

Les supraconducteurs ferromagnétiques

Florence Lévy-Bertrand⁽¹⁾ (florence.levy-bertrand@grenoble.cnrs.fr)
 et Kees van der Beek⁽²⁾ (kees.vanderbeek@polytechnique.edu)

(1) Institut Néel, 25 avenue des Martyrs, bâtiment E, BP 166, 38042 Grenoble Cedex 9.

(2) Laboratoire des Solides Irradiés, École polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex

Ferromagnétisme et supraconductivité sont habituellement considérés comme deux ordres antagonistes. En effet, un champ magnétique tend à détruire la supraconductivité, tandis qu'un matériau ferromagnétique présente un champ magnétique interne créé par son aimantation. Pourtant, dès les années 1980, inspirés par la superfluidité de l'hélium 3, des théoriciens proposent une supraconductivité exotique générée par le magnétisme.

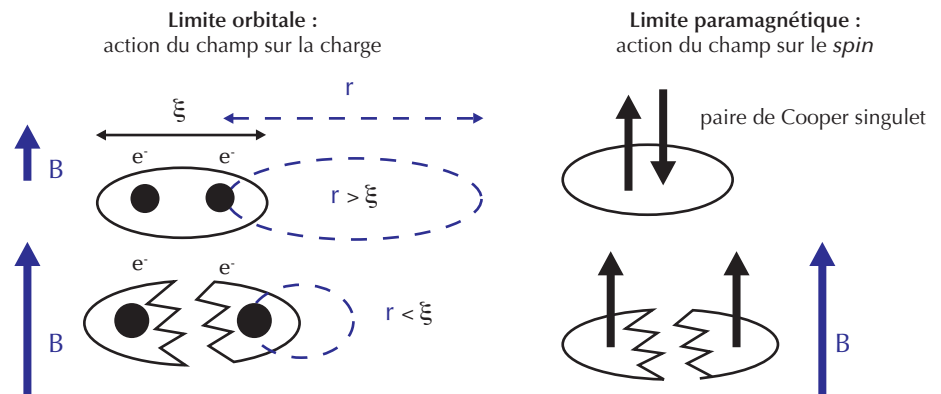
C'est seulement vingt ans plus tard qu'on découvre enfin des matériaux présentant l'effet coopératif de ces deux états. Dans ces composés, les fluctuations magnétiques seraient responsables de l'appariement des électrons en paires de Cooper avec des *spins* parallèles.

Dans la plupart des cas, à basse température, un matériau est soit un aimant, soit un supraconducteur. Cet article examine comment, dans certains cas très spécifiques, il peut être les deux à la fois.

