

# Supraconductivité et ferromagnétisme : compétition et coexistence

## Résumé :

Supraconductivité et ferromagnétisme sont deux phénomènes antagonistes dont la compétition peut être étudiée dans les structures hybrides Supraconducteur/Ferromagnétique (S/F). Nous nous intéressons à l'influence de la diffusion magnétique sur les grandeurs caractéristiques de ces systèmes telles que la température critique, la densité d'états, le courant critique et l'aimantation. Plusieurs comparaisons de nos prédictions avec les résultats expérimentaux montrent l'importance de cette diffusion dans les échantillons utilisés. Par ailleurs, la récente découverte de la coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans quelques composés comme UGe<sub>2</sub> ou URhGe ouvre un nouveau domaine de recherche. Nous étudions l'évolution de la structure des domaines ferromagnétiques de ces matériaux en fonction de la température et montrons que la supraconductivité conduit à un rétrécissement de ces domaines.

**Mots-clé :** supraconductivité, magnétisme, effet de proximité, diffusion magnétique, jonction  $\pi$ , vanne de spin, ferromagnétisme, hétérostructures.

# Superconductivity and ferromagnetism: competition and coexistence

## Abstract:

Superconductivity and ferromagnetism are two antagonistic phenomena whose competition can be investigated in the so-called Superconductor/Ferromagnet (S/F) hybrid structures. We have studied the influence of the magnetic diffusion on the critical temperature, density of states, critical current and magnetization of S/F multilayers. Also, the importance of the magnetic diffusion is underlined by the comparison of our theoretical predictions with experimental data. Moreover, the recent discovery that superconductivity and ferromagnetism can coexist in compounds such as UGe<sub>2</sub> and URhGe generates a lot of questions. We have specifically studied the evolution of the ferromagnetic domain structure and shown that superconductivity implies the domains shrinkage.

**Keywords :** superconductivity, magnetism, proximity effect,  $\pi$  junction, spin-valve, ferromagnetism, heterostructures.

**M. FAURE**

**SUPRACONDUCTIVITE ET FERROMAGNETISME : COMPETITION ET COEXISTENCE**

**2006**

Numéro d'ordre : 3176

# THÈSE

présentée à

## L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

École doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur

par **Marion FAURÉ**

pour obtenir le grade de

### DOCTEUR

Spécialité : Lasers et Matière Dense

## Supraconductivité et ferromagnétisme : compétition et coexistence

Soutenue le : jeudi 22 juin 2006

Après avis de :

**Mme Hélène BOUCHIAT**, Directeur de Recherche  
**M. Franck HEKKING**, Professeur, membre de l'IUF

Rapporteur  
Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

**M. Éric FREYSZ**, Directeur de Recherche  
**M. Hervé COURTOIS**, Professeur, membre de l'IUF  
**M. Thierry MARTIN**, Professeur  
**M. Alexandre BOUZDINE**, Professeur, membre de l'IUF

Président  
Examineur  
Examineur  
Directeur de Thèse



## Remerciements

Je tiens à remercier tous ceux qui m'ont accompagnée au cours de ces trois années de thèse au sein du Centre de Physique Moléculaire Optique et Hertzienne (CPMOH) de l'Université Bordeaux I.

Je veux d'abord dire ma grande (immense !) reconnaissance envers mon directeur de thèse, le Professeur Alexandre Bouzdine, pour m'avoir permis de travailler sur des sujets passionnants, pour m'avoir encouragée à participer à des conférences nationales et internationales et aider à découvrir des thématiques proches des expériences. Il a tout simplement été un formidable directeur de thèse. J'espère qu'il sait le respect et l'admiration que j'ai pour lui.

Je remercie Hélène Bouchiat et Franck Hekking d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse ainsi que Hervé Courtois, Eric Freysz et Thierry Martin de leur participation à mon jury de thèse.

Je veux exprimer aussi toute ma gratitude à Michel, Christian et Jean-Pierre. J'ai beaucoup appris à leur contact, qu'il s'agisse de supraconductivité ou de Bobby Lapointe et j'ai passé des repas inoubliables en leur compagnie. Je remercie en particulier Michel pour la relecture de ce manuscrit et Christian pour son aide technique précieuse sur Maple.

Je remercie Jérôme pour les réponses qu'il a apportées à mes nombreuses questions, les conseils et l'aide qu'il m'a prodigués, spécialement lors de la rédaction de ce manuscrit.

Je remercie Joseph pour ses talents d'informaticien et ses leçons de vie. Je souhaite bonne chance au futur papa !

Last, but not least, un très très grand merci à Françoise qui en plus d'être une bibliothécaire irremplaçable (et peut être effectivement jamais remplacée) est aussi l'âme du cinquième étage. Je la remercie de son soutien et de son amitié.

Par ailleurs, mon séjour au laboratoire aurait été bien fade sans la présence de Gabin, Thomas, Sébastien, Bernard, Christine, Alain, Yves, Denise et Simon.

D'autre part, je remercie mes parents, Martie et Marco. Marco, les gens qui me connaissent peuvent témoigner de ton courage (ou de ton inconscience ?). Merci, merci à vous tous.

Enfin, je voudrais dédier ma thèse à Avo. J'aurais tellement aimé qu'elle voie ses deux petites-filles devenir Docteurs...



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>7</b>
1.1	Présentation : mise en perspective de la compétition entre supraconductivité et magnétisme . . . . .	7
1.2	Problématique de la présente recherche . . . . .	11
1.3	Plan de la thèse . . . . .	12
<b>I</b>	<b>Compétition de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans les structures hybrides Supraconducteur/Ferromagnétique</b>	<b>15</b>
<b>2</b>	<b>Introduction à l'effet de proximité dans les structures hybrides supraconducteur/métal normal et supraconducteur/ferromagnétique</b>	<b>17</b>
2.1	Modèle . . . . .	17
2.2	Structures hybrides S/N . . . . .	19
2.2.1	Introduction . . . . .	19
2.2.2	Réflexion d'Andreev . . . . .	19
2.3	Structures hybrides S/F . . . . .	22
2.3.1	Comportement oscillant du paramètre d'ordre supraconducteur dans le ferromagnétique . . . . .	22
2.3.2	Longueurs caractéristiques de décroissance et période des oscillations.	23
2.3.3	Modification de la réflexion d'Andreev . . . . .	23
2.3.4	Conséquences de l'effet de proximité dans les structures S/F . . . . .	24
2.4	Conclusion . . . . .	25
<b>3</b>	<b>Outils théoriques</b>	<b>27</b>
3.1	De la théorie BCS aux équations d'Usadel . . . . .	27
3.1.1	De la théorie BCS à la théorie de Gor'kov... . . . .	27
3.1.2	...De la théorie de Gor'kov à l'approche quasiclassique... . . . .	29
3.1.3	...et de l'approche quasiclassique aux équations d'Usadel . . . . .	30

3.1.4	Fonctions de Green pour un supraconducteur homogène infini . . .	31
3.2	Les équations d'Usadel . . . . .	31
3.2.1	Dans un ferromagnétique . . . . .	31
3.2.2	Linéarisation des équations d'Usadel . . . . .	32
3.3	Conditions aux limites . . . . .	32
3.3.1	Première approche . . . . .	33
3.3.2	Conditions de Zaitsev . . . . .	33
3.3.3	Conditions de Kuprianov-Lukichev . . . . .	33
3.3.4	Conditions rigides . . . . .	35
3.4	Comportement de la fonction d'onde supraconductrice dans les structures S/N et S/F . . . . .	35
3.5	Conclusion . . . . .	36
<b>4</b>	<b>Diffusion due aux impuretés magnétiques et diffusion par couplage spin- orbite</b>	<b>37</b>
4.1	Mécanismes de destruction des paires supraconductrices . . . . .	37
4.1.1	Impuretés magnétiques et couplage spin-orbite . . . . .	37
4.1.2	Mécanismes de destruction de la supraconductivité . . . . .	38
4.1.3	Résultats expérimentaux : de la nécessité d'introduire la diffusion magnétique . . . . .	39
4.1.4	Récapitulation . . . . .	40
4.2	Introduction de la diffusion magnétique et spin-orbite dans les équations d'Usadel . . . . .	41
4.2.1	Etude microscopique d'un supraconducteur contenant impuretés magnétiques et couplage spin-orbite . . . . .	41
4.2.2	Etude microscopique d'une couche ferromagnétique dans une bi- couche S/F. Equations d'Usadel . . . . .	42
4.2.3	Simplification : anisotropie et absence de spin-orbite . . . . .	43
4.3	Effet de proximité en présence de spin-flip . . . . .	44
4.4	Conclusion . . . . .	44
<b>5</b>	<b>Etude de la température critique des multicouches S/F. Première partie : influence de la diffusion magnétique</b>	<b>47</b>
5.1	Modèle théorique . . . . .	48
5.2	Influence de la diffusion spin-flip sur $T_c^*$ . . . . .	50
5.2.1	Tricouche F/S/F . . . . .	50
5.2.2	Jonction S/F/S . . . . .	52
5.2.3	Résultats . . . . .	53

