

Changement universel de la symétrie d'appariement
dans les supraconducteurs KFe_2As_2 , RbFe_2As_2 et
 CsFe_2As_2 .

par

Alexandre Ouellet

Mémoire présenté au département de physique
en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ des SCIENCES
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 17 février 2016

Le 17 février 2016

le jury a accepté le mémoire de Monsieur Alexandre Ouellet dans sa version finale.

Membres du jury

Professeur Louis Taillefer
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur René Côté
Membre interne
Département de physique

Professeur Jeffrey Quilliam
Président rapporteur
Département de physique

À Jessica,
qui m'attendait le soir
quand j'allais remplir le CMR...

Sommaire

Lors d'études précédentes, il a été observé que la température critique de la transition supraconductrice des matériaux KFe_2As_2 et CsFe_2As_2 diminue en fonction d'une pression hydrostatique pour ensuite remonter après avoir dépassé une certaine pression critique (17,5 et 14 kbar). La mesure du coefficient de Hall à température nulle, ainsi que des mesures des oscillations de de Haas-van Alphen, indique que ce changement brusque de comportement n'est pas dû à un changement dans la surface de Fermi. Afin d'expliquer ce phénomène, l'hypothèse apportée est celle d'un changement de la symétrie d'appariement des paires de Cooper. Une transition d'une symétrie de type d à une de type s est supportée par l'ajout d'impuretés, des mesures de conductivité thermique et l'évolution en pression de la résistivité.

Dans le cadre de ce mémoire, la résistivité, l'effet Hall et le champ critique supérieur ont été mesurés pour le matériau RbFe_2As_2 en fonction d'une pression hydrostatique, complétant ainsi le portrait pour trois matériaux de même structure. Comme pour les deux premiers matériaux, une remontée de la température critique à une certaine pression critique (11 kbar) est observée, sans conséquence notable sur l'effet Hall. De plus, les données de champ critique supérieur, analysées conjointement à des données déjà prises pour KFe_2As_2 , montrent un saut de la quantité $\frac{1}{T_c} \left(-\frac{\partial H_{c2}}{\partial T} \right)_{T_c}$ à la pression critique, ce qui indique un changement de la structure du gap supraconducteur et consolide le scénario d'un changement de la symétrie d'appariement des paires de Cooper.

Remerciements

Ces deux années à travailler sur mon projet de maîtrise ont été pour moi une formidable expérience. Entre le travail au laboratoire, les conférences, une semaine de travail au laboratoire des champs magnétiques intenses en Floride et la rédaction d'un article, j'ai surtout eu la chance d'être entouré d'une équipe avec laquelle il faisait bon travailler et rigoler. Merci à Louis de m'avoir offert tant d'opportunités. Merci à toute l'équipe pour ces deux belles années.

De façon plus spécifique, j'aimerais remercier Fazel pour l'encadrement et l'enseignement qu'il m'a prodigué lors de mon arrivée dans le groupe. Notre projet commun qui est le coeur de ce mémoire a été un plaisir à réaliser, malgré toute la pression (littérale et figurée) qu'il impliquait. Je conserve un merveilleux souvenir de ton éternelle bonne humeur. Je suis heureux que tes efforts soient récompensés par cette belle opportunité à Boston.

Puis, j'aimerais remercier Sven avec qui je me suis cassé la tête sur le projet de contrainte uniaxiale. D'abord, merci de m'avoir accordé ta confiance pour prendre en charge le projet. Ensuite, merci pour tes suggestions et conseils qui m'ont sorti de nombreuses impasses. C'est un plaisir de travailler avec toi et ta franche camaraderie. Je perçois pour toi et ta petite famille un très bel avenir.

Enfin, merci à tous les autres pour les conseils et tous les beaux moments partagés.

En plus de mes collègues de tous les jours, j'aimerais remercier A. F. Wang, X.-G. Luo et X. H. Chen du département de physique de l'Université de la Science et de la Technologie de Chine. Grâce à leur générosité et leur travail, l'équipe du professeur Taillefer a accès à des échantillons supraconducteurs à base de fer de très grande qualité. Les échantillons fournis par cette équipe ont permis la réalisation des trois études qui sont le coeur de ce mémoire. Sans cette précieuse collaboration, la découverte de cette intrigante transition sous pression n'aurait pas eu lieu au sein de notre équipe.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Sommaire | ii |
| Introduction | 1 |
| 1 Concepts de base et théorie | 3 |
| 1.1 La structure cristalline | 3 |
| 1.1.1 Réseau réel | 3 |
| 1.1.2 Réseau réciproque | 4 |
| 1.2 La supraconductivité | 6 |
| 1.2.1 Supraconductivité conventionnelle | 6 |
| 1.2.2 Supraconductivité non conventionnelle | 7 |
| 1.2.3 Gap supraconducteur | 8 |
| 1.3 Le transport électrique | 11 |
| 1.3.1 La résistivité | 11 |
| 1.3.2 L'effet Hall | 12 |
| 1.4 Le champ magnétique | 15 |
| 2 Revue de la littérature | 16 |
| 2.1 Évolution du gap supraconducteur dans $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ | 18 |
| 2.2 L'ambiguïté entourant la symétrie d'appariement dans le matériau KFe_2As_2 | 19 |
| 2.2.1 Expériences | 19 |
| 2.2.2 Modèles théoriques | 22 |
| 2.3 Les supraconducteurs à base de fer de structure 122 dopés en trous | 23 |
| 3 Méthodes expérimentales | 27 |
| 3.1 Mesures électriques | 27 |
| 3.2 Jauge de plomb | 28 |
| 3.3 Pression | 30 |
| 3.3.1 Préparation de la pièce d'insertion des fils | 30 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 3.3.2 | Préparation du plateau des échantillons | 33 |
| 3.3.3 | Installation des échantillons | 33 |
| 3.3.4 | Préparation de la cellule de pression | 33 |
| 3.3.5 | Pressurisation | 34 |
| 3.4 | Cryogénie | 35 |
| 3.4.1 | Cryostat d'hélium liquide | 35 |
| 3.4.2 | Évaporation de l'hélium liquide | 35 |
| 3.4.3 | Désaimantation magnétique | 35 |
| 3.5 | Champ magnétique | 37 |
| 4 | Résultats expérimentaux préliminaires | 38 |
| 4.1 | Diagramme en forme de V pour KFe_2As_2 | 38 |
| 4.2 | Diagramme en forme de V pour CsFe_2As_2 | 39 |
| 4.3 | Reproduction des résultats | 41 |
| 4.3.1 | Travaux expérimentaux | 41 |
| 4.3.2 | Travaux théoriques | 42 |
| 4.4 | Effets similaires | 45 |
| 5 | Résultats expérimentaux | 48 |
| 5.1 | Mesure de la résistivité | 48 |
| 5.2 | Mesure du champ supérieur critique H_{c2} | 53 |
| 5.3 | Mesure de l'effet Hall | 55 |
| 6 | Discussion | 57 |
| 6.1 | Comportement étrange de la pression critique | 57 |
| 6.2 | Comportement universel à la pression critique | 61 |
| 6.2.1 | Évolution de la température critique minimale | 61 |
| 6.2.2 | Diagramme de phase | 61 |
| 6.2.3 | Coefficient de Hall à température nulle | 64 |
| 6.2.4 | Diffusion inélastique | 64 |
| 6.2.5 | Théorie de Helfand-Werthamer pour un gap anisotrope | 67 |
| 6.2.6 | Saut universel | 68 |
| 6.2.7 | Changement de la symétrie d'appariement | 70 |
| | Conclusion | 70 |
| A | Graphiques supplémentaires | 72 |
| A.1 | Mesure de la résistivité | 73 |
| A.1.1 | Courbes de refroidissement | 73 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| A.1.2 | Extraction de la température critique | 74 |
| A.2 | Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température critique | 75 |
| A.2.1 | Données brutes | 75 |
| A.2.2 | Extraction de la température critique | 78 |
| B | Graphiques pour l'échantillon Rb2 | 81 |
| B.1 | Mesure de la résistivité | 82 |
| B.1.1 | Courbes de refroidissement | 82 |
| B.1.2 | Transition supraconductrice | 82 |
| B.1.3 | Extraction de la température critique | 84 |
| B.2 | Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température critique | 85 |
| B.2.1 | Données brutes | 85 |
| B.2.2 | Extraction de la température critique | 88 |
| B.2.3 | Dépendance en champ de la température critique | 91 |
| B.3 | Mesure de l'effet Hall | 92 |
| | Bibliographie | 92 |

Table des figures

| | | |
|-----|--|----|
| 1.1 | Structure cristalline de BaFe_2As_2 | 4 |
| 1.2 | Définition des paramètres de maille | 5 |
| 1.3 | Exemple de surface de Fermi | 6 |
| 1.4 | Illustration des symétries d'appariement | 9 |
| 1.5 | Symétries d'appariement des supraconducteurs à base de fer | 10 |
| 1.6 | Théorie de l'effet Hall | 13 |
| 2.1 | Surface de Fermi des supraconducteurs à base de fer | 17 |
| 2.2 | Gaps supraconducteurs de KFe_2As_2 par technique ARPES | 20 |
| 2.3 | Comportement particulier des supraconducteurs à base de fer dopés en trous | 21 |
| 2.4 | Modèle pour symétrie de type d dans KFe_2As_2 | 25 |
| 2.5 | Surface de Fermi de KFe_2As_2 | 26 |
| 3.1 | Schéma des contacts électriques | 28 |
| 3.2 | Jauge de pression | 29 |
| 3.3 | Pièces de la cellule de pression | 31 |
| 3.4 | Schéma de la cellule de pression | 32 |
| 3.5 | Schéma du système de cryogénie | 36 |
| 4.1 | Mesure de T_c à différentes pressions de KFe_2As_2 | 39 |
| 4.2 | Diagramme de phase de KFe_2As_2 | 40 |
| 4.3 | Mesure de T_c à différentes pressions de CsFe_2As_2 | 40 |
| 4.4 | Diagramme de phase de CsFe_2As_2 | 41 |
| 4.5 | Modèle d'évolution de la densité d'état | 43 |
| 4.6 | Modèle de changement de la symétrie | 44 |
| 4.7 | Diagramme de phase de $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ | 46 |
| 4.8 | Changement de comportement du matériau PbTaSe_2 | 47 |
| 5.1 | Mesure de T_c à différentes pressions de RbFe_2As_2 | 49 |

| | | |
|------|---|----|
| 5.2 | Tableau récapitulatif des résultats de RbFe_2As_2 | 50 |
| 5.3 | Diagramme de phase de RbFe_2As_2 | 51 |
| 5.4 | Résistivité inélastique | 52 |
| 5.5 | Champ supérieur critique | 54 |
| 5.6 | Évolution de $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ | 54 |
| 5.7 | Coefficient de Hall de RbFe_2As_2 | 56 |
| 5.8 | Évolution de $R_H(0)$ | 56 |
| 6.1 | Diagramme de phase des supraconducteurs à base de fer dopés en trous | 58 |
| 6.2 | Prédiction de la pression critique | 59 |
| 6.3 | Imprévisibilité de la pression critique | 60 |
| 6.4 | Évolution de T_c en fonction de ρ_0 | 62 |
| 6.5 | Diagramme de phase universel | 63 |
| 6.6 | Évolution monotone des coefficients de Hall | 65 |
| 6.7 | Résistivité inélastique universelle | 66 |
| 6.8 | Saut universel | 69 |
| A.1 | Courbes de refroidissement, Rb1 | 73 |
| A.2 | Extraire T_c , basses pressions, Rb1 | 74 |
| A.3 | Extraire T_c , hautes pressions, Rb1 | 74 |
| A.4 | Dépendance en champ, Rb1, 1,2 kbar | 75 |
| A.5 | Dépendance en champ, Rb1, 4,0 kbar | 75 |
| A.6 | Dépendance en champ, Rb1, 8,0 kbar | 76 |
| A.7 | Dépendance en champ, Rb1, 10,4 kbar | 76 |
| A.8 | Dépendance en champ, Rb1, 15,2 kbar | 77 |
| A.9 | Dépendance en champ, Rb1, 21,9 kbar | 77 |
| A.10 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 1,2 kbar | 78 |
| A.11 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 4,0 kbar | 78 |
| A.12 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 8,0 kbar | 79 |
| A.13 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 10,4 kbar | 79 |
| A.14 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 15,2 kbar | 80 |
| A.15 | Extraire $T_c(H)$, Rb1, 21,9 kbar | 80 |
| B.1 | Courbes de refroidissement, Rb2 | 82 |
| B.2 | Mesure de T_c en dessous de P_c , Rb2 | 83 |
| B.3 | Mesure de T_c au-dessus de P_c , Rb2 | 83 |
| B.4 | Extraire T_c , basses pressions, Rb2 | 84 |
| B.5 | Extraire T_c , hautes pressions, Rb2 | 84 |

| | | |
|------|---|----|
| B.6 | Dépendance en champ, Rb2, 1,2 kbar | 85 |
| B.7 | Dépendance en champ, Rb2, 4,0 kbar | 85 |
| B.8 | Dépendance en champ, Rb2, 8,0 kbar | 86 |
| B.9 | Dépendance en champ, Rb2, 10,4 kbar | 86 |
| B.10 | Dépendance en champ, Rb2, 15,2 kbar | 87 |
| B.11 | Dépendance en champ, Rb2, 21,9 kbar | 87 |
| B.12 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 1,2 kbar | 88 |
| B.13 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 4,0 kbar | 88 |
| B.14 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 8,0 kbar | 89 |
| B.15 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 10,4 kbar | 89 |
| B.16 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 15,2 kbar | 90 |
| B.17 | Extraire $T_c(H)$, Rb2, 21,9 kbar | 90 |
| B.18 | Champ supérieur critique, Rb2 | 91 |
| B.19 | Évolution de $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$, Rb2 | 92 |
| B.20 | Coefficient de Hall, Rb2 | 92 |

Introduction

La supraconductivité est un phénomène quantique pouvant être observé de façon macroscopique. Alors que la température d'un matériau est abaissée, les électrons forment des paires de Cooper, passant ainsi de fermions à bosons. Ce changement drastique de la nature des porteurs électriques permet l'apparition de deux propriétés surprenantes : une résistivité nulle, permettant de faire circuler un courant sans perte par effet Joule, et l'effet Meissner, permettant la lévitation magnétique par l'expulsion hors du matériau de tout champ magnétique. La supraconductivité fut découverte en 1911, mais ne fut expliquée qu'en 1957 par la théorie BCS. Puis, d'autres matériaux dont les propriétés n'étaient pas bien décrites par la théorie BCS furent découverts et qualifiés de non conventionnels. La découverte de la famille des cuprates, des matériaux étant supraconducteurs à des températures beaucoup plus hautes, propulsa la recherche en 1986. La recherche liée aux matériaux supraconducteurs non conventionnels, toujours très active aujourd'hui, a vécu un nouveau revirement en 2008 avec la découverte d'une seconde famille de matériaux supraconducteurs à haute température, les supraconducteurs à base de fer. Le premier chapitre de ce mémoire explique les propriétés d'un supraconducteur et les caractéristiques des matériaux permettant d'en apprendre davantage sur ce phénomène quantique.

La symétrie d'appariement des paires d'électrons est une propriété importante d'un supraconducteur, car elle peut être reliée au mécanisme microscopique permettant l'apparition de la supraconductivité. Les supraconducteurs conventionnels ont une symétrie de type s , alors que les cuprates ont une symétrie de type d . Cette différence a été mise de l'avant comme étant un paramètre important pour expliquer la supraconductivité non conventionnelle des cuprates. Par contre, les supraconducteurs à base de fer ont généralement une symétrie de type s , bien que quelques matériaux montrent des indices de symétrie de type d . Le second chapitre de ce mémoire effectue une revue de la littérature afin de résumer le débat qui entoure l'identification de la symétrie d'appariement dans la famille de matériaux $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ et plus précisément le matériau KFe_2As_2 . Ensuite, les propriétés des trois matériaux étudiés dans le cadre de ce mémoire sont détaillées.

L'étude des matériaux supraconducteurs implique une grande complexité technique. Afin d'affecter les propriétés d'un échantillon, il est nécessaire de le soumettre à des conditions extrêmes : températures cryogéniques, pressions élevées et champs magnétiques intenses. Le troisième chapitre de ce mémoire détaillera les techniques expérimentales utilisées dans le cadre des travaux effectués.

Les travaux présentés dans le cadre de ce mémoire s'inscrivent dans la continuité des travaux réalisés à l'université de Sherbrooke et dans d'autres universités pour étudier les matériaux KFe_2As_2 et CsFe_2As_2 en pression. Le quatrième chapitre de ce mémoire présente les résultats nécessaires à l'analyse des nouveaux résultats et à l'appréciation de leur importance pour cette communauté.

Lors de ce travail de maîtrise, l'évolution de la résistivité, de l'effet Hall et du champ supérieur critique H_{c2} du matériau RbFe_2As_2 en fonction de la température et de la pression a été étudiée. Un changement de comportement de la dépendance en pression de la température critique à une pression critique donnée est observé, similairement aux observations déjà effectuées dans les matériaux KFe_2As_2 et CsFe_2As_2 . L'effet Hall a une évolution monotone en pression et la supraconductivité est plus robuste au champ magnétique au dessus de la pression critique. Le cinquième chapitre de ce mémoire présente ces résultats, ainsi que les détails expérimentaux et d'analyse des données brutes.

Enfin, le sixième chapitre de ce mémoire présente l'analyse conjointe des résultats obtenus sur les matériaux KFe_2As_2 , RbFe_2As_2 et CsFe_2As_2 . D'abord, il est difficile de définir un mécanisme qui établit la valeur de la pression critique. Ensuite, la température critique à la pression critique est dictée par le niveau d'impureté. Puis, aux alentours de la transition observée, ces trois matériaux possèdent un caractère universel quant à l'évolution de la température critique, de l'effet Hall et de la quantité $\frac{1}{T_c} \left(\frac{-\partial H_{c2,c}}{\partial T} \right)_{T_c}$. Les différentes évidences présentées soutiennent le scénario d'un changement de la symétrie d'appariement au passage de la pression critique.

Chapitre 1

Concepts de base et théorie

1.1 La structure cristalline

1.1.1 Réseau réel

Les matériaux cristallins sont, à l'échelle microscopique, composés d'un assemblage périodique d'atomes appelé «réseau cristallin». Pour entièrement décrire un matériau, il suffit d'explicitier sa maille élémentaire (ou cellule unité), c'est-à-dire le plus petit ensemble d'atomes qui permet de reproduire le matériau par des opérations de translation. La figure 1.1 présente la maille élémentaire de la structure cristalline du matériau BaFe_2As_2 . Il est expérimentalement possible d'obtenir la taille de la maille élémentaire définie par trois «paramètres de maille». La figure 1.2 définit ces trois paramètres, notés a , b et c . Les paramètres de maille sont importants, car ils peuvent être liés aux propriétés des matériaux, tels que la résistivité ou la présence d'ordre magnétique.

En physique de la matière condensée, il est pratique de faire évoluer ces paramètres afin d'étudier leur relation avec les différentes propriétés du matériau. Pour ce faire, il est possible de substituer certains atomes par d'autres de taille différente. Le terme «pression chimique» est utilisé pour désigner le changement des paramètres de maille provoqué par une telle substitution. Néanmoins, dans la pratique, cette technique implique l'utilisation d'échantillons différents, ce qui comporte de nombreux problèmes, tel que le niveau d'impuretés qui varie entre chaque échantillon. L'utilisation de pression externe est un moyen efficace de faire évoluer les paramètres de maille sans changer d'échantillon.

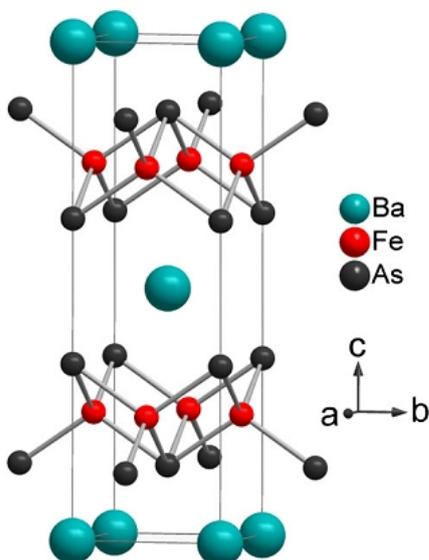


FIGURE 1.1 Structure cristalline du matériau BaFe_2As_2 . La maille élémentaire est composée des atomes contenus par le prisme à base rectangulaire défini par les fines lignes noires. Tiré de la référence [1].

1.1.2 Réseau réciproque

Il est possible de décrire la structure cristalline en utilisant la base des vecteurs d'onde (espace «réciproque» ou «de Fourier») plutôt que la base des positions (espace «réel» tel que décrit à la section précédente). Les vecteurs du réseau réciproque s'obtiennent en respectant la relation suivante :

$$e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}} = 1 \quad (1.1)$$

où \vec{R} est l'ensemble des vecteurs du réseau réel (positions des atomes) et \vec{K} est l'ensemble des vecteurs du réseau réciproques (vecteurs d'onde associés à la périodicité du réseau cristallin). Analogiquement à la maille élémentaire, la «première zone de Brillouin», ou simplement «zone de Brillouin», est le plus petit espace dans l'espace réciproque permettant de décrire entièrement les propriétés du système. La première zone de Brillouin est le volume cerné par les plans médiateurs des vecteurs du réseau réciproque tracés à partir de l'origine.

La base réciproque est utile pour décrire les porteurs de charge du matériau. Ceux-ci sont décrits par une onde appelée «état de Bloch» ou «fonction d'onde de Bloch». Cette fonction d'onde décrit une onde se propageant dans le réseau périodique avec la forme $\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{1}{V} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{\vec{k}}(\vec{r})$ [2]. Cette approche est la pierre de fondation de la théorie des bandes.

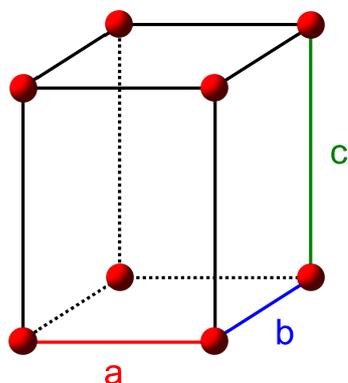


FIGURE 1.2 Définition des paramètres a , b et c qui donnent la taille de la maille élémentaire.

La théorie des bandes permet d'obtenir la répartition des états (densité d'états) en fonction de leur vecteur d'onde et de leur énergie.

Les porteurs de charge occupent naturellement les états de plus basse énergie. Le «niveau de Fermi» ou «surface de Fermi» indique la plus haute énergie occupée par des porteurs de charge lorsque le système est dans son état fondamental. Ce sont ces porteurs qui participent à la majorité des phénomènes, tels les conductivités électrique et thermique. La figure 1.3 présente les surfaces de Fermi disponibles au niveau de Fermi dans la première zone de Brillouin pour un exemple générique. Il s'agit ici d'une coupe en deux dimensions, par opposition à une vision en trois dimensions (Fig. 2.1). On définit trois positions sur ce type de diagramme :

Γ : Centre du carré.

M : Coin du carré.

X (ou Y) : Côté du carré.

Le diagramme en deux dimensions est utile pour illustrer les processus qui permettent l'apparition de la supraconductivité. Lorsque l'interaction entre deux porteurs de charge est engendrée par un mécanisme lié à l'environnement (mécanisme phononique BCS ou fluctuation de spins, voir section 1.2), il s'ensuit un changement de leur impulsion. Les porteurs changent d'emplacement sur la surface de Fermi. Par exemple, la figure 1.3 illustre par des vecteurs deux types d'instabilité avec des vecteurs d'onde Q_{SDW} et Q_{Neel} . Le terme «emboîtement» désigne la situation où l'un de ces vecteurs rejoint deux endroits où la densité d'état est particulièrement grande[3].

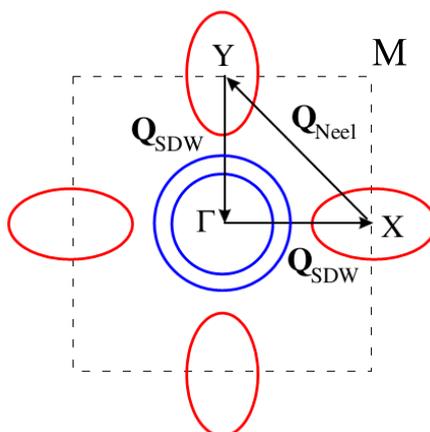


FIGURE 1.3 Illustration des bandes au niveau de Fermi dans la première zone de Brillouin. Les lignes bleues représentent des bandes de trous et les lignes rouges des bandes d'électrons. Ce schéma illustre qu'il existe deux types d'interaction dans le modèle permettant l'apparition de la supraconductivité : Q_{SDW} et Q_{Neel} , tous deux associés aux fluctuations magnétiques. Tirée de la référence [4].

1.2 La supraconductivité

1.2.1 Supraconductivité conventionnelle

Le mécanisme microscopique de la supraconductivité conventionnelle a été décrit par la théorie BCS (Bardeen, Cooper et Schrieffer). Les porteurs de charge peuvent s'unir par paire via une interaction attractive afin de passer de fermions régis par le principe d'exclusion de Pauli à des bosons pouvant occuper un même état[5]. L'interaction entre deux charges de même signe étant habituellement répulsive, il existe nécessairement un autre processus pour expliquer cette interaction attractive.

Dans le cas de la théorie BCS, ce mécanisme est lié aux phonons, c'est-à-dire les vibrations du réseau cristallin. Le passage d'un premier électron avec une impulsion \vec{k} provoque une déformation du réseau qui crée une zone de charge positive. Cette charge positive attire un second électron avec une impulsion $-\vec{k}$ et un spin inversé, afin de respecter le principe d'exclusion de Pauli. Grâce à cette force attractive, les deux électrons sont dorénavant liés et forme un boson appelé «paire de Cooper». Les bosons n'étant pas régis par le principe d'exclusion de Pauli, les paires de Cooper s'organisent dans une onde où toutes les paires sont en phase, c'est-à-dire cohérentes. Cette organisation à longue portée permet l'émergence des propriétés supraconductrices. Cette théorie a eu un vif succès à décrire les propriétés des supraconducteurs connus à cette époque.

L'état quantique associé à la supraconductivité est caractérisé par une longueur ξ , appelée longueur de cohérence [5]. Il existe deux définitions possibles pour cette quantité, qui se recoupent dans une certaine limite. D'abord, la longueur de cohérence de Pippard donne la taille minimale que peut occuper le paquet d'onde associé à la «charge supraconductrice»¹. Ensuite, la théorie de Ginzburg-Landau donne plutôt comme définition la longueur sur laquelle peut varier la fonction d'onde des «électrons supraconducteurs»¹ (ou paramètre d'ordre) sans provoquer une augmentation de l'énergie. Cette seconde définition, qui dépend de la température, tend vers la première, indépendante de la température, pour un supraconducteur pur, loin de la température critique. Dans le cadre de la théorie BCS, il est possible d'associer longueur de cohérence à la distance qui sépare les électrons qui forment une paire de Cooper.

1.2.2 Supraconductivité non conventionnelle

La théorie BCS a déchanté lorsque de nouvelles familles de supraconducteurs ont été découvertes et que leurs propriétés n'étaient pas bien prédites par la théorie en place. Deux exemples sont les familles des supraconducteurs aux fermions lourds et des supraconducteurs organiques. La principale piste de recherche était alors d'adapter la théorie BCS à ces nouveaux matériaux, ce qui fût sans succès probant. Puis, la découverte des supraconducteurs à base d'oxyde de cuivre, les cuprates, présentant de la supraconductivité à des températures beaucoup plus hautes, a remis en question la validité de la théorie BCS dans le cas de ces nouveaux matériaux. Le mécanisme phononique de la théorie BCS est beaucoup trop faible pour avoir une contribution significative à des températures aussi hautes que 100K.

Cela a engendré une nouvelle ère qui a vu naître de nombreux modèles théoriques pour expliquer la supraconductivité de ces matériaux qualifiés de non conventionnels, par opposition aux supraconducteurs conventionnels pouvant être décrits par la théorie BCS. Les chercheurs sont toujours à l'étude afin d'établir un modèle satisfaisant. En s'inspirant des diagrammes de phases des différentes familles de supraconducteurs non conventionnels où apparaît conjointement à la phase supraconductrice une importante phase antiferromagnétique, la principale voie explorée est un mécanisme engendré par des interactions magnétiques, par exemple une onde de densité de spin (fluctuation de l'orientation des spins)[5].

1. Ces théories ayant été développées avant la théorie BCS, le concept de paire de Cooper n'est pas encore utilisé.

1.2.3 Gap supraconducteur

La théorie BCS définit le gap supraconducteur ($\Delta_{\vec{k}}$) comme l'énergie minimale pour briser une paire de Cooper. Il s'agit d'une propriété importante qui peut être reliée à la température de transition supraconductrice (ou température critique T_c). Dans le cadre de la théorie BCS, le gap est indépendant de l'impulsion des porteurs de charge (\vec{k}) parce que l'interaction engendrée par les phonons est isotrope. En d'autres mots, une attraction par le biais d'un mécanisme phononique est possible peu importe la direction du déplacement des porteurs de charge. La symétrie du système est alors qualifiée de type s («s-wave»), en référence à une orbitale électronique sphérique. Ce type de supraconductivité est très sensible aux impuretés magnétiques, mais insensible aux impuretés non-magnétiques[6].

Dans le cas des supraconducteurs non conventionnels, il est possible que l'interaction qui engendre l'appariement des électrons (ou des trous) n'est pas attractive. Il est possible de voir apparaître la supraconductivité dans un contexte d'interaction répulsive si il y a un changement de signe sur le gap supraconducteur. Conjointement, l'interaction qui engendre l'appariement des électrons n'est à priori pas isotrope, entre autre à cause de l'anisotropie de la structure cristalline. Il est donc possible que le gap supraconducteur ait une dépendance en \vec{k} . Par exemple, il est aujourd'hui accepté que les matériaux de la famille des cuprates ont une symétrie de type d («d-wave»), en référence à une orbitale électronique dont la densité d'état est fortement concentrée sur deux axes perpendiculaires. Cette symétrie est caractérisée par la présence de nœuds, c'est-à-dire des points où l'énergie du gap est nulle. Les nœuds ont une conséquence physique facilement détectée par les expériences. Le gap étant nul en certains points, il est possible d'exciter des quasi-particules à température nulle. Aussi, le gap supraconducteur change de signe au passage des nœuds. La figure 1.4 illustre une surface de Fermi générique, avec une bande circulaire sur chaque position principale (Γ , M et X), pour quatre scénarios de symétrie d'appariement.