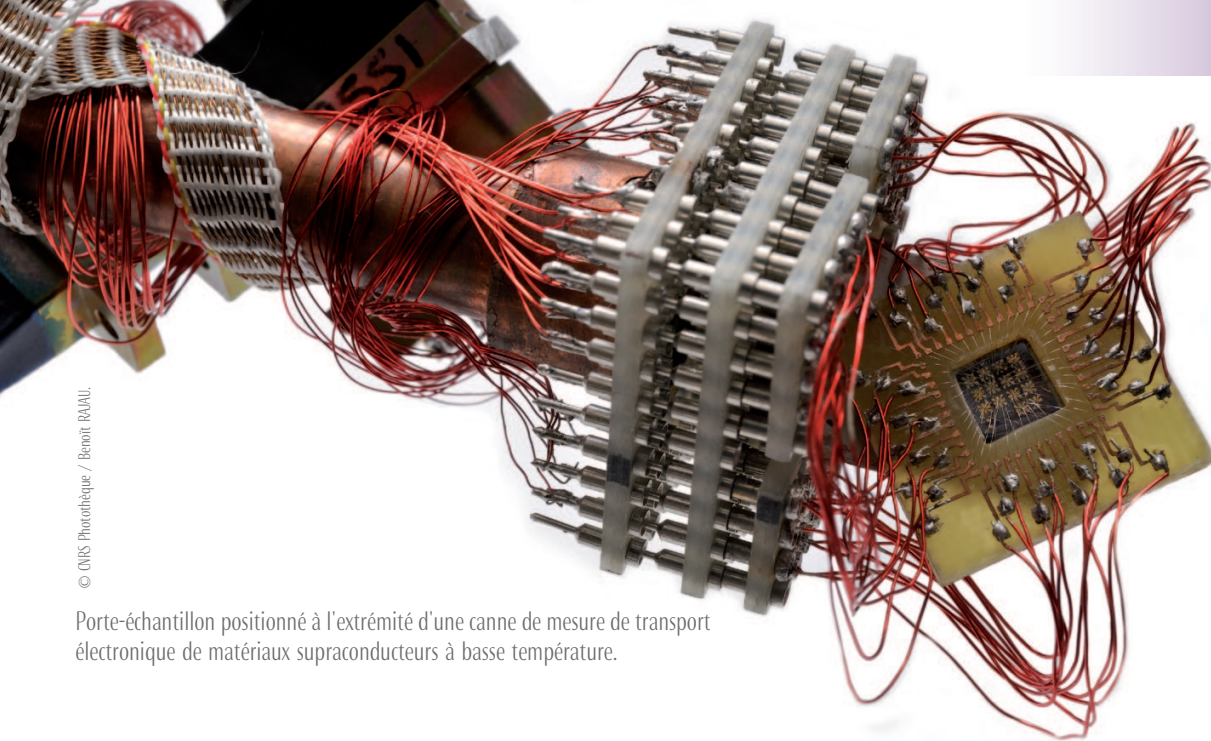
Le problème de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme a été étudié théoriquement par Ginzburg dès 1957 [1]. Il estime que cette coexistence est possible à condition que l'induction interne créée par l'aimantation du composé n'excède pas le champ magnétique critique (au-dessus duquel la supraconductivité est détruite [2]). Au vu des valeurs des champs critiques alors connues et des aimantations spontanées mesurées dans les matériaux ferromagnétiques, l'observation d'une telle coexistence semble délicate. Ginzburg propose alors d'étudier des couches minces magnétiques, dans lesquelles une aimantation importante ne donne lieu qu'à un champ modeste. En 1958, B.T. Matthias et ses collaborateurs montrent que même

un très faible pourcentage d'impuretés magnétiques suffit à détruire la supraconductivité du lanthane [3].

Au cours des années 1970, on observe à la fois supraconductivité et ferromagnétisme dans les composés ErRh_4B_4 et HoMo_6S_8 [4]. Or, ici encore, les deux phénomènes apparaissent antagonistes. Pour une température décroissante, ces composés deviennent d'abord supraconducteurs, puis un ferromagnétisme périodiquement modulé se développe. En dessous d'une température seuil très basse, un ordre ferromagnétique uniforme classique s'établit et, à cette même température, la supraconductivité est supprimée. Lorsque coexistent la supraconductivité et le ferromagnétisme modulé, la période de modulation est plus petite que la longueur de cohérence ξ (ou « taille ») des paires de Cooper [2] : ces dernières ressentent donc un champ magnétique nul en moyenne.



1. Effet du champ magnétique B sur un supraconducteur. Le champ magnétique tend à détruire les paires de Cooper par deux mécanismes, liés à son action respective sur la charge (figure de gauche) et sur le *spin* (figure de droite) des électrons composant la paire.



© OMS Photoblog / Benoit FAUJOU.

Porte-échantillon positionné à l'extrémité d'une canne de mesure de transport électronique de matériaux supraconducteurs à basse température.

Supraconductivité et ferromagnétisme : deux ordres, *a priori*, antagonistes.

Un matériau est dit ferromagnétique s'il présente une aimantation spontanée. Celle-ci va agir comme un champ magnétique interne. Or, le champ magnétique B tend à détruire la supraconductivité. Deux limitations sont à l'œuvre : la limite orbitale et la limite paramagnétique (fig. 1) [5].

La **limite orbitale** correspond à l'action d'un champ magnétique sur la charge des électrons. Sous champ magnétique, les électrons décrivent des trajectoires circulaires. Le rayon r de leurs trajectoires est d'autant plus petit que le champ magnétique est grand. En gros, tant que $r > \xi$, la paire de Cooper effectue une précession comme un tout autour de la direction du champ magnétique ; quand $r < \xi$, la limite orbitale est atteinte : chaque électron a une orbite séparée, la cohérence de la fonction d'onde « paire de Cooper » ne peut être maintenue et la supraconductivité est détruite.