5.3	Influence de la diffusion spin-orbite et de la diffusion spin-flip "perpendiculaire" . . . . .	53
5.4	Influence du paramètre de transparence de l'interface $\gamma_B$ sur la température critique d'une bicouche S/F . . . . .	56
5.4.1	Introduction . . . . .	56
5.4.2	Evolution contre-intuitive de la température critique . . . . .	56
5.5	Conclusion . . . . .	58
<b>6</b>	<b>Etude de la température critique des multicouches S/F. Seconde partie : étude de l'effet de vanne de spin</b>	<b>59</b>
6.1	Introduction . . . . .	59
6.2	Formalisme général . . . . .	60
6.3	Caractérisation du rôle des paramètres . . . . .	62
6.3.1	Conditions d'observation de l'effet de vanne de spin pour une tricouche F/S/F avec des couches ferromagnétiques épaisses . . . . .	63
6.3.2	Influence de la diffusion magnétique . . . . .	66
6.4	Conclusion . . . . .	69
<b>7</b>	<b>Description théorique de l'influence de la diffusion magnétique sur la densité d'états d'une bicouche S/F</b>	<b>71</b>
7.1	Densité d'états dans un supraconducteur et microscope à effet tunnel . . . . .	72
7.1.1	Densité d'états dans un supraconducteur homogène . . . . .	72
7.1.2	Mesure du courant tunnel . . . . .	73
7.2	Effet de proximité en présence de spin-flip . . . . .	74
7.2.1	Effet de proximité et densité d'états dans les structures S/F . . . . .	74
7.2.2	Calcul de la densité d'états pour une température quelconque et introduction de la diffusion magnétique . . . . .	75
7.3	Comparaison avec l'expérience . . . . .	77
7.3.1	Résultats expérimentaux . . . . .	77
7.3.2	Comparaison avec la théorie . . . . .	77
7.4	Conclusion . . . . .	79
<b>8</b>	<b>Etude de l'influence de la diffusion magnétique sur le comportement du courant critique d'une jonction S/F/S</b>	<b>81</b>
8.1	Modèle théorique . . . . .	82
8.2	Influence de la diffusion spin-flip sur le courant critique : température proche de la température critique . . . . .	84
8.3	Influence de la diffusion spin-flip sur le courant critique : température arbitraire . . . . .	85

8.3.1	Détermination de la fonction de Green pour une bicouche S/F "infinie"	86
8.3.2	Superposition des solutions et courant critique de la jonction Josephson . . . . .	87
8.4	Comparaison avec l'expérience . . . . .	88
8.5	Conclusion . . . . .	90
<b>9</b>	<b>Effet de proximité et aimantation d'une bicouche S/F</b>	<b>91</b>
9.1	Introduction . . . . .	91
9.2	Géométrie et principe du calcul . . . . .	92
9.3	Aimantation induite dans le supraconducteur . . . . .	93
9.4	Changement de l'aimantation dans la couche ferromagnétique . . . . .	94
9.4.1	Conditions aux limites rigides . . . . .	96
9.4.2	Conditions Kuprianov-Lukichev . . . . .	98
9.5	Conclusion . . . . .	100

## II Coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme 101

<b>10</b>	<b>Etude de la structure en domaines des composés à la fois supraconducteurs et ferromagnétiques</b>	<b>103</b>
10.1	Introduction . . . . .	103
10.2	Données expérimentales . . . . .	104
10.3	Etude dans l'état normal . . . . .	105
10.3.1	Géométrie et hypothèses . . . . .	105
10.3.2	Détermination de la largeur des parois . . . . .	105
10.3.3	Détermination de la largeur des domaines dans l'état normal . . . . .	107
10.4	Etude de la structure en domaines dans un film ferromagnétique à la surface d'un supraconducteur . . . . .	107
10.4.1	Principe . . . . .	107
10.4.2	Résultats . . . . .	108
10.5	Calculs dans l'état Meissner . . . . .	108
10.5.1	Hypothèses . . . . .	108
10.5.2	Contributions à l'énergie . . . . .	109
10.5.3	Détermination de la distribution de l'induction magnétique . . . . .	109
10.5.4	Energie totale du système . . . . .	110
10.5.5	Détermination de la largeur des domaines dans l'état normal . . . . .	111
10.5.6	Détermination de la largeur des domaines dans l'état supraconducteur	111
10.6	Vortex . . . . .	114

10.7 Effet orbital, effet paramagnétique. Supraconductivité singulet, supracon-	
ductivité triplet . . . . .	116
10.8 Conclusion . . . . .	117
<b>11 Conclusion</b>	<b>119</b>



# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Présentation : mise en perspective de la compétition entre supraconductivité et magnétisme

La supraconductivité est un phénomène quantique macroscopique découvert par Kamerlingh Onnes à Leiden (Pays-Bas) en 1911. Trois ans plus tôt, cet expérimentateur avait mis au point la liquéfaction de l'hélium. Son équipe était donc la seule capable d'atteindre des températures de l'ordre de 1.4 K, et par voie de conséquence, la supraconductivité. En refroidissant un échantillon de mercure, Onnes et son assistant Gilles Holst eurent la surprise de constater que la résistance du matériau ne diminuait pas progressivement quand la température baissait mais, qu'au contraire, elle subissait une chute brutale à 4.2 K, température en dessous de laquelle elle n'était plus mesurable. Onnes a baptisé lui-même ce phénomène la "supraconductivité". Une des caractéristiques principales d'un composé "supraconducteur" est donc de conduire le courant sans dissipation de chaleur. Kamerlingh Onnes a par la suite cherché à mieux comprendre ce nouvel état en multipliant les expériences et il a constaté que l'application d'un champ magnétique de faible intensité, de même que le passage d'un courant, pouvaient suffire à détruire les propriétés supraconductrices d'un matériau. Finalement, les paramètres pertinents qui régissent la physique de la supraconductivité, et que l'on retrouvera tout au long de cette thèse sont explicités peu après la découverte de Onnes, puisqu'il s'agit de la température, du champ magnétique et du courant.

D'ailleurs, les propriétés magnétiques des supraconducteurs sont remarquables. En particulier, lorsqu'un supraconducteur massif de type I est soumis à un champ magnétique, celui-ci est expulsé tant que le champ appliqué est inférieur à une valeur critique pour laquelle la supraconductivité est détruite. C'est l'effet Meissner. Tout supraconducteur de première espèce est donc un diamagnétique parfait. Une illustration directe et spectaculaire de l'effet Meissner est l'expérience qui consiste à faire léviter un aimant au

dessus d'un composé supraconducteur. C'est d'ailleurs sur ce principe que fonctionne le train prototype japonais Maglev qui a atteint une vitesse de  $552 \text{ km.h}^{-1}$ .

Bien que les physiciens aient cherché à expliquer théoriquement ce nouvel état de la matière, et malgré la mise au point de théories phénoménologiques (H. et F. London, Pippard, Ginzburg et Landau (GL)), il faut attendre 1957 et la théorie développée par Bardeen, Schrieffer et Cooper (BCS) [1] pour que la supraconductivité soit enfin comprise. Les propriétés des supraconducteurs (champ critique, présence du gap, propriétés thermiques et électromagnétiques...) sont décrites par cette théorie quantique microscopique. Gor'kov a montré par la suite que la théorie de Ginzburg et Landau est la limite de la théorie BCS pour des températures proches de la température critique. Si à l'époque la théorie GL a été méconnue, elle a été depuis réhabilitée et est toujours utilisée dans la recherche actuelle.

L'interaction entre supraconductivité et magnétisme a très rapidement intéressé les physiciens. La théorie BCS explique que les électrons forment des paires dites de Cooper dans le supraconducteur, de sorte que les électrons d'une même paire ont des spins et des quantités de mouvement opposés. Un champ magnétique extérieur peut alors agir soit sur les moments, c'est l'effet orbital, soit sur les spins, c'est l'effet paramagnétique. Considérons très schématiquement ces deux effets. Si le champ magnétique auquel est soumis le supraconducteur est perpendiculaire au plan défini par les quantités de mouvement des deux électrons, alors la force de Lorentz éloigne les électrons de la paire, ce qui conduit à la destruction de la paire et affaiblit les propriétés supraconductrices. D'autre part, l'effet paramagnétique se traduit par l'alignement des spins des électrons des paires dans la direction du champ à cause de l'effet Zeeman. En conséquence, si le champ est suffisamment fort, les spins dans une paire se retrouvent parallèles entre eux, ce qui une nouvelle fois conduit à la suppression de la supraconductivité. L'application d'un champ magnétique est donc destructrice pour la supraconductivité.

Pour déterminer l'interaction entre supraconductivité et antiferromagnétisme d'une part, et supraconductivité et ferromagnétisme d'autre part, il faut tenir compte des échelles de longueurs caractéristiques de chacun des ordres.

Dans un antiferromagnétique deux spins voisins sont antiparallèles et séparés par la distance interatomique  $a$ , de l'ordre du nanomètre. Le champ effectif ressenti par une paire de Cooper est le champ d'échange d'un spin moyenné sur la longueur de cohérence supraconductrice, notée  $\xi_s$ , de l'ordre du micromètre. Etant donné que  $\xi_s$  est beaucoup plus élevée que  $a$ , le champ d'échange est moyenné sur un grand nombre de spins, et par conséquent très faible. La supraconductivité est donc peu affectée par l'ordre antiferromagnétique (et vice versa), et leur coexistence apparaît naturelle [2]. D'ailleurs, il existe de nombreux composés à la fois antiferromagnétiques et supraconducteurs. C'est le cas par exemple des composés terre rare (rare earth, noté RE)  $(\text{RE})\text{Rh}_4\text{B}_4$  et  $(\text{RE})\text{Mo}_6\text{S}_8$  [2],

dont la découverte constitue la première preuve expérimentale de coexistence d'un ordre magnétique et d'un ordre supraconducteur. Encore récemment, il a été prouvé que le matériau (RE)Ni<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C possède les mêmes propriétés [3].