Les variations du gap supraconducteur en fonction du vecteur d'onde sont exprimées grâce à une équation, soit la structure du gap. Cette équation doit respecter les propriétés de symétrie du gap. À titre d'exemples sont données deux équations, soit celle d'un gap de symétrie de type s et celle d'un gap de symétrie d :

$$\text{Symétrie de type s : } \Delta_{\vec{k}}^s = \Delta_0(\cos k_x a + \cos k_y a) [7] \quad (1.2)$$

$$\text{Symétrie de type d : } \Delta_{\vec{k}}^d = \Delta_0(\cos k_x a - \cos k_y a) [7] \quad (1.3)$$

La structure du gap peut être plus complexe que la symétrie et voir apparaître de nouveaux nœuds, dits accidentels. Expérimentalement, la contribution des nœuds imposés par la

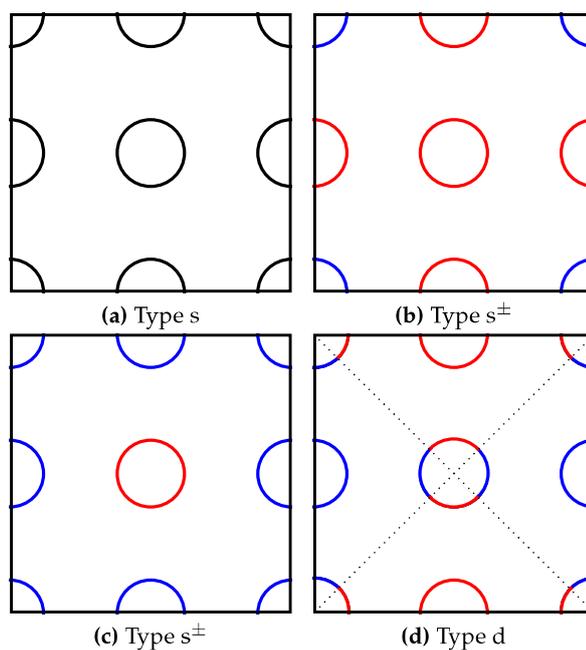


FIGURE 1.4 Schéma illustrant une surface de Fermi générique avec une bande circulaire sur chaque positions principales (Γ , M et X), pour quatre scénarios de symétrie d'appariement. Un signe du gap supraconducteur positif ou négatif est illustré par une couleur rouge ou bleu. (a) Dans le contexte de la théorie BCS, l'interaction est attractive et isotrope. Il n'y est donc pas question de signe. (b,c,d) Dans le contexte d'une interaction répulsive, il est nécessaire que le gap change de signe pour voir apparaître la supraconductivité (b,c) Deux exemples de symétrie de type s^\pm . Une bande porte partout le même signe, mais le signe peut changer entre deux bandes distinctes. (d) La symétrie de type d impose des nœuds sur les diagonales (traits pointillés). Au passage d'un nœud, la bande change de signe.

symétrie ou celle des nœuds accidentels est la même. Par contre, en modifiant certains paramètres tels que le taux d'impuretés ou les paramètres de maille, il est possible de faire disparaître les nœuds accidentels.

La figure 1.5 définit la notation utilisée dans le domaine des supraconducteurs à base de fer pour désigner les différentes combinaison de symétrie et de structure[7]. s^{++} fait référence à la symétrie de type s classique (BCS). s^{\pm} indique que les bandes n'ont pas toutes le même signe. «nodal s^{\pm} » ou s^{\pm} avec présence de nœuds indique une symétrie de type s avec des nœuds accidentels à cause de la structure. Enfin, la dernière image illustre une symétrie de type d, avec des nœuds imposés par la symétrie. À noter que dans tous ces scénarios, à l'exception de s^{++} , l'état supraconducteur sera affaibli par la présence d'impuretés non-magnétiques.

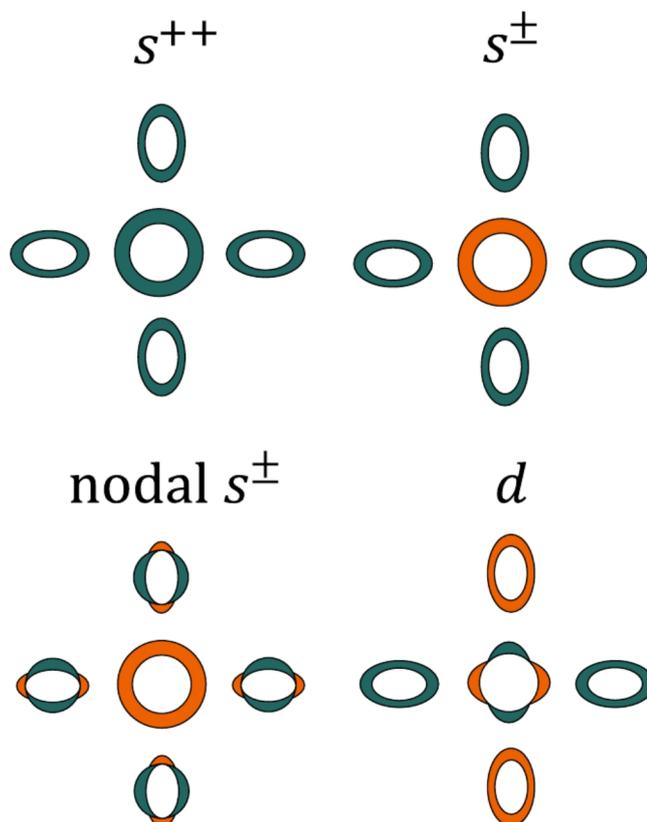


FIGURE 1.5 Représentation des quatre principaux scénarios de symétries d'appariement discutés dans le contexte des supraconducteurs à base de fer. Tiré de la référence [7].

Expérimentalement, il est difficile de mettre en évidence le signe d'une bande. Des expériences impliquant la fabrication de jonction Josephson dans des géométries particu-

lières ou des expériences d'effet Tunnel ou de SQUID peuvent permettre d'obtenir cette information[8]. Ces expériences demandent beaucoup de travail et sont donc rarement effectuées. Les signes associés aux bandes sont généralement obtenus par des modèles théoriques.

1.3 Le transport électrique

1.3.1 La résistivité

La résistivité (ρ) est le rapport d'un champ électrique (E) sur la densité de courant induite par ce champ électrique (J) (Éq. 1.4). Elle est liée simplement à la résistance (R) d'un échantillon par ses facteurs géométriques, A étant l'aire de la surface normale au courant et L la longueur de l'échantillon (Éq. 1.5). Ces informations permettent de retrouver la loi de Ohm, où V est la tension et I le courant (Éq. 1.6).

$$\rho = \frac{E}{J} \quad (1.4)$$

$$\rho = R \frac{A}{L} \quad (1.5)$$

$$\frac{E}{J} = R \frac{A}{L} \quad \rightarrow \quad EL = RJA \quad \rightarrow \quad V = RI \quad (1.6)$$

Origine microscopique de la résistivité

Le porteur de charge (électron ou trou) peut être représenté par une onde qui traverse le cristal sans être diffusé (état de Bloch, voir section 1.1.2). Les déformations ponctuelles du cristal, qui brisent la symétrie de translation, induisent une force qui diffuse le porteur. Cette diffusion nuit au libre passage des porteurs dans le cristal; c'est l'apparition d'une résistivité non nulle. Les différents processus de diffusion s'additionnent pour donner la résistivité totale.

La présence d'impuretés dans le cristal est un premier mécanisme qui peut briser la symétrie de translation, provoquer de la diffusion et contribuer à la résistivité. Le nombre d'impuretés étant constant, cette contribution ne changera pas en fonction d'un paramètre externe tel que la température ou la pression. Ensuite, les vibrations du réseau appelées phonons peuvent aussi briser la symétrie de translation et provoquer de la diffusion. Les phonons existant grâce à l'énergie thermique, ce processus tend à disparaître lorsque la

température devient nulle. De façon semblable, la diffusion peut aussi être causée par des fluctuations de l'ordre magnétique. En plus de l'ordre de positionnement des atomes dans le réseau, les atomes portent un moment magnétique appelé «spin». Ces spins peuvent s'orienter (parallèlement ou antiparallèlement) et former un nouvel ordre. Si l'orientation des spins fluctue dans le temps, l'ordre magnétique est brisé, ce qui diffuse les porteurs et contribue à la résistivité. Comme dans le cas des phonons, cette excitation nécessite de l'énergie thermique et est donc absente à température nulle.

Les deux derniers processus disparaissant à température nulle, il est possible d'extraire la contribution des impuretés en effectuant une interpolation de la courbe de résistivité en fonction de la température jusqu'à température nulle. L'ordonnée à l'origine est appelée la résistivité résiduelle ρ_0 . Cette quantité est un indice de la pureté d'un échantillon, tendant vers zéro pour un échantillon parfait et infini. En effet, les bords de l'échantillon contribuent aussi à la diffusion, puisqu'ils brisent la symétrie de translation. Quel que soit le processus de diffusion, il est possible d'analyser celui-ci comme un changement de l'impulsion des porteurs devant respecter l'équation suivante[2] :

$$\hbar\vec{k} = \hbar\vec{k}' + \hbar\vec{Q} + \hbar\vec{K} \quad (1.7)$$

où \hbar est la constante de Planck réduite, \vec{k} l'impulsion du porteur avant le processus de diffusion, \vec{k}' son impulsion après le processus de diffusion, \vec{Q} est l'impulsion absorbée par le mécanisme de diffusion (phonons, impuretés, etc.) et \vec{K} est un vecteur du réseau réciproque (voir section 1.1.2). Plus l'angle entre les vecteurs \vec{k} et \vec{k}' est grand, plus la contribution à la résistivité de ce mécanisme est grande. Un grand angle entre les vecteurs \vec{k} et \vec{k}' implique généralement un grand vecteur \vec{Q} .

La première caractéristique d'un état supraconducteur est que la résistivité devient nulle en dessous de la température de transition supraconductrice ou température critique (T_c).

1.3.2 L'effet Hall

La figure 1.6 illustre la présence d'une tension transverse au courant en présence d'un champ magnétique. Cette tension maintient un champ électrique qui compense la force de Lorentz, afin d'assurer une densité homogène des porteurs dans le matériau.

Étudions l'effet Hall dans le contexte du modèle de Drude. Ce modèle compare les électrons à un gaz idéal traité par la statistique de Maxwell-Boltzmann. Ce gaz d'électrons existe au sein d'un réseau périodique d'ions. Les électrons sont caractérisés par une conductivité

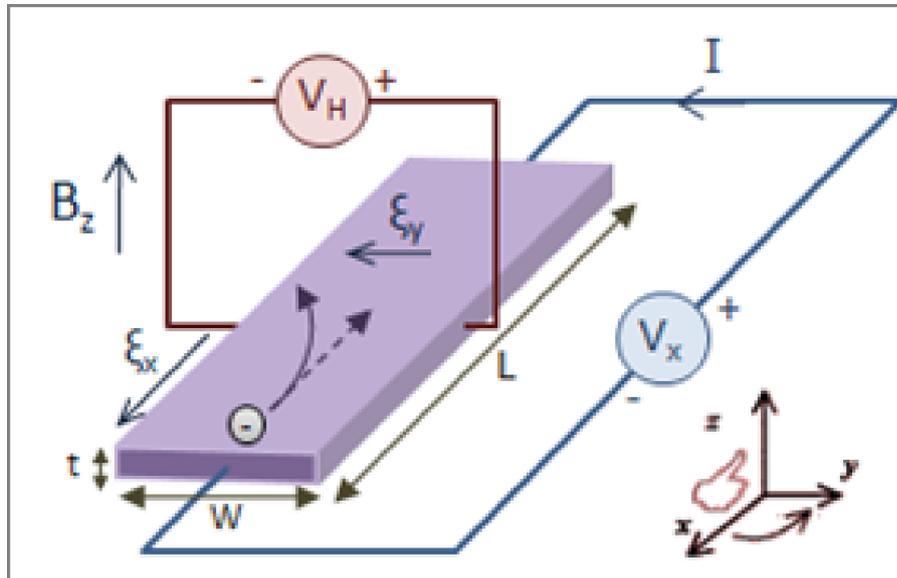


FIGURE 1.6 La tension V_x induit un courant I et un champ électrique ξ_x dans l'échantillon. La force de Lorentz induite par le champ magnétique B_z fait dévier l'électron. Les électrons ne pouvant pas sortir de l'échantillon ou s'accumuler sur les bords, un champ électrique ξ_y apparaît afin de conserver une densité de porteur uniforme. Une tension V_H transverse à la direction du courant peut donc être lue sur les bords de l'échantillon. Figure tirée de la référence [9].

$\sigma_0 = \frac{ne^2\tau}{m}$, où n est la densité d'électrons, e la charge électronique, τ le temps caractéristique entre deux collisions et m la masse électronique. L'équation suivante dicte le mouvement d'un électron.

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = -e \left(\vec{E} + \frac{1}{m} \vec{p} \times \vec{B} \right) - \frac{\vec{p}}{\tau} \quad (1.8)$$

où \vec{p} est l'impulsion de l'électron. Le premier terme est la force électrique, le second la force de Lorentz et le troisième la force de freinage due aux interactions des électrons avec les phonons et les impuretés. Considérant le problème illustré à la figure 1.6 où J_y est nul dans le régime stationnaire ($\frac{d\vec{p}}{dt} = \vec{0}$), on trouve les deux équations suivantes après avoir multiplié par $-\frac{ne\tau}{m}$ et en utilisant $J_x = -\frac{nep_x}{m}$:

$$0 = \sigma_0 E_x - J_x \quad (1.9)$$

$$0 = \sigma_0 E_y + \frac{eB_z}{m} \tau J_x \quad (1.10)$$

Le coefficient de Hall (R_H) est défini par le ratio du champ électrique transverse (E_y) sur le courant longitudinal (J_x) multiplié par le champ magnétique (B_z). Ce coefficient peut être relié à la densité électronique en utilisant l'équation 1.10 et aux mesures expérimentales avec les définitions $E_y = \frac{V_y}{W}$, $J_x = \frac{I_x}{tW}$ et $R_{xy} = \frac{V_y}{I_x}$:

$$R_H = \frac{E_y}{J_x B_z} = -\frac{e\tau}{\sigma_0 m} = -\frac{1}{ne} \quad (1.11)$$

$$R_H = \frac{E_y}{J_x B_z} = \frac{\frac{V_y}{W}}{\frac{I_x}{tW} B_z} = \frac{tR_{xy}}{B_z} \quad (1.12)$$

où t et W sont les facteurs géométriques de l'échantillon définis à la figure 1.6. Le coefficient R_H dépend uniquement de la densité de porteur. Il est négatif pour des électrons et positifs pour des trous. La mesure de l'effet Hall est donc une mesure simple permettant d'obtenir le signe des porteurs majoritaires. L'équation 1.11 n'est néanmoins exacte que pour un matériau ayant une seule bande au niveau de Fermi. Le coefficient de Hall demeure toutefois sensible à la densité de porteur même s'il y a plusieurs bandes. En présence de deux types de porteurs, la contribution d'un électron annulera la contribution d'un trou et le signe dépendra du type de porteur majoritaire. La valeur du coefficient de Hall changera donc si les proportions des types de porteur changent, mais pas si ils augmentent d'une même valeur. Cette seconde option est toutefois peu probable.

Il n'est pas possible d'observer l'effet Hall pour un matériau dans l'état supraconducteur, puisque sa résistance est nulle. Il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique suffisamment grand pour supprimer l'état supraconducteur afin de mesurer l'effet Hall de l'état normal.

1.4 Le champ magnétique

Lorsque placé dans un champ magnétique, un échantillon supraconducteur induit spontanément un courant à sa surface afin d'expulser les lignes de champ magnétique. C'est la seconde caractéristique d'un état supraconducteur appelé «effet Meissner». La résistance de l'échantillon étant nulle, le maintien de ces courants ne nécessite aucune énergie. La grandeur de ces courants est telle que nécessaire afin de compenser exactement le champ magnétique extérieur. Un échantillon supraconducteur a donc un diamagnétisme parfait. L'effet Meissner est toutefois plus que la réaction d'un matériau ayant un diamagnétisme parfait ou d'un matériau sans résistance, car le champ magnétique au cœur de l'échantillon est nul.

De façon microscopique, le champ magnétique est plutôt atténué exponentiellement par une distribution de courant d'épaisseur non nulle. La longueur de pénétration de London λ est définie comme la distance où le champ magnétique a une valeur de $\frac{1}{e}$ fois sa valeur initiale à la surface, où e est le nombre de Euler. La relation entre la longueur de corrélation ξ (voir section 1.2) et la longueur de pénétration λ permet de définir deux types de supraconducteurs[5].

Pour les supraconducteurs de type 1, $\lambda < \frac{\xi}{\sqrt{2}}$. Dans ce cas, il existe un champ magnétique critique H_c , au delà duquel la supraconductivité disparaît brusquement. Le champ magnétique force les spins des électrons formant la paire de Cooper à l'aligner parallèlement. Dans cet état, leur union est désormais proscrite par le principe d'exclusion de Pauli et la paire est brisée.

Pour les supraconducteurs de type 2, $\lambda > \frac{\xi}{\sqrt{2}}$. Dans ce cas, il existe deux champs magnétiques critiques. Au delà du premier, appelé champ critique inférieur H_{c1} , le matériau passe de l'état Meissner à l'état mixte. Dans l'état mixte, le matériau comporte des tunnels de matériau dans l'état normal (vortex) où passent des lignes de champ magnétique, mais qui sont aussi écrantés par un courant. Le diamètre de ces vortex est de 2λ . En augmentant le champ magnétique au delà de H_{c1} , des vortex pénètrent le matériau un par un. Le champ magnétique auquel le matériau est entièrement composé de vortex et passe donc à l'état normal est défini comme le champ supérieur critique H_{c2} . De plus, la présence de ces vortex entraîne l'effet de piégeage magnétique. Les supraconducteurs à base de fer et les cuprates sont des exemples de supraconducteur de type 2.

Chapitre 2

Revue de la littérature

Les matériaux supraconducteurs à base de fer consiste en la seconde famille de supraconducteurs à haute température. Découverts en 2008, soit vingt-deux ans après la découverte des cuprates en 1986, ces matériaux ont créé un grand engouement en recherche, car il s'agit d'un nouveau territoire à explorer. L'espoir apporté par ces nouveaux matériaux est qu'il sera maintenant possible de comparer deux familles de supraconducteurs à haute température, afin de déterminer leurs ressemblances et leurs différences, pour ensuite conclure sur les propriétés importantes à l'apparition de la supraconductivité à haute température.

Ces matériaux sont caractérisés par une supraconductivité de type singulet, comme la famille des cuprates. Dans leur diagramme de phase, on observe une phase antiferromagnétique voisine à la phase supraconductrice, ce qui est aussi semblable aux cuprates. Alors que la symétrie d'appariement des paires de Cooper est clairement une symétrie de type d pour les cuprates, la situation n'est pas claire pour les matériaux à base de fer. Il semblerait que différents matériaux de cette famille puissent avoir des symétries différentes. Les différentes symétries proposées passent de type d à type s avec une panoplie de structures plus ou moins complexes. Une revue des propriétés générales des supraconducteurs à base de fer a été réalisée en 2010 par J. Paglione et R. L. Greene [8].

Hirschfeld et al. ont ensuite effectué en 2011 une revue de l'étude de la symétrie d'appariement dans les supraconducteurs à base de fer [7]. Cette revue met en évidence que la plupart des supraconducteurs à base de fer ont une symétrie de type s^\pm , comme $\text{Ba}_{0.4}\text{K}_{0.6}\text{Fe}_2\text{As}_2$, due à des interactions de fluctuations de spins entre des bandes de trous et d'électrons presque emboîtées. En s'éloignant du dopage optimal, des mécanismes de diffusion intra-bande frustrant la supraconductivité de symétrie s^\pm et favorisent l'anisotropie et l'apparition de nœuds. Les nœuds pourraient aussi être dus à un effet tridimensionnel dans la structure 122.

Cette revue résume aussi le paradoxe entre les mesures ARPES et les mesures de conductivité thermique réalisées sur KFe_2As_2 . Chacune indique la présence de nœuds, mais la première pointe vers une symétrie de type s^\pm avec des nœuds accidentels et la seconde vers une symétrie de type d.

Les supraconducteurs à base de fer sont des matériaux semi-métalliques qui montrent des transitions structurales et une phase antiferromagnétique d'onde de densité de spin (SDW pour «Spin density wave»). Les états disponibles au niveau de Fermi proviennent des bandes d'électrons associées aux plans d'atomes de fer et d'arsenic. La figure 2.1 présente une surface de Fermi typique pour un supraconducteurs à base de fer. Leur caractère bidimensionnel entraîne une surface de Fermi composée de cylindres de trous centrés au point Γ et de cylindres d'électrons centrés au point M . La zone de Brillouin ici considérée est celle associée à une maille élémentaire contenant deux atomes de fer par cellule unité. La supraconductivité apparaît dans ces matériaux près de la phase antiferromagnétique, ce qui permet d'envisager un mécanisme d'appariement lié aux fluctuations de spin.

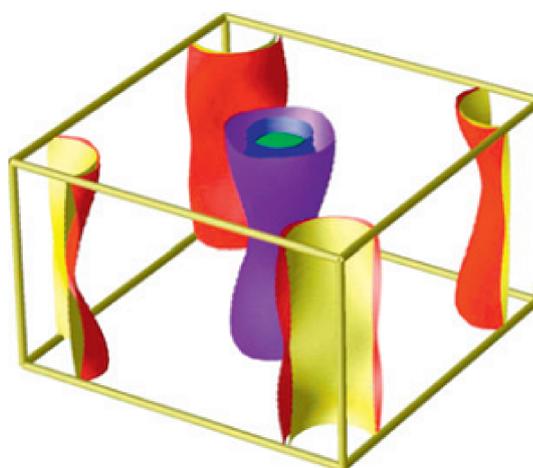


FIGURE 2.1 Surface de Fermi du matériau BaFe_2As_2 avec 10% de substitution en cobalt. Cette surface de Fermi est typique pour les supraconducteurs à base de fer de structure 122 (Fig. 1.1). Tiré de la référence [8].

La symétrie d'appariement n'est toutefois pas bien définie pour cette famille de matériaux. Bien que la première expérience réalisée afin d'établir la symétrie d'appariement des supraconducteurs à base de fer a éliminé les symétries de types p et d en faveur d'une symétrie de type s [10], des expériences subséquentes ont montré que certains matériaux présentent plutôt une symétrie de type d. Parfois, les résultats de différentes expériences pour un même matériau ne concordent pas. L'article de Graser et al. [11] présente une étude

qui montre que les symétries s et d sont en fait très près en énergie et peuvent même parfois être dégénérées en présence d'emboîtement, ce qui pourrait expliquer pourquoi une telle ambiguïté existe.

L'objectif de ce chapitre est d'effectuer la revue des articles permettant de comprendre la problématique abordée dans ce mémoire, c'est-à-dire d'expliquer l'étrange évolution en pression de la température critique des matériaux de structure 122 complètement dopés en trous (KFe_2As_2 , CsFe_2As_2 et RbFe_2As_2). Pour ce faire, la première section s'attarde au composé $\text{Ba}_{0,4}\text{K}_{0,6}\text{Fe}_2\text{As}_2$ pour lequel il est bien accepté que la symétrie est de type s^\pm . L'évolution de ce matériau lorsque son dopage tend davantage vers KFe_2As_2 est ensuite étudiée. Dans la seconde section, les résultats pointant vers différentes symétries pour le matériau KFe_2As_2 sont confrontés. Enfin, la troisième section détaille les propriétés des trois matériaux qui sont le centre d'intérêt de ce mémoire.

2.1 Évolution du gap supraconducteur dans $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$

Après la découverte du matériau $\text{Ba}_{0,4}\text{K}_{0,6}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ayant une température critique de 38K [1], une jonction Josephson a été réalisée afin d'obtenir sa symétrie d'appariement [12], ce qui a permis d'éliminer les symétries de types p et d wave en faveur d'une symétrie de type s^\pm sans présence de nœud. Ce fût donc une grande surprise que les travaux de Reid et al. pointent vers une symétrie de type d pour le matériau KFe_2As_2 , pourtant très similaire, tout en confirmant l'absence de nœud pour $\text{Ba}_{0,4}\text{K}_{0,6}\text{Fe}_2\text{As}_2$ [13, 14]. Ce résultat a entraîné une profonde étude de l'évolution de la symétrie d'appariement pour la famille de matériaux $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$.

Plusieurs mesures ARPES («angle resolved photoemission spectroscopy») ont étudié l'évolution de la structure du gap supraconducteur en fonction de nombreux dopages [15, 16, 17, 18]. L'absence de nœuds a été observé à tous dopage entre $x=0,2$ et $x=0,9$. À $x=0,6$, le gap d'une bande situé en Γ diminue grandement, ce qui semble concorder avec la disparition de la bande d'électrons [16]. De plus, une transition de Lifshitz (changement soudain de la surface de Fermi) survient quelque part entre $x=0,8$ et $x=0,9$ [17] pour obtenir une surface de Fermi très semblable à celle de KFe_2As_2 . Enfin, des nœuds sont observés sur l'une des bandes centrées en Γ au dopage de $x=0,93$ [18]. Ces différents travaux indiquent toujours une symétrie de type s^\pm .

Parallèlement, des mesures de transport thermique ont révélé que des nœuds de faible importance apparaissent aussi tôt qu'à $x=0,8$, mais qu'un saut drastique de leur importance

survient quelque part entre $x=0,974$ et $x=1$ [19]. De même, des mesures de chaleur spécifique suggèrent que des nœuds apparaissent à $x=0,81$ sur les gaps de haute énergie et que des nœuds apparaissent sur le gap de basse énergie quelque part entre $x=0,91$ et $x=1$ [20].

Enfin, malgré que la symétrie de type s^\pm semble réellement dominer, les travaux de Kretzschmar et al. ont détecté des excitations de type d dans le matériau optimalement dopé $Ba_{0,4}K_{0,6}Fe_2As_2$ [21], ce qui laisse présager une cohabitation de ces deux types de supraconductivité.

Il est intéressant de noter que la famille de matériaux $Ba_{1-x}Rb_xFe_2As_2$ présente des propriétés similaires sur les trois dopages étudiés ($x=0,3; 0,35; 0,4$) [22], principalement quant à la grandeur de la température critique. Cela semble indiquer que la taille de l'atome alcalin n'a que peu d'importance.

2.2 L'ambiguïté entourant la symétrie d'appariement dans le matériau KFe_2As_2

2.2.1 Expériences

De nombreux articles supportent une supraconductivité de type s^\pm (avec présence de nœuds ou non, selon le dopage) dans la famille de matériau $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$. Pour le matériau KFe_2As_2 , un tel consensus n'existe pas. Un article présente des évidences expérimentales pour une symétrie de type s^\pm avec présence de nœuds pour le matériau KFe_2As_2 . Il s'agit d'une mesure ARPES réalisée par Okazaki et al. [23]. La figure 2.2 illustre la structure des gaps supraconducteurs obtenus. La technique ARPES permet d'observer trois bandes de trous centrées en Γ , mais seule la bande centrale présente des nœuds. La structure de ces nœuds est d'ailleurs bien différente d'une symétrie de type d , présentant huit nœuds (douze minima locaux). Les autres conclusions de cette étude sont que le gap de la bande intérieure est très grand, celui de la bande extérieure est très faible et que ces deux gaps sont modulés avec quatre minima (huit minima locaux). Un autre article présente des résultats de chaleur spécifique analysés en faveur de ce scénario [24], mais une autre expérience de chaleur spécifique sur le même matériau arrive à une conclusion contraire [25].

En opposition à ce résultat, de nombreuses expériences ont dévoilé des indices qui pointent plutôt vers une symétrie de type d pour le matériau KFe_2As_2 . Ces résultats sont ici présentés de façon chronologique :

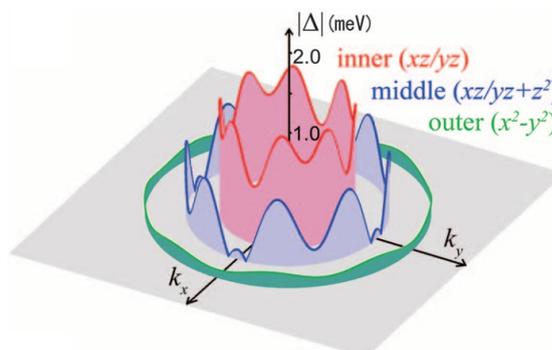


FIGURE 2.2 Gaps supraconducteurs obtenus par la technique ARPES sur KFe_2As_2 . Tiré de la référence [23].

- La dépendance linéaire en température du changement de la longueur de pénétration, en opposition à une dépendance exponentielle pour un supraconducteur avec un gap sans présence de nœuds ou avec des nœuds accidentels [26, 27].
- La comparaison de la dépendance de la conductivité thermique selon la diffusion par les impuretés, la direction du courant, la température et le champ magnétique, avec des exemples standards de matériaux ayant des symétries de type s et d [13, 14].
- Le taux de diffusion nécessaire pour supprimer la supraconductivité et le taux de suppression avec l’ajout d’impuretés, comparés à des exemples standards de matériaux ayant des symétries de type s et d [13, 14, 28].
- La conductivité des quasi-particules nodales (provenant des nœuds) qui n’est pas affectée par un changement d’un facteur dix de la diffusion due aux impuretés [14], alors que l’ajout d’impuretés devrait déplacer les nœuds accidentels et affecter cette conductivité.
- Une contribution en T^2 (T =température) et une dépendance en \sqrt{B} (B =champ magnétique) de la chaleur spécifique dans l’état supraconducteur qui correspondent élégamment à la valeur du gap calculée avec la théorie d’Eliashberg pour une bande supraconductrice de type d [29].
- Un calcul de l’énergie des gaps supraconducteurs à partir des mesures de chaleur spécifique qui ne correspond pas aux mesures de Okazaki et al. [29], suggérant que leur résultat n’a pas lieu dans le corps de l’échantillon.
- La dépendance du saut de la chaleur spécifique à la transition supraconductrice en fonction de la température de transition qui se démarque de celle des supraconducteurs ayant une symétrie de type s [25].

Ensuite, les mesures de conductivité thermique effectuées sur les matériaux RbFe_2As_2

[30] et CsFe_2As_2 [31] indiquent aussi la présence de nœuds par la présence d'une conductivité thermique résiduelle à température nulle et suggèrent que la symétrie d'appariement est la même que pour KFe_2As_2 . De plus, les mesures de chaleur spécifique indiquent que ces trois matériaux ont un comportement différent des autres supraconducteurs à base de fer quant à la dépendance du saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice en fonction de la température de transition et que cette dépendance peut être associée à une symétrie de type d dans le contexte de la théorie de Eliashberg [25]. La figure 2.3 résume ce résultat.