La **limite paramagnétique** est due à l'action du champ magnétique sur le moment magnétique intrinsèque, ou *spin*, des électrons. Le champ magnétique tend à aligner les *spins* des électrons qui forment les paires de Cooper. Pour un état *singulet*, c'est-à-dire dans lequel les *spins* de la paire de Cooper sont antiparallèles, la supraconductivité est détruite si le gain d'énergie $g\mu_B$ (dit de Zeeman) obtenu par l'alignement des *spins* avec le champ magnétique est plus important que l'énergie gagnée par la condensation des paires dans l'état supraconducteur. Cette limite paramagnétique n'existe pas dans le cas d'un état *triplet*, où les *spins* de la paire de Cooper sont *déjà parallèles*.

Supraconductivité et ferromagnétisme : une collaboration possible... théoriquement.

A priori, la supraconductivité et le ferromagnétisme ne font donc pas bon ménage. C'est la découverte de la superfluidité de l'hélium 3 (^3He) en 1972 qui remet en cause ce paradigme. La superfluidité désigne la propriété de s'écouler sans viscosité, comme le courant s'écoule sans friction dans un supraconducteur. La découverte de la superfluidité de ^3He inspire plusieurs analogies. Comme l'électron, l'atome d'hélium 3 est un fermion et porte un *spin*. L'hélium 3 superfluide pourrait donc être l'analogue d'un supraconducteur, où le condensat de paires d'électrons serait remplacé par celui de paires d'atomes ^3He [6]. Mais le parallèle s'arrête là : dans l'hélium 3 liquide, il n'y a pas de réseau cristallin, donc pas de phonons assurant l'interaction attractive entre les composantes des paires de Cooper [2]. *L'interaction attractive indirecte entre les atomes de ^3He a pour origine l'interaction d'échange entre les moments magnétiques (spins) portés par les atomes.*

L'interaction d'échange est un effet purement quantique. En raison du principe d'exclusion de Pauli, qui stipule que deux fermions ne peuvent occuper le même état quantique simultanément, la fonction d'onde qui les décrit doit être antisymétrique. La fonction d'onde est le produit d'une partie orbitale et d'une partie de *spin*. Cette dernière peut-être triplet (*spins* parallèles) ou singulet (*spins* antiparallèles). L'énergie de la paire de fermions est minimum pour une des deux configurations, singulet ou triplet. La différence d'énergie

entre ces deux états est appelée « énergie d'échange ». La valeur et le signe de l'énergie d'échange dépendent de l'hamiltonien du système (énergie cinétique et répulsion coulombienne pour les électrons, ou répulsion de sphères dures pour les atomes de ^3He). *Pour ^3He , l'interaction d'échange tend à appairer deux atomes ayant des spins parallèles.* Les paires d'atomes d'hélium 3 forment des bosons et peuvent alors condenser. Cette fois-ci, contrairement à la supraconductivité classique BCS, la paire porte un moment magnétique. L'étendue spatiale d'une paire est anisotrope : elle reflète l'anisotropie du potentiel attractif (dont l'efficacité dépend de l'angle entre les *spins* des deux atomes d'hélium 3). Le paramètre d'ordre de l'hélium 3 est triplet de type p (cf. encadré p. 7). La même interaction d'échange est à l'origine du ferromagnétisme des métaux, puisqu'elle tend à aligner les moments magnétiques.

Moins de dix ans après la découverte de la superfluidité de l'hélium 3, un modèle de supraconductivité exotique coexistant avec un ordre ferromagnétique est proposé [7]. Dans ce modèle, les fluctuations ferromagnétiques sont responsables de l'appariement d'électrons aux *spins* parallèles. Non seulement la supraconductivité coexiste avec un ordre ferromagnétique itinérant, mais les mêmes fluctuations magnétiques génèrent les deux états, provenant des mêmes électrons. Le champ magnétique interne dû à l'état ferromagnétique ne casse pas les paires de Cooper, car les *spins* des électrons sont déjà parallèles : il n'y a plus de limite paramagnétique. Le paramètre d'ordre supraconducteur ferromagnétique proposé est triplet de type p, comme pour ^3He .