Dans un ferromagnétique les spins voisins sont parallèles; *a priori*, le champ d'échange effectif auquel sont soumises les paires de Cooper est donc non nul. C'est Ginzburg [4] qui s'est intéressé le premier à la possibilité de l'existence d'un composé ferromagnétique et supraconducteur dès 1956 - c'est-à-dire avant l'avènement de la théorie BCS. Il écrit que "les expériences qui visent à mettre en évidence la supraconductivité dans un ferromagnétique méritent une grande attention, bien que leur réussite soit peu probable". Anderson et Suhl [5] montraient trois ans plus tard que l'apparition d'un ordre ferromagnétique dans un supraconducteur serait possible à condition que les domaines ferromagnétiques soient de taille inférieure à  $\xi_s$ . Dans ce cas encore, le champ d'échange ressenti par les paires de Cooper est faible, ce qui permet la coexistence des deux ordres. Cependant, il ne s'agit pas d'un ordre ferromagnétique pur mais d'une structure de spin modulée sur une période longue par rapport à l'échelle interatomique, qu'on appelle cryptoferromagnétique. L'observation de cet état date de la fin des années 1970. Il est montré à cette époque que les composés ErRh<sub>4</sub>B<sub>4</sub> et HoMo<sub>6</sub>S<sub>8</sub> sont supraconducteurs pour des températures inférieures à la température critique notée  $T_c$  (pour les valeurs, voir le tableau ci-dessous). Puis, à une température  $\theta$  plus faible, apparaît l'ordre pseudo-ferromagnétique. Enfin, quand la température baisse et atteint  $T_{c2}$ , une transition du premier ordre détruit le caractère supraconducteur et établit un ordre ferromagnétique pur [6]. Le type de modulation du moment magnétique (spiral, lamellaire, vortex) dépend du composé. Au passage, on peut remarquer que ces composés sont de rares exemples de destruction de la supraconductivité à basse température.

température de transition	ErRh <sub>4</sub> B <sub>4</sub>	HoMo <sub>6</sub> S <sub>8</sub>
$T_c$	8.7 K	1.8 K
$\theta$	0.8 K	0.74 K
$T_{c2}$	0.7 K	0.7 K

En 1964, Larkin et Ovchinnikov [7] et Fulde et Ferrell [8] démontrent que dans un supraconducteur ferromagnétique l'ordre supraconducteur peut être spatialement modulé. Cependant, cet état n'a jamais été observé parce que, d'une part, il existe dans une zone très étroite du diagramme de phase en champ et température et d'autre part, il est très sensible aux impuretés.

A pression atmosphérique, le composé de type "fermion lourd" UGe<sub>2</sub> est paramagnétique à haute température et subit une transition vers l'état ferromagnétique à la température de Curie. En 2000, Saxena et *al.* soumettent un monocristal de ce composé à de hautes pressions [9]. Alors, ils observent que, dans un domaine défini de pressions,

l'échantillon devient supraconducteur et contrôlent par diffusion de neutrons que celui-ci est aussi toujours dans la phase ferromagnétique. Ainsi est apportée la première preuve expérimentale de coexistence du ferromagnétisme et de la supraconductivité. D'autres matériaux ont été étudiés depuis, et il s'avère qu'un autre fermion lourd, URhGe, est lui aussi à la fois supraconducteur et ferromagnétique [10]. Ce dernier présente d'ailleurs l'avantage de l'être à pression atmosphérique. De même, il semble que supraconductivité et ferromagnétisme coexistent dans le  $ZrZn_2$  [11] et le Fe sous pression [12]. Le composé  $RuSr_2GdCu_2O_8$  présenterait aussi des propriétés supraconductrices et ferromagnétiques [13]. Dorénavant, le sigle SFM (Supraconducteur FerroMagnétique) sera utilisé pour faire référence à cette classe de composés.

Il n'existe pas encore de consensus quant au type de supraconductivité dans ces SFM. Sans entrer dans les détails du débat, on peut tout de même souligner que le champ d'échange qui règne dans ce genre de matériaux est beaucoup plus élevé que la température critique (par exemple, pour URhGe, la température de Curie est de 9.5 K et la température critique de 0.3 K). Dans ces conditions, la supraconductivité singulet, détruite à la limite paramagnétique, peut difficilement expliquer la coexistence des deux ordres. Au contraire, parce qu'elle n'est pas sensible à l'effet paramagnétique, la supraconductivité triplet pourrait être à l'origine de ce phénomène.

Finalement, SFM mis à part, on n'a jamais mis en évidence de composé massif qui soit véritablement à la fois supraconducteur conventionnel et ferromagnétique, à moins que les deux ordres ne s'organisent de sorte que l'un ou l'autre soit modulé. Dans ces conditions, l'étude de l'antagonisme entre supraconductivité et ferromagnétisme n'est possible que si les deux ordres sont séparés spatialement. La solution consiste à réaliser des systèmes artificiels, constitués d'empilements de couches nanométriques ferromagnétiques (F) et supraconductrices (S) qui sont mises en contact. Dans de telles structures hybrides, les deux ordres interagissent à l'interface S/F par l'intermédiaire de "l'effet de proximité". Cet effet désigne en fait le passage des paires de Cooper hors d'une couche supraconductrice et leur pénétration dans la couche non supraconductrice au contact de celle-ci. En même temps, la "fuite" des paires de Cooper hors de la couche S implique une modification des propriétés supraconductrices de cette même couche; on parle alors d'"effet de proximité inverse".

Historiquement, les premières études menées sur l'effet de proximité se sont intéressées à des structures de type Supraconducteur/métal Normal (S/N) [14]. En particulier, en 1964, Andreev précise l'effet de proximité en l'interprétant en termes d'une réflexion de nature spécifique de la supraconductivité, qu'on appelle "réflexion d'Andreev" [15]. En 1962, Brian Josephson prédit que si deux supraconducteurs sont séparés par une fine couche, il existe un supracourant dans le circuit auquel aucune différence de potentiel n'est appliquée [16]. Le courant maximal qui peut parcourir la jonction est appelé le

courant critique. Le supracourant est dû au passage des paires de Cooper par effet tunnel à travers la barrière isolante. Cet effet dit Josephson stationnaire a été observé expérimentalement pour la première fois en 1963 [17]. Plus tard, des études ont montré que toute jonction constituée de deux supraconducteurs séparés par un "lien faible" (c'est-à-dire métal normal, ferromagnétique, supraconducteur avec une température critique plus faible, constriction...) réalise aussi une jonction Josephson. Dans cette thèse, on s'intéressera surtout aux jonctions S/F/S. Dans ce type de multicouches, le déphasage entre les fonctions d'onde d'une paire de Cooper dans les deux couches supraconductrices est soit 0 soit  $\pi$ ; on parle dans ce dernier cas de jonction  $\pi$  - dont il sera souvent question dans cette thèse. La jonction  $\pi$  est d'ailleurs utilisée pour réaliser des qubits.

A cause de la présence d'un fort champ d'échange dans un matériau ferromagnétique, l'effet de proximité dans les systèmes S/F est tout à fait différent de celui des structures S/N. En effet, alors que le paramètre d'ordre supraconducteur décroît de façon monotone dans un métal normal, sa décroissance est accompagnée d'une modulation spatiale dans un ferromagnétique (voir [18] et ses références). La particularité de l'effet de proximité dans les structures S/F se répercute sur des grandeurs mesurables, comme la température critique de multicouches S/F, la densité d'états de bicouches S/F ou encore le courant critique de jonctions Josephson. Les premières prédictions du comportement non monotone de la température critique et du courant critique en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique ont été réalisées dans les années quatre-vingt. Les observations expérimentales sont plus récentes, et ont commencé au milieu des années quatre-vingt dix. Les effets intéressants relatifs à l'interaction entre supraconductivité et ferromagnétisme dans les structures S/F ont lieu sur une longueur de l'ordre du nanomètre, comme nous le verrons plus loin. La condition *sine qua non* de leur observation est donc que les couches artificiellement synthétisées aient une épaisseur nanométrique, ce qui n'a été possible que récemment et qui explique le décalage entre premières prédictions théoriques et vérifications expérimentales ainsi que le renouveau de ce domaine tant au niveau théorique qu'au niveau expérimental.

## 1.2 Problématique de la présente recherche

La description théorique des multicouches S/F prend en compte les effets du champ d'échange et de la température sur la destruction des paires et apporte une compréhension qualitative des phénomènes observés. Cependant, il existe une considérable différence quantitative entre les valeurs attendues et celles mesurées [19, 20], ce qui indique que d'autres mécanismes devraient aussi être pris en compte dans les modèles. En particulier, la diffusion magnétique pourrait jouer un rôle important dans les ferromagnétiques utilisés dans les structures hybrides S/F et modifier fortement l'effet de proximité.

Dans la première partie de cette thèse, il sera procédé au détail des calculs menés pour déterminer l'action de cette diffusion magnétique sur la température critique d'une multicouche S/F, de la densité d'états d'une bicouche S/F, du courant critique d'une jonction S/F/S et de la variation d'aimantation dans les deux couches ferromagnétique et supraconductrice.

Par ailleurs, nous avons aussi étudié des tricouches F/S/F, pour lesquelles la différence de température entre le cas parallèle (les champs d'échange dans les deux couches supraconductrices sont dans la même direction et le même sens) et le cas anti-parallèle (champs d'échange dans la même direction mais de sens opposé) conduit à un effet de vanne de spin, qui pourrait trouver des applications dans le stockage d'informations. Nous nous sommes concentrés sur l'influence de chaque paramètre en jeu pour mettre en évidence les effets les plus significatifs et ainsi permettre une mise en œuvre expérimentale plus efficace.

En ce qui concerne les composés à la fois supraconducteurs et ferromagnétiques, leur découverte récente en fait un sujet tout à fait passionnant. Nous nous sommes intéressés à l'évolution de la structure en domaines de tels matériaux avec la température. En particulier, deux études aux résultats *a priori* contradictoires nous ont interpellés. D'une part, il a été montré que la présence d'un substrat supraconducteur conduit à la réduction de la taille des domaines [21]. Cependant, il a aussi été estimé que l'état Meissner est incompatible avec une structure en domaines, ce qui impliquerait qu'un SFM est mono-domaine [22]. Pour comprendre ce qu'il en est exactement, nous avons déterminé l'état d'équilibre d'un film à la fois supraconducteur et ferromagnétique. La seconde partie de ce manuscrit est consacrée à cette étude.