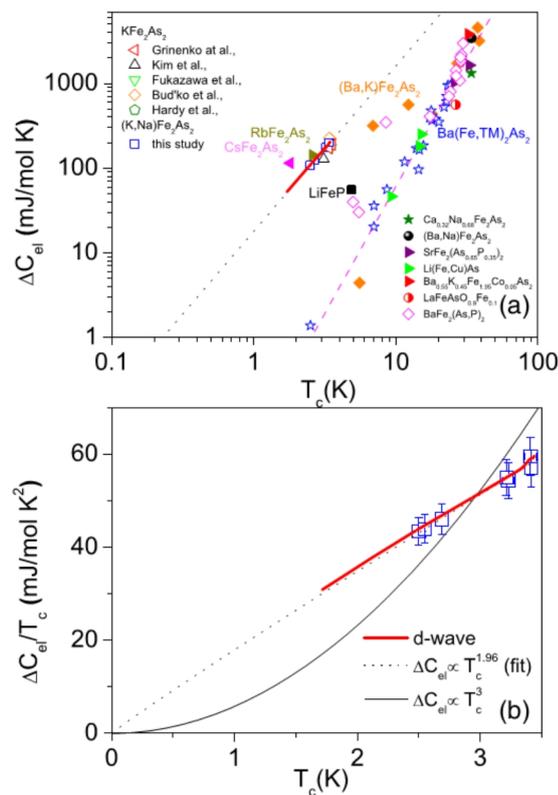


FIGURE 2.3 (a) Dépendance du saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice (ΔC_{el}) en fonction de la température de transition (T_c). CsFe_2As_2 , RbFe_2As_2 et $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ pour $x=\{0;0,18;0,29;0,31\}$ ont un comportement différent des autres supraconducteurs à base de fer. (b) $\Delta C_{el}/T_c$ en fonction de T_c . Droite rouge : obtenue avec la théorie de Eliashberg. Droite pointillée : régression linéaire sur l'équation $\Delta C_{el} \propto T_c^\beta$. Courbe noire (pointillée rose en (a)) : mise à l'échelle Bud'ko-Ni-Canfield. Tiré de la référence [25].

2.2.2 Modèles théoriques

Bien que de nombreux modèles théoriques ait été présentés pour expliquer la symétrie d'appariement dans $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$, seuls deux seront ici expliqués en détails. Le premier suppose pour le matériau KFe_2As_2 une symétrie de type s^\pm avec présence de nœuds et le second une symétrie de type d.

Symétrie de type s^\pm

Ce modèle [32] propose une supraconductivité de type s avec présence de nœuds induite par une interaction inter-bandes. Le gap supraconducteur change de signe entre les bandes de trous centrées en Γ et a une dépendance angulaire en $\cos 4\theta$. Des nœuds accidentels sont présents sur une ou plusieurs bandes. Les auteurs affirment que cette forte dépendance angulaire est la conséquence de la dégénérescence des interactions intra-bande et inter-bandes sur les bandes de trous. La supraconductivité émerge grâce aux interactions qui lient les bandes centrées en γ , associée à un mécanisme de diffusion de faible vecteur \vec{Q} (vecteur de transfert de l'impulsion lors d'un mécanisme de diffusion). Les résultats de cette étude permettent d'expliquer les résultats de la mesure ARPES réalisée par Okazaki et al [23].

Symétrie de type d

Ce modèle [33] utilise la renormalisation de groupe fonctionnel («functional renormalization group») pour montrer que le paramètre d'ordre supraconducteur pour le matériau $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ développe une symétrie de type s^\pm dans le régime dopé modérément et une symétrie de type d dans le régime fortement dopé en trous lorsque s'ouvre le gap sur la bande d'électrons. La figure 2.4 résume les résultats de cette étude. Chaque paire d'images (colonne) est associée à un certain dopage, a et b étant modérément dopé et c complètement dopé en trous. L'illustration de la ligne supérieur présente la zone de Brillouin avec les différentes bandes présentes et les processus de diffusion dominants illustrés par des flèches. Le graphique de la ligne inférieur compare l'importance relative de différents types d'ordre. Pour les cas a et b, les mécanismes inter-bandes sont dominants, ce qui mène à un ordre supraconducteur de type s^\pm et à un mécanisme de diffusion de faible vecteur \vec{Q} . Pour le cas c, c'est plutôt un mécanisme intra-bande qui domine, menant à un ordre supraconducteur de type d et à un mécanisme de diffusion de grand vecteur \vec{Q} . Ainsi, en variant uniquement le potentiel chimique et la densité électronique, ce modèle obtient une transition d'une symétrie de type s^\pm à d. Cela permet de réconcilier les résultats des expériences obtenant une symétrie de type s^\pm pour $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ et ceux des expériences obtenant une symétrie de type d pour KFe_2As_2 .

2.3 Les supraconducteurs à base de fer de structure 122 dopés en trous

Les matériaux ici discutés sont tous de structure cristalline dite «122», c'est-à-dire la structure présentée à la figure 1.1. Ils sont composés de plans d'atomes de fer et d'arsenic, intercalés par des atomes métalliques. Ces plans d'atomes sont le point commun des supraconducteurs à base de fer et ce qui leur donne leur caractère bidimensionnel. Il est aisé d'effectuer un parallèle avec les plans de cuivre et d'oxygènes des cuprates. La dénomination «122» fait référence à la proportion des différents atomes : un atome métallique, deux atomes de fer et deux atomes d'arsenic. Dans le matériau présenté à la figure 1.1, l'atome métallique est du baryum (BaFe_2As_2). La substitution d'une partie des atomes de baryum par des atomes alcalins permet de doper le matériau en trous, ce qui permet l'apparition de la supraconductivité jusqu'à une température de 40 K. Lorsque le baryum est complètement substitué par un atome alcalin, la température critique est diminuée par un facteur 10. Pour les trois matériaux qui sont le centre d'intérêt de ce mémoire, les atomes alcalins sont du potassium (KFe_2As_2 , $T_c = 3,6$ K), du rubidium (RbFe_2As_2 , $T_c = 2,5$ K) et du césium (CsFe_2As_2 , $T_c = 1,8$ K).

Le premier matériau, le plus étudié, est le KFe_2As_2 , synthétisé et structurellement caractérisé pour la première fois en 2008 [34]. La figure 2.5 présente la surface de Fermi de ce matériau connue en détail grâce à des mesures d'oscillations de de Haas-van Alphen [35, 36] et ARPES [37]. Contrairement au matériau BaFe_2As_2 qui possède des poches de trous en Γ et une poche d'électrons en M (Fig. 2.1), le matériau KFe_2As_2 ne présente pas de poches d'électrons en M. Sa surface de Fermi est plutôt composée de trois cylindres de trous centrés en Γ , de quatre cylindres de trous autour du point M et d'une minuscule poche de trous centré en Γ , mais avec un k_z non nul. La contribution de cette minuscule poche est souvent ignorée. L'absence de bande d'électrons est un élément important. En effet, il est souvent considéré que la supraconductivité pour la famille de matériaux $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ apparaît grâce aux interactions entre une bande de trous en Γ et la bande d'électrons en M. La disparition de la bande d'électrons pour KFe_2As_2 pourrait expliquer sa température de transition beaucoup plus faible et une symétrie d'appariement différente. Enfin, KFe_2As_2 présente un coefficient de Sommerfeld de $103 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ [24]. Cette valeur élevée, obtenue par des mesure de la chaleur spécifique, indique que les corrélations électroniques sont très importantes dans ce matériau.

Le second matériau étudié, CsFe_2As_2 , a été synthétisé et structurellement caractérisé simultanément au premier matériau en 2008 [34]. Sa surface de Fermi a été obtenue par la technique ARPES [38] et est très similaire à celle de KFe_2As_2 . La mesure de la chaleur spécifique de ce matériau donne un coefficient de Sommerfeld de $184 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ [39].

Le troisième matériau, RbFe_2As_2 , a été synthétisé en 2010 [40]. Ce matériau n'ayant pas été structurellement caractérisé, ses paramètres sont connus grâce à un calcul [41]. Sa surface de Fermi a été obtenue par la technique ARPES [38] et est très similaire à celle de CsFe_2As_2 et KFe_2As_2 . La mesure de la chaleur spécifique de ce matériau donne un coefficient de Sommerfeld de $127 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ [30].

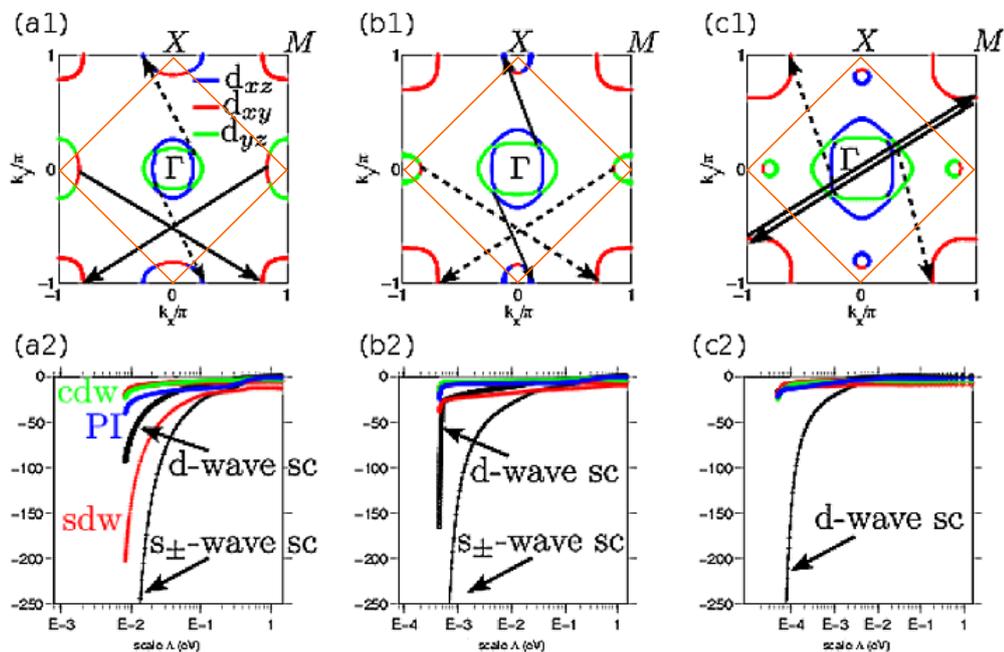


FIGURE 2.4 Les figures 1 présentent trois surfaces de Fermi pour différents potentiels chimiques et concentrations d'électrons. Ce modèle considère une maille élémentaire contenant un atome de fer plutôt que deux, ce qui explique pourquoi la zone de Brillouin est différente de celles présentées aux figures 2.1, 2.2 et 2.5. Pour obtenir la zone de Brillouin associée à une maille élémentaire contenant deux atomes, il suffit de replier la zone de Brillouin sur les traits oranges. Les processus de diffusion dominants et sous-dominants sont respectivement illustrés par des traits noirs pleins et pointillés. Les contours de couleur des surfaces de Fermi sont associés à l'orbital dominante (légende dans la figure a1). Les figures 2 illustrent les valeurs propres associées à différents types d'ordre (modulation de densité de charge (CDW), Pomeranchuk (PI), modulation de densité de spin (SDW) et supraconductivité (SC)). Pour les cas a et b, le processus dominant mène à une supraconductivité de type s^\pm . Pour le cas c, le processus dominant mène à une supraconductivité de type d. Tiré de la référence [33].

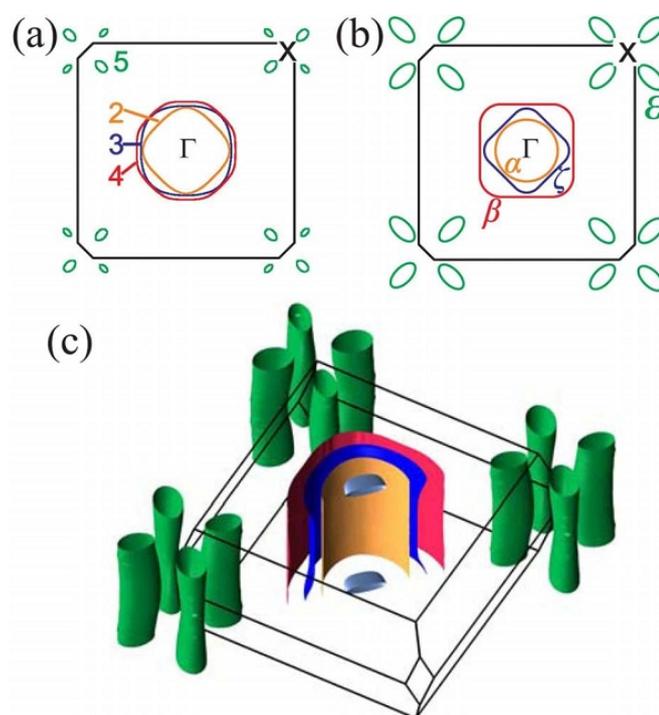


FIGURE 2.5 Surface de Fermi de KFe_2As_2 . (a) Représentation bidimensionnelle obtenue par des calculs de structure de bandes. (b) Schéma bidimensionnel représentant les résultats obtenus par des mesures d'oscillation de de Haas-van Alphen [35] et ARPES [37]. (c) Vue tridimensionnelle obtenues par des calculs de bandes («density-functional theory») en ajustant l'énergie des bandes pour concorder avec les fréquences de de Haas-van Alphen [35]. Tiré de la référence [26].

Chapitre 3

Méthodes expérimentales

Ce chapitre décrit les différentes techniques utilisées afin d'effectuer les mesures de transport électrique dans les échantillons étudiés. Ces mesures sont effectuées en faisant varier différents paramètres, tels que la pression, la température et le champ magnétique ressentis par les échantillons.

3.1 Mesures électriques

Afin d'effectuer des mesures de transport électrique, des fils d'argent ($25\mu\text{m}$) sont soudés aux échantillons en utilisant de l'étain. Bien qu'il aurait été plus simple d'effectuer des contacts avec de la peinture d'argent, la soudure a été choisie afin d'avoir des contacts plus solides. La solidité est ici une propriété importante, puisque les échantillons seront pressurisés. Deux types de mesures électriques sont effectuées sur les échantillons, ce qui nécessite 6 contacts représentés à la figure 3.1.

Résistivité : La résistivité permet d'obtenir la température de la transition supraconductrice.

La résistivité est aussi une quantité proportionnelle aux mécanismes de diffusion des porteurs. Cette quantité est mesurée en créant un courant entre les contacts de courant «I» et en mesurant la différence de potentiel entre les contacts de tension «V» (Fig. 3.1).

Effet Hall : L'effet Hall est la mesure de la résistivité transverse en présence d'un champ magnétique. Le signe du coefficient de Hall (Éq. 1.11) permet d'obtenir le signe des porteurs majoritaires dans le matériau. Cette mesure est sensible à un changement de la topologie de la surface de Fermi. Cette quantité est mesurée en créant un courant

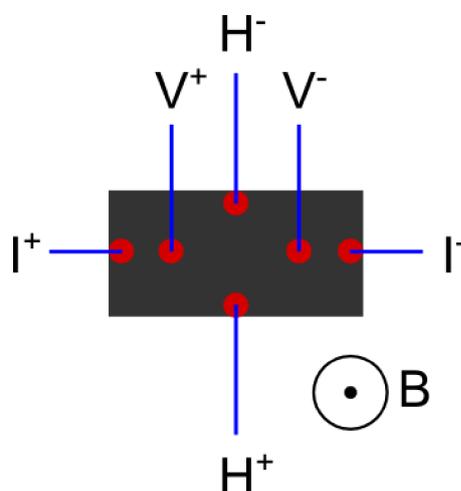


FIGURE 3.1 Schéma des contacts électriques effectués sur les échantillons. Le carré noir est l'échantillon, les lignes bleues les fils d'argent et les cercles rouges les contacts d'étain. La lettre «I» est associée aux contacts de courant, la lettre «V» aux contacts de tension pour la résistivité, la lettre «H» aux contacts de tension pour l'effet Hall et la lettre B indique le champ magnétique perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

entre les contacts de courant «I» et en mesurant la différence de potentiel entre les contacts de tension «H» (Fig. 3.1 et Éq. 1.12).

3.2 Jauge de plomb

En plus des échantillons à mesurer, une mince et étroite lamelle de plomb est présente dans la cellule de pression. Celle-ci est utilisée comme jauge pour mesurer la pression dans la cellule. Quatre contacts sont faits sur cette lamelle afin de mesurer sa résistance (similaire aux contacts «I» et «V» de la Fig. 3.1). La technique utilisée pour réaliser les contacts est le soudage par arc électrique («spot welding»). De la peinture d'argent (4929) est ensuite ajoutée sur les contacts, afin d'augmenter leur solidité.

Une calibration de la résistance du plomb à température ambiante en fonction de la pression permet d'estimer la pression dans la cellule lors de la pressurisation. Bien que cette technique donne une bonne estimation de la pression, il est préférable d'utiliser un critère plus précis, basé sur la transition supraconductrice du plomb, qui reflète davantage la pression réelle à basse température. En effet, lors du refroidissement, le milieu de pression se solidifie, ce qui peut diminuer la pression de façon non-reproductible par rapport à la calibration à haute température.

La pression utilisée pour les analyses est donc obtenue en mesurant la transition supraconductrice du plomb. La température à laquelle le plomb devient supraconducteur est très sensible à la pression ambiante et cette relation est bien connue [42]. Un exemple de mesure est donné à la figure 3.2. Il est important d'effectuer une rampe en température très lente (0.0001 K/minute), afin de s'assurer de la thermalisation de la cellule de pression, puisque le thermomètre utilisé est situé à l'extérieur de la cellule. La thermalisation de la cellule introduit une incertitude sur la température de transition, ce qui se traduit en une incertitude sur la pression de 0,1 kbar. Il est aussi essentiel de s'assurer que le champ magnétique est au minimum possible, car celui-ci affecte la température de transition du plomb.

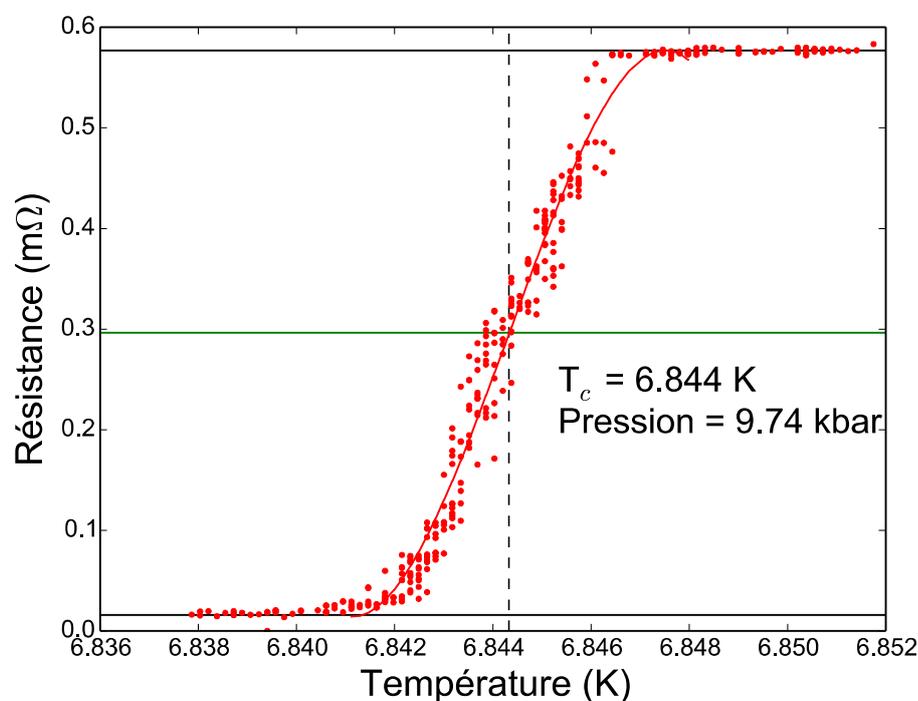


FIGURE 3.2 Transition supraconductrice du plomb utilisée comme jauge de pression. Les points rouges montrent la résistance du plomb mesurée en fonction de la température. Le critère utilisé pour définir la température de la transition supraconductrice est la température à laquelle la résistance chute de moitié. Un script en langage python est utilisé pour extraire cette donnée. D'abord, on définit les résistances des plateaux inférieurs et supérieurs (droites horizontales noires). De ces données, le script extrait la résistance correspondant au critère (droite horizontale verte). Puis, on définit les bornes de la transition, afin que le script effectue une régression linéaire d'ordre 3 sur les données (courbe rouge). Le script obtient alors la température où se rencontre la courbe rouge et la droite verte (ligne pointillée verticale). Cette température est enfin affichée, ainsi que la pression associée à cette température. L'erreur sur la pression est estimée à 0,1 kbar.

3.3 Pression

Afin d'appliquer une pression hydrostatique sur les échantillons, une cellule de pression de type «écrou de verrouillage» («Lock-nut») est utilisée. La figure 3.3 présente les pièces qui composent la cellule et qui sont ici énumérées :

1. Écrou de verrouillage supérieur (Cuivre-Béryllium, 14 filets par pouce)
2. Cylindre d'appui (MP35N)
3. Piston (MP35N)
4. Anneau d'appui (Cuivre-Béryllium)
5. Cylindre intérieur (MP35N, angle extérieur de 1°)
6. Cylindre extérieur (Cuivre-Béryllium, angle intérieur de 1°)
7. Tube (Téflon)
8. Plateau des échantillons (carte électronique)
9. Joint d'étanchéité (Cuivre)
10. Pièce d'insertion des fils ou «Fit-through» (MP35N)
11. Écrou de verrouillage inférieur (Cuivre-Béryllium, 14 filets par pouce)

Les sous-sections suivantes décriront les étapes à réaliser afin de préparer une mesure de transport électrique sous pression. La figure 3.4 présente un schéma de la cellule complète.

3.3.1 Préparation de la pièce d'insertion des fils

L'utilité de la pièce d'insertion des fils (10) est de permettre le passage des fils nécessaires aux mesures électriques de l'échantillon vers l'extérieur de la cellule. Vingt fils de cuivre (taille 004, B.S.G. 38, isolant FORMVAR) sont préparées en dix paires torsadées. Quatre fils sont utilisés pour la jauge de plomb et six par échantillon, pour un total de seize. Les quatre fils supplémentaires sont utilisés seulement en cas de bris. Les fils sont torsadés par paire afin d'éviter des courants induits par le champ magnétique. Les dix paires sont insérées dans un tuyau de téflon qui protège les fils.

Ce tuyau de téflon contenant les paires torsadées est ensuite inséré dans la pièce d'insertion des fils. Puis, le passage est scellé grâce à de l'époxy («Stycast 285OFT», «Catalyst 11», ratio 4,5 parts de catalyseur pour 100 parts de résine) préalablement dégazé. Pour bien remplir le passage, un mécanisme qui siphonne l'époxy par l'arrière de la pièce est utilisé.

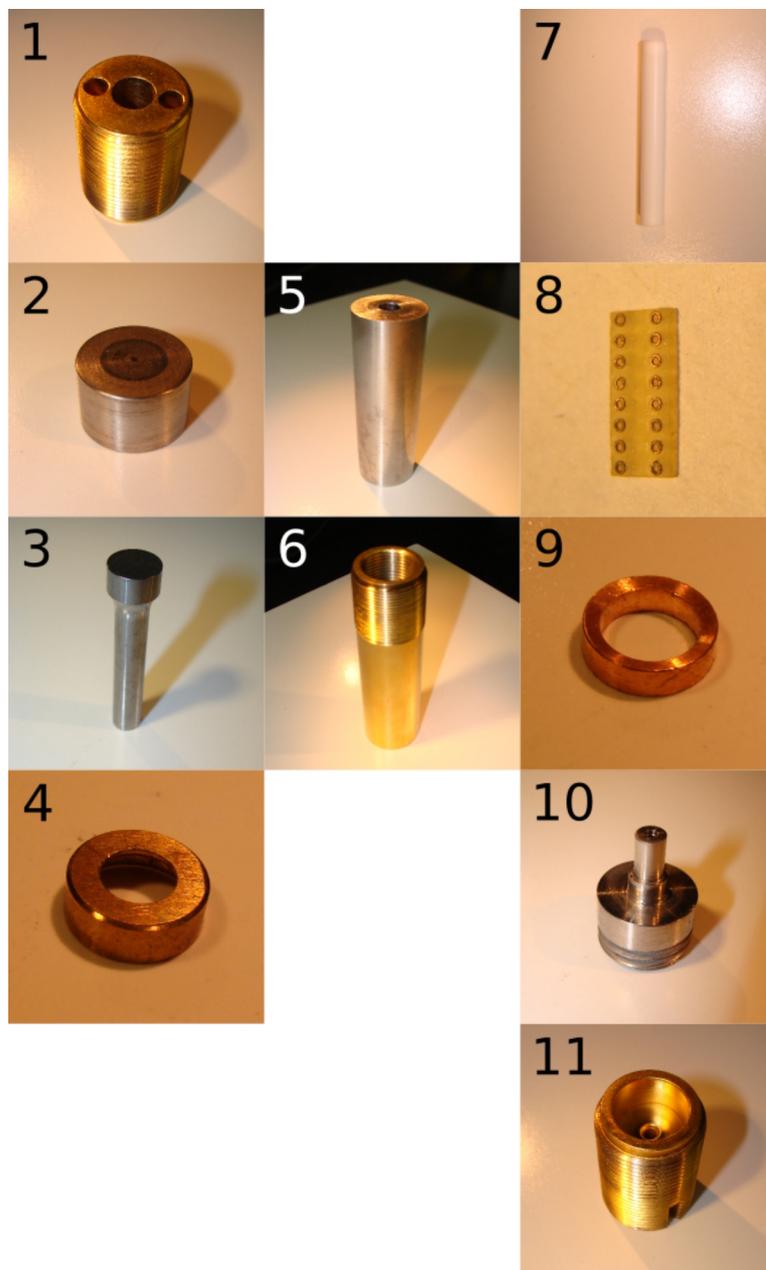


FIGURE 3.3 Pièces de la cellule à pression, identifiées au début de la section 3.3. Les pièces sont ordonnées selon leur position relative une fois le montage fait. Les colonnes rassemblent les pièces assemblées au même moment. Les pièces des colonnes 2 et 3 sont d'abord assemblées séparément. Les assemblages obtenus sont ensuite insérés l'un dans l'autre, puis les pièces de la colonne 1 sont ajoutées. Le texte de la section 3.3 explique les détails et la figure 3.4 présente un schéma du montage complété.

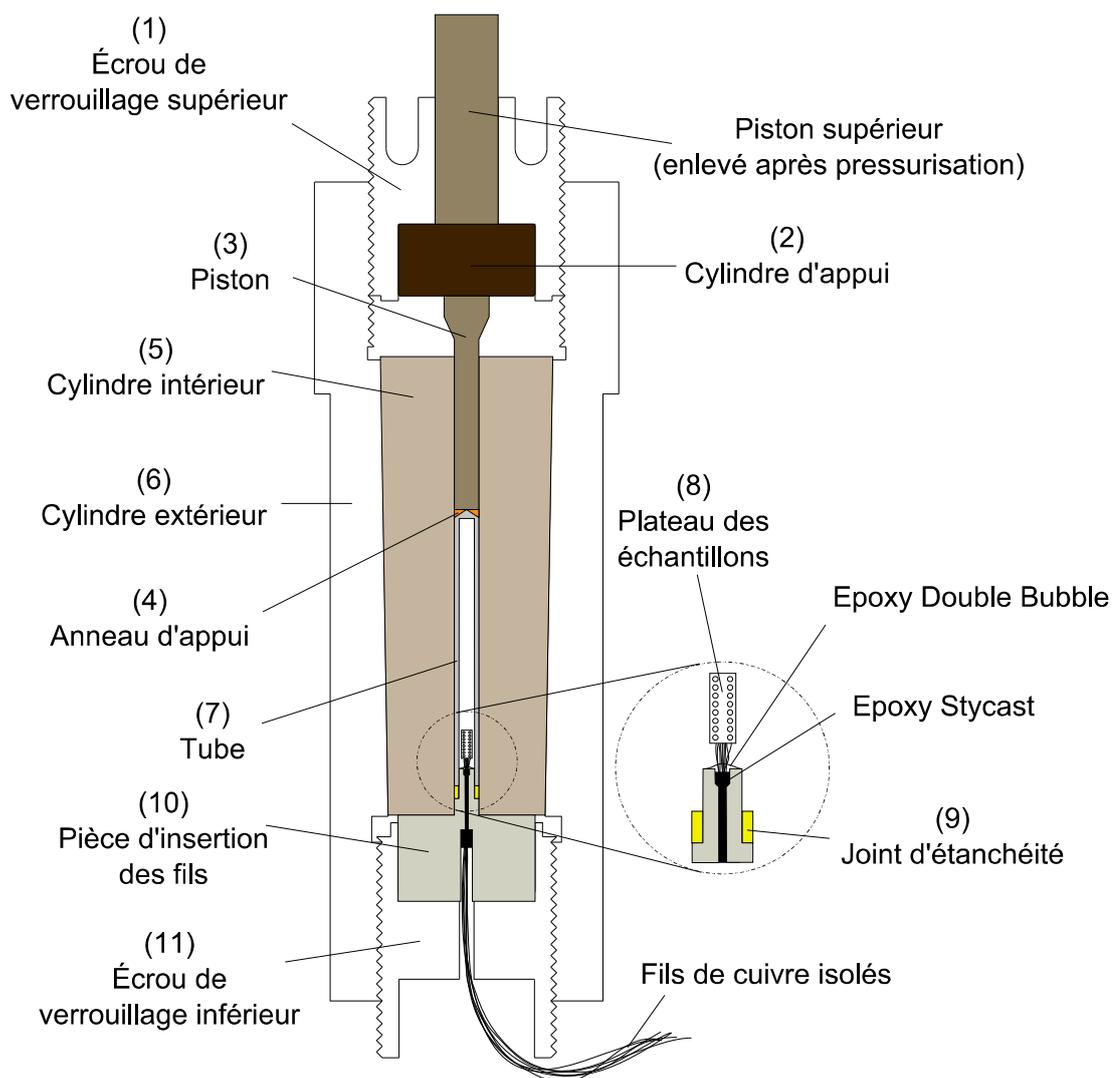


FIGURE 3.4 Schéma en coupe de la cellule de pression. Gracieuseté de Nicolas Doiron-Leyraud. Schéma adapté d'un dessin original par Walker (1999).

L'époxy est ensuite cuit pendant 1 heure à 120 °C. Enfin, la base des fils est solidifiée avec un époxy plus flexible (époxy 5 minutes «Double Bubble»).

3.3.2 Préparation du plateau des échantillons

Avant d'installer le plateau des échantillons, le joint d'étanchéité (9) est inséré sur la pièce d'insertion des fils (10). Ce tore à section carrée sert de siège au tube de téflon (7). Lors de la pressurisation, l'anneau de cuivre sera déformé et agira comme joint d'étanchéité. Un léger angle est sculpté dans le tore afin de s'assurer que le tube de téflon s'insère dans le tore.

Afin de positionner les fils pour faciliter la pose des échantillons et de la jauge de plomb, une petite plaque électronique composée de seize trous entourés chacun d'un anneau de cuivre est utilisée. C'est cette plaque qui est nommée «plateau des échantillons» (8). Un à un, les fils sont dénudés en utilisant de l'acide formique, puis insérés dans un anneau auquel le fil est soudé à l'étain.