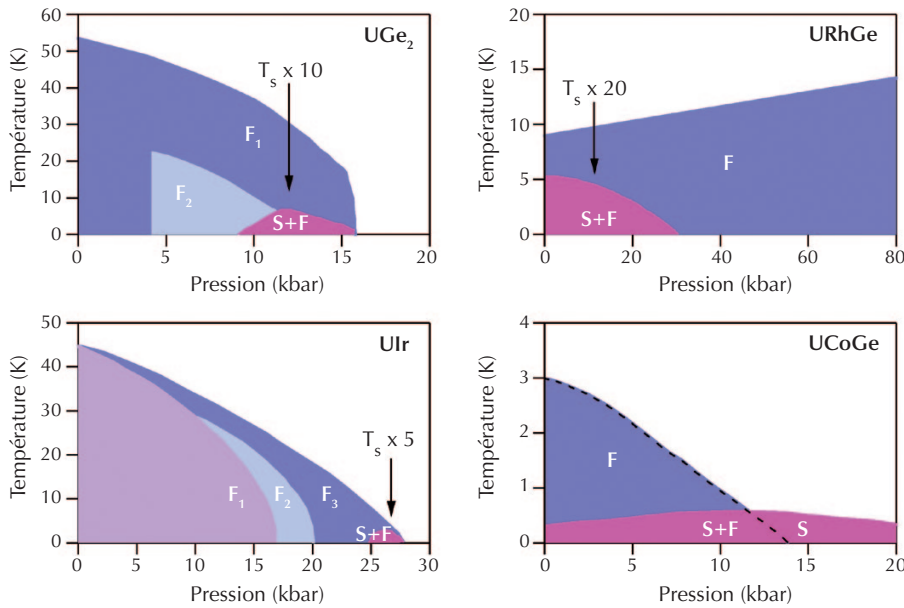


>>> Supraconductivité et ferromagnétisme : une collaboration possible... effectivement.

C'est seulement dans les années 2000 que des matériaux où coexistaient un état supraconducteur et un état ferromagnétique ont été découverts. À ce jour, ils sont quatre : UGe_2 , URhGe , UIr et UCoGe [8]. Pour une température décroissante, ces composés deviennent d'abord ferromagnétiques en dessous de la température de Curie T_C , puis, à une autre température critique T_S ils deviennent, en plus, supraconducteurs (cf. tableau ci-dessous). Pour UGe_2 et UIr , la supraconductivité apparaît uniquement sous pression. La figure 2 présente les diagrammes de phase schématiques température–pression de ces quatre supraconducteurs ferromagnétiques. Dans ces composés, le ferromagnétisme est plutôt itinérant et provient des couches électroniques 5f incomplètes de l'uranium.

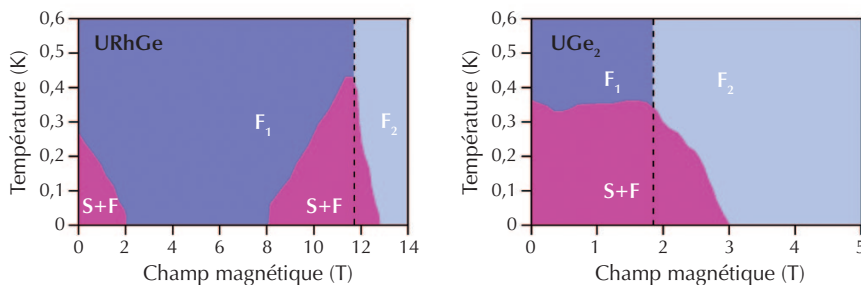
Un point délicat dans le domaine des supraconducteurs magnétiques est de déterminer si la coexistence de la supraconductivité et du magnétisme a lieu à l'échelle microscopique, ou s'il y a séparation spatiale de ces deux états. Étant donnée la nature *a priori* antagoniste du ferromagnétisme et de la supraconductivité, ce point est particulièrement important ici. Pour UCoGe et UGe_2 , des mesures de résonance quadrupolaire magnétique, sensibles au niveau microscopique aux propriétés magnétiques et électroniques, démontrent la coexistence spatiale de ces deux états. Pour URhGe et UIr , la démonstration de cette coexistence, plus indirecte, s'appuie sur des mesures sensibles au niveau macroscopique à l'aimantation d'une part et, d'autre part, à la supraconductivité. Par conséquent, à l'encontre du paradigme, on peut conclure que : *dans les supraconducteurs ferromagnétiques, il y a coexistence à l'échelle microscopique du ferromagnétisme et de la supraconductivité.*