### 1.3 Plan de la thèse

Pour résumer, la première partie de cette thèse traite des structures hybrides S/F. Plus précisément, les trois premiers chapitres font un état des lieux des phénomènes connus sur lesquels ma recherche est basée :

- Introduction à l'effet de proximité dans les structures S/N et S/F (chapitre 2) : dans ce premier chapitre, je décris comment dans une structure hybride composée d'une couche supraconductrice en contact avec une couche de métal normal ou une couche de ferromagnétique les deux couches interagissent grâce à "l'effet de proximité". Pour ce faire, j'introduis le concept de réflexion d'Andreev. Par ailleurs, l'analyse du comportement des corrélations supraconductrices dans les deux types de systèmes montre que les structures hybrides S/F sont très différentes des structures S/N.

- Outils théoriques (chapitre 3) : je présente les formalismes théoriques nécessaires à l'étude des systèmes S/F et explique comment les équations d'Usadel, qui décrivent

le système dans le régime diffusif et qui représentent l'outil essentiel pour mon travail, découlent de la théorie BCS.

- Diffusion due aux impuretés magnétiques et diffusion par couplage spin-orbite (chapitre 4) : les impuretés magnétiques, ondes de spin, dislocations et autres joints de grains génèrent de la diffusion dite magnétique et de la diffusion due au couplage spin-orbite. Ces deux procédés sont des mécanismes de destruction des corrélations supraconductrices. Dans ce chapitre, je montre comment des études microscopiques permettent leur prise en compte dans les modèles théoriques. Jusqu'à présent, l'effet de la diffusion magnétique sur les grandeurs caractéristiques des structures hybrides (température critique, densité d'états, courant critique, aimantation) a été négligée alors que son introduction semble nécessaire aux vues des différences considérables entre résultats expérimentaux et prédictions théoriques (ne considérant que le champ d'échange).

Enfin, les chapitres suivants sont consacrés aux travaux réalisés au cours de ma thèse dans le régime diffusif :

- Etude de la température critique des multicouches S/F. Première partie : influence de la diffusion magnétique (chapitre 5) : dans ce chapitre, l'influence de la diffusion magnétique sur le comportement de la température critique est déterminée. Je m'intéresse aussi à l'effet de la transparence de l'interface entre les couches supraconductrice et ferromagnétique dans le cas particulier d'une bicouche fine.

- Etude de la température critique des multicouches S/F. Seconde partie : effet de vanne de spin (chapitre 6) : l'effet de vanne de spin dans les structures F/S/F métalliques a été observé récemment. Dans ce chapitre, le travail se concentre sur l'évaluation des paramètres dont dépend cet effet (transparences des interfaces, épaisseurs des couches, champs d'échange...) pour spécifier les conditions favorables à son observation.

- Description théorique de l'influence de la diffusion magnétique sur la densité d'états d'une bicouche S/F (chapitre 7) : dans le but de reproduire des mesures expérimentales obtenues dans le groupe de H. Courtois à Grenoble, nous avons résolu analytiquement l'équation d'Usadel complète pour une bicouche de taille finie et ainsi obtenu la densité d'état théorique permettant une description théorique même à basse température. La comparaison entre théorie et expérience permet de conclure que la diffusion magnétique est très importante dans les alliages faiblement ferromagnétiques utilisés.

- Etude de l'influence de la diffusion magnétique sur le comportement du courant critique d'une jonction S/F/S (chapitre 8) : nous nous intéressons dans ce chapitre à l'influence de la diffusion magnétique sur le courant critique. En particulier, nous avons calculé le courant critique d'une jonction S/F/S dont les interfaces sont transparentes. L'expression obtenue étant valable même à basse température, elle permet de décrire l'évolution du courant critique en fonction de la température.

- Effet de proximité et aimantation d'une bicouche S/F (chapitre 9) : un supraconduc-

teur étant diamagnétique ne possède pas d'aimantation; au contraire, un ferromagnétique présente une aimantation spontanée. La mise en contact d'une couche ferromagnétique et d'une couche supraconductrice (sans champ extérieur) conduit donc à un changement de l'aimantation du ferromagnétique, ainsi qu'à l'apparition d'une aimantation dans la couche supraconductrice. Nous nous intéressons dans ce chapitre à l'évolution de cette aimantation induite dans le supraconducteur en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique et spécifions l'influence du supraconducteur sur le changement d'aimantation de la couche ferromagnétique.

La seconde partie de ma thèse est consacrée à l'étude des composés supraconducteurs et ferromagnétiques (SFM) :

- Etude de la structure en domaines des composés à la fois supraconducteurs et ferromagnétiques (chapitre 10) : l'évolution de la structure en domaines en fonction de la température est réalisée pour des films dont l'anisotropie magnéto-cristalline est forte. Tout d'abord, l'état Meissner est considéré, puis l'organisation des vortex est prise en compte.

## Partie I

# Compétition de la supraconductivité et du ferromagnétisme dans les structures hybrides Supraconducteur/Ferromagnétique



# Chapitre 2

## Introduction à l'effet de proximité dans les structures hybrides supraconducteur/métal normal et supraconducteur/ferromagnétique

Durant les années soixante, de nombreux travaux tant théoriques qu'expérimentaux portent sur les structures hybrides Supraconducteur/Métal Normal (notées par la suite S/N) et s'intéressent à "l'effet de proximité", qui peut être défini comme la fuite des paires de Cooper de la couche S vers la couche N, et à ses conséquences sur des grandeurs mesurables. Etant donné la compétition entre supraconductivité et ferromagnétisme, on s'attend à ce que la longueur caractéristique de la fuite des paires dans un métal ferromagnétique soit beaucoup plus faible que dans le cas S/N. C'est pour cette raison que Deutscher et de Gennes [14] écrivent à cette époque que "l'existence d'un effet de proximité dans des structures S/F n'a pas été établie de façon convaincante". En fait, il faut attendre les années quatre-vingt pour que les systèmes S/F soient étudiés théoriquement, et que l'existence de l'effet de proximité dans ces structures soit alors démontrée.

Dans ce chapitre, je présente l'effet de proximité dans les structures hybrides S/N et S/F, et j'introduis le concept de la réflexion d'Andreev. J'évalue la longueur caractéristique de pénétration des corrélations supraconductrices dans un métal normal et dans une couche ferromagnétique, dans le régime balistique et dans le régime diffusif.

### 2.1 Modèle

- Il est possible de caractériser le désordre statique dans un échantillon à l'aide d'une longueur caractéristique appelée le libre parcours moyen élastique (noté  $l_e$ ) qui représente

la distance moyenne parcourue par un électron entre deux évènements de collision sans changement d'énergie. Quand le régime de propagation des électrons est diffusif, on dit que l'échantillon est dans la "limite sale". Dans ce cas,  $l_e$  est la plus petite longueur du système (en particulier,  $l_e$  est plus petite que la taille du système dans un échantillon normal ou que la longueur de cohérence pour un supraconducteur). Au contraire, dans la limite balistique, la dynamique des électrons est conditionnée par la forme de la cavité dans laquelle les électrons sont confinés. On dit alors que l'échantillon est dans la "limite propre".

- La fabrication de couches nanométriques se fait essentiellement soit par épitaxie au moyen de jets moléculaires, soit par pulvérisation d'atomes arrachés à un substrat par collisions. La plupart des échantillons créés à partir de ces techniques contiennent de nombreux défauts et impuretés. Dans ce cas, le régime de propagation des électrons est diffusif. Le régime balistique est plus difficile à atteindre, mais quelques expériences récentes ont pour objet d'étude des échantillons propres.

De plus, en ce qui concerne les ferromagnétiques, il semble que la méthode par pulvérisation conduise à la création d'une couche non magnétique (ou couche morte) à la surface de la couche nanométrique fabriquée, dont il faut tenir compte pour la comparaison entre résultats expérimentaux et valeurs théoriques.

- En raison de l'énergie d'échange il existe dans un matériau ferromagnétique un champ interne très fort en l'absence de champ externe. Ce champ interne s'écrit pour une distribution de spin  $\vec{S}_i$  comme

$$H_{int} = \int d^3r \Psi^\dagger(\vec{r}) \left\{ \sum_i J(\vec{r} - \vec{r}_i) \vec{S}_i \vec{\sigma} \right\} \Psi(\vec{r}),$$

où  $\Psi(\vec{r})$  est le spineur électronique,  $\vec{\sigma} = \{\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z\}$  sont les matrices de Pauli et  $J(\vec{r})$  est l'intégrale d'échange. Le champ d'échange noté  $h$  est le champ moyen ressenti par un spin du fait de ses interactions avec ses voisins. Si l'axe de quantification est parallèle aux moments magnétiques, le champ interne est donné par

$$H_{int} = \int d^3r \Psi^\dagger(\vec{r}) (h + 4\pi M) \sigma_z \Psi(\vec{r}),$$

où  $M$  est l'aimantation du milieu. Etant donné que, généralement, le champ d'échange est très élevé,  $4\pi M$  est négligeable devant  $h$ .

- Un champ magnétique a deux effets destructeurs sur la supraconductivité comme vu en introduction. Il peut agir sur les impulsions des électrons d'une paire de Cooper; c'est l'effet orbital. Il peut aussi agir sur les spins des électrons par effet Zeeman; c'est l'effet paramagnétique. Dans toute la première partie qui intéresse la présente recherche, l'étude sera concentrée sur l'effet paramagnétique et l'effet orbital négligé.

## 2.2 Structures hybrides S/N

### 2.2.1 Introduction

Les premières manipulations qui suggèrent l'existence de l'effet de proximité sont celles menées par Hans Meissner dès 1960 [23]. Il a en effet mesuré le supracourant traversant deux électrodes supraconductrices séparées par une fine couche d'or. En 1961, Smith et Shapiro [24] établissent que la présence d'une couche normale au contact d'une couche supraconductrice entraîne une diminution de la température critique. De même, des expériences d'effet tunnel mettent en évidence l'apparition d'un gap dans la couche N d'une bicouche S/N.