Ensuite, un fil d'argent (25 μm de diamètre) est soudé à chaque fil de cuivre. Ces fils plus malléables sont formés afin de recevoir les fils en contact avec les échantillons et la jauge de plomb.

Une fois le plateau des échantillons prêt, les fils sont passés dans l'écrou de verrouillage inférieur (11). Chaque fil est alors identifié, puis l'ensemble est soudé à un connecteur fischer pour permettre de facilement connecter les échantillons et la jauge de plomb au système utilisé.

3.3.3 Installation des échantillons

Les échantillons sont mis en place sur le plateau des échantillons. Les fils d'argent des échantillons sont collés à ceux du plateau des échantillons avec de la peinture d'argent (4929). Les échantillons sont placés de façon à ce que le champ magnétique soit parallèle à leur axe c.

3.3.4 Préparation de la cellule de pression

D'abord, le cylindre intérieur (5) est inséré dans le cylindre extérieur (6) en appliquant 11 MPa avec la presse. Il est important d'insérer le bout le plus étroit en premier. Le cylindre

intérieur sera ainsi coincé dans le cylindre extérieur et ne bougera pas davantage lors de la pressurisation.

Ensuite, le tube de téflon (7) est rempli avec le liquide de pression (mélange n-pentane :3-méthyle-1-butanol 1 :1), puis joint à la pièce d'insertion des fils (10) de façon à ce que le plateau des échantillons (8) soit dans le liquide et le tube de téflon appuyé contre le joint d'étanchéité (9).

Cet ensemble est maintenant enfoncé dans le cylindre intérieur (5) avec un marteau et l'outil approprié qui permet de frapper sur la pièce d'insertion des fils sans toucher aux fils. Puis, l'écrou de verrouillage inférieur (11) est vissé solidement.

Maintenant, l'anneau d'appui (4) est placé à l'extrémité pleine du tube de téflon (7) à l'intérieur du cylindre intérieur (5) de façon à épouser la forme du tube de téflon. Puis, le piston (3) est inséré dans le cylindre intérieur pour venir s'asseoir sur l'anneau d'appui.

Enfin, la cellule de pression est fermée en vissant en place l'écrou de verrouillage supérieur (1) dans lequel a préalablement été inséré le cylindre d'appui (2).

3.3.5 Pressurisation

D'abord, la cellule est placée dans son support composé de deux pièces. La première pièce est vissée à la cellule, puis placée sur la seconde qui est un cylindre conçu pour recevoir en son sein la cellule de pression tout en laissant un passage vers l'extérieur pour les fils. Ce support est enfin placé sous la presse. Une attention particulière devrait être portée aux fils ; ceux-ci sont fragiles et pourraient facilement être coupés s'ils sont coincés entre le support et la presse.

Une pièce permettant de visser l'écrou de verrouillage supérieur est placée, puis une tige est insérée dans l'ensemble pour s'asseoir sur le cylindre d'appui. La presse vient s'appuyer sur cette tige. Alors que la presse applique une pression, la tige pousse le cylindre d'appui et le piston qui écrasent le tube de téflon. Se faisant, la pression du liquide présent dans le tube de téflon augmente, affectant la résistance des échantillons et de la jauge. Une calibration de la résistance du plomb en fonction de la pression à température ambiante permet d'estimer la pression appliquée. En vissant l'écrou de verrouillage supérieur, le cylindre d'appui est bloqué, ce qui permet de conserver la pression dans la cellule même si la presse est relâchée.

3.4 Cryogénie

Afin d'étudier les propriétés supraconductrices des matériaux étudiés, il est nécessaire d'utiliser un système cryogénique permettant d'atteindre les températures les plus basses possibles tout en ayant un bon contrôle sur la stabilité de la température. Le système utilisé est surnommé le *CMR* («Cambridge Magnetic Refrigeration»). La figure 3.5 présente un schéma en coupe de ce système. Trois mécanismes sont utilisés afin de refroidir la cellule de pression à des températures cryogéniques.

3.4.1 Cryostat d'hélium liquide

À pression ambiante, l'hélium condense à la température de 4,2 K. L'hélium liquide est préparé en utilisant le procédé Linde-Hampson qui consiste en compresser et décompresser l'hélium gazeux afin de le liquéfier. L'hélium liquide est transféré dans un cryostat contenant à la fois la bobine supraconductrice et la sonde *CMR* qui contient la cellule de pression. Le cryostat est un réservoir isolé par des parois de vide et une paroi contenant de l'azote liquide (77 K). L'hélium est ainsi isolé de son environnement afin de minimiser son évaporation. La cellule de pression quant elle n'est pas directement en contact avec le bain d'hélium liquide. Elle est située dans la sonde *CMR*, isolée par le vide réalisé dans la paroi d'isolation. Le bain d'hélium sert à refroidir l'ensemble de la sonde et à isoler la cellule de pression de l'extérieur afin de descendre à des températures inférieures à 4,2 K.

3.4.2 Évaporation de l'hélium liquide

Un petit barillet de laiton (surnommé «1 K pot»), situé sur la sonde, est approvisionné en hélium liquide par un capillaire connecté au bas du barillet et qui sort de l'enceinte sous vide de la sonde pour tremper dans le bain d'hélium liquide du cryostat. Un second tuyau, quant à lui connecté au haut du barillet, sort de la sonde par le haut. Une pompe est connectée à ce tuyau pour pomper l'hélium qui passe de l'état liquide à l'état gazeux dans le barillet. Ce changement de phase absorbe de la chaleur, ce qui diminue la température du barillet. La sonde est ainsi refroidie jusqu'à une température de 1,6 K.

3.4.3 Désaimantation magnétique

Une grande pastille de sel paramagnétique, située sur la sonde, est aimantée grâce à une bobine située dans le cryostat produisant un champ magnétique de 3 Teslas. Le

champ magnétique ordonne les spins des atomes qui composent le sel, ce qui dégage de la chaleur. Une fois le champ magnétique à 3 Teslas et la température stabilisée à 1,6 K grâce au mécanisme de la section précédente, la procédure de désaimantation magnétique débute.

D'abord, la section inférieure de la sonde, où est située la pastille de sel et la cellule de pression contenant les échantillons, est isolée thermiquement de la partie supérieure de la sonde, où se situe le barillet de laiton, en ouvrant l'interrupteur thermique («heat switch»). Il s'agit d'une simple pièce de cuivre qui vient faire le contact entre les deux sections de la sonde. Lorsque cet interrupteur est ouvert, la section inférieure de la sonde est retenue uniquement par de minces fils de Kevlar qui eux transmettent peu la chaleur.

Une fois la pastille de sel et la cellule de pression isolées thermiquement, le champ magnétique dans lequel baigne la pastille est progressivement éliminé. Ce faisant, les spins des atomes qui composent le sel tendent à retrouver une orientation aléatoire. Afin d'atteindre cet état de plus haute énergie, le sel absorbe la chaleur de son environnement, ce qui résulte en la diminution de la température de la pastille et de la cellule de pression.

Le montage utilisé permet habituellement d'atteindre des températures aussi basses que 300 mK. Néanmoins, lors de la prise des données sur les échantillons de RbFe_2As_2 , la température typiquement atteinte est de 1 K, avec un minimum de 0,8K. Cette baisse de performance est attribuée au vieillissement de la pastille.

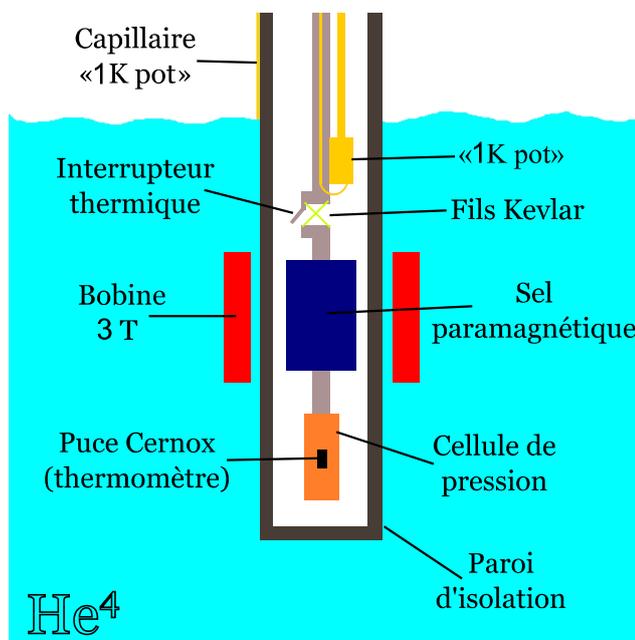


FIGURE 3.5 Schéma en coupe du système de cryogénie.

3.5 Champ magnétique

Lorsque la sonde est insérée dans le cryostat, elle se retrouve au centre d'une bobine supraconductrice. Il s'agit d'une bobine de matériau supraconducteur dans laquelle peut circuler un grand courant lorsque refroidie à la température de l'hélium liquide. Un champ magnétique de 13 Tesla peut être induit par cette boucle de courant.

L'avantage d'une bobine supraconductrice comme source de champ magnétique en comparaison avec une bobine résistive est qu'elle peut être utilisée en mode rémanent. Une fois le courant injecté dans la bobine, il est possible de joindre les deux extrémités de la boucle supraconductrice et de fermer la source de courant. Le courant qui voyage dans un milieu supraconducteur ne subit aucune perte par effet Joule. Ainsi, le courant ne diminuera pas en intensité et le champ magnétique induit demeurera constant indéfiniment. Cette technologie permet donc une économie substantielle d'électricité et une meilleure stabilité du champ. De plus, une bobine résistive nécessite un système de refroidissement pour dissiper l'énergie perdue par effet Joule, ce qui peut impliquer des infrastructures colossales.

Afin de joindre les deux extrémités de la boucle supraconductrice pour passer en mode rémanent, un bloc de matériau isolant pouvant devenir supraconducteur est placé de façon à relier les deux extrémités de la bobine. À la température de l'hélium liquide, le bloc est supraconducteur. En injectant un courant dans une résistance placée sur ce bloc, sa température est augmentée jusqu'à ce qu'il devienne isolant. Le courant est alors injecté dans la bobine grâce à la source de courant. Une fois le courant désiré dans la bobine atteint, le courant passant dans la résistance placée sur le bloc est coupé. Celui-ci refroidit et devient supraconducteur, ce qui couple les deux extrémités de la bobine. La source de courant peut alors être fermée, tout en conservant un courant rémanent dans la bobine.

Chapitre 4

Résultats expérimentaux préliminaires

Motivé par la proximité en énergie entre une supraconductivité de type d dans le matériau KFe_2As_2 et une supraconductivité de type s dans la famille de matériau $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$, le groupe du Pr. Taillefer a décidé d'étudier l'effet de la pression sur le matériau KFe_2As_2 . La découverte d'un changement soudain de l'évolution de la température critique en fonction de la pression (diagramme en forme de V) a ensuite motivé l'étude d'un échantillon de KFe_2As_2 ayant un niveau d'impuretés différent et du matériau CsFe_2As_2 . Un résultat similaire a été découvert lors de ces deux secondes expériences. Ces résultats sont présentés dans ce chapitre, ainsi que les travaux d'autres équipes ayant confirmés ces résultats ou ayant obtenus des résultats semblables dans d'autres matériaux. Ces différentes découvertes motivent l'étude du matériau RbFe_2As_2 effectuée dans le cadre de ce mémoire. Les résultats d'une découverte semblable pour ce troisième matériau sont présentés au chapitre 5.

4.1 Diagramme en forme de V pour KFe_2As_2

La découverte d'un diagramme de phase en forme de V pour la relation entre la température critique T_c et la pression a été publiée pour la première fois en 2013 [6]. La figure 4.1 présente les données brutes de résistivité ρ . Sous la pression critique P_c de 17,5 kbar, la T_c diminue avec la pression (Fig. 4.1a). Puis, au delà de cette pression critique, la T_c augmente (Fig. 4.1b). La T_c de chacune de ces courbes est extraite avec le critère de la résistivité nulle. La figure 4.2 présente la relation entre la T_c et la pression qui subit un changement de dépendance à 17,5 kbar. Les données en noires proviennent des courbes de la figure 4.1, alors que les données en gris ont été obtenues lors d'une expérience subséquente sur un échantillon ayant un niveau d'impuretés non-magnétiques plus élevé [43]. Ce désordre

est obtenu en raison de conditions de croissance non idéales, plutôt que par l'ajout direct d'impuretés.

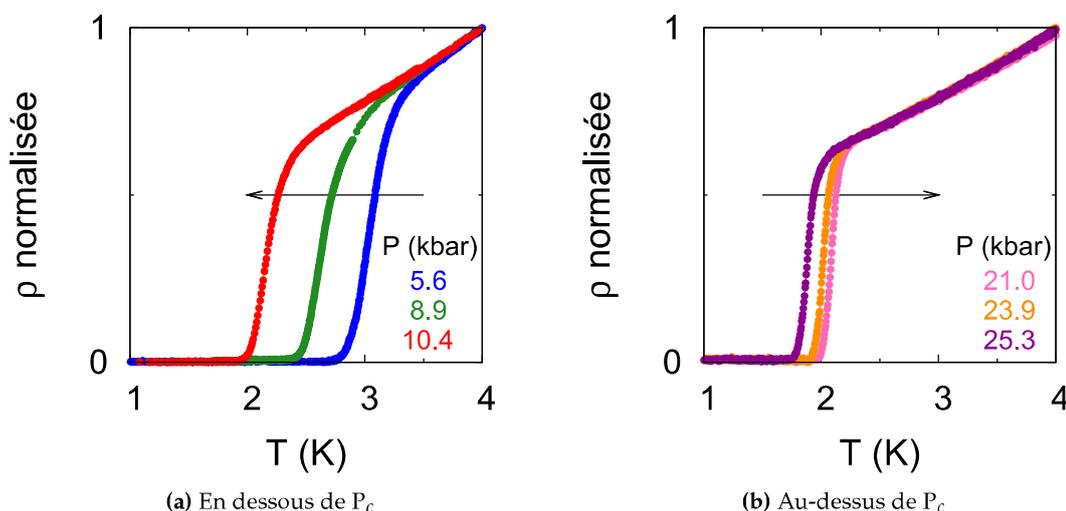


FIGURE 4.1 Mesure de T_c à différentes pressions pour KFe_2As_2 . Les flèches indiquent le déplacement de la transition en augmentant la pression.

De plus, aucun changement brusque n'a été observé dans l'évolution de la résistivité (Fig. 6.7) ou du coefficient de Hall (Fig. 6.6) au passage de la pression critique. Cette observation est comprise comme l'absence de transition de Lifshitz au passage de la pression critique.

4.2 Diagramme en forme de V pour CsFe_2As_2

Après la découverte effectuée dans le matériau KFe_2As_2 , l'étude du matériau CsFe_2As_2 a été une continuité naturelle. L'atome de césium étant plus volumineux que l'atome de potassium, sa substitution induit une importante pression chimique sur la structure du matériau, modifiant les paramètres de maille et l'angle formé par les jonctions d'atomes de fer et d'arsenic.

La mesure de la résistivité du matériau CsFe_2As_2 a mené à une découverte très semblable à celle réalisée pour le matériau KFe_2As_2 [43]. La figure 4.3 présente les données brutes de résistivité. Sous la pression critique de 14 kbar, la T_c diminue avec la pression (Fig. 4.3a), alors que la T_c augmente au-delà (Fig. 4.3b). La figure 4.4 présente la relation entre la T_c et la pression qui subit un changement de dépendance à 14 kbar.

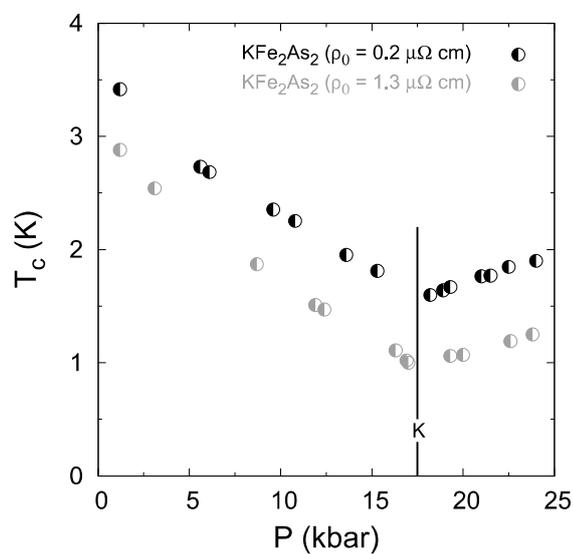


FIGURE 4.2 Diagramme de phase de KFe_2As_2 pour deux échantillons de différentes puretés. La pression critique de 17,5 kbar ne change pas avec le niveau d'impureté.

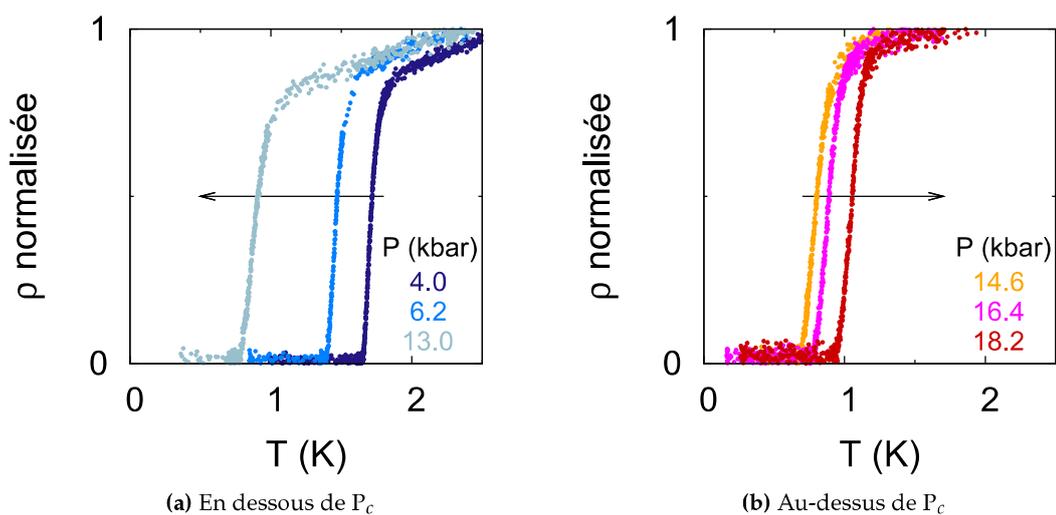


FIGURE 4.3 Mesure de T_c à différentes pressions pour CsFe_2As_2 . Les flèches indiquent le déplacement de la transition en augmentant la pression.

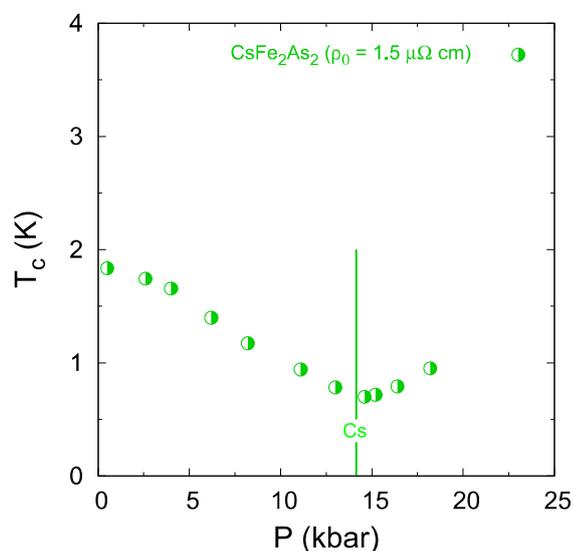


FIGURE 4.4 Diagramme de phase de CsFe_2As_2 . La pression critique est de 14 kbar.

De façon semblable à l'étude précédente, aucun changement brusque n'a été observé dans l'évolution de la résistivité (Fig. 6.7) ou du coefficient de Hall (Fig. 6.6) au passage de la pression critique, ce qui indique encore l'absence d'une transition de Lifshitz au passage de la pression critique. Le nouvel apport de cette seconde étude est que la pression chimique causée par la substitution du césium ne déplace pas la pression critique de la façon attendue. Il semble difficile de relier les paramètres de maille et l'angle formé par les liens entre les atomes de fer et d'arsenic à la valeur de la pression critique.

4.3 Reproduction des résultats

4.3.1 Travaux expérimentaux

Antérieurement aux résultats précédemment présentés, l'évolution de la température critique en pression du matériau KFe_2As_2 a été étudiée par des mesures de susceptibilité magnétique [44]. Ces données concordent très bien avec les données de la figure 4.2 sur la gamme de pression étudiée, c'est-à-dire jusqu'à la pression de 11,7 kbar.

Suite à la publication du diagramme en forme de V, des mesures de susceptibilité magnétique et d'oscillations de de Haas-van Alphen en pression ont confirmé le résultat, en plus d'étudier l'évolution de la surface de Fermi et du champ supérieur critique en pression [45]. Les auteurs confirment l'absence d'une transition de Lifshitz et introduisent

un changement de l'évolution du champ supérieur critique au passage de la pression critique. Les auteurs perçoivent une augmentation du caractère tridimensionnel. Ils ne perçoivent pas de changement sur la bande positionnée en M , ce qui élimine certains scénarios supposant la formation de nœuds sur cette bande. Enfin, ils expliquent le changement de comportement par la disparition graduelle des nœuds accidentels d'un gap ayant une symétrie de type s . En raison des nombreuses expériences qui indiquent une symétrie de type d à pression ambiante (sec. 2.2.1), cette hypothèse est ici rejetée.

Ensuite, l'observation du diagramme de phase en forme de V a été reproduite en utilisant différents liquides de pression [46]. Les résultats de cette étude montrent que ce matériau est très sensible à l'anisotropie de l'application de la pression. Néanmoins, un changement de comportement est obtenu à la pression critique pour tous les liquides utilisés. Ce travail introduit une analyse utilisant le champ supérieur critique et la théorie de Helfand-Werthamer pour affirmer que la supraconductivité interagit différemment avec le champ magnétique de chaque côté de la pression critique, ce qui doit nécessairement être dû à un changement de la structure du gap supraconducteur. L'analyse réalisée à la section 6.2.6 s'en inspire. Les auteurs de ce travail interprètent le changement de comportement à la pression critique comme une transition de Lifshitz consistant en une modulation en k_z . Néanmoins, il est improbable que les mesures d'oscillations de de Haas-van Alphen ne détectent pas cette modulation de la surface de Fermi [45]. Cette hypothèse est donc rejetée.

Enfin, des mesures de la résonance magnétique nucléaire sous pression ont permis de confirmer à nouveau ce diagramme en forme de V et de le lier à l'évolution de la température de Curie-Weiss [47]. Cette observation est une indication puissante du lien qui existe entre les fluctuations magnétiques et la supraconductivité dans ce matériau. De plus, au-dessus de la pression critique, une transition de phase en température est détectée. Cette transition de phase est attribuée à un ordre de charge qui brise la symétrie de rotation par 90° . Cet ordre de charge provoque une modification importante de l'interaction magnétique locale. Un modèle explique l'augmentation observée des corrélations électroniques par le remplissage électronique de la bande d_{xy} qui change de d^6 à d^5 . Puisqu'il est supposé que les fluctuations de spins induisent la supraconductivité, cet ordre de charge pourrait être la cause de la remontée de la température de Curie-Weiss et de la température critique.

4.3.2 Travaux théoriques

D'autres hypothèses ont été avancées afin d'expliquer ce diagramme en forme de V . D'abord, un travail réinterprète ce changement de comportement par une légère évolution de la surface de Fermi, trop légère pour être perçue par les mesures d'effet Hall et de

résistivité [17]. D'abord, ce travail met en évidence une transition de Lifshitz en fonction du dopage en Ba (de 0,3 à 0,1) des bandes ϵ du composé KFe_2As_2 . La bande ϵ passe d'une bande d'électrons à une bande de trous, ce qui est nuisible à la supraconductivité dans le contexte d'un scénario d'emboîtement électron-trou (voir section 2.2.2). Ils proposent que l'application de la pression provoque le retour de la bande d'électron, permettant ainsi les transitions inter-bandes entre la bande α centrée en Γ et la bande ϵ centrée en M, ce qui permet la réémergence de la supraconductivité. Cette hypothèse est rejetée, car il est improbable qu'une telle transition de Lifshitz ne soit pas détectée par les mesures d'effet Hall ou des oscillations de de Haas-van Alphen.

Puis, un second travail, qui reproduit le diagramme de phase en forme de V dans KFe_2As_2 par des mesures de susceptibilité, développe un modèle théorique qui confirme que ce changement de comportement n'est pas dû à un changement de la topologie de la surface de Fermi. Il serait plutôt dû à un changement de la densité d'état, qui serait trop faible pour être perçu par les mesures d'effet Hall ou d'oscillations de de Haas-van Alphen [48]. La figure 4.5 résume ce résultat. La faiblesse de cette hypothèse est que la mesure des masses effectives effectuées par les mesures d'oscillations de de Haas-van Alphen [45] devrait détecter un tel changement de la densité d'état.

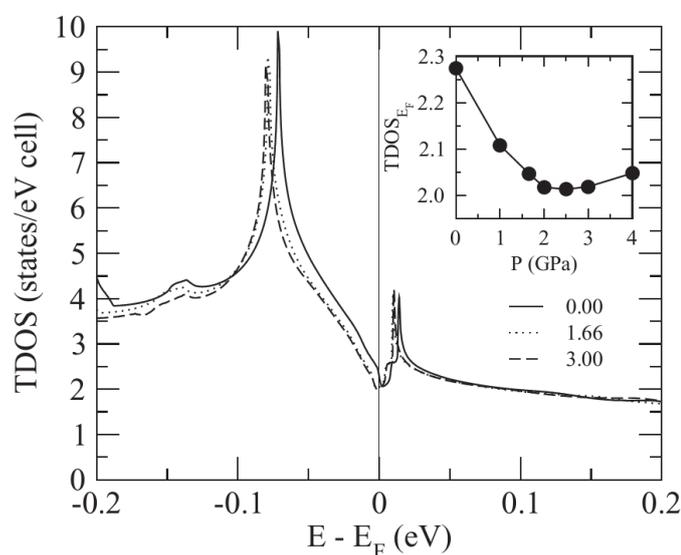


FIGURE 4.5 Travail théorique mettant en évidence un changement de la densité d'état pour expliquer le changement soudain de comportement à la pression critique. Tiré de la référence [48].

Enfin, un travail théorique basé sur un modèle où deux processus d'appariement sont en compétition permet l'apparition d'un diagramme en forme de V [4]. Chaque processus

engendre une supraconductivité ayant une symétrie différente. La figure 4.6 illustre qu'en ajustant l'importance du second processus, il est possible de passer de façon continue entre une phase supraconductrice de type s à une de type d en engendrant un diagramme de phase en forme de V. En plus d'expliquer élégamment le diagramme de phase obtenu, ce modèle reproduit l'effet de l'ajout d'impuretés, c'est-à-dire une translation verticale du diagramme tel qu'observer à la figure 4.2. Ce scénario est la principale hypothèse retenue dans le cadre de ce mémoire. À noter qu'il n'existe aucun indice liant les processus particuliers mentionnés dans cet article aux systèmes étudiés dans ce mémoire. C'est l'idée de deux processus d'appariement en compétition, dont l'importance relative est contrôlée par un paramètre inconnu lié à la pression, qui est retenue.

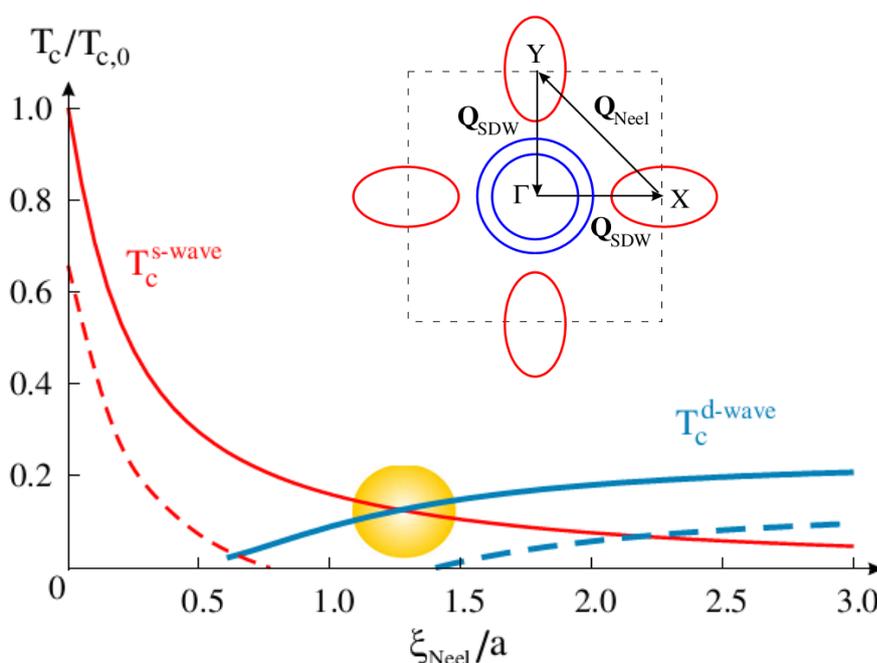


FIGURE 4.6 Compétition entre deux phases supraconductrices de symétries différentes. L'importance des fluctuations de Néel, paramétrisée par la longueur de corrélation (axe x), influence la température critique (axe y) et permet de passer d'un ordre supraconducteur à un autre de façon continue. Les traits pointillés montrent l'évolution de la courbe avec l'ajout d'impuretés. La sous-figure illustre la zone de Brillouin utilisée dans le modèle. Le vecteur \mathbf{Q}_{SDW} mène à une symétrie de type s et le vecteur \mathbf{Q}_{Neel} à une symétrie de type d. Tiré de la référence [4].

4.4 Effets similaires

Cette section présente à titre informatif des résultats similaires obtenus dans d'autres matériaux. Les résultats sont présentés de façon chronologique.

La cohabitation entre deux phases supraconductrices de natures différentes en fonction de la pression a été observée pour trois différents matériaux : $\text{Ti}_{0,6}\text{Rb}_{0,4}\text{Fe}_{1,67}\text{Se}_2$, $\text{K}_{0,8}\text{Fe}_{1,7}\text{Se}_2$ et $\text{K}_{0,8}\text{Fe}_{1,78}\text{Se}_2$ [49]. La pression a pour effet d'éliminer graduellement la supraconductivité jusqu'à la faire complètement disparaître. Puis, après une gamme de pression pour lesquels la supraconductivité est absente, une seconde phase supraconductrice ayant une température critique plus élevée apparaît grâce à l'application de pression. Malheureusement, aucune explication détaillée du phénomène n'a été avancée par les auteurs de cette étude.