Au-delà de leur coexistence, ces deux propriétés semblent même collaborer. Tout d'abord, sauf pour UCoGe , la phase supraconductrice existe uniquement au sein de la phase ferromagnétique (fig. 2). De plus, dans URhGe et UGe_2 , les deux composés les plus étudiés jusqu'à présent, la supraconductivité est spectaculairement renforcée à proximité d'une transition entre deux phases ferromagnétiques (fig. 3).



2. Diagrammes de phase température–pression schématiques des composés ferromagnétiques supraconducteurs UGe_2 , URhGe , UIr et UCoGe .

La supraconductivité (S) est en rose. Le ferromagnétisme (F) est en violet. Plusieurs ordres ferromagnétiques, différant par l'orientation et/ou l'amplitude des moments magnétiques, sont parfois observés (F_1 , F_2 et F_3).



3. Diagramme de phase température–champ magnétique de URhGe (à gauche) et de UGe_2 (à droite).

La supraconductivité (S) est en rose. Les différents ordres ferromagnétiques sont en violet (F).

Les composés supraconducteurs ferromagnétiques.

Composé	Découvert en	T_C	T_S (P)	P : pression
UGe_2	2000	53 K	800 mK	12 kbar
URhGe	2001	9,5 K	270 mK	0
UIr	2004	45 K	140 mK	26 kbar
UCoGe	2007	3 K	600 mK	0

Dans URhGe, la supraconductivité est dans un premier temps détruite par le champ magnétique, lorsque celui-ci atteint environ 2 T (teslas). L'évolution de la température critique supraconductrice en fonction du champ magnétique est (presque) classique, similaire à celle observée dans de nombreux supraconducteurs dits conventionnels. L'inattendu arrive autour d'une transition magnétique induite par le champ appliqué : la supraconductivité réapparaît alors que le champ magnétique B vaut 8 T. La température critique de la supraconductivité atteint même son maximum pour B = 12 T, exactement à la transition entre les deux phases ferromagnétiques F₁ et F₂ (fig. 3). Le champ magnétique dépasse alors très largement la limite paramagnétique (fig. 1), qui est de l'ordre de 0,5 T. Un phénomène similaire est observé dans UGe₂. En effet, malgré le champ magnétique croissant, la température critique supraconductrice T_S ne décroît pas classiquement. Comme dans URhGe, T_S semble renforcée au niveau d'une transition magnétique.

Dans les deux composés, la nature de cette transition est différente : pour URhGe, elle correspond à une brusque rotation des moments magnétiques, tandis que dans UGe₂ c'est l'amplitude des moments magnétiques qui varie brutalement. Cependant, dans les deux cas, la supraconductivité est renforcée autour d'une transition magnétique, là où les fluctuations magnétiques sont les plus fortes. De telles observations suggèrent que ces fluctuations jouent un rôle important dans le mécanisme de la supraconductivité de ces composés.

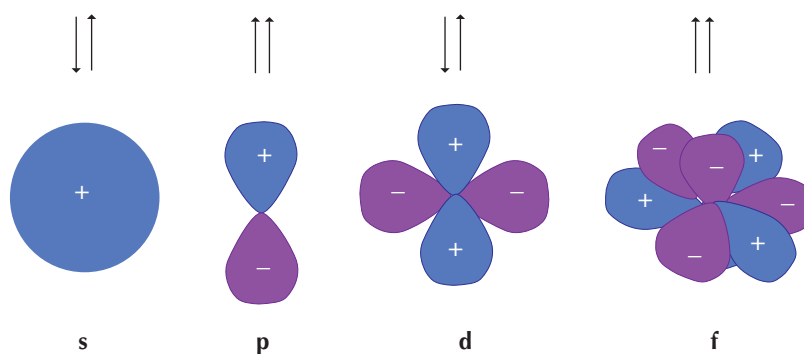
Les fluctuations magnétiques : coupables universelles ?