Au niveau théorique, Josephson [16, 25] prédit en 1962 qu'en l'absence de tension appliquée aux bornes d'une jonction constituée de deux électrodes supraconductrices séparées par une fine couche d'isolant, un courant continu de paires supraconductrices circule dans la jonction jusqu'à une valeur critique  $I_c$ . C'est l'effet Josephson continu, pour lequel il a obtenu le Prix Nobel en 1973 et qui a été observé pour la première fois en 1963 [17].

### 2.2.2 Réflexion d'Andreev

#### Interprétation de l'effet de proximité dans une structure S/N en termes de réflexion d'Andreev

En 1964, Andreev [15] a étudié la résistance thermique d'un supraconducteur dans l'état intermédiaire, dont on ne comprenait pas pourquoi elle était plus élevée que celle de l'état Meissner. Il s'est alors intéressé à la réflexion d'un électron d'énergie inférieure au gap supraconducteur à l'interface entre la couche normale et la couche supraconductrice. Il a montré qu'un tel électron subit une réflexion, dite d'Andreev, au cours de laquelle il est réfléchi sous forme d'un trou se dirigeant dans la direction opposée, pendant qu'une paire de Cooper est créée dans la zone S, voir la figure 2.1.

Le trou associé à l'électron incident emporte l'information sur la phase du supraconducteur. On comprend dès lors qu'une bicouche S/N et une jonction S/N/S sont différentes, dans la mesure où dans cette dernière les réflexions successives de l'électron aux deux interfaces génèrent la création d'états liés dont l'énergie dépend de la différence de phase entre les deux supraconducteurs.

D'un point de vue technique, il s'agit de résoudre les équations de Bogoliubov-de Gennes [26] (sur lesquelles je reviendrai rapidement au chapitre suivant). On constate alors que dans un métal normal propre, les fonctions d'onde des électrons et des trous obéissent à des équations de Schrödinger et sont découplées. Au contraire, dans un supraconducteur homogène propre, l'existence d'un condensat de paires de Cooper implique un couplage entre les électrons et les trous.

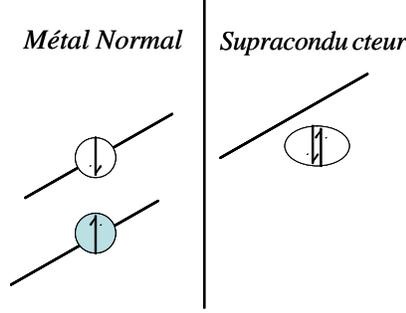


Figure 2.1: Réflexion d'Andreev : un électron incident d'énergie inférieure au gap supraconducteur est réfléchi en trou se dirigeant dans la direction opposée. Dans le supraconducteur, une paire de Cooper est créée.

Dans une bicouche S/N, il faut aussi tenir compte de l'interface. En l'absence de barrière, la continuité de la composante "électron" implique qu'il n'existe pas de rétrodiffusion à l'interface, alors que la continuité de la composante "trou" impose une amplitude "trou" non nulle dans le métal normal. En d'autres termes, la présence du supraconducteur couple l'électron incident et le trou réfléchi. D'ailleurs, on parle de "paire d'Andreev" pour désigner la corrélation entre un électron incident et le trou associé.

En présence d'une barrière à l'interface entre les deux couches, la réflexion d'Andreev devient incomplète et la réflexion ordinaire apparaît. Pour une barrière très épaisse, la réflexion d'Andreev est supprimée et seule intervient la réflexion ordinaire.

### Longueurs caractéristiques de l'effet de proximité dans la couche normale dans les cas balistique et diffusif

Dans un métal normal, les corrélations supraconductrices diminuent de façon monotone en fonction de la distance à l'interface. Leur longueur caractéristique de pénétration est aussi la distance sur laquelle l'électron et le trou restent couplés dans la couche N. Pour cela, on peut considérer que la paire d'Andreev est détruite lorsque la différence de phase  $\delta\phi$  entre l'électron et le trou associé est de l'ordre de  $2\pi$ . Etant donné que  $\delta\phi = \epsilon t/\hbar$  où  $t$  est le temps de parcours de la paire d'Andreev dans le métal normal, on peut en déduire la longueur caractéristique de pénétration des corrélations supraconductrices dans le métal normal, notée  $\xi_n$ . Essayons très schématiquement de déterminer cette longueur, dans les cas diffusif et balistique.

- Pour un métal dans le régime balistique, le temps de parcours de la paire est donné par  $t = \xi_n/v_F$ , où  $v_F$  est la vitesse des électrons au niveau de Fermi tandis que l'énergie d'excitation électronique due à l'agitation thermique à la température  $T$  est  $\epsilon = k_B T$ . La longueur de décroissance caractéristique des corrélations supraconductrices dans la limite

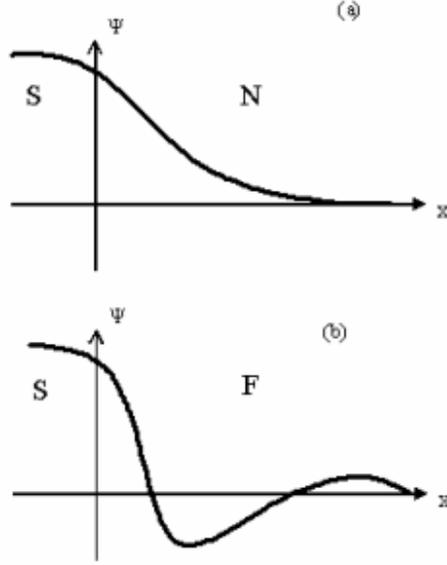


Figure 2.2: Evolution du paramètre d'ordre supraconducteur (sa partie réelle plus exactement) en fonction de la distance à l'interface, (a), dans le métal normal et (b) dans le ferromagnétique.

pure est donc donnée par  $\xi_n \sim \frac{v_F \hbar}{k_B T}$ . Par exemple, à 1 K,  $\xi_n$  est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  pour une vitesse de Fermi de  $10^6 \text{ m.s}^{-1}$ .

- Dans le régime diffusif, le temps caractéristique  $t$  est le temps entre deux collisions élastiques sur des impuretés, c'est-à-dire que  $t$  est aussi le temps de diffusion. Il est donc lié à  $\xi_n$  par la relation  $t = \xi_n^2/D$ , où  $D$  est le coefficient de diffusion de la couche N. Dans ce cas, la longueur de pénétration caractéristique des corrélations supraconductrices s'écrit comme  $\xi_n \sim \sqrt{\frac{D\hbar}{k_B T}}$ . A 1 K,  $\xi_n$  est de l'ordre de 30 nm pour un coefficient de diffusion de  $1 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ .

Par la suite, j'utiliserai un système d'unité tel que  $k_B = \hbar = 1$ .

Finalement, dans une bicouche S/N, la fonction d'onde d'une paire de Cooper décroît dans la couche de métal normal avec une longueur caractéristique qui dépend du régime (ballistique ou diffusif) de l'échantillon. Une illustration de ce comportement est présenté dans la figure 2.2 (a).

## 2.3 Structures hybrides S/F

### 2.3.1 Comportement oscillant du paramètre d'ordre supraconducteur dans le ferromagnétique

On pourrait croire *a priori* que, tout comme dans un métal normal, la fonction d'onde d'une paire de Cooper décroît de façon monotone jusqu'à s'annuler dans un matériau ferromagnétique et que le seul effet de la couche F soit de diminuer plus rapidement les corrélations supraconductrices (en fonction de la distance à l'interface). Néanmoins, le champ d'échange présent dans une couche F, noté  $h$ , agit différemment sur les deux spins qui constituent la paire par effet Zeeman, ce qui implique une modulation spatiale du paramètre d'ordre supraconducteur.

Pour comprendre, considérons une paire de Cooper pénétrant dans la couche F. (Le paragraphe suivant reproduit l'explication donnée par Demler et *al.* en 1997 [27].)

Supposons d'abord que le spin up est parallèle au champ d'échange et possède une quantité de mouvement  $p_F$  parallèle à la normale de l'interface et de même sens (cf. figure 2.3). Le second électron de la paire a donc un spin down "anti-parallèle" (parallèle à la normale de l'interface et de sens opposé) et une quantité de mouvement  $-p_F$ . Quand la paire subit le champ  $h$ , l'énergie potentielle du spin up diminue par effet Zeeman, de même que l'énergie potentielle du spin down augmente de la même quantité. Pour compenser cette variation d'énergie, l'énergie cinétique de l'électron up augmente et celle de l'électron down diminue. Ainsi, le centre de masse de la paire acquiert une quantité de mouvement  $Q$ . Par symétrie, il faut aussi considérer une paire dont l'électron up a une impulsion  $-p_F$ . Dans ce cas, la quantité de mouvement acquise par le centre de masse de la paire est  $-Q$ . Puis, étant donné que la fonction d'onde orbitale est symétrique pour un supraconducteur singulet, la combinaison des deux paires impose finalement que la fonction d'onde supraconductrice contienne un terme oscillant dans une couche ferromagnétique.

Dans un ferromagnétique, la fonction d'onde d'une paire de Cooper ne décroît donc pas de façon monotone en fonction de la distance à l'interface mais décroît en oscillant (voir figure 2.2 (b)). L'effet de proximité dans les structures S/F est donc très différent de celui des structures hybrides S/N. En particulier, le paramètre d'ordre supraconducteur peut changer de signe dans une couche F. Ce phénomène est d'ailleurs à l'origine de l'existence de la jonction  $\pi$  [18] sur laquelle je reviendrai ultérieurement.