Ensuite, le même comportement a été observé dans la famille de matériaux $\text{Rb}_{0,8}\text{Fe}_{2-y}\text{Se}_{2-x}\text{Te}_x$; une phase supraconductrice atténuée par la pression suivie de l'émergence d'une seconde phase supraconductrice après une gamme de pression où la supraconductivité est inexistante. Ici, les auteurs avancent que la phase à basse pression est liée à l'ordre magnétique à longue portée, alors que la phase à haute pression est permise par la disparition totale de l'ordre antiferromagnétique à longue portée [50]. Il est probable qu'un effet similaire soit à l'œuvre pour les matériaux étudiés dans ce mémoire. La pression aurait pour effet de favoriser une interaction magnétique au dépend d'une autre, par exemple en modifiant le recouvrement des différentes orbitales.

Enfin, une évolution graduelle de la symétrie d'appariement en fonction du dopage a été mise en évidence dans la famille de matériaux $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$ grâce à des mesures de la longueur de pénétration de London, du champ critique inférieur et de la chaleur spécifique [51]. La figure 4.7 résume ces résultats. À bas dopage, le matériau présente une phase antiferromagnétique. Le dopage en nickel de $x=0,05$ jusqu'à $x=0,25$ permet l'apparition d'une phase supraconductrice. Pour x inférieur à $0,15$ il y a absence de nœuds, alors que des nœuds apparaissent au-delà de $0,15$. Les auteurs proposent une phase supraconductrice de type s^{++} à bas dopage et une phase de type d à haut dopage, avec une phase de type s^\pm à l'intersection de ces deux phases. Il est aisé d'effectuer un parallèle avec la famille de matériaux $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$; une phase antiferromagnétique à bas dopage, une supraconductivité de type s de $x=0,2$ à $x=0,99$ et une supraconductivité de type d pour $x=0,99$ à $x=1$.

Suite aux travaux présentés dans ce mémoire, un résultat très similaire a été observé dans le matériau PbTaSe_2 [52]. La figure 4.8 présente ce résultat. Comme pour les matériaux KFe_2As_2 , RbFe_2As_2 et CsFe_2As_2 , la température critique diminue avec la pression, pour ensuite remonter au-delà d'une certaine pression critique (Fig. 4.8a). Dans le cas de PbTaSe_2 ,

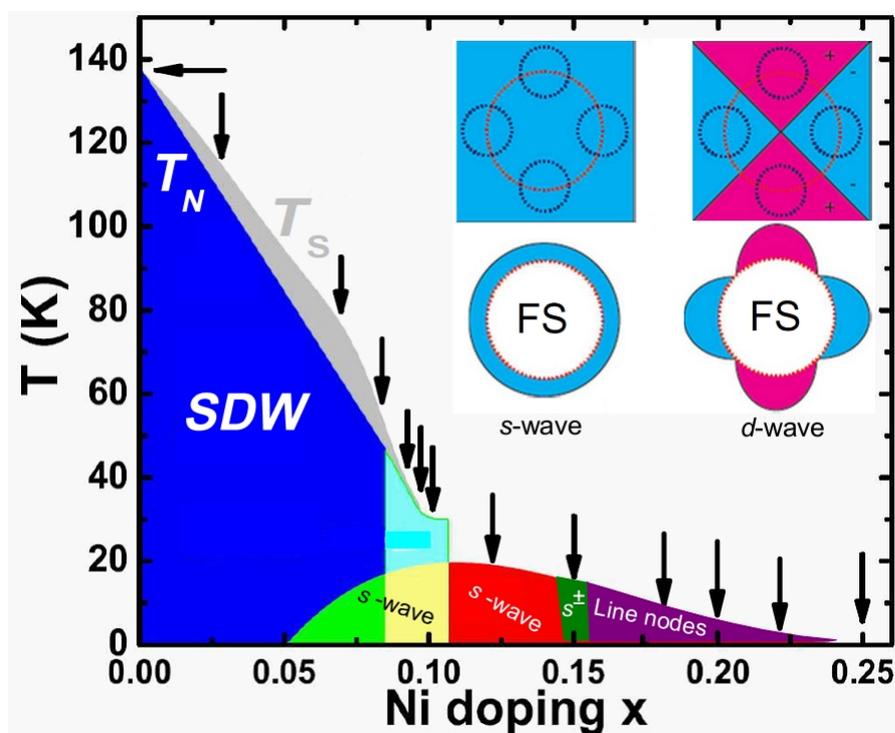


FIGURE 4.7 Diagramme de phase pour la famille de matériaux $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$. La zone mauve est probablement de type d. Tiré de la référence [51].

l'hypothèse avancée pour expliquer ce comportement est celle d'une transition de Lifshitz. Cette hypothèse est basée sur l'analyse de l'évolution de la résistivité inélastique (définie à la section 5.1) en pression qui change de comportement à la pression critique (Fig. 4.8b), contrairement aux matériaux étudiés dans ce mémoire (Fig. 6.7). Une mesure plus directe de la surface de Fermi (effet Hall ou oscillations de de Haas-van Alphen sous pression) permettraient de supporter cette hypothèse et de fournir des indices pour expliquer pourquoi la transition de Lifshitz provoque la remontée de la température critique.

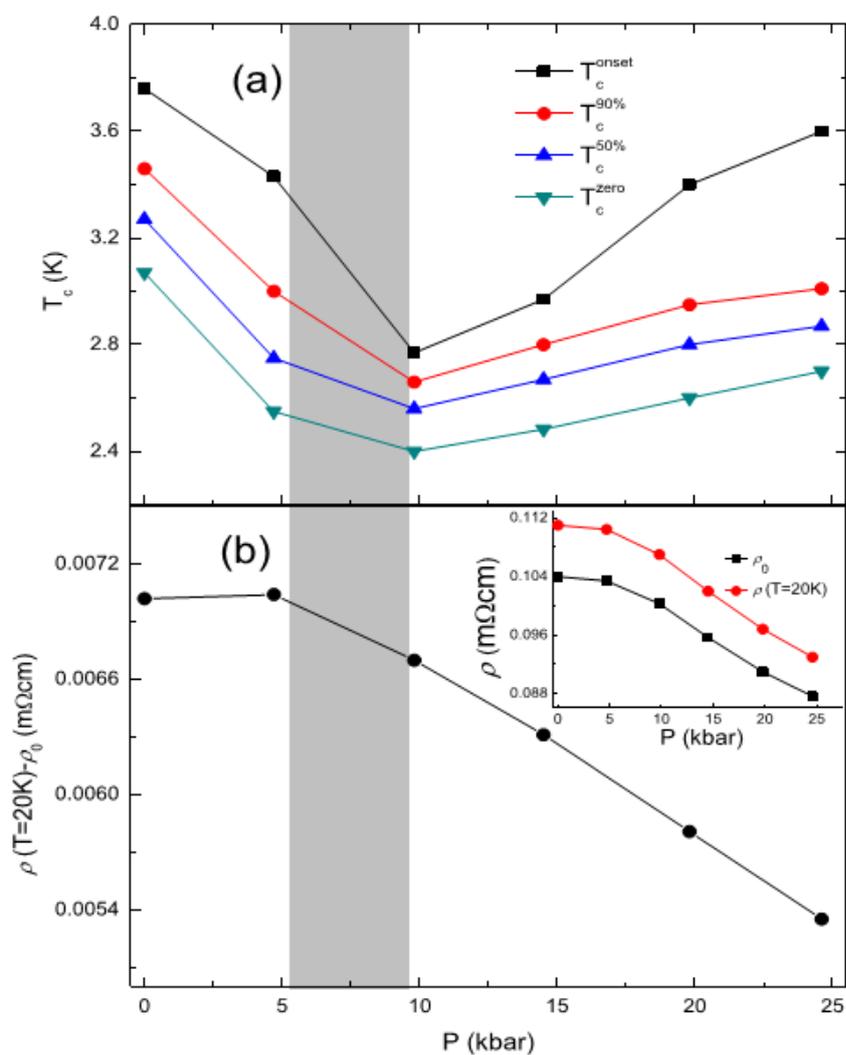


FIGURE 4.8 Changement de comportement de la température critique (a) et de la résistivité inélastique (b) en fonction de la pression dans le matériau PbTaSe_2 . La zone grise illustre la gamme de pression où se produit une transition de Lifshitz qui provoque ces changements de comportement. L'encadré montre que la résistivité à température finie (20K) et la résistivité résiduelle ont une dépendance similaire en fonction de la pression. Tiré de la référence [52].

Chapitre 5

Résultats expérimentaux

Deux échantillons de RbFe_2As_2 , nommés Rb1 et Rb2, ont été mesurés à quinze différentes pressions. Lors de la pressurisation, un contact de courant de l'échantillon Rb2 s'est détaché. Les mesures ont donc été faites en utilisant un contact de tension en guise de contact de courant et un contact de Hall en guise de contact de tension pour les mesures de résistivité. Ce contact manquant explique une résistance plus faible et un signal plus bruyant pour l'échantillon Rb2. Les résultats présentés dans le corps de cet ouvrage et dans l'annexe A sont obtenus en mesurant l'échantillon Rb1. Les données obtenues en mesurant l'échantillon Rb2 montrent toujours un comportement semblable et sont présentées à l'annexe B.

5.1 Mesure de la résistivité

Les données de résistivité sont normalisées afin que la résistivité à l'ambiante soit de $300 \mu\Omega \text{ cm}$, ce qui est la valeur donnée par l'équipe de croissance des cristaux. Cette procédure a d'abord été suggérée pour l'étude de KFe_2As_2 [13]. L'avantage de cette procédure est qu'elle évite d'introduire une erreur due à la mesure des facteurs géométriques pour une analyse de comparaison. La résistivité est mesurée de 300 K à 1 K en trois segments :

300 K à 30 K : Ce segment est mesuré alors que le montage est refroidi suite à son insertion dans le cryostat. La température est mesurée grâce à la puce Cernox installée sur la cellule.

30 K à 2 K : Ce segment est mesuré en appliquant une rampe de refroidissement de 0.1 K/min. Dans les faits, le refroidissement est plus lent que la rampe programmée. La température est mesurée grâce à la puce Cernox installée sur la cellule.

2 K à 1 K : Avant d'effectuer la mesure, le champ magnétique est compensé afin d'assurer un champ nul. Puis, on aimante la pile. Cette fois, la température est mesurée grâce au thermomètre placée sur le LTS (*Low Temperature Stage*), juste au-dessus de la pastille de sel. On suppose que les variations de température sont suffisamment lentes pour que l'équilibre thermique soit atteint. De cette façon, on évite de chauffer la cellule avec la puce Cernox et on augmente la densité de points par minute en mesurant deux canaux (2 échantillons) plutôt que 3 (2 échantillons et puce Cernox). Une fois le minimum en température atteint grâce au système de pompage sur l'hélium, c'est-à-dire environ 1.6 K, on isole thermiquement le LTS pour débiter la désaimantation magnétique. Une rampe de 10 mK/minute est utilisée pour le refroidissement. Une fois le minimum en température atteint, c'est-à-dire environ 1 K, on aimante à nouveau la pile pour mesurer à nouveau la transition, mais cette fois en réchauffant avec une rampe de 5 mK/minute. Dans les cas où la transition est au-dessus de 1.6 K, la désaimantation magnétique n'a pas été utilisé.

Les données de résistivité sont montrées en annexe (Fig. A.1). Puis, la figure 5.1 présente des agrandissements. La température à laquelle se produit la transition diminue avec la pression (Fig. 5.1a), puis augmente une fois une certaine pression critique (P_c) dépassée (Fig. 5.1b).

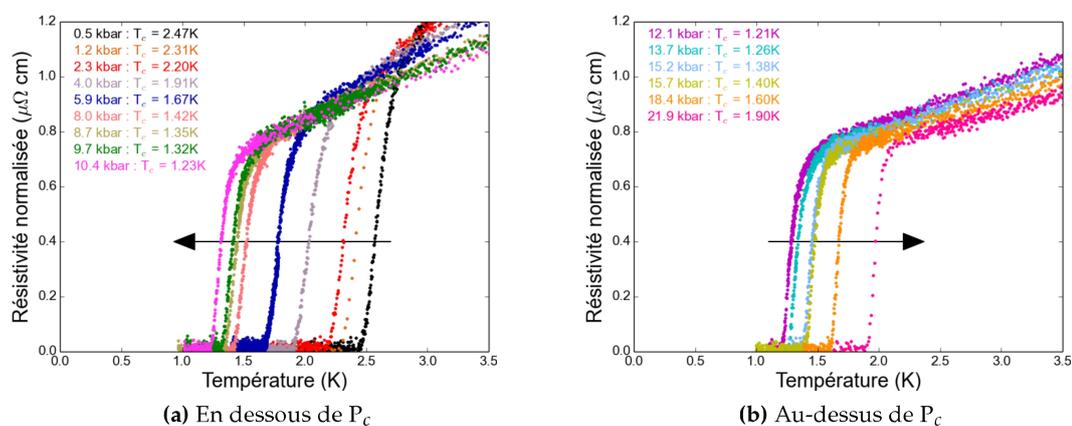


FIGURE 5.1 Mesure de T_c à différentes pressions. Les flèches indiquent le déplacement de la transition en augmentant la pression.

Afin de tracer la relation entre la température critique T_c et la pression, il est nécessaire d'extraire précisément la T_c de la transition supraconductrice. Pour ce faire, on normalise les courbes de résistivité à 3,5 K et on translate les courbes en température afin qu'elles se superposent à une courbe de référence. La courbe de référence pour les pressions inférieures à 9 kbar est celle de 2,3 kbar et celle pour les pressions supérieures à 9 kbar est celle de

18,4 kbar. La séparation à 9 kbar est arbitraire et choisie afin d'unir les courbes ayant une allure semblable. Ces figures sont présentées en annexe (Figs. A.2 et A.3). La T_c est alors définie comme la température où la résistivité de la courbe de référence devient nulle moins la translation de la courbe. Cette procédure permet d'obtenir une incertitude sur les valeurs de T_c de 0,02K. Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau 5.2. Ces valeurs sont enfin utilisées pour tracer le diagramme de phase en pression de la phase supraconductrice. La figure 5.3 présente ce résultat. À noter que les données obtenues à basse pression concordent bien aux données obtenues par un autre groupe avec des mesures de susceptibilité magnétique et de résonance du spin du muon (μ SR) [53].

| Pression (kbar) | Rb1 | | | | Rb2 | | | |
|--------------------|--------------|-------------------------------|--|--|--------------|-------------------------------|--|--|
| | T_c (K) | ρ_0 ($\mu\Omega$ cm) | $\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ (T/K) | $R_H(0)$ (mm^3/C) | T_c (K) | ρ_0 ($\mu\Omega$ cm) | $\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ (T/K) | $R_H(0)$ (mm^3/C) |
| 0.5 | 2.47 | 0.837 | — | 0.727 | 2.43 | 0.810 | — | 0.743 |
| 1.2 | 2.31 | 0.838 | 0.41 | 0.731 | 2.29 | 0.828 | 0.45 | 0.747 |
| 2.3 | 2.20 | 0.799 | — | — | 2.17 | 0.776 | — | — |
| 4.0 | 1.91 | 0.800 | 0.31 | 0.744 | 1.88 | 0.797 | 0.31 | 0.760 |
| 5.9 | 1.67 | 0.792 | — | 0.746 | 1.64 | 0.802 | — | 0.763 |
| 8.0 | 1.42 | 0.761 | 0.26 | 0.751 | 1.40 | 0.754 | 0.27 | 0.768 |
| 8.7 | 1.35 | 0.773 | — | — | 1.33 | 0.748 | — | — |
| 9.7 | 1.32 | 0.756 | — | — | 1.30 | 0.788 | — | — |
| 10.4 | 1.23 | 0.747 | 0.31 | 0.746 | 1.22 | 0.778 | 0.31 | 0.762 |
| 12.1 | 1.21 | 0.726 | — | 0.743 | 1.20 | 0.733 | — | 0.764 |
| 13.7 | 1.26 | 0.730 | — | 0.740 | 1.27 | 0.730 | — | 0.758 |
| 15.2 | 1.38 | 0.718 | 0.47 | — | 1.39 | 0.733 | 0.49 | — |
| 15.7 | 1.40 | 0.738 | — | 0.732 | 1.41 | 0.727 | — | 0.750 |
| 18.4 | 1.60 | 0.705 | — | — | 1.63 | 0.713 | — | — |
| 21.9 | 1.90 | 0.690 | 0.49 | 0.713 | 1.92 | 0.720 | 0.50 | 0.728 |

FIGURE 5.2 Données de pression, de température critique, de résistivité résiduelle, de dépendance en champ magnétique de la température critique et du coefficient de Hall à température nulle pour chaque échantillon.

Ensuite, la résistivité résiduelle ρ_0 est évaluée en optimisant une courbe de la forme $ax^n + b$ sur les données dans l'intervalle de 3 K à 15 K. Les valeurs obtenues sont données à la table 5.2. L'erreur sur ces valeurs est estimée à 0,1 $\mu\Omega$ cm. Cette très grande marge d'erreur est obtenue en changeant l'intervalle des données utilisées pour la régression linéaire. Il

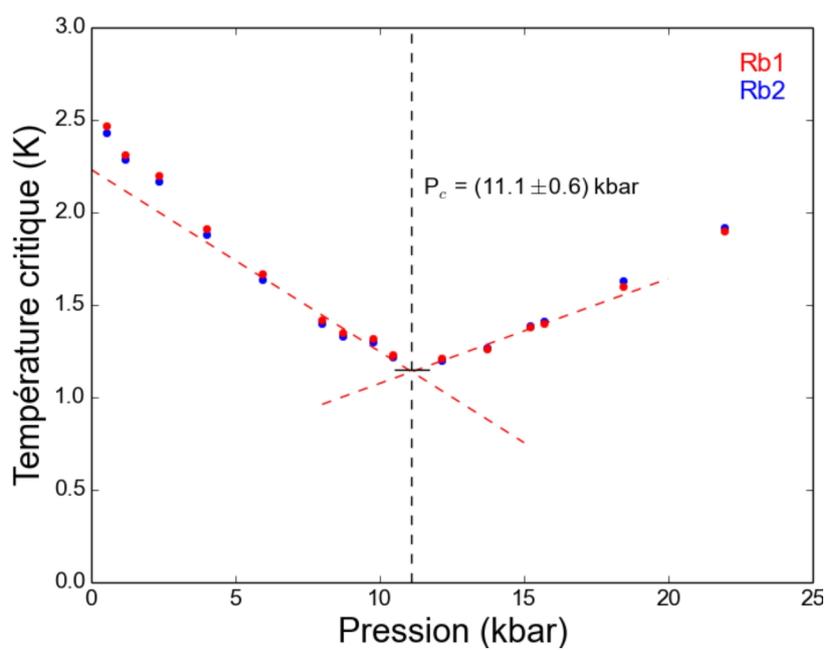


FIGURE 5.3 Diagramme de phase de RbFe_2As_2 . La taille des points représente l'incertitude. Les traits pointillés sont une régression linéaire sur un échantillonnage de points près de P_c (5 points en dessous et 4 au-dessus) pour l'échantillon Rb1 et sont utilisés pour extraire la valeur de P_c . L'incertitude sur la valeur de P_c est donnée par la largeur de l'intervalle sans donnée.

faut néanmoins mentionner que cette façon d'obtenir ρ_0 donne seulement une estimation, car les choix de l'intervalle et de l'équation sont arbitraires. Dans les limites de la technique, la résistivité résiduelle n'évolue pas en fonction de la pression. C'est le résultat attendu, puisqu'il s'agit d'une propriété spécifique à l'échantillon.

La figure 5.4 présente la résistivité à 20 K moins la résistivité résiduelle en fonction de la pression. La résistivité étant proportionnelle à la somme des mécanismes de diffusion et la résistivité résiduelle proportionnelle à la diffusion causée par les impuretés, cette quantité estime le taux de diffusion causé par les phénomènes de diffusion inélastique tels que les phonons ou les fluctuations magnétiques. Cette quantité est surnommée «résistivité inélastique». De plus, cette courbe permet d'observer que la résistance ne subit pas de saut au passage de la pression critique, ce qui est un signe pour une absence de transition de Lifshitz.

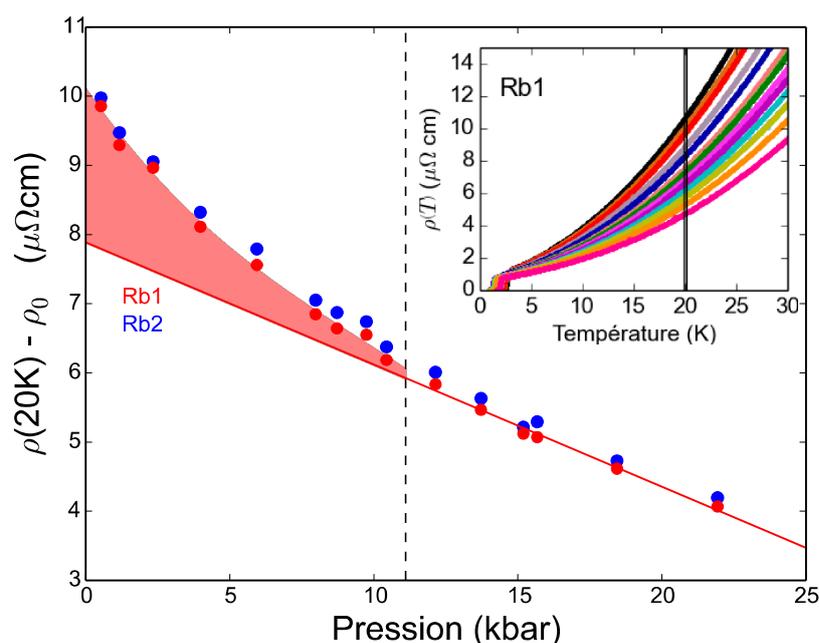


FIGURE 5.4 Figure principale : mesure de la résistivité inélastique en fonction de la pression. Le trait pointillé indique la pression critique ($P_c = 11,2$ kbar). La ligne rouge est une régression linéaire sur les points au-dessus de P_c . La zone rouge est un guide pour les yeux. L'incertitude est inférieure à la taille de points. Encart : données de résistivité pour l'échantillon Rb1. Les traits verticaux délimitent une zone de $\pm 0,1$ autour de 20 K. $\rho(20K)$ est la moyenne des points situés dans cette zone.

5.2 Mesure du champ supérieur critique H_{c2}

Le champ supérieur critique de la phase supraconductrice en fonction de la température a été mesuré à six différentes pressions. La procédure utilisée était de fixer un champ, puis de balayer la température afin de trouver la transition supraconductrice. D'abord, la pile est aimantée et la température ajustée à une température comprise entre 2,2 K et 3,2 K. Il est utile d'avoir un plateau large au-dessus de la transition pour normaliser les courbes. Puis, le refroidissement est effectué grâce au système de pompage sur l'hélium jusqu'à 1,6 K. Le LTS est alors isolé thermiquement et la désaimantation est effectuée en visant une rampe de refroidissement de 5 mk/minute. Dans le cas où la transition est au-dessus de 1,6 K, la désaimantation n'est pas utilisée. Les données recueillies sont présentées en annexe (Figs. A.4 à A.9).

Ensuite, le champ critique supérieur à différentes températures $H_{c2}(T)$ est extrait. Pour définir la transition précisément, les courbes sont normalisées à une température légèrement supérieure à celle de la transition, puis translatées en température afin de les superposer à une courbe de référence. La température à laquelle la transition se produit pour un champ donné est alors définie comme la température où la résistivité de la courbe de référence devient nulle moins la grandeur de la translation. Les graphiques utilisés pour cette analyse sont présentés en annexe (Figs. A.10 à A.15).

La figure 5.5 présente les valeurs de $H_{c2}(T)$. Les régressions linéaires permettent d'extraire la pente $\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$. Les valeurs obtenues sont données à la table 5.2. Cette donnée est proportionnelle à la valeur du champ critique à température nulle et donne un indice sur la robustesse de la phase supraconductrice face à un champ magnétique externe. Cette donnée est tracée en fonction de la pression à la figure 5.6a et en fonction de la température critique à champ nul à la figure 5.6b.

La figure 5.6a montre que $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ diminue avec la pression jusqu'à une pression notée P_H . Au delà de cette pression, $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ augmente. On constate que P_H est inférieur à la pression critique P_c observé dans le contexte des mesures de résistivité (Fig. 5.3).

La figure 5.6b montre que pour des paires de points ayant une température critique semblable (12,2 kbar avec 8,0 kbar et 21,9 kbar avec 4,0 kbar), la valeur de $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ est très différentes. Cela montre que la phase supraconductrice à haute pression est plus robuste au champ magnétique.

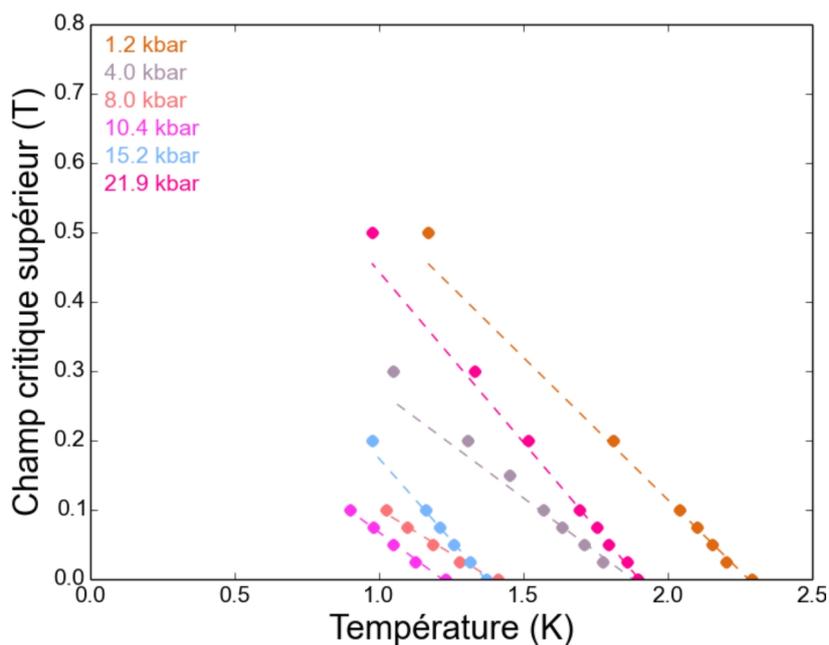
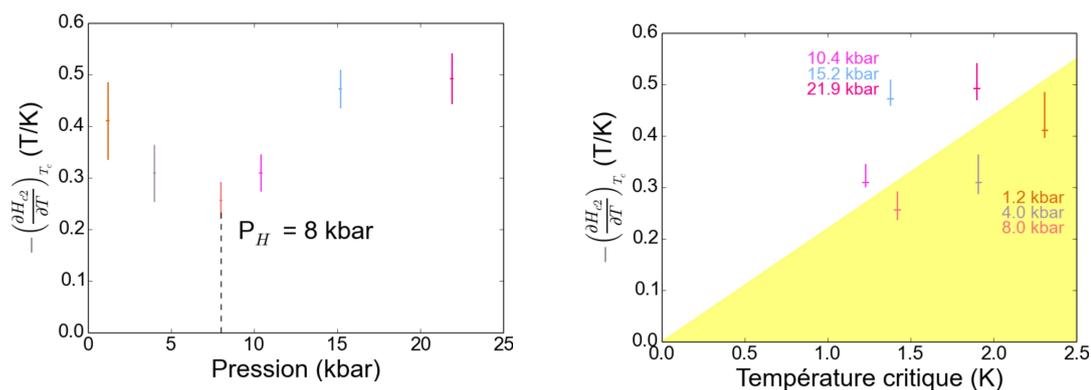


FIGURE 5.5 Champ supérieur critique en fonction de la température. La taille des points représente l'incertitude en température sur les données. L'incertitude en champ est négligeable. Les traits pointillés sont des régressions linéaires sur les données pour les champs inférieurs ou égaux à 0,1 Tesla.



(a) La pression à laquelle $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ atteint son minimum est identifiée comme $P_H = 8$ kbar.

(b) Les pressions des données dans la zone jaune sont sous P_H .

FIGURE 5.6 Évolution de $\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$. Les barres d'erreur sur la valeur de $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ sont obtenues en variant l'intervalle sur lequel est effectué la régression linéaire.

5.3 Mesure de l'effet Hall

L'effet Hall a été mesuré à +10 T et à -10 T dans un intervalle de température de 20 K à 1 K. L'épaisseur des échantillons, utilisée pour calculer le coefficient de Hall, est de (20 ± 4) μm . Le balayage en température a été effectué en deux segments.

30K à 2K : Ce segment est mesuré en appliquant une rampe de refroidissement de 0.1 K/min. Dans les faits, le refroidissement est plus lent que la rampe programmée. La température est mesurée grâce à la puce Cernox installée sur la cellule.

2K à 1K : D'abord, la pile est aimantée. La température est mesurée grâce au thermomètre placée sur le LTS (*Low Temperature Stage*). On suppose que les variations de température sont suffisamment lente pour que l'équilibre thermique soit atteint. De cette façon, on évite de chauffer la cellule avec la puce Cernox et on augmente la densité de points par minute en mesurant deux canaux (2 échantillons) plutôt que 3 (2 échantillons et puce Cernox). Une fois le minimum en température atteint grâce au système de pompage sur l'hélium, c'est-à-dire environ 1.6 K, la mesure des échantillons est interrompue afin d'éviter des les réchauffer. Puis, la désaimantation magnétique est activée en visant une rampe de refroidissement de 40 mK/min. Une fois le minimum en température atteint, la mesure des échantillons est redémarrée. La pile est à nouveau aimantée en visant une rampe de chauffage de 30 mK/min.

La figure 5.7a présente les courbes du coefficient de Hall en fonction de la température, obtenues en anti-symétrisant les deux courbes obtenues à champs inverses. Puis, la figure 5.7b présente la régression linéaire effectuée afin d'extraire le coefficient de Hall à température nulle $R_H(0)$. Les valeurs obtenues sont données à la table 5.2. La figure 5.8 présente les coefficients de Hall à température nulle extraits en fonction de la pression.

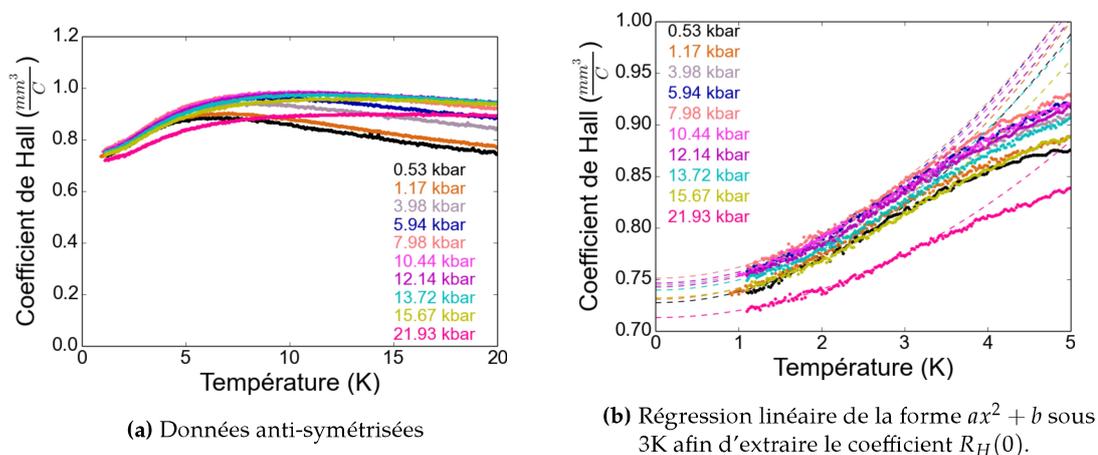


FIGURE 5.7 Coefficients de Hall obtenus en anti-symétrisant les courbes prises à +10 T et à -10T.

