe typique est présentée à la figure 3. $H_{vs}(T)$ présente une variation plus grande à basses températures qu'à haute température. Un meilleur lissage est donc obtenu si des points à très basses températures sont disponibles. Dans le cas de l'échantillon présenté à la figure 3, des mesures à hauts champs viennent confirmer la validité du lissage obtenu.

La longueur L typique des échantillons est de l'ordre du millimètre, cette direction étant perpendiculaire aux plans de CuO. L'épaisseur t et la largeur w typique sont de grandeurs de l'ordre de la centaine de micromètres.

IV. RÉSULTATS ET ANALYSE

Les courbes de $T_c(H = 0)$ et de $H_{c2}(T = 0)$ selon le dopage p dans le LSCO sont présentées à la figure 4a. Il est à noter que les valeurs de $H_{vs}(T)$ pour les échantillons à p=0.18 et 0.19 ne comportaient pas de valeurs à très basses température dû aux limitations de champ magnétique disponible lors de ces mesures. Des données à plus hauts champs, donc à plus basses températures, pour ces échantillons permettraient de préciser les valeurs de $H_{c2}(T = 0)$. Les valeurs obtenues seraient probablement plus grandes, puisque la courbure est plus difficile à évaluer lorsque les points à basses températures sont absents.

Les valeurs obtenues pour NdLSCO sont présentées à la figure 4b. Trop peu d'échantillons ont été analysés pour permettre une comparaison des courbes obtenues. Une analyse plus fine en dopage serait nécessaire pour confirmer ou infirmer la compétition entre les phases.

Pour LSCO, le dôme obtenu pour $H_{c2}(T = 0)$ présente en général la même forme que celui de $T_c(H = 0)$. A forts dopages, les dômes de $H_{c2}(T = 0)$ et de $T_c(H = 0)$ semblent bien se superposer, considérant les incertitudes sur les champs magnétiques ainsi que les températures. La courbe de la température critique présente un léger affaissement autour de p=0.12. Au même dopage, le dôme de $H_{c2}(T = 0)$ présente une déviation de la même forme, mais plus prononcée et plus évasée en dopage.

Ces affaissements sont dus à de la compétition entre différentes phases. Pour LSCO, les phases pouvant être responsables de ces affaissements sont l'ordre de charge et l'ordre de spin, présents à ces dopages.

L'ordre de spin est une phase qui s'amplifie avec l'application d'un champ magnétique[3, 4, 7]. Cette phase qui est présente jusqu'à environ p=0.13 dans LSCO à champ nul, s'évase jusqu'à de plus grands dopages avec le champ appliqué. L'affaissement plus prononcé et évasé de $H_{c2}(T = 0)$ comparativement à celui de T_c à champ magnétique nul, tel qu'observé à la figure 4a, semble donc indiquer qu'il y a effectivement une compétition entre les phases d'ordre de spin et de supraconductivité.

Figure 4: Champ magnétique critique à température nulle en fonction du dopage en strontium (points noirs) et température critique à champ nul (points rouges) dans a) LSCO et b) NdLSCO. Toutes les lignes sont des guides visuels.

Figure 5: Illustration de la compétition entre l'ordre de charge et la supraconductivité à différents champs magnétiques dans YBCO par rayons X.[2]