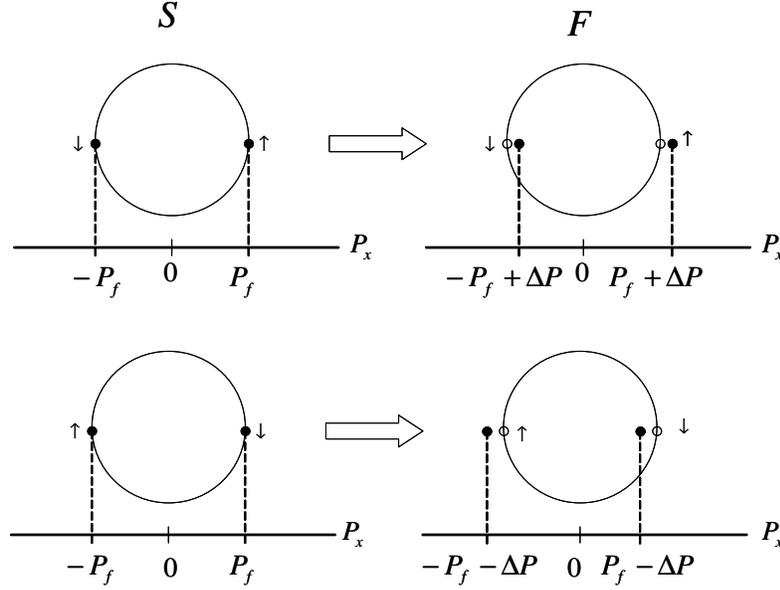


Figure 2.3: Le centre de la paire de Cooper acquiert une impulsion dans la couche ferromagnétique. Deux types de paires sont à considérer : les paires telles que le spin up a une impulsion  $p_f$  et les paires telles que le spin up a une impulsion  $-p_f$ .

### 2.3.2 Longueurs caractéristiques de décroissance et période des oscillations.

Dans le cas d'un système propre, la longueur caractéristique de décroissance des corrélations supraconductrices est donnée par  $\frac{v_F}{2\pi T}$  et la période des oscillations vaut  $\frac{v_F}{h}$  [18].

Dans le régime diffusif, la longueur de décroissance et la période des oscillations sont égales (quand le champ d'échange est beaucoup plus élevé que la température critique), et s'écrivent comme  $\xi_f = \sqrt{\frac{D_f}{h}}$ . J'expliquerai comment obtenir cette valeur dans le chapitre suivant sur les outils théoriques.

### 2.3.3 Modification de la réflexion d'Andreev

Du fait de la différence d'énergie entre les deux sous-bandes d'énergie up et down d'un ferromagnétique, un électron de spin  $\sigma$  est réfléchi par réflexion d'Andreev en trou  $-\sigma$ . La présence du ferromagnétique implique l'apparition de la réflexion ordinaire même en l'absence de barrière à l'interface. D'ailleurs la réflexion d'Andreev est complètement détruite dans des métaux totalement polarisés en spin.

### 2.3.4 Conséquences de l'effet de proximité dans les structures S/F

Le comportement tout à fait spécial de l'effet de proximité dans les structures hybrides S/F a des conséquences sur le comportement de grandeurs mesurables.

- En particulier, Buzdin et Kuprianov [28], et Radovic et *al.* [29] ont montré que la température critique d'une multicouche décroît en oscillant en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. La première observation expérimentale a été réalisée par Jiang et ses collaborateurs [30] en 1995 sur une multicouche Nb/Gd. Depuis, de nombreuses expériences ont confirmé ces premiers résultats (voir [18] et ses références). En particulier, ce comportement oscillatoire de la température critique a été analysé pour une tricouche Co/Nb/Co et une penta-couche Co/Nb/Co/Nb/Co [31]. La différence d'évolution de la température critique pour les deux systèmes met en évidence l'existence de la phase  $\pi$  dans la penta-couche.

- De même, il a été prédit (par Buzdin et *al.* [32] dans la limite balistique et Buzdin et Kuprianov [33] dans le régime diffusif) que le courant critique d'une jonction S/F/S présente un comportement oscillant en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. En fait, ces oscillations révèlent des transitions de la phase 0 à la phase  $\pi$  (et vice versa) que j'évoquerai plus longuement dans le chapitre consacré au courant critique. Les valeurs critiques de l'épaisseur de la couche ferromagnétique qui correspondent aux changements de phase (c'est-à-dire pour lesquelles le courant critique s'annule) dépendent de la température. Dès lors, le courant critique des jonctions S/F/S est aussi une fonction non monotone de la température.

La première preuve expérimentale a été apportée par Ryazanov et ses collaborateurs en 2001 [34] qui ont observé le comportement non monotone de la valeur absolue du courant critique en fonction de la température dans une jonction Nb/Cu<sub>x</sub>Ni<sub>1-x</sub>/Nb, où  $x$  est de l'ordre de 0.5. Puis en 2002 Kontos et *al.* [35] et Blum et *al.* [36] ont mesuré les oscillations de la valeur absolue du courant critique en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique respectivement pour une jonction Nb/PdNi/Nb et pour une jonction Nb/Cu/Ni/Cu/Nb. D'autres types d'expériences, sensibles à la phase, mettent aussi en évidence le couplage  $\pi$  ([37] et ses références).

- En ce qui concerne la densité d'états, qui possède aussi un comportement non monotone en fonction de l'épaisseur de la couche F [18], la première (et unique) preuve expérimentale a été apportée par Kontos et *al.* [38] dans la limite diffusive.

## 2.4 Conclusion

En résumé, alors que les corrélations supraconductrices diminuent de façon monotone dans une couche de métal normal en contact avec une couche supraconductrice, elles acquièrent un comportement oscillant dans une couche ferromagnétique d'une structure hybride S/F. Cet effet de proximité si spécial implique une évolution non monotone des grandeurs caractéristiques du système en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique : la température critique sera étudiée plus amplement aux chapitre 5 et 6, la densité d'états au chapitre 7, le courant critique au chapitre 8 et enfin l'aimantation au chapitre 9.

Cependant, avant d'aborder ces parties liées à mon travail, je vais présenter dans le chapitre suivant les outils théoriques nécessaires à l'étude des structures hybrides S/F.



# Chapitre 3

## Outils théoriques

Au cours de ma thèse, je me suis intéressée à des structures S/F dans lesquelles le mouvement des électrons est diffusif, parce que c'est justement dans cette limite "sale" que se trouvent la plupart des échantillons expérimentaux. Dans ce cas, le système est décrit par les équations d'Usadel. Le travail que je présente dans toute cette première partie du manuscrit est essentiellement basé sur l'application de ces équations, notamment pour déterminer la température critique, la densité d'états et l'aimantation d'une bicouche S/F ainsi que le courant critique d'une jonction Josephson. C'est pourquoi, il convient de rappeler brièvement comment les équations d'Usadel dérivent de la théorie BCS. D'autre part, les équations d'Usadel ne sont pas suffisantes pour traiter les systèmes hybrides puisqu'elles ne sont pas applicables près d'une interface entre deux métaux; des conditions aux limites sont donc aussi nécessaires.

Dans ce chapitre, j'explique d'abord comment la théorie BCS a été reformulée par Bogoliubov et de Gennes d'une part, et par Gor'kov d'autre part, avant de montrer que le formalisme quasiclassique, puis l'approche d'Usadel permettent de simplifier la description du système. J'explique ensuite les équations d'Usadel dans un supraconducteur et dans un ferromagnétique, équations qui sont à leur tour simplifiables sous certaines conditions. Enfin, je m'attache à préciser les conditions aux limites nécessaires associées aux équations d'Usadel, et que j'utiliserai dans la suite de ce manuscrit.

### 3.1 De la théorie BCS aux équations d'Usadel

#### 3.1.1 De la théorie BCS à la théorie de Gor'kov...

La théorie BCS [1] permet de décrire l'essentiel des propriétés d'un supraconducteur homogène. Cependant, sa mise en œuvre est délicate lorsqu'il s'agit d'étudier des systèmes inhomogènes, parmi lesquels ceux considérés dans cette thèse, à savoir les systèmes comprenant une couche supraconductrice en contact avec une couche non supraconduc-

trice (métal normal ou ferromagnétique). Pour surmonter cette difficulté, la théorie BCS a été reformulée en termes d'équations différentielles, selon deux techniques différentes.

- D'une part, la méthode introduite par Bogoliubov et de Gennes [26] consiste à trouver une base d'excitations propres, les quasiparticules, qui diagonalise le hamiltonien BCS. Cette méthode mène aux équations Bogoliubov-de Gennes, utilisées surtout dans le régime balistique (elle sont aussi valides dans le cas sale mais sont alors plus difficiles à exploiter). Dans ma recherche, j'ai étudié des échantillons dans la limite diffusive, si bien que ces équations n'apparaîtront pas par la suite.

- D'autre part, Gor'kov [39] a reformulé les équations d'évolution des opérateurs création/annihilation d'un électron au moyen du formalisme des fonctions de Green. Pour cela, il a introduit en plus de la fonction de Green normale  $G$ , deux nouvelles fonctions, spécifiques de la supraconductivité, appelées fonctions de Green anormales  $F$  et  $F^+$ . Les fonctions de Green de Gor'kov sont définies par [40] :

$$\begin{aligned} G_{\alpha\beta}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \tau) &= -i \langle T(\Psi_\alpha(\vec{r}_1, 0) \Psi_\beta^+(\vec{r}_2, \tau)) \rangle, \\ F_{\alpha\beta}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \tau) &= \langle T(\Psi_\alpha(\vec{r}_1, 0) \Psi_\beta(\vec{r}_2, \tau)) \rangle, \\ F_{\alpha\beta}^+(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \tau) &= \langle T(\Psi_\alpha^+(\vec{r}_1, 0) \Psi_\beta^+(\vec{r}_2, \tau)) \rangle, \end{aligned} \quad (3.1)$$

où  $T$  est l'opérateur d'ordre chronologique par rapport au temps imaginaire  $\tau$  et  $\Psi_\sigma^+(\vec{r}_i, \tau)$  est l'opérateur de création de spin  $\sigma$  en  $(\vec{r}_i, \tau)$  (et  $\Psi_\sigma(\vec{r}_i, \tau)$  l'opérateur d'annihilation). Les crochets  $\langle \dots \rangle$  désignent la moyenne sur l'état fondamental du système si la température est nulle et la moyenne statistique de Gibbs grand canonique pour une température non nulle.