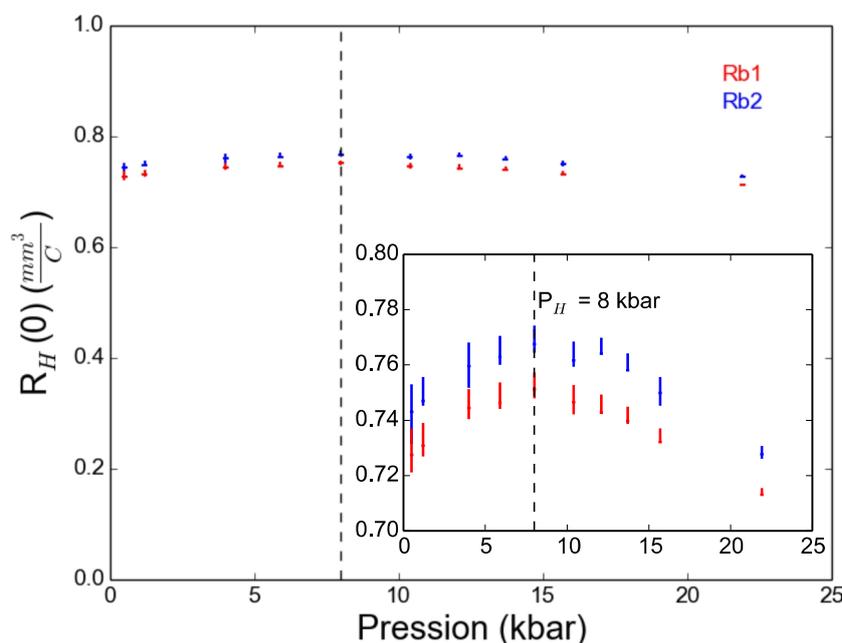


FIGURE 5.8 Le coefficient de Hall à température nulle augmente légèrement en fonction de la pression jusqu'à la pression P_H de 8 kbar (trait pointillé), puis diminue. L'encart est un agrandissement de la figure principale. Les incertitudes sont obtenues en faisant varier l'intervalle de la régression linéaire; la valeur minimale est obtenue avec un intervalle sous 2 K et la valeur maximale avec un intervalle sous 4 K.

Discussion

6.1 Comportement étrange de la pression critique

La figure 6.1 présente conjointement les diagrammes de phase des trois matériaux étudiés. La principale surprise est que la pression critique n'est pas liée simplement au volume occupé par l'atome alcalin. Si le changement d'atome est considéré comme une simple pression supplémentaire sur la structure (effet similaire à une pression négative), il est attendu que la pression critique pour le Rb et le Cs soit à plus haute pression que celle du K. La mesure des paramètres de maille de KFe_2As_2 en pression a permis d'estimer cette pression critique prédite pour CsFe_2As_2 à 27,5 kbar ou plus [43]. La figure 6.2 résume la procédure utilisée et l'étend afin de prédire pour RbFe_2As_2 une pression critique de 19,5 kbar ou plus. Puisque les pressions critiques pour ces deux matériaux sont en fait inférieures à celle de KFe_2As_2 , il semble qu'un autre paramètre dicte la pression critique. De plus, il aurait semblé logique que la pression critique pour RbFe_2As_2 soit située entre celles de KFe_2As_2 et de CsFe_2As_2 , comme sa taille. Ce détail ajoute à l'incompréhension du système.

La figure 6.3 met en évidence le fait que la pression critique n'est corrélée ni au volume de l'atome alcalin (Fig. 6.3d), ni à la température critique (Fig. 6.3b), ni au coefficient de Sommerfeld¹ (Fig. 6.3c). Le coefficient de Sommerfeld, proportionnel à la force des corrélations électroniques, est obtenu grâce à des mesures de chaleur spécifique (Fig. 6.3a). Le paramètre qui dicte la pression critique demeure jusqu'ici un mystère.

1. Le coefficient de Sommerfeld est défini comme le ratio de la chaleur spécifique sur la température dans la limite d'une température nulle. Il est obtenu par l'extrapolation de la courbe de l'état normal vers une température nulle (ordonnée à l'origine, traits pointillés, Fig. 6.3a). Cette quantité est une évaluation de l'importance des corrélations électroniques.

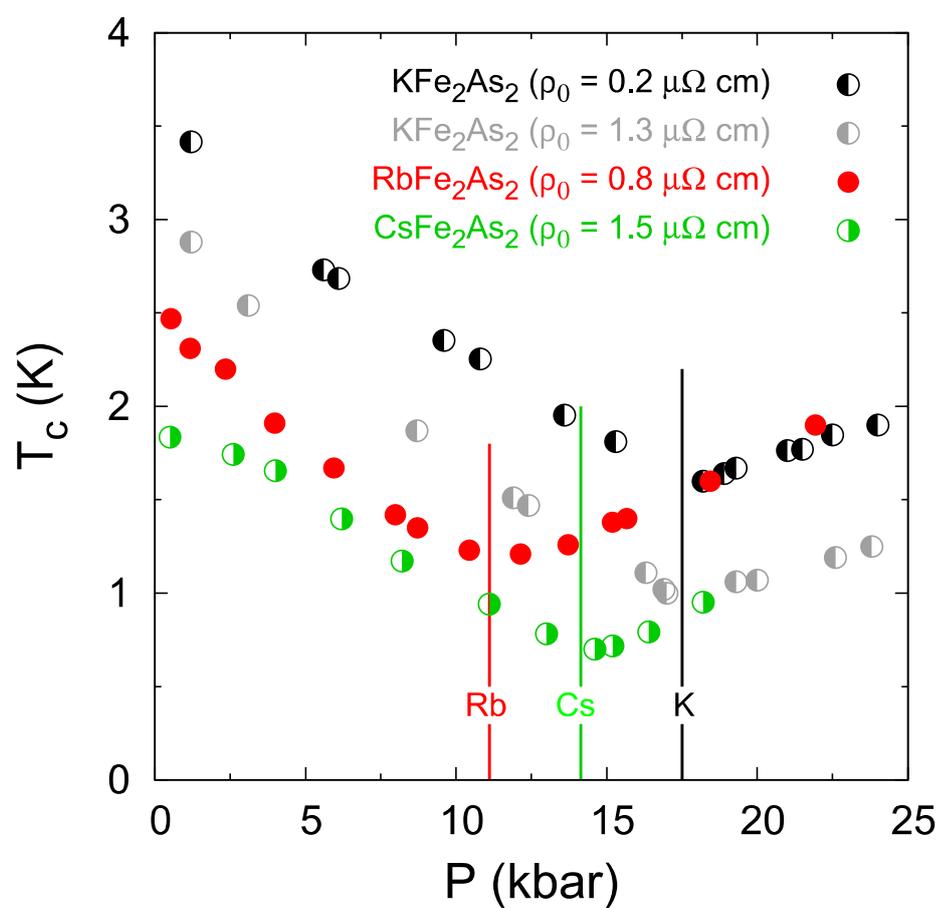


FIGURE 6.1 Diagramme de phase de la température supraconductrice en fonction de la pression pour les trois matériaux étudiés. La pression critique de chaque matériaux ne peut pas être liée simplement à la taille de l'atome alcalin.

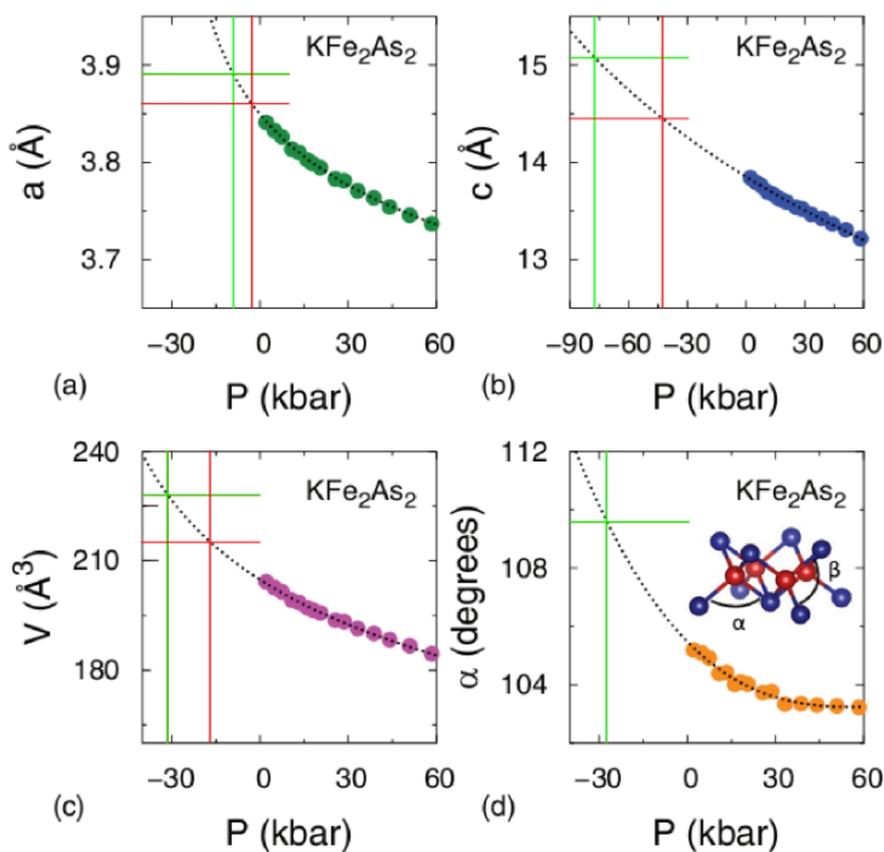


FIGURE 6.2 Évolution des paramètres du cristal de KFe_2As_2 en pression : (a) axe a (b) axe c (c) le volume de la cellule unitaire (d) l'angle entre les atomes As-Fe-As. Les traits horizontaux indiquent les paramètres des autres matériaux à pression ambiante (RbFe_2As_2 en rouge [41] et CsFe_2As_2 en vert [34]). Les traits verticaux donnent la pression négative qu'il faudrait appliquer à un cristal de KFe_2As_2 pour obtenir le même paramètre que pour un matériau différent. Ces pressions sont respectivement -2, -43 et -17 kbar pour RbFe_2As_2 et -10, -75, -30 et -30 kbar pour CsFe_2As_2 . En supposant qu'un de ces paramètres dicte la valeur de la pression critique, les pressions critiques de RbFe_2As_2 et CsFe_2As_2 devraient être au moins 2 et 10 kbar plus élevées que pour KFe_2As_2 ($P_c = 17,5$ kbar).

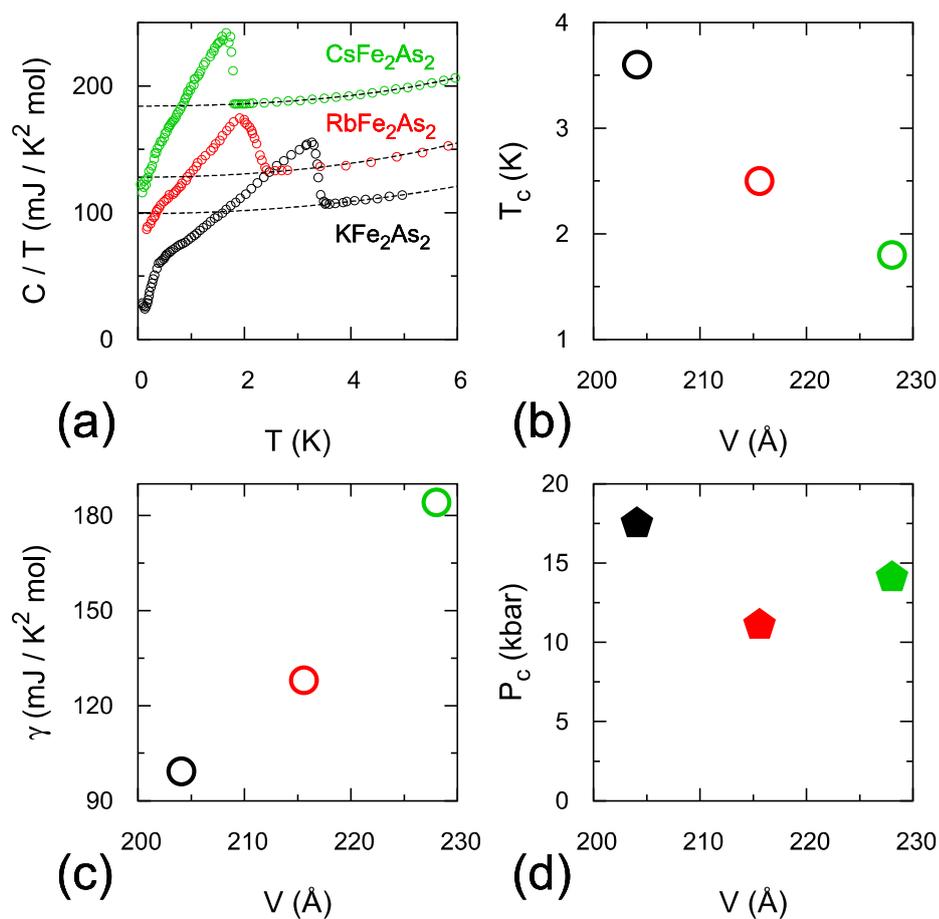


FIGURE 6.3 (a) Données de chaleur spécifique en fonction de la température permettant d'extraire le coefficient de Sommerfeld γ avec une régression linéaire sur les données de l'état normal (traits pointillés). Données tirées des références [24, 39, 30] (b) La température critique (T_c) de la phase supraconductrice diminue en fonction du volume (V) de l'atome alcalin pour les trois matériaux. (c) Le coefficient de Sommerfeld augmente avec le volume de l'atome alcalin. (d) La pression critique (P_c) n'est pas corrélée avec le volume de l'atome alcalin. Il n'y a donc pas de corrélation non plus avec la température critique ou le coefficient de Sommerfeld.

6.2 Comportement universel à la pression critique

La section précédente met en évidence la difficulté de comprendre ce qui détermine la pression critique. La présente section utilise la procédure inverse pour analyser les données, c'est-à-dire prendre la pression critique comme point de référence pour effectuer l'analyse.

6.2.1 Évolution de la température critique minimale

La figure 6.4 montre l'évolution linéaire de la température critique à la pression critique, c'est-à-dire la T_c minimale, en fonction du niveau d'impuretés donné par la résistivité résiduelle ρ_0 . Pour les supraconducteurs à base de fer de structure 122 complètement dopés en trous, la valeur de la température critique est donc donnée par le niveau d'impuretés. Ce résultat laisse présager que la phase supraconductrice n'est pas affectée par la nature de l'atome alcalin. Ce sont plutôt les paramètres de la structure et la densité de porteurs qui ont un impact direct sur l'état supraconducteur. Le résultat de la figure 6.4 est cohérent avec le modèle présenté à la figure 4.6 qui prédit la diminution de la température critique minimale avec l'ajout d'impuretés.

6.2.2 Diagramme de phase

La figure 6.5 présente les diagrammes de phase de chaque matériau en utilisant comme référence le minimum de la température critique pour chacun. La dépendance en pression sur un intervalle de plus ou moins 10 kbar est exactement la même, témoignant d'une physique universelle pour ces trois matériaux. L'absence d'impact majeur de la taille de l'atome alcalin indique que la physique importante est dictée par les plans d'arsenic et de fer.

Aussi, la pente (trait jaune) sous P_c est deux fois plus grande que celle au-dessus de P_c . Cette observation permet de comprendre la différence de largeur de la transition supraconductrice dans les mesures de champ supérieur critique, due à une légère inhomogénéité de la pression appliquée sur l'échantillon. En effet, la largeur de la transition est due aux différentes températures critiques obtenues localement à cause d'un gradient de pression. En présence d'un tel gradient, supposé le même pour chaque mesure, il est alors normal d'avoir une plus grande largeur de transition si le $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ est grand (Fig. A.4 et A.5, sous P_c), comparativement à une largeur de transition étroite si le $\frac{\partial T_c}{\partial p}$ est petit (Fig. A.8 et A.9, au-dessus de P_c).

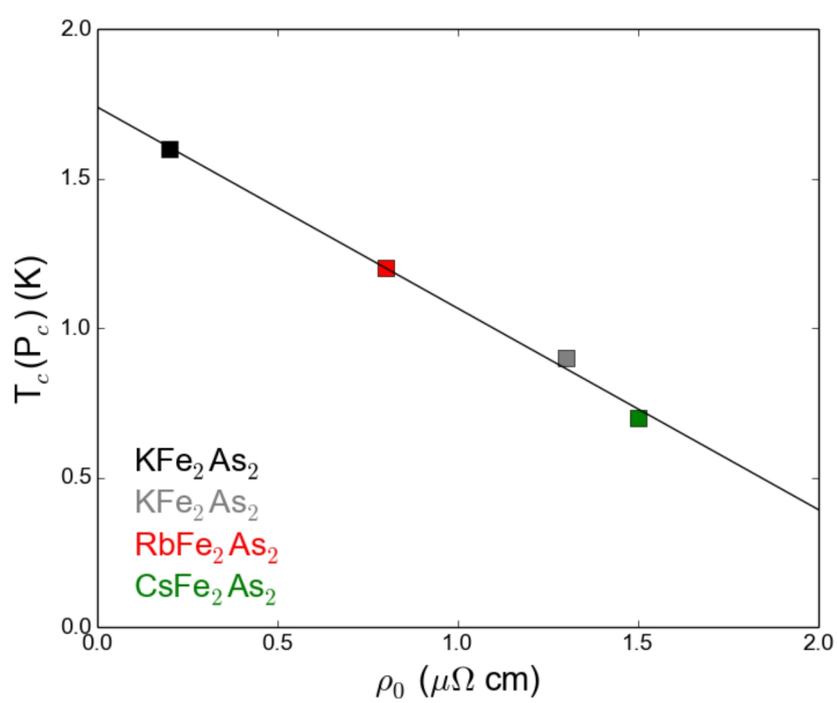


FIGURE 6.4 Température critique à la pression critique (T_c minimale) en fonction du niveau d'impuretés (ρ_0). Le trait noir est une régression linéaire sur les données.

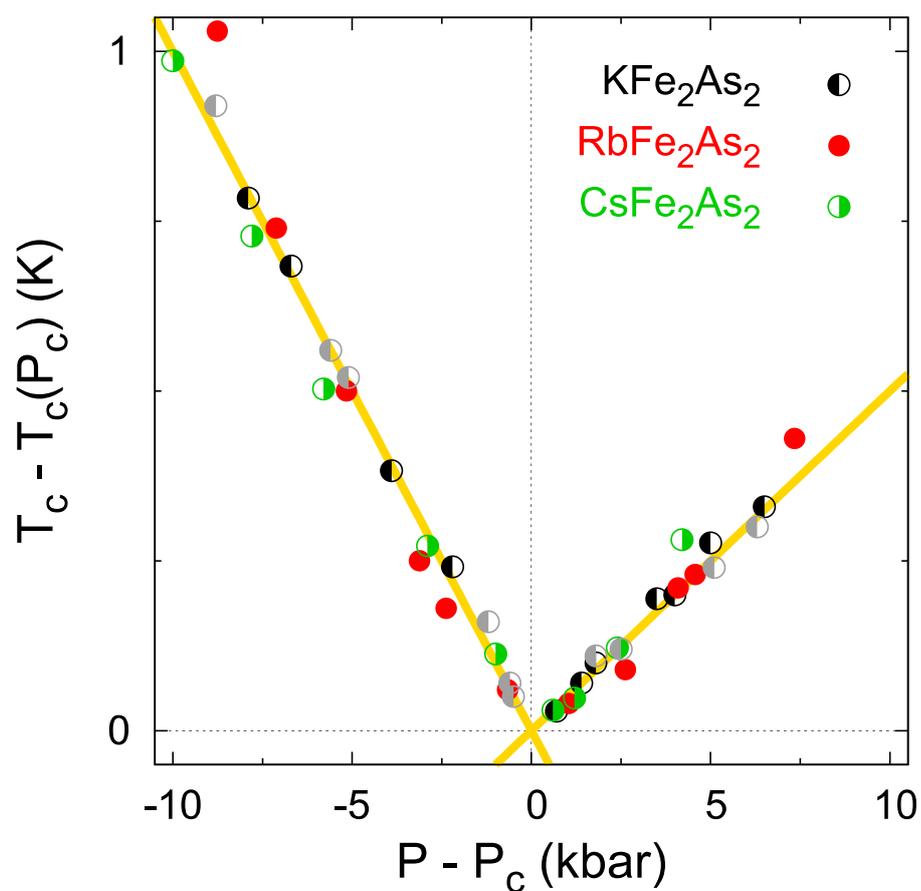


FIGURE 6.5 Les diagrammes de phase de chaque matériau (Fig. 6.1) sont superposés en soustrayant pour chacun leur pression critique respective (translation horizontale) et leur température critique à la pression critique (translation verticale). Il apparaît évident que la dépendance en pression est la même pour chaque matériau dans un domaine de plus ou moins 10 kbar autour de la pression critique. Les traits jaunes sont des guides pour les yeux.

Afin d'expliquer ce diagramme de phase universel pour les supraconducteurs à base de fer de structure 122 complètement dopés en trous, deux hypothèses sont avancées :

Transition de Lifshitz : un changement soudain et radical de la surface de Fermi.

Changement de la symétrie d'appariement : une transition entre deux ordres supraconductrices de symétries différentes.

6.2.3 Coefficient de Hall à température nulle

Le coefficient de Hall à température nulle dépend de la densité de porteurs de charge (Sec. 1.3.2). Dans le scénario d'une transition de Lifshitz, cette quantité devrait changer de façon drastique. La figure 6.6 montre que l'évolution du coefficient de Hall est monotone pour les trois matériaux étudiés, ce qui est contradictoire à ce scénario. De plus, la mesure des oscillations de de Haas–van Alphen en pression a confirmé ce résultat pour le matériau KFe_2As_2 [45]. L'hypothèse d'une transition de Lifshitz est donc éliminée au profit de celle d'un changement de la symétrie d'appariement.

6.2.4 Diffusion inélastique

La résistivité est une quantité proportionnelle à la diffusion des porteurs dans le matériau. On distingue ici deux types de diffusions :

Élastique : La diffusion due aux impuretés. La quantité d'impuretés étant constante, la contribution de ce processus ne change pas en température. Ce processus est associé à la valeur de ρ_0 .

Inélastique : La diffusion due aux modes vibratoires du réseau cristallin ou aux fluctuations magnétiques. L'importance de la diffusion inélastique diminue avec la température jusqu'à devenir nulle à 0K, ce qui permet d'extraire ρ_0 . La diffusion inélastique est donc associée à la valeur de $\rho(T) - \rho_0$, surnommée «résistivité inélastique».

La figure 6.7 trace la part de la résistivité associée à la diffusion inélastique en fonction de la pression. D'abord, cette figure montre que pour les trois matériaux étudiés, la résistivité évolue de façon homogène au passage de la pression critique, ce qui conforte l'idée qu'il n'y a pas de transition de Lifshitz. Ensuite, les guides pour les yeux suggèrent qu'un mécanisme de diffusion disparaît avec l'application de pression. Il semble qu'au-dessus de P_c les points ont une dépendance linéaire, alors que sous la pression critique les points s'éloignent de

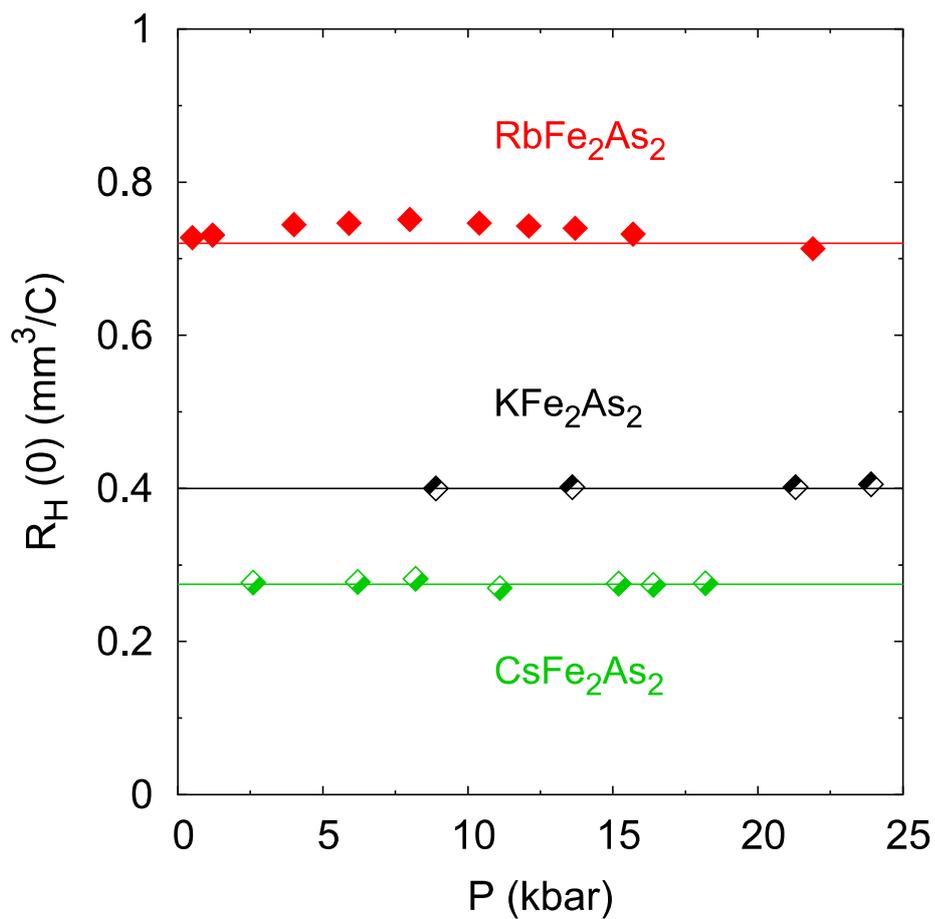


FIGURE 6.6 Coefficient de Hall à température nulle en fonction de la pression pour chaque matériau étudié. Dans les trois cas, aucun saut abrupt pouvant expliquer le diagramme de phase n'est constaté. Le scénario d'une transition de Lifshitz est éliminé. À noter que les incertitudes ne considèrent pas l'erreur sur la mesure de l'épaisseur des échantillons, car celle-ci ne change pas entre les différentes pressions. Une erreur sur cette donnée aurait pour seul effet de déplacer tous les points d'un échantillon verticalement d'une même valeur, ce qui n'affecte aucunement notre analyse.

cette linéarité. Cette observation permet un rapprochement avec le modèle de Fernandes et Millis [4] où deux processus de diffusion en compétition permettent l'apparition de deux phases supraconductrices ayant des symétries d'appariement différentes.

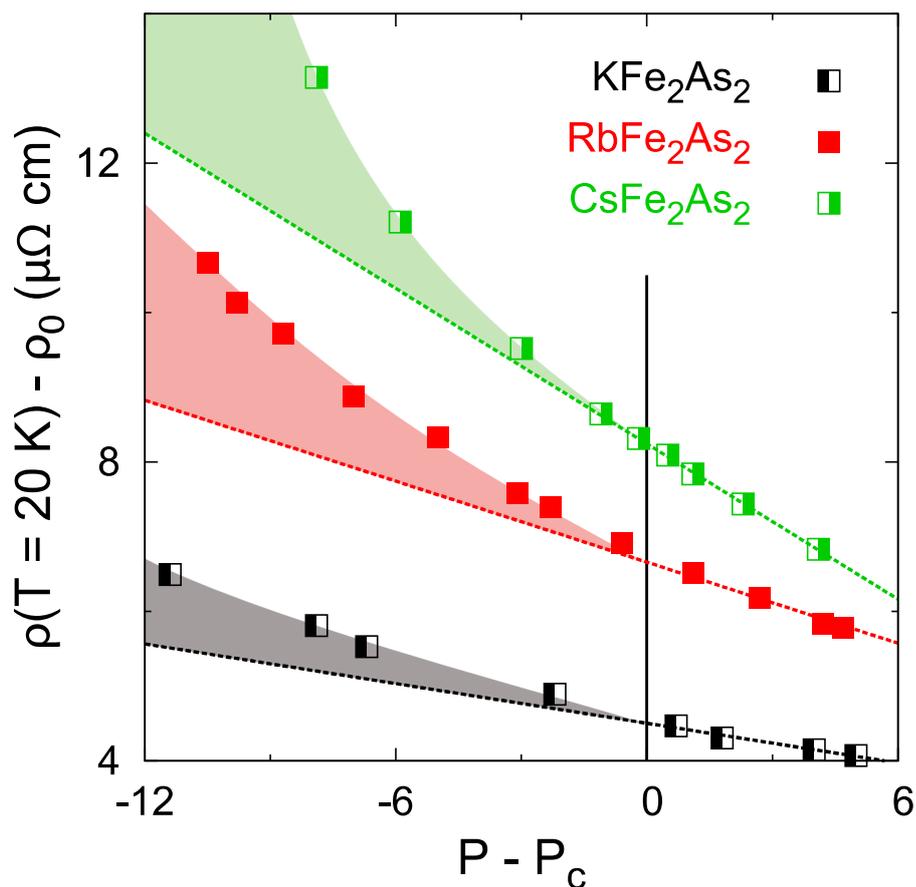


FIGURE 6.7 Résistivité inélastique en fonction de la pression. Les courbes sont translées horizontalement en soustrayant la pression critique de chaque matériau pour les comparer par rapport à la transition de chaque matériau (trait vertical). Les traits pointillés sont des régressions linéaires sur les points au-dessus de la pression critique et les zones ombragées des guides pour les yeux.

La résistivité totale est obtenue par l'addition des différents mécanismes de diffusion chacun associé à un vecteur \vec{Q} (Sec. 1.3.1). Au dessus de P_c , l'interaction dominante est de faible vecteur \vec{Q} , liant deux bandes centrées en γ (bandes α et ζ , Fig. 2.5b). Cette interaction inter-bandes favorisent une supraconductivité de type s^\pm , tel qu'expliqué à la section 2.2.2 [32]. La diminution de la pression permet l'apparition d'un nouveau mécanisme de diffusion

de grand vecteur \vec{Q} qui fait augmenter la résistivité². Ce mécanisme intra-bande implique la plus grande bande centrée en γ (bande β , Fig. 2.5b). En dessous de P_c , cette interaction devient dominante, ce qui favorisent une supraconductivité de type d, tel qu'expliqué à la section 2.2.2 (Fig. 2.4) [33].