Au-delà des supraconducteurs ferromagnétiques, les fluctuations magnétiques pourraient jouer un rôle clef dans le mécanisme de la supraconductivité « exotique ». En particulier, dans les supraconducteurs à haute température critique, le couplage des paires de Cooper serait de type antiferromagnétique, même si aucun consensus n'a été atteint [9]. Très récemment, la découverte en 2008 de la supraconductivité dans des composés à base de fer a porté à son comble l'excitation autour de la coexistence du magnétisme et de la supraconductivité [10]. ■

► Symétries du paramètre d'ordre supraconducteur

L'état supraconducteur est un condensat de paires d'électrons (ou de trous) : les paires de Cooper [2]. Le condensat est une superposition cohérente de ces paires : toutes les paires sont « intriquées » dans le même état quantique macroscopique cohérent et sont décrites par une même fonction d'onde, appelée le « paramètre d'ordre supraconducteur ». La fonction d'onde décrivant l'état d'une seule paire est le produit d'une partie orbitale et de l'état de *spin*. La partie orbitale décrit l'étendue spatiale ξ de la paire. L'état de *spin* décrit l'orientation des moments magnétiques intrinsèques des électrons composant la paire. Il est important de noter que les porteurs de charge, électrons ou trous, composant une paire sont des fermions. Par conséquent, la fonction d'onde totale est antisymétrique par rapport à l'échange de ces porteurs : si la partie orbitale est symétrique, alors l'état de *spin* doit être antisymétrique, et réciproquement. L'état de *spin* est antisymétrique quand les *spins* des paires de Cooper sont *antiparallèles* : le *spin* total de la paire est nul et l'état de *spin* est dit *singulet*. Quand les *spins* sont *parallèles*, la paire de Cooper est magnétique, l'état de *spin* est symétrique et est dénommé état *triplet*. Les termes singulet et triplet proviennent du fait qu'il existe, respectivement, une et trois fonctions d'onde de *spin* pour ces états. Quand l'étendue spatiale de la paire est isotrope, la partie orbitale est symétrique de type s. Pour des distributions spatiales anisotropes, la partie orbitale peut être de type p, d, f, etc., par analogie avec les orbitales de la physique atomique. La symétrie effectivement adoptée dépend du détail de l'interaction qui lie les composantes de la paire de Cooper. On note que les états de type p et f sont impairs, et que ceux de type s et d sont pairs.

Dans les supraconducteurs dits conventionnels, les phonons, vibrations du réseau d'ions, créent une interaction attractive entre électrons à l'origine de la formation des paires de Cooper. Cette interaction est (relativement) isotrope, c'est pourquoi elle donne lieu à un état orbital isotrope : les électrons se couplent en paires de Cooper dont l'étendue spatiale est isotrope, avec des *spins* antiparallèles : le paramètre d'ordre est singulet de type s.



Symétries de paramètres d'ordre. Si l'état de *spin* de la paire de Cooper est antisymétrique (*spins* antiparallèles, indiqués par les flèches), la partie orbitale est paire (marquée par les couleurs et les signes). Si la partie *spin* est symétrique, la partie orbitale est impaire.

Bibliographie

- 1• V.L. Ginzburg, *Soviet Physics JEPT* **4** (1957) 153.
- 2• K. van der Beek, *Reflète de la Physique* n°27 (2011), p. 6.
- 3• B.T. Matthias *et al.*, *Physical Review Letters* **1** (1958) 92.
- 4• F. Hardy, thèse (2004), pp. 5-10, en accès libre sur le site <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00008410>
- 5• J.P. Brison *et al.*, *Images de la physique* (1997), en accès libre sur le site www.cnrs.fr/publications/imagesdelaphysique/1997.htm
- 6• J.F. Annett, *Superconductivity, Superfluids and Condensates*, Oxford University Press (2004).
- 7• D. Fay et J. Appel, *Physical Review* **B 22** (1980) 3173.
- 8• A. de Visser, "Superconducting ferromagnets", dans *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*, Eds K.H.J. Buschow *et al.*, Elsevier, Oxford (2010), pp. 1-6. www.science.uva.nl/research/cmp/docs/deVisser/2010/EMSAT-2010-1.pdf
- 9• P. Bourges et Y. Sidis, *Reflète de la Physique* n°31 (2012), p. 4.
- 10• P. Bourges et Y. Sidis, *Reflète de la Physique* n°31 (2012), p. 10.