La fonction de Green normale  $G$  donne l'évolution d'un électron de spin  $\sigma$  de l'état  $\vec{r}_1$  à l'instant 0 vers l'état  $\vec{r}_2$  à l'instant  $\tau$ . Les fonctions  $F$  et  $F^+$  décrivent les amplitudes de paires supraconductrices.

De plus, la relation d'auto-cohérence  $\Delta(r) = \lambda F(r)$ , où  $\lambda$  est le potentiel attractif à l'origine de la supraconductivité et  $\Delta(r)$  le potentiel de paires, complète les équations de Gor'kov. Dans une couche N ou F,  $\lambda = 0$ , ce qui implique que le potentiel de paires y est nul. Par contre, si cette couche est en contact avec un supraconducteur, elle acquiert une amplitude de paires  $F$  non nulle alors que  $\Delta$  est toujours nul; c'est l'effet de proximité.

- Les fonctions de Gor'kov peuvent se mettre sous forme matricielle :

$$\check{G} = \begin{pmatrix} \hat{G} & -\hat{F} \\ \hat{F}^+ & -\hat{G} \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

où les fonctions  $\hat{G}$  et  $\hat{F}$  sont les fonctions de Green normale et anormale dans l'espace des spins :

$$\hat{G} = \begin{pmatrix} G_{\uparrow\uparrow} & G_{\uparrow\downarrow} \\ G_{\downarrow\uparrow} & G_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix}, \quad \hat{F} = \begin{pmatrix} F_{\uparrow\uparrow} & F_{\uparrow\downarrow} \\ F_{\downarrow\uparrow} & F_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix}$$

### 3.1.2 ...De la théorie de Gor'kov à l'approche quasiclassique...

La théorie de Gor'kov est un puissant outil théorique pour l'étude des systèmes inhomogènes. Cependant, les fonctions de Green correspondantes sont souvent compliquées, parce que contenant de nombreuses informations microscopiques, ce qui rend difficile le calcul de grandeurs physiques. Devant ce constat, Eilenberger a proposé en 1968 [41] d'ignorer les informations superflues. Il est alors légitime de se demander comment distinguer les informations nécessaires des informations inutiles.

- Les fonctions de Gor'kov oscillent en fonction de la coordonnée relative  $\vec{\rho} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2$  sur une période de l'ordre de la longueur de Fermi  $\lambda_F$ , et en fonction de la coordonnée du centre de masse  $\vec{r} = \frac{\vec{r}_1 + \vec{r}_2}{2}$  sur une période de l'ordre de la longueur des corrélations supraconductrices  $\xi_s$ . Par ailleurs, les longueurs caractéristiques du système (épaisseur des couches, longueurs des corrélations supraconductrices dans la couche supraconductrice ou dans la couche ferromagnétique) sont beaucoup plus grandes que  $\lambda_F$ , si bien que les variations spatiales sur  $\lambda_F$  peuvent être négligées. C'est pour cette raison que l'approche dite quasiclassique développée par Eilenberger [41] et Larkin et Ovchinnikov [42] repose sur le lissage des fonctions de Green. Ce formalisme quasiclassique est valable tant que  $\lambda_F$  est la plus petite longueur du système, avec en particulier  $\lambda_F \ll \xi_s$ . Énergétiquement, le critère de validité devient  $E_F \gg \Delta$ , où  $E_F$  est l'énergie de Fermi.

- Techniquement, il s'agit d'intégrer les fonctions de Green de Gor'kov sur le vecteur d'onde rapide conjugué de  $\vec{\rho}$  (noté  $\vec{p}$ ). Plus précisément, on intègre sur l'énergie cinétique correspondante  $\xi_p = p^2/(2m) - E_F$  mesurée le long d'un rayon  $\vec{v}_F$  de la surface de Fermi. Les fonctions obtenues dépendent uniquement de la position du centre de masse  $\vec{r}$  et de la direction de la vitesse de Fermi  $\vec{v}_F$  :

$$g(\omega, \vec{r}, \vec{v}_F) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\xi_p}{i\pi} G(\omega, \vec{r}, \vec{p}), \quad (3.3)$$

$$f(\omega, \vec{r}, \vec{v}_F) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\xi_p}{i\pi} F(\omega, \vec{r}, \vec{p}),$$

où  $\omega = 2\pi T(n + \frac{1}{2})$  sont les fréquences de Matsubara. Ces fonctions d'Eilenberger sont solutions d'équations appelées équations d'Eilenberger, qui sont des équations de type transport.

- Par la suite, les structures que j'étudierai sont unidimensionnelles dans la direction

$x$ . Dans ce cas, les équations d'Eilenberger peuvent s'écrire sous la forme suivante :

$$\left(\omega + \frac{1}{2\tau_e} \bar{g}(\omega, x)\right) f(\omega, x, \theta) + \frac{1}{2} v_F \cos \theta \frac{\partial f(\omega, x, \theta)}{\partial x} = \left(\Delta(x) + \frac{1}{2\tau_e} \bar{f}(\omega, x)\right) g(\omega, x, \theta), \quad (3.4)$$

$$\bar{g}(\omega, x) = \int \frac{d\Omega}{4\pi} g(\omega, x, \theta),$$

$$\bar{f}(\omega, x) = \int \frac{d\Omega}{4\pi} f(\omega, x, \theta),$$

$$f(\omega, x, \theta) f^+(\omega, x, \theta) + g^2(\omega, x, \theta) = 1,$$

où  $\theta$  est l'angle entre la vitesse de Fermi et la direction  $x$ . Le paramètre  $\tau_e$  qui apparaît dans les équations ci-dessus est le temps de collision élastique et  $f^+(\vec{r}, \theta, \omega) = f^*(\vec{r}, \theta + \pi, \omega)$ .

### 3.1.3 ...et de l'approche quasiclassique aux équations d'Usadel

En 1970, Usadel [43] s'intéresse à un supraconducteur dans lequel le mouvement des électrons est diffusif. Il montre comment dans ce cas les équations d'Eilenberger se simplifient. En effet, dans la limite sale, du fait des nombreuses collisions des électrons sur les impuretés, le système peut être considéré comme presque isotrope. Alors, les fonctions d'Eilenberger dépendent peu de la direction de la vitesse de Fermi et peuvent se développer en harmoniques sphériques. L'approximation d'Usadel consiste à ne considérer que la première harmonique :

$$\begin{aligned} f(\omega, x, \theta) &= F(\omega, x) + f_1, \\ g(\omega, x, \theta) &= G(\omega, x) + g_1, \end{aligned} \quad (3.5)$$

où  $F$  et  $G$  sont les moyennes angulaires des fonctions de Green d'Eilenberger et sont appelées les fonctions de Green d'Usadel. Les fonctions  $f_1$  et  $g_1$  sont les termes contenant la dépendance angulaire. L'introduction de ces fonctions de Green approximées dans les équations d'Eilenberger, et l'intégration sur la direction de la vitesse de Fermi conduisent finalement à des équations plus simples, appelées équations d'Usadel.

• Dans l'article d'Usadel [43], l'équation pour la fonction  $F$  est donnée sous la forme suivante (sans présence de potentiel vecteur) pour  $\omega > 0$

$$2\omega F(\omega, x) - D \frac{\partial}{\partial x} \left[ G(\omega, x) \partial F(\omega, x) + \frac{1}{2} \frac{F(\omega, x)}{G(\omega, x)} \frac{\partial}{\partial x} |F(\omega, x)|^2 \right] = 2\Delta(x) G(\omega, x), \quad (3.6)$$

où  $\omega = 2\pi T \left(n + \frac{1}{2}\right)$  sont les fréquences de Matsubara, et  $D$  est le coefficient de diffusion de la couche défini par  $D = v_F^2 \tau_e / 3$ . Le paramètre  $\tau_e$  désigne le temps entre deux

collisions élastiques qui est aussi le temps caractéristique du transport. Considérant que les fonctions de Green sont liées par la relation

$$G(\omega, x)^2 + |F(\omega, x)|^2 = 1, \quad (3.7)$$

l'équation (3.6) peut se réécrire comme

$$-\frac{D}{2} \left[ G(\omega, x) \frac{\partial^2 F(\omega, x)}{\partial x^2} - F(\omega, x) \frac{\partial^2 G(\omega, x)}{\partial x^2} \right] + \omega F(\omega, x) = \Delta(x) G(\omega, x). \quad (3.8)$$

L'équation pour la fonction  $F^+(\omega, x)$  est analogue à celle pour  $F(\omega, x)$  dans laquelle il faut substituer  $\Delta^*(x)$  à  $\Delta(x)$ .

- Les équations d'Usadel sont complétées par la relation d'auto-cohérence

$$\Delta(x) \ln \left( \frac{T}{T_c} \right) + 2\pi T \sum_{\omega > 0} \left[ \frac{\Delta(x)}{\omega} - F(\omega, x) \right] = 0,$$

où  $T_c$  est la température critique du supraconducteur (sans effet de proximité).

Il est important de noter que les équations d'Usadel sont valables si  $T_c \tau \ll 1$ .

### 3.1.4 Fonctions de Green pour un supraconducteur homogène infini

Il est intéressant d'expliciter les fonctions de Green d'un supraconducteur homogène infini.