6.2.5 Théorie de Helfand-Werthamer pour un gap anisotrope

La référence [54] décrit un modèle qui, en présence d'un gap anisotrope dans les bandes électroniques, prédit la dépendance en température du champ supérieur critique selon l'axe c ($H_{c2,c}$) et du paramètre d'anisotropie (γ). Ce paramètre est défini par le ratio du champ supérieur critique dans le plan (axe a ou b) sur le champ supérieur critique perpendiculaire au plan (axe c) :

$$\gamma \stackrel{\text{def}}{=} \frac{H_{c2,ab}}{H_{c2,c}} \quad (6.1)$$

Le modèle comporte quelques suppositions :

$H_{c2}(0)$ est faible : ce modèle est valable si $H_{c2}(T)$ n'excède pas la limite paramagnétique.

Pour les matériaux ici étudiés, $H_{c2}(0)$ n'excède pas 2 Tesla.

T_c unique : le modèle prend en compte la présence d'une seule phase supraconductrice (un seul condensat). L'observation des courbes du champ supérieur critique en fonction de la température ne révèle aucun indice de la présence de deux condensats (Figs. A.4 à A.9).

Peu de désordre : le modèle travaille dans la limite d'un matériau sans impureté. La résistivité résiduelle faible de nos échantillons témoignent d'une grande pureté.

Dans le cas d'un modèle à une bande anisotrope, les auteurs obtiennent la relation suivante pour $H_{c2,c}$ dans la limite où $T \rightarrow T_c$:

$$H_{c2,c} = \frac{16\pi(1 - \frac{T}{T_c})\phi_0 T_c^2}{7\zeta(3)\langle\Omega^2\mu_c\rangle\hbar^2 v_0^2} \quad (6.2)$$

où v_0 est la vitesse de Fermi³ moyenne, T_c est la température critique et $\mu_c = \frac{v_x^2 + v_y^2}{v_0^2}$ avec v_x et v_y les vitesses de Fermi selon les deux axes du plan. Ω est une fonction qui donne la dépendance en fonction de la vitesse de Fermi du gap supraconducteur, c'est-à-dire la

2. Malheureusement, aucun mécanisme n'a pu être avancé dans le cadre de ce mémoire pour expliquer le lien entre la pression et l'importance des différents mécanismes de diffusion.

3. La vitesse de Fermi est la vitesse associée aux porteurs de charge situés au niveau de Fermi.

structure du gap. Elle est définie dans un article de V. G. Kogan [55] et est reliée au gap supraconducteur :

$$\Delta(\vec{r}, T; \vec{v}) = \psi(\vec{r}, T)\Omega(\vec{v}') \quad (6.3)$$

où la fonction $\psi(\vec{r}, T)$, définie dans l'article de V. G. Kogan [55], dépendant linéairement de Ω . Les autres paramètres de l'équation 6.2 sont tous des constantes : ϕ_0 le quantum de flux, \hbar le coefficient de Planck réduit et $\zeta(3) = 1,202$. On réécrit cette équation dans une forme plus facilement comparable à l'expérience :

$$\frac{H_{c2,c}}{T_c^2(1 - \frac{T}{T_c})} = \frac{-H_{c2,c}}{T_c(T - T_c)} = \frac{16\pi\phi_0}{7\zeta(3)\langle\Omega^2\mu_c\rangle\hbar^2v_0^2} \quad (6.4)$$

Puisque à T_c , $H_{c2,c}$ est nul, cette expression est strictement équivalente à l'expression suivante :

$$\frac{1}{T_c} \left(\frac{-\partial H_{c2,c}}{\partial T} \right)_{T_c} = \frac{16\pi\phi_0}{7\zeta(3)\hbar^2} \frac{1}{\langle\Omega^2\mu_c\rangle} \frac{1}{v_0^2} \quad (6.5)$$

Cette équation a été utilisée pour la première fois sous cette forme dans l'article de Taouf et al. [46] où les auteurs montrent que la mesure du champ supérieur critique permet de détecter une différence entre les ordres présents de part et d'autre de la pression critique dans le matériau KFe_2As_2 .

6.2.6 Saut universel

Inspirés par l'analyse de Taouf et al. [46], des mesures du champ supérieur critique à différentes pressions ont été réalisées pour les matériaux KFe_2As_2 et RbFe_2As_2 afin de calculer le terme $\frac{1}{T_c} \left(\frac{-\partial H_{c2,c}}{\partial T} \right)_{T_c}$. La figure 6.8 présente le terme $\frac{1}{T_c} \left(\frac{-\partial H_{c2,c}}{\partial T} \right)_{T_c}$ en fonction de la pression. Cette quantité subit un saut au passage de la pression critique pour les deux matériaux investigués. L'équation 6.5 permet de relier ce saut à un changement de la structure du gap.

En effet, les termes non constants de cette équation sont $\frac{1}{\langle\Omega^2\mu_c\rangle}$ et $\frac{1}{v_0^2}$. Les mesures du coefficient de Hall ont montré que la surface de Fermi ne subit pas de changement brusque au passage de la pression critique (Fig. 6.6). Par conséquent, v_0 et μ_c restent constants. Le saut provient donc d'un changement de la fonction Ω , c'est-à-dire un changement de la structure du gap.

Dans le scénario où la symétrie d'appariement change, il est inévitable que la structure du gap change. La symétrie de type d impose la présence de nœuds, ce qui n'est pas le cas

pour la symétrie de type s^\pm . Par contre, il n'est pas possible de faire la déduction inverse; un changement de la structure du gap n'implique pas nécessairement un changement de la symétrie. Ainsi, cette mesure conforte l'hypothèse avancée, sans malheureusement la confirmer. Seules des méthodes mesurant directement la symétrie d'appariement (Jonctions Josephson ou mesure du courant tunnel en fonction du champ magnétique) peuvent conclure définitivement le débat. La réalisation de ces expériences sous pression est toutefois un grand défi technique.

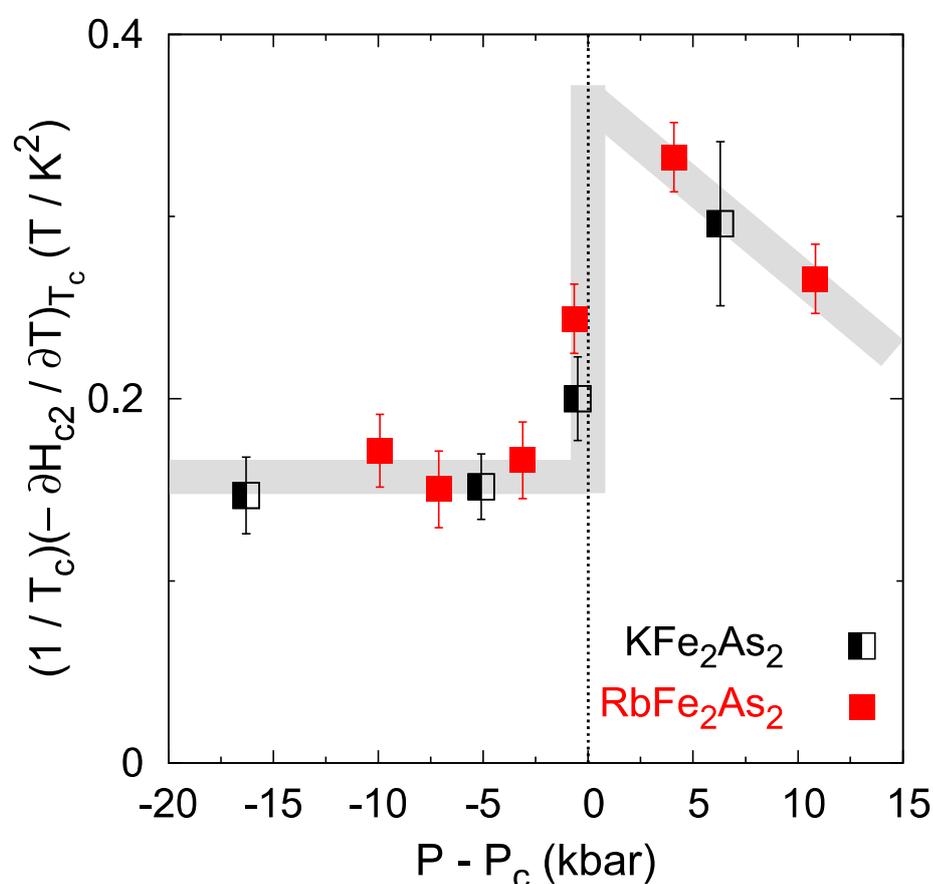


FIGURE 6.8 Saut de la quantité $\frac{1}{T_c} \left(-\frac{\partial H_{c2}}{\partial T} \right)_{T_c}$ à la pression critique. Puisque la vitesse de Fermi est constante en pression pour ces matériaux, seul un changement de la structure du gap supraconducteur peut expliquer ce saut.

6.2.7 Changement de la symétrie d'appariement

En conclusion, l'hypothèse avancée pour expliquer le changement brusque de la dépendance de la T_c en fonction de la pression pour les supraconducteurs à base de fer de structure 122 complètement dopés en trous est qu'ils subissent un changement de la symétrie d'appariement au passage de la pression critique. Cette hypothèse est d'abord supportée par la mesure du champ supérieur critique en pression (sec. 6.2.6). Puis, le diagramme de phase observé est expliqué par un modèle théorique (Fig. 4.6) effectuant cette hypothèse. Ce modèle prédit l'évolution du diagramme avec l'ajout d'impuretés (Fig. 4.2) et concorde avec l'évolution du taux de diffusion inélastique en fonction de la pression (Fig. 6.7).

La symétrie en dessous de la pression critique est de type d, conformément aux nombreuses déterminations de la symétrie d'appariement effectuées à pression ambiante (sec. 2.2.1). Au-dessus de la pression critique, la symétrie ne peut pas être de type s^{++} , car le diagramme de phase au-dessus de P_c n'aurait pas changé avec l'ajout d'impuretés non-magnétiques (Fig. 4.2). La symétrie proposée est de type s^\pm telle que décrite à la section 2.2.2 [32]; la dépendance de la température critique en fonction du niveau d'impuretés est similaire au cas d'une symétrie de type d, ce qui est nécessaire pour expliquer la translation verticale du diagramme de phase avec le niveau d'impuretés. L'ordre supraconducteur au-dessus de P_c serait donc de type s^\pm , comme pour la famille de matériaux $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$. Un très faible changement en dopage (de $x=0,974$ à $x=1$) permettant de passer de s^\pm à d, il est aussi possible que l'application de pression induise le changement inverse.

Enfin, cette conclusion permet d'apporter une explication aux résultats de Okazaki et al. [23] qui ne concordent pas à la majorité des expériences effectuées sur KFe_2As_2 (sec. 2.2.1). La mesure ARPES étant une mesure de surface, il est possible que la pression chimique induite par les conditions de surface a un effet similaire à la pression hydrostatique et fait ressurgir l'ordre supraconducteur ayant une symétrie de type s^\pm .

Conclusion

D'abord la revue de la littérature a permis de dresser le portrait de la famille de matériaux $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$. Les différents travaux s'accordent pour fixer l'apparition de nœuds près du dopage de $x=0,8$ et que la symétrie demeure de type s^\pm jusqu'au dopage le plus élevé de $x=0,974$. Pour KFe_2As_2 , à l'exception d'une expérience ARPES, les résultats s'accordent pour désigner une symétrie de type d. Il semble donc que le diagramme de phase pour la famille de matériaux $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ait une supraconductivité de type s sans nœud de $x=0,2$ à $x=0,8$, une supraconductivité de type s avec nœuds de $x=0,8$ à $x=0,99$ et une supraconductivité de type d pour $x=0,99$ à $x=1$. Ce diagramme est similaire à celui de la famille de matériaux $\text{BaFe}_{2-x}\text{Ni}_x\text{As}_2$.

Ensuite, l'évolution de la température critique en fonction de la pression subit un changement soudain de comportement à une pression donnée pour les trois matériaux étudiés. Les mesures d'effet Hall éliminent la possibilité d'une transition de Lifshitz. L'évolution en pression de la dépendance en température du champ supérieur critique H_{c2} indique un changement de la structure du gap. L'évolution en pression de la résistivité montre la disparition d'un processus de diffusion. Ces différentes observations expérimentales sont élégamment expliquées par un modèle où deux ordres supraconducteurs de symétries différentes sont en compétition. Alors que ces matériaux ont une symétrie de type d à pression ambiante, un ordre supraconducteur de type s^\pm , comme pour $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$, apparaît au-dessus de la pression critique. La reproduction de ces résultats dans trois matériaux de même structure ayant un atome alcalin de taille différente indique une physique universelle due au dopage en trous et aux plans d'arsenic et de fer.

Enfin, le changement de symétrie avec la pression hydrostatique permet de proposer qu'une pression chimique, due à la condition de surface, induit un état supraconducteur différent à la surface d'un échantillon que dans son corps. Cette hypothèse explique pourquoi la mesure ARPES obtient un résultat différent pour la symétrie d'appariement de KFe_2As_2 .

Annexe A

Graphiques supplémentaires

A.1 Mesure de la résistivité

A.1.1 Courbes de refroidissement

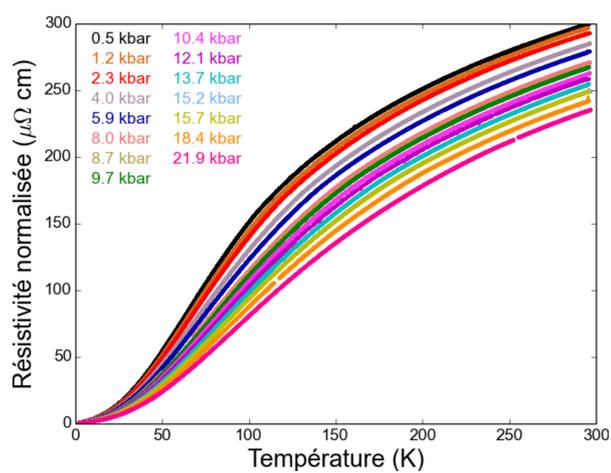


FIGURE A.1 Mesure de la résistivité lors du refroidissement de l'échantillon Rb1 à différentes pressions.

A.1.2 Extraction de la température critique

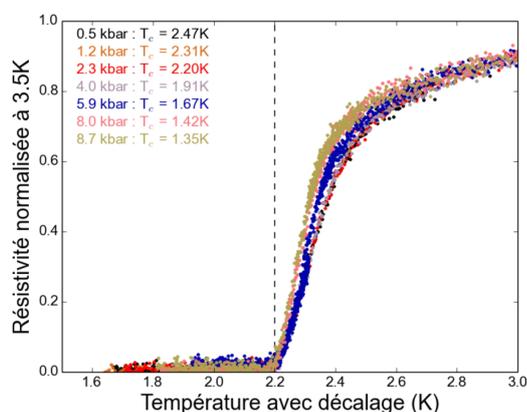


FIGURE A.2 Extraction de T_c aux basses pressions pour l'échantillon Rb1. Les courbes sont normalisées à 3,5K et translâtées en température afin de se superposer à la courbe de 2,3 kbar. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

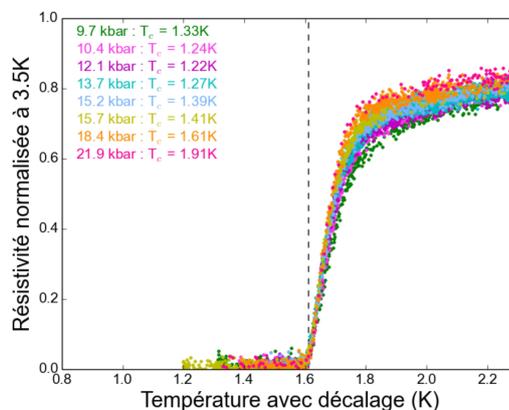


FIGURE A.3 Extraction de T_c aux hautes pressions pour l'échantillon Rb1. Les courbes sont normalisées à 3,5K et translâtées en température afin de se superposer à la courbe de 18,4 kbar. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

A.2 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température critique

A.2.1 Données brutes

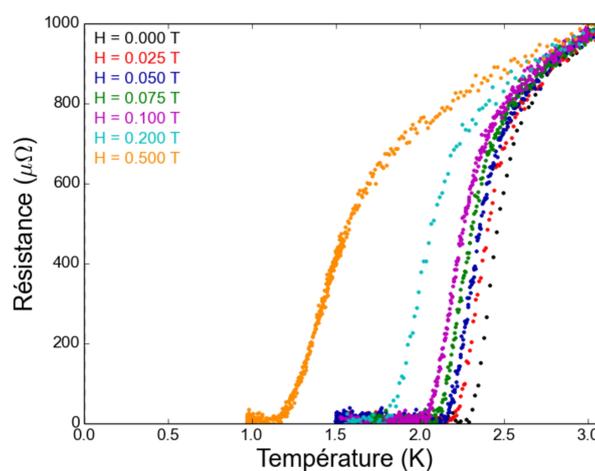


FIGURE A.4 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 1,2 kbar.

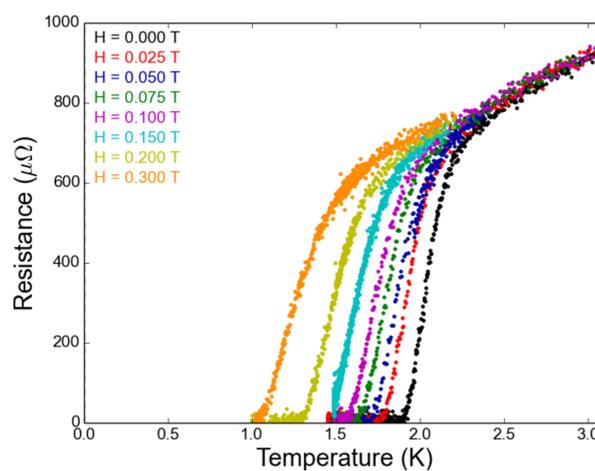


FIGURE A.5 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 4,0 kbar.

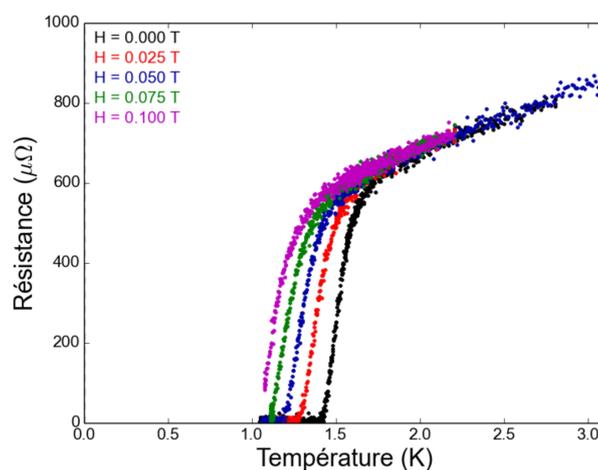


FIGURE A.6 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 8,0 kbar.

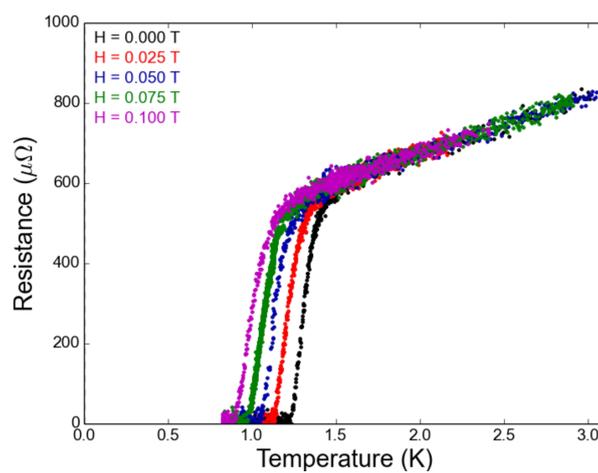


FIGURE A.7 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 10,4 kbar.

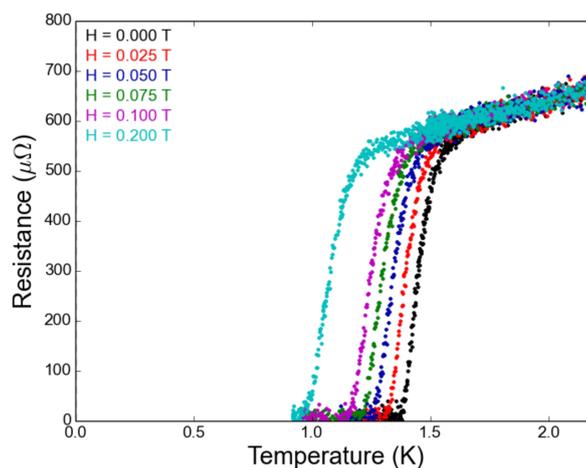


FIGURE A.8 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 15,2 kbar.

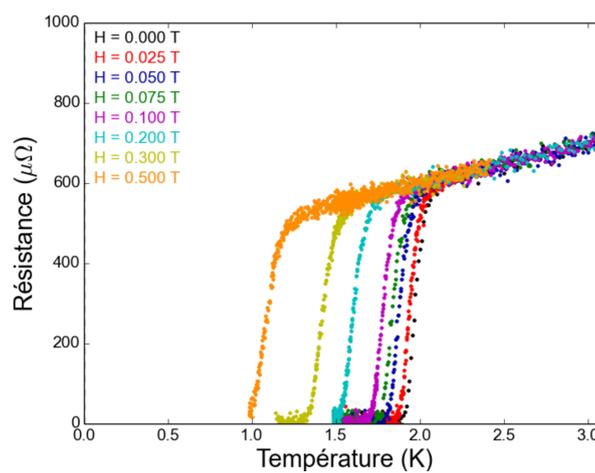


FIGURE A.9 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb1 à une pression de 21,9 kbar.

A.2.2 Extraction de la température critique

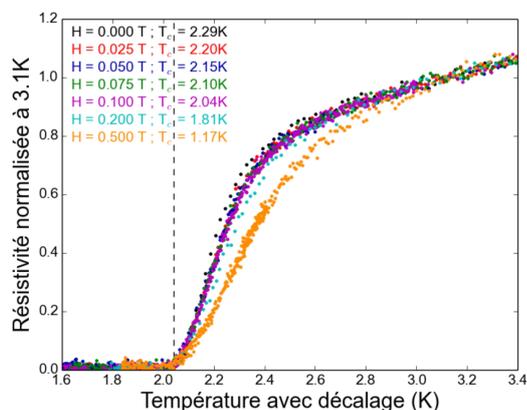


FIGURE A.10 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 1,2 kbar. Les courbes sont normalisées à 3,1 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

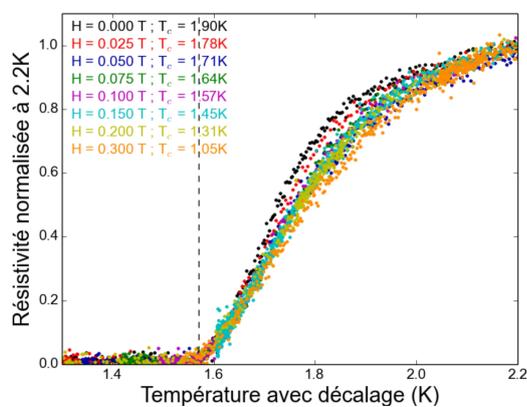


FIGURE A.11 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 4,0 kbar. Les courbes sont normalisées à 2,2 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

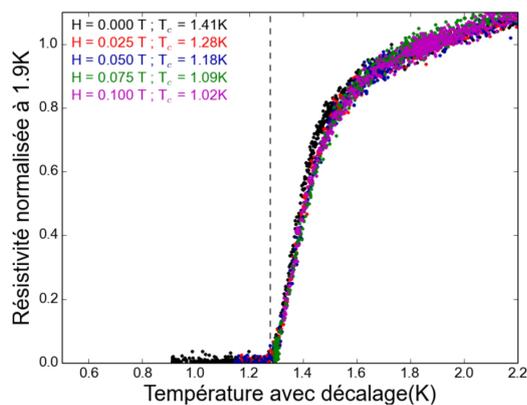


FIGURE A.12 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 8,0 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,9 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,025 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

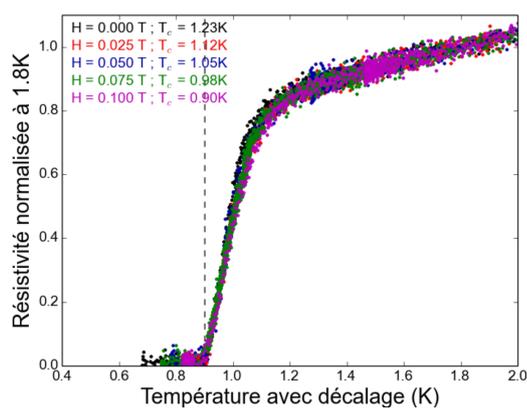


FIGURE A.13 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 10,4 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,8 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

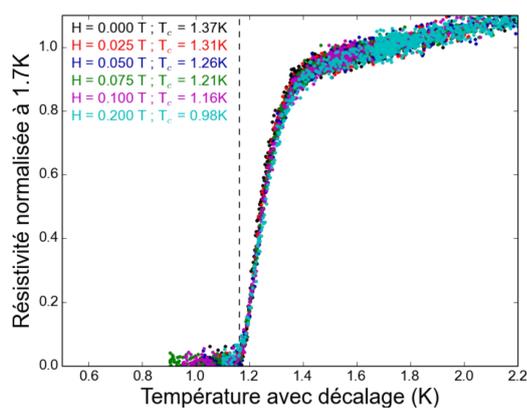


FIGURE A.14 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 15,2 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,7 K et translattées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

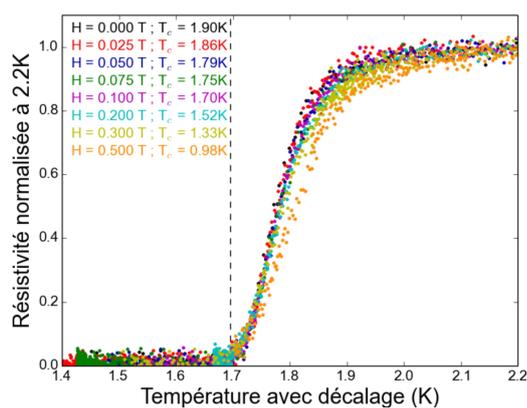


FIGURE A.15 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb1 à 21,9 kbar. Les courbes sont normalisées à 2,2 K et translattées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

Annexe B

Graphiques pour l'échantillon Rb2

B.1 Mesure de la résistivité

B.1.1 Courbes de refroidissement

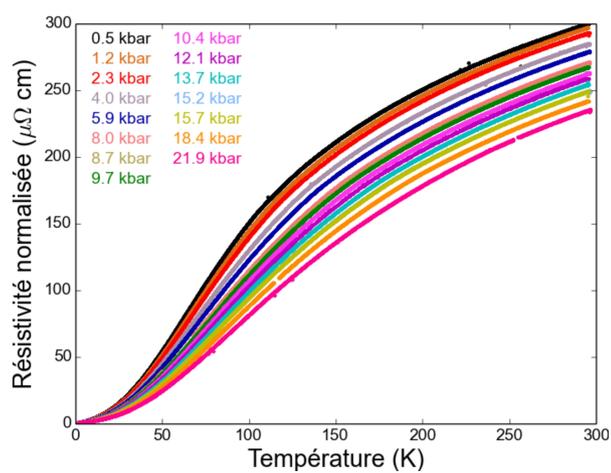


FIGURE B.1 Mesure de la résistivité lors du refroidissement de l'échantillon Rb2 à différentes pressions.

B.1.2 Transition supraconductrice

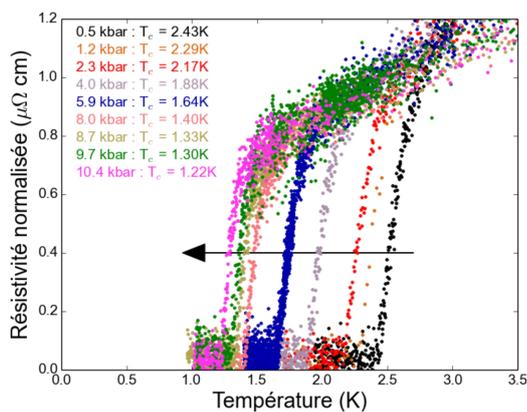


FIGURE B.2 Mesure de T_c en dessous de P_c pour l'échantillon Rb2 à différentes pressions. La flèche indique le déplacement de la transition en augmentant la pression.

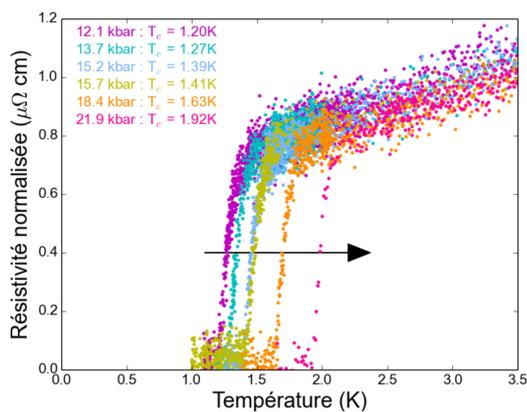


FIGURE B.3 Mesure de T_c au-dessus de P_c pour l'échantillon Rb2 à différentes pressions. La flèche indique le déplacement de la transition en augmentant la pression.