- Les fonctions de Green de Gor'kov s'écrivent

$$G(\omega, p) = \frac{\xi_p + i\omega}{\xi_p^2 + \omega^2 + \Delta^2}, \quad F(\omega, p) = \frac{\Delta}{\xi_p^2 + \omega^2 + \Delta^2}. \quad (3.9)$$

- Les fonctions de Green d'Eilenberger sont

$$g(\omega) = \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}, \quad f(\omega) = \frac{\Delta}{i\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}. \quad (3.10)$$

- Les fonctions d'Usadel se mettent sous la forme

$$G(\omega) = \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}, \quad F(\omega) = \frac{\Delta}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}. \quad (3.11)$$

## 3.2 Les équations d'Usadel

### 3.2.1 Dans un ferromagnétique

Originellement, les équations d'Usadel décrivent l'évolution des fonctions de Green dans un supraconducteur. Cependant, pour traiter les systèmes hybrides S/F, il faut

aussi connaître l'évolution des fonctions de Green dans la couche ferromagnétique. Dans ce cas, la présence du champ d'échange  $h$  modifie les équations d'Usadel dans lesquelles il faut substituer  $\omega + ih$  à  $\omega$  :

$$-\frac{D}{2} \left[ G(\omega, x, h) \frac{\partial^2 F(\omega, x, h)}{\partial x^2} - F(\omega, x, h) \frac{\partial^2 G(\omega, x, h)}{\partial x^2} \right] + (\omega + ih) F(\omega, x, h) = 0, \quad (3.12)$$

et

$$G(\omega, x, h)^2 + F(\omega, x, h) F^*(\omega, x, -h) = 1. \quad (3.13)$$

Les conditions d'utilisation des équations d'Usadel sont alors  $T_c \tau \ll 1$  et  $h\tau \ll 1$ . Le second critère est en fait beaucoup plus restrictif que le premier étant donné le fort champ d'échange qui règne dans le ferromagnétique (généralement,  $h \gg T_c$ ).

Finalement, les équations d'Usadel peuvent s'écrire de manière générale

$$-\frac{D}{2} \left[ G(\omega, x, h) \frac{\partial^2 F(\omega, x, h)}{\partial x^2} - F(\omega, x, h) \frac{\partial^2 G(\omega, x, h)}{\partial x^2} \right] + (\omega + ih) F(\omega, x, h) = \Delta(x) G(\omega, x, h). \quad (3.14)$$

Elles sont valables dans la couche ferromagnétique avec  $\Delta(x) = 0$  et dans le supraconducteur avec  $h = 0$ .

### 3.2.2 Linéarisation des équations d'Usadel

Quand la fonction de Green anormale est très faible ( $F(\omega, x, h) \rightarrow 0$ ) la fonction de Green normale devient celle de l'état normal ( $G(\omega, x, h) \rightarrow \text{sign}(\omega)$ ). Dans ce cas, l'équation (3.14) peut se linéariser. Pour  $\omega > 0$  elle s'écrit

$$-\frac{D}{2} \frac{\partial^2 F(\omega, x, h)}{\partial x^2} + (\omega + ih) F(\omega, x, h) = \Delta(x). \quad (3.15)$$

Cette linéarisation simplificatrice est possible dans le supraconducteur et dans le ferromagnétique quand la température est proche de la température critique (auquel cas, les propriétés supraconductrices sont faibles, et l'on peut effectivement considérer que l'amplitude des paires supraconductrices est presque nulle). Dans la couche ferromagnétique, la linéarisation est aussi valable quand l'interface est peu transparente (je reviendrai sur l'écriture mathématique de cette hypothèse dans la partie suivante traitant des conditions aux limites). En effet, dans cette situation, la fuite des paires supraconductrices dans la couche ferromagnétique est faible, réduisant l'effet de proximité; alors la fonction de Green anormale peut être encore supposée faible dans le ferromagnétique.

## 3.3 Conditions aux limites

Les équations quasiclassiques décrivent les propriétés supraconductrices pour des longueurs significativement plus grandes que l'échelle interatomique, puisque toute l'information

sur les oscillations rapides a été intégrée. Elles ne sont donc pas valables au voisinage immédiat d'une interface abrupte (sur quelques longueurs interatomiques). Il est donc nécessaire de déterminer les conditions de passage à la frontière entre deux métaux S et N ou S et S' ou encore S et F pour compléter les équations d'Usadel.

### 3.3.1 Première approche

Jusqu'au début des années quatre-vingt, les systèmes hybrides ont été étudiés dans le formalisme phénoménologique développé par Ginzburg et Landau. Puis, en 1981, Ivanov et *al.* [44] ont cherché à déterminer les conditions aux limites associées aux équations d'Eilenberger et aux équations d'Usadel. Pour cela, ils considèrent une bicouche dont l'interface est plane et pour laquelle les deux métaux sont en bon contact électrique, ce qui signifie qu'il n'existe pas de barrière de potentiel. La continuité de la fonction de Green anormale de Gor'kov ainsi que celle de sa dérivée a pour conséquences la continuité de la fonction  $F$  d'Usadel ainsi que la conservation de la quantité  $DN(0) (\nabla - 2ie\frac{\mathbf{A}}{c}) F$  (continuité du courant). La grandeur  $D$  est le coefficient de diffusion de la couche pendant que  $N(0)$  est la densité d'états.

### 3.3.2 Conditions de Zaitsev

En 1983, Zaitsev [45] analyse les équations quasiclassiques dans le formalisme général hors équilibre en tenant compte d'un potentiel de forme quelconque, et détermine les deux conditions aux limites nécessaires. Il distingue en fait deux zones dans le système hybride. Une première zone est éloignée de l'interface (dans chaque couche) et les équations quasiclassiques y sont applicables. Une seconde zone, située au voisinage de l'interface est caractérisée par une barrière de potentiel. Les équations quasiclassiques ne sont pas valables dans cette zone. Dans cette approche apparaît un nouveau paramètre. Il s'agit de la résistance de l'interface notée  $R_N$ . Il ne faut pas confondre la résistance du métal normal (qui ne dépend que des propriétés du matériau considéré) avec  $R_N$ , qui est caractérisée par les coefficients de transmission et de réflexion de la barrière.

### 3.3.3 Conditions de Kuprianov-Lukichev

En 1988, Kuprianov et Lukichev [46] reprennent l'étude menée par Zaitsev dans le cas particulier de la limite diffusive et de l'état stationnaire. Ils étudient un contact supposé plan entre un supraconducteur et un métal soit normal soit supraconducteur. Ils utilisent les conditions de passage de Zaitsev pour les équations d'Eilenberger qu'ils linéarisent. Puis, considérant la faible anisotropie dans la limite sale, ils obtiennent les deux conditions aux limites associées aux équations d'Usadel linéarisées. La première

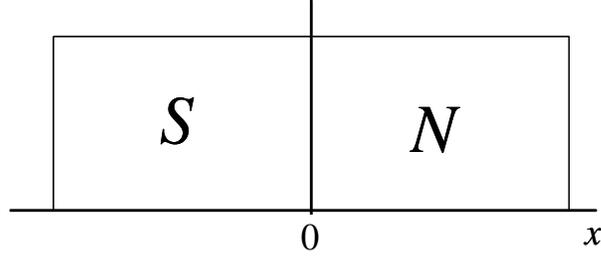


Figure 3.1: Géométrie d'une bicouche S/N. L'axe  $x$  est perpendiculaire à l'interface.

condition est due à la conservation du courant tandis que la seconde peut être interprétée comme la diminution de la réflexion d'Andreev à l'interface à cause de la réflexion ordinaire contre la barrière.

### Les conditions pour une bicouche S/N

- Pour une structure S/N dont l'interface est à  $x = 0$ , les conditions de Kuprianov-Lukichev s'écrivent

$$\sigma_n \left( \frac{\partial F_n}{\partial x} \right)_0 = \sigma_s \left( \frac{\partial F_s}{\partial x} \right)_0, \quad (3.16)$$

$$F_s = F_n \pm \xi_n \gamma_B \left( \frac{\partial F_n}{\partial x} \right)_0, \quad (3.17)$$

où  $\sigma_n$  ( $\sigma_s$ ) est la conductivité dans la couche N (S), et  $\xi_n$  est la longueur caractéristique de décroissance des corrélations supraconductrices dans la couche N. Le signe  $\pm$  dépend de la situation des deux couches relativement à la direction de l'axe perpendiculaire à l'interface (avec la géométrie de la figure 3.1, le signe est  $-$ ).

- Le paramètre  $\gamma_B$  est appelé le paramètre de transparence de l'interface. Il est défini par

$$\gamma_B = \frac{\sigma_n A R_N}{\xi_n}, \quad (3.18)$$

où  $A$  est l'aire de l'interface. Comme nous le verrons dans les chapitres qui suivent, ce paramètre est d'une grande importance. Il est lié à la transparence de l'interface  $T$  par

$$T = \frac{1}{1 + \gamma_B}. \quad (3.19)$$

Quand l'interface est complètement transparente,  $T = 1$  et  $\gamma_B = 0$ . Dans ce cas, l'interface est virtuelle et sépare deux métaux identiques. On parle alors de contact ohmique. Considérer ce cas dans les bicouches S/N revient donc à négliger les différences entre les vitesses de Fermi et les conductivités des deux matériaux. Par ailleurs, les conditions déterminées par Ivanov et *al.* sont égales aux conditions de Kuprianov-Lukichev

dans ce cas particulier (puisque  $\sigma_n = 2e^2 N(0) D_n$ ). Au contraire, si l'interface est opaque,  $T = 0$  et  $\gamma_B \rightarrow \infty$ . Il s'agit d'un contact tunnel.

Par la suite j'appliquerai les conditions de Kuprianov-Lukichev et le rôle du paramètre de transparence de l'interface sera souligné.

### Les conditions pour une structure S/F

Dans un ferromagnétique, le déséquilibre entre le nombre de spins up et le nombre de spins down entraîne une polarisation au niveau de Fermi. En d'autres termes