B.1.3 Extraction de la température critique

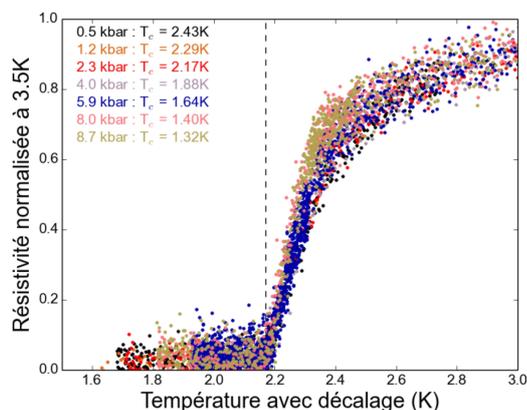


FIGURE B.4 Extraction de T_c aux basses pressions pour l'échantillon Rb2. Les courbes sont normalisées à 3,5K et translâtées en température afin de se superposer à la courbe de 2,3 kbar. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

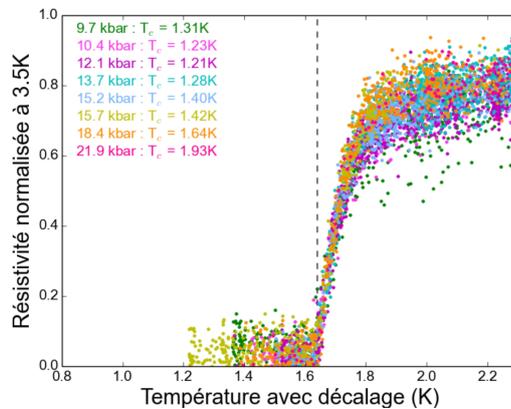


FIGURE B.5 Extraction de T_c aux hautes pressions pour l'échantillon Rb2. Les courbes sont normalisées à 3,5K et translâtées en température afin de se superposer à la courbe de 18,4 kbar. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

B.2 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température critique

B.2.1 Données brutes

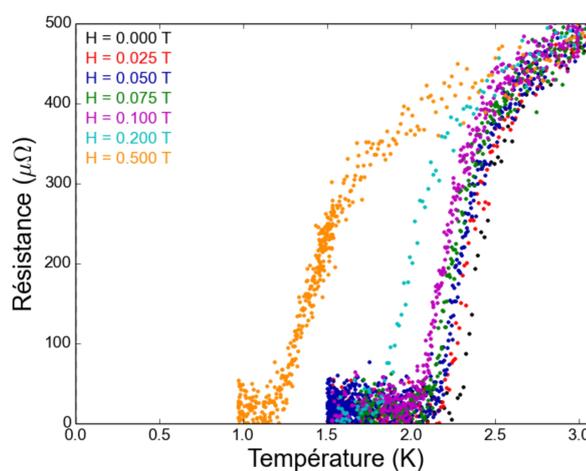


FIGURE B.6 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 1,2 kbar.

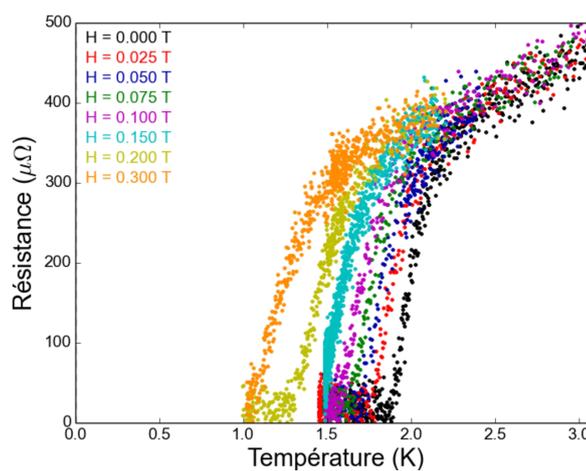


FIGURE B.7 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 4,0 kbar.

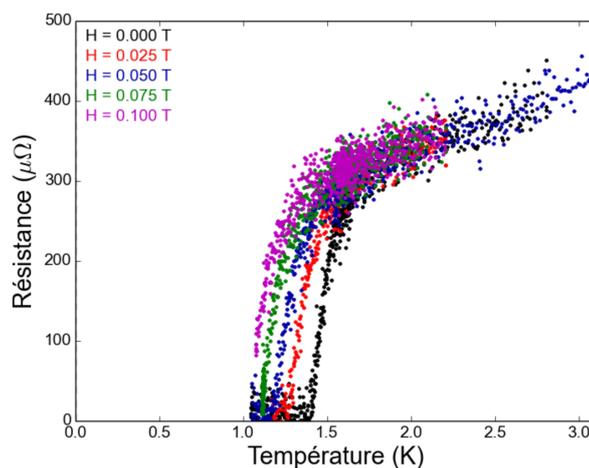


FIGURE B.8 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 8,0 kbar.

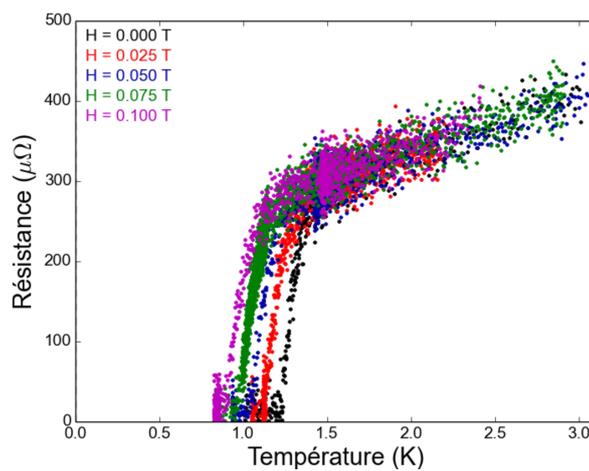


FIGURE B.9 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 10,4 kbar.

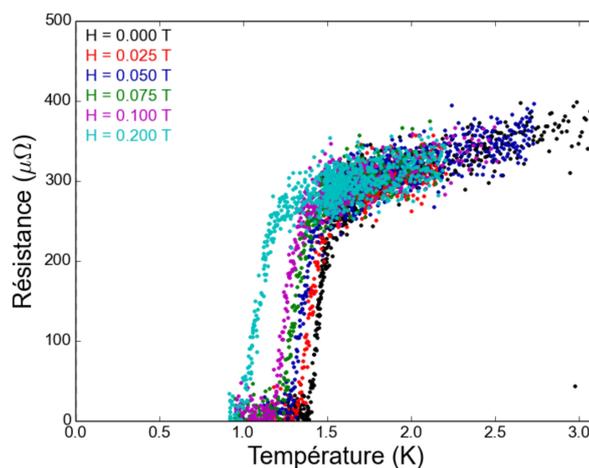


FIGURE B.10 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 15,2 kbar.

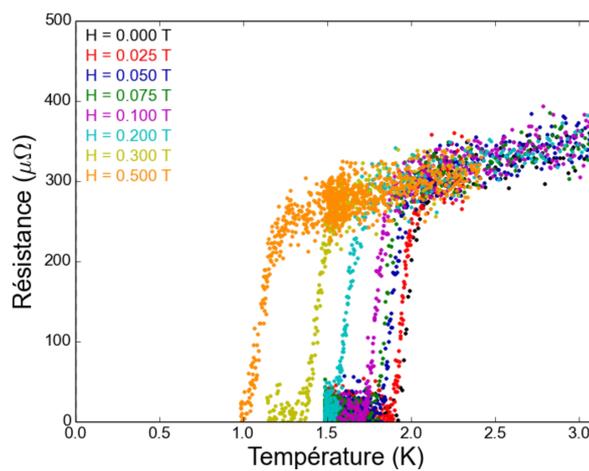


FIGURE B.11 Mesure de la dépendance en champ magnétique de la température de transition supraconductrice pour l'échantillon Rb2 à une pression de 21,9 kbar.

B.2.2 Extraction de la température critique

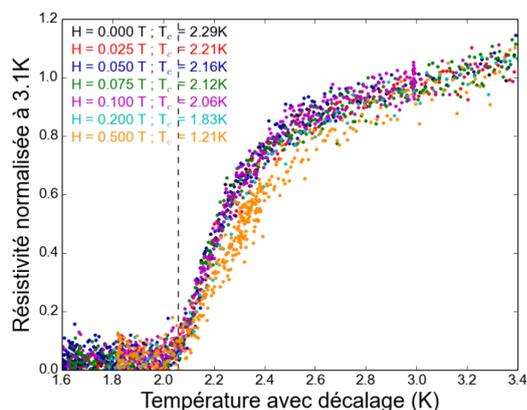


FIGURE B.12 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 1,2 kbar. Les courbes sont normalisées à 3,1 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

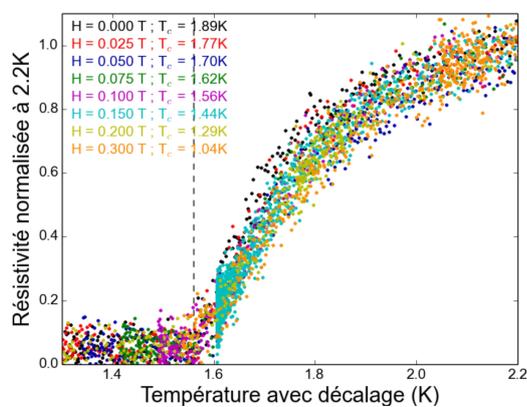


FIGURE B.13 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 4,0 kbar. Les courbes sont normalisées à 2,2 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

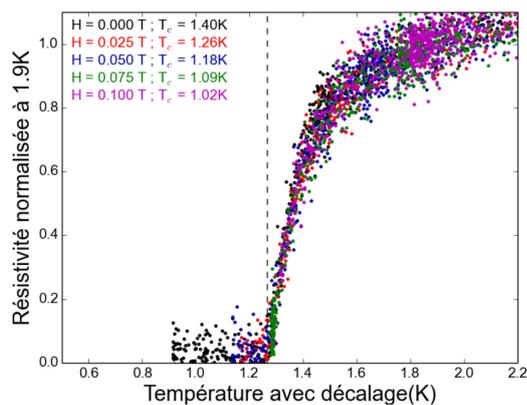


FIGURE B.14 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 8,0 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,9 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,025 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

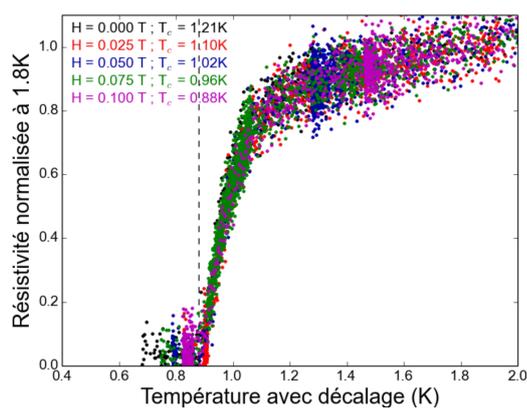


FIGURE B.15 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 10,4 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,8 K et translatées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

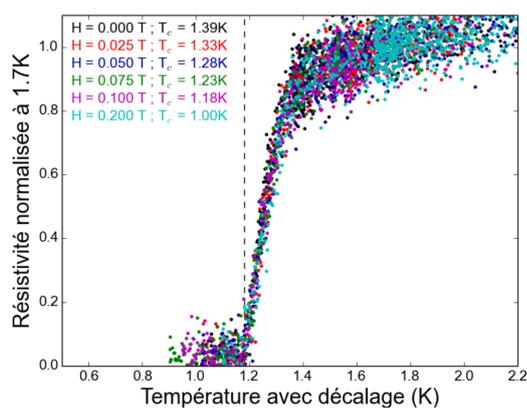


FIGURE B.16 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 15,2 kbar. Les courbes sont normalisées à 1,7 K et translattées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

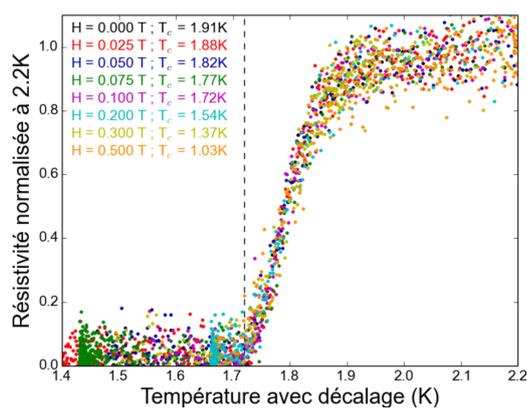


FIGURE B.17 Extraction de T_c à différents champs magnétiques pour l'échantillon Rb2 à 21,9 kbar. Les courbes sont normalisées à 2,2 K et translattées en température afin de se superposer à la courbe de 0,1 Tesla. T_c est défini comme le T_c de la courbe de référence moins la valeur de la translation.

B.2.3 Dépendance en champ de la température critique

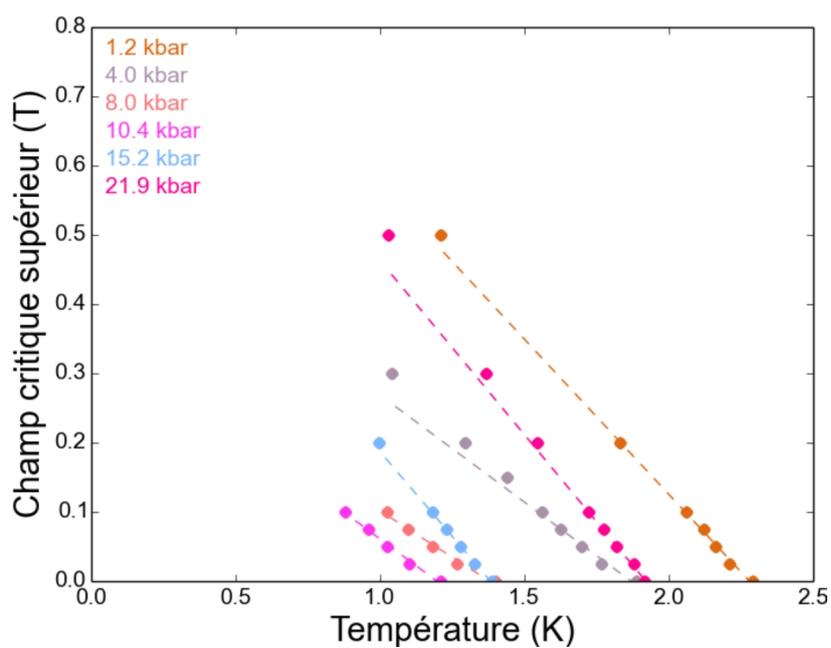


FIGURE B.18 Champ critique supérieur en fonction de la température. La taille des points représente l'incertitude en température sur les données. L'incertitude en champ est négligeable. Les traits pointillés sont des régressions linéaires sur les données pour les champs inférieurs ou égal à 0,1 Tesla.

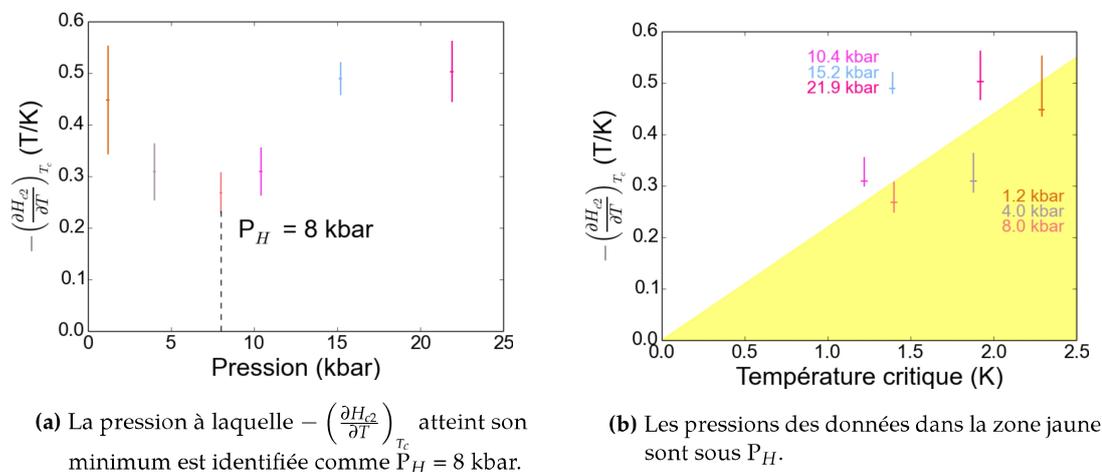


FIGURE B.19 Évolution de $\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$. Les barres d'erreur sur la valeur de $-\left(\frac{\partial H_{c2}}{\partial T}\right)_{T_c}$ sont obtenues en variant l'intervalle sur lequel est effectué la régression linéaire.

B.3 Mesure de l'effet Hall

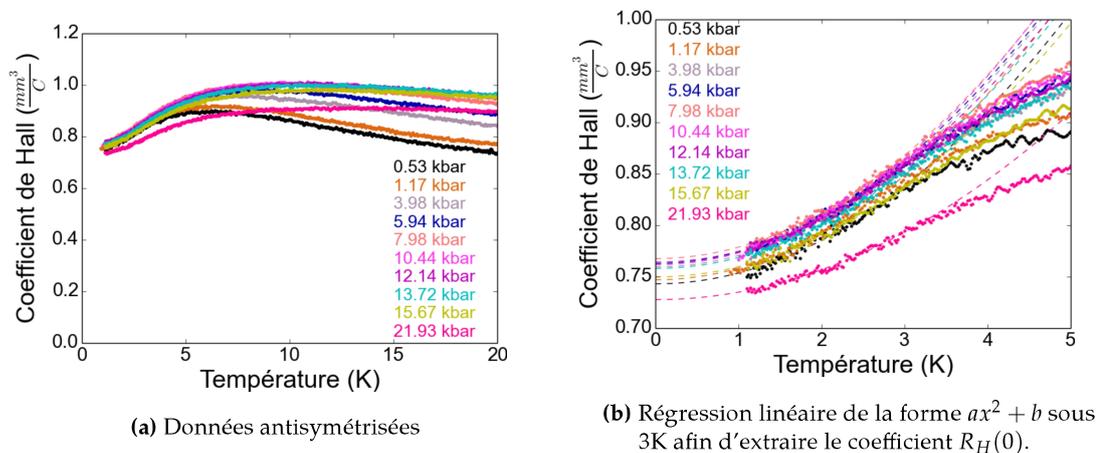


FIGURE B.20 Coefficients de Hall obtenus en antisymétrisant les courbes prises à +10 T et à -10T.

Bibliographie

- [1] Rotter, M., Tegel, M., and Johrendt, D. *Physical Review Letters* **101**(10), 107006 September (2008).
- [2] Kittel, C. *Physique de l'état solide*. Paris, dunod edition, (2007).
- [3] Côté, R. *Physique de la matière condensée avancée*. Université de Sherbrooke. January (2014).
- [4] Fernandes, R. and Millis, A. *Physical Review Letters* **110**(11), 117004 March (2013).
- [5] Tinkham, M. *Introduction to Superconductivity*. Dover Publications, INC., Mineola, New York, second edition, (1996).
- [6] Tafti, F. F., Juneau-Fecteau, A., Delage, M.-., René de Cotret, S., Reid, J.-P., Wang, A. F., Luo, X.-G., Chen, X. H., Doiron-Leyraud, N., and Taillefer, L. *Nature Physics* **9**(6), 349–352 (2013).
- [7] Hirschfeld, P. J., Korshunov, M. M., and Mazin, I. I. *Reports on Progress in Physics* **74**(12), 124508 December (2011).
- [8] Paglione, J. and Greene, R. L. *Nature Physics* **6**(9), 645–658 September (2010).
- [9] *Hall Effect Measurement Setup for Electrons*,
Licensed under Public Domain via Wikipedia,
https://en.wikipedia.org/wiki/File:Hall_Effect_Measurement_Setup_for_Electrons.png#/media/File:Hall_Effect_Measurement_Setup_for_Electrons.png .
- [10] W. Hicks, C., M. Lippman, T., E. Huber, M., Ren, Z.-A., Yang, J., Zhao, Z.-X., and A. Moler, K. *Journal of the Physical Society of Japan* **78**(1), 013708 (2008).
- [11] Graser, S., Maier, T. A., Hirschfeld, P. J., and Scalapino, D. J. *New Journal of Physics* **11**(2), 025016 February (2009).
- [12] Zhang, X., Oh, Y. S., Liu, Y., Yan, L., Kim, K. H., Greene, R. L., and Takeuchi, I. *Physical Review Letters* **102**(14), 147002 (2009).
- [13] Reid, J.-P., Tanatar, M., Juneau-Fecteau, A., Gordon, R., de Cotret, S., Doiron-Leyraud, N., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Kihou, K., Lee, C., Iyo, A., Eisaki, H., Prozorov, R., and Taillefer, L. *Physical Review Letters* **109**(8), 087001 (2012).
- [14] Reid, J.-P., Juneau-Fecteau, A., Gordon, R. T., Cotret, S. R. d., Doiron-Leyraud, N., Luo, X. G., Shakeripour, H., Chang, J., Tanatar, M. A., Kim, H., Prozorov, R., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Kihou, K., Lee, C. H., Iyo, A., Eisaki, H., Shen, B., Wen, H.-H., and Taillefer, L. *Superconductor Science and Technology* **25**(8), 084013 August (2012).

- [15] Nakayama, K., Sato, T., Richard, P., Xu, Y.-M., Kawahara, T., Umezawa, K., Qian, T., Neupane, M., Chen, G. F., Ding, H., and Takahashi, T. *Physical Review B* **83**(2), 020501 January (2011).
- [16] Malaeb, W., Shimojima, T., Ishida, Y., Okazaki, K., Ota, Y., Ohgushi, K., Kihou, K., Saito, T., Lee, C. H., Ishida, S., Nakajima, M., Uchida, S., Fukazawa, H., Kohori, Y., Iyo, A., Eisaki, H., Chen, C.-T., Watanabe, S., Ikeda, H., and Shin, S. *Physical Review B* **86**(16), 165117 October (2012).
- [17] Xu, N., Richard, P., Shi, X., van Roekeghem, A., Qian, T., Razzoli, E., Rienks, E., Chen, G.-F., Ieki, E., Nakayama, K., Sato, T., Takahashi, T., Shi, M., and Ding, H. *Physical Review B* **88**(22), 220508 (2013).
- [18] Ota, Y., Okazaki, K., Kotani, Y., Shimojima, T., Malaeb, W., Watanabe, S., Chen, C.-T., Kihou, K., Lee, C. H., Iyo, A., Eisaki, H., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., and Shin, S. *Physical Review B* **89**(8), 081103 (2014).
- [19] Hong, X. C., Wang, A. F., Zhang, Z., Pan, J., He, L. P., Luo, X. G., Chen, X. H., and Li, S. Y. *arXiv:1401.0792 [cond-mat]* January (2014). arXiv : 1401.0792.
- [20] Kim, J. S., Stewart, G. R., Liu, Y., and Lograsso, T. A. *arXiv:1506.00058 [cond-mat]* May (2015). arXiv : 1506.00058.
- [21] Kretzschmar, F., Muschler, B., Böhm, T., Baum, A., Hackl, R., Wen, H.-H., Tsurkan, V., Deisenhofer, J., and Loidl, A. *Physical Review Letters* **110**(18), 187002 (2013).
- [22] Guguchia, Z., Shermadini, Z., Amato, A., Maisuradze, A., Shengelaya, A., Bukowski, Z., Luetkens, H., Khasanov, R., Karpinski, J., and Keller, H. *Physical Review B* **84**(9), 094513 September (2011).
- [23] Okazaki, K., Ota, Y., Kotani, Y., Malaeb, W., Ishida, Y., Shimojima, T., Kiss, T., Watanabe, S., Chen, C.-T., Kihou, K., Lee, C. H., Iyo, A., Eisaki, H., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Hashimoto, K., Shibauchi, T., Matsuda, Y., Ikeda, H., Miyahara, H., Arita, R., Chainani, A., and Shin, S. *Science* **337**(6100), 1314–1317 September (2012).
- [24] Hardy, F., Böhmer, A., Aoki, D., Burger, P., Wolf, T., Schweiss, P., Heid, R., Adelman, P., Yao, Y., Kotliar, G., Schmalian, J., and Meingast, C. *Physical Review Letters* **111**(2), 027002 (2013).
- [25] Grinenko, V., Efremov, D. V., Drechsler, S.-L., Aswartham, S., Gruner, D., Roslova, M., Morozov, I., Nenkov, K., Wurmehl, S., Wolter, A. U. B., Holzapfel, B., and Büchner, B. *Physical Review B* **89**(6), 060504 (2014).
- [26] Hashimoto, K., Serafin, A., Tonegawa, S., Katsumata, R., Okazaki, R., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Kihou, K., Lee, C., Iyo, A., Eisaki, H., Ikeda, H., Matsuda, Y., Carrington, A., and Shibauchi, T. *Physical Review B* **82**(1), 014526 (2010).
- [27] Kim, H., Tanatar, M. A., Liu, Y., Sims, Z. C., Zhang, C., Dai, P., Lograsso, T. A., and Prozorov, R. *Physical Review B* **89**(17), 174519 (2014).
- [28] Wang, A. F., Zhou, S. Y., Luo, X. G., Hong, X. C., Yan, Y. J., Ying, J. J., Cheng, P., Ye, G. J., Xiang, Z. J., Li, S. Y., and Chen, X. H. *Physical Review B* **89**(6), 064510 (2014).
- [29] Abdel-Hafiez, M., Grinenko, V., Aswartham, S., Morozov, I., Roslova, M., Vakaliuk, O., Johnston, S., Efremov, D., van den Brink, J., Rosner, H., Kumar, M., Hess, C., Wurmehl,

- S., Wolter, A., Büchner, B., Green, E., Wosnitza, J., Vogt, P., Reifenberger, A., Enss, C., Hempel, M., Klingeler, R., and Drechsler, S.-L. *Physical Review B* **87**(18), 180507 (2013).
- [30] Zhang, Z., Wang, A. F., Hong, X. C., Zhang, J., Pan, B. Y., Pan, J., Xu, Y., Luo, X. G., Chen, X. H., and Li, S. Y. *arXiv:1403.0191 [cond-mat]* March (2014). arXiv : 1403.0191.
- [31] Hong, X. C., Li, X. L., Pan, B. Y., He, L. P., Wang, A. F., Luo, X. G., Chen, X. H., and Li, S. Y. *Physical Review B* **87**(14), 144502 (2013).
- [32] Maiti, S., Korshunov, M. M., and Chubukov, A. V. *Physical Review B* **85**(1), 014511 January (2012).
- [33] Thomale, R., Platt, C., Hanke, W., Hu, J., and Bernevig, B. *Physical Review Letters* **107**(11), 117001 September (2011).
- [34] Sasmal, K., Lv, B., Lorenz, B., Guloy, A., Chen, F., Xue, Y.-Y., and Chu, C.-W. *Physical Review Letters* **101**(10), 107007 September (2008).
- [35] Terashima, T., Kimata, M., Kurita, N., Satsukawa, H., Harada, A., Hazama, K., Imai, M., Sato, A., Kihou, K., Lee, C.-H., Kito, H., Eisaki, H., Iyo, A., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Harima, H., and Uji, S. *Journal of the Physical Society of Japan* **79**(5), 053702 (2010).
- [36] Terashima, T., Kurita, N., Kimata, M., Tomita, M., Tsuchiya, S., Imai, M., Sato, A., Kihou, K., Lee, C.-H., Kito, H., Eisaki, H., Iyo, A., Saito, T., Fukazawa, H., Kohori, Y., Harima, H., and Uji, S. *Physical Review B* **87**(22), 224512 (2013).
- [37] Sato, T., Nakayama, K., Sekiba, Y., Richard, P., Xu, Y.-M., Souma, S., Takahashi, T., Chen, G. F., Luo, J. L., Wang, N. L., and Ding, H. *Physical Review Letters* **103**(4), 047002 (2009).
- [38] Kong, S., Liu, D. Y., Cui, S. T., Ju, S. L., Wang, A. F., Luo, X. G., Zou, L. J., Chen, X. H., Zhang, G. B., and Sun, Z. *arXiv:1409.2300 [cond-mat]* September (2014). arXiv : 1409.2300.
- [39] Wang, A., Pan, B., Luo, X., Chen, F., Yan, Y., Ying, J., Ye, G., Cheng, P., Hong, X., Li, S., and Chen, X. *Physical Review B* **87**(21), 214509 (2013).
- [40] Bukowski, Z., Weyeneth, S., Puzniak, R., Karpinski, J., and Batlogg, B. *Physica C: Superconductivity* **470**, **Supplement 1**, S328–S329 (2010).
- [41] Aftabuzzaman, M. and Islam, A. K. M. A. *Physica C: Superconductivity* **470**(3), 202–205 (2010).
- [42] Eiling, A. and Schilling, J. S. *Journal of Physics F: Metal Physics* **11**(3), 623 (1981).
- [43] Tafti, F. F., Clancy, J. P., Lapointe-Major, M., Collignon, C., Faucher, S., Sears, J. A., Juneau-Fecteau, A., Doiron-Leyraud, N., Wang, A. F., Luo, X.-G., Chen, X. H., Desgreniers, S., Kim, Y.-J., and Taillefer, L. *Physical Review B* **89**(13), 134502 (2014).
- [44] Bud'ko, S. L., Liu, Y., Lograsso, T. A., and Canfield, P. C. *Physical Review B* **86**(22), 224514 (2012).
- [45] Terashima, T., Kihou, K., Sugii, K., Kikugawa, N., Matsumoto, T., Ishida, S., Lee, C.-H., Iyo, A., Eisaki, H., and Uji, S. *Physical Review B* **89**(13), 134520 (2014).
- [46] Taufour, V., Foroozani, N., Tanatar, M. A., Lim, J., Kaluarachchi, U., Kim, S. K., Liu, Y., Lograsso, T. A., Kogan, V. G., Prozorov, R., Bud'ko, S. L., Schilling, J. S., and Canfield, P. C. *Physical Review B* **89**(22), 220509 (2014).

- [47] Wang, P. S., Zhou, P., Dai, J., Zhang, J., Ding, X. X., Lin, H., Wen, H. H., Normand, B., Yu, R., and Yu, W. *arXiv:1503.08298 [cond-mat]* March (2015). arXiv : 1503.08298.
- [48] Grinenko, V., Schottenhamel, W., Wolter, A. U. B., Efremov, D. V., Drechsler, S.-L., Aswartham, S., Kumar, M., Wurmehl, S., Roslova, M., Morozov, I. V., Holzapfel, B., Büchner, B., Ahrens, E., Troyanov, S. I., Köhler, S., Gati, E., Knöner, S., Hoang, N. H., Lang, M., Ricci, F., and Profeta, G. *Physical Review B* **90**(9), 094511 September (2014).
- [49] Sun, L., Chen, X.-J., Guo, J., Gao, P., Huang, Q.-Z., Wang, H., Fang, M., Chen, X., Chen, G., Wu, Q., Zhang, C., Gu, D., Dong, X., Wang, L., Yang, K., Li, A., Dai, X., Mao, H.-k., and Zhao, Z. *Nature* **483**(7387), 67–69 March (2012).
- [50] Gu, D., Sun, L., Wu, Q., Gao, P., Guo, J., Zhang, C., Zhang, S., Zhou, Y., and Zhao, Z. *arXiv:1407.0589 [cond-mat]* July (2014). arXiv : 1407.0589.
- [51] Abdel-Hafiez, M., He, Z., Zhao, J., Lu, X., Luo, H., Dai, P., and Chen, X.-J. *arXiv:1502.07130 [cond-mat]* February (2015). arXiv : 1502.07130.
- [52] Wang, J., Xu, X., Zhou, N., Li, L., Cao, X., Yang, J., Li, Y., Cao, C., Dai, J., Zhang, J., Shi, Z., Chen, B., and Yang, Z. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* **28**(11), 3173–3178 August (2015).
- [53] Shermadini, Z., Luetkens, H., Maisuradze, A., Khasanov, R., Bukowski, Z., Klauss, H.-H., and Amato, A. *Physical Review B* **86**(17), 174516 November (2012).
- [54] Kogan, V. G. and Prozorov, R. *Reports on Progress in Physics* **75**(11), 114502 November (2012).
- [55] Kogan, V. G. *Physical Review B* **66**(2), 020509 (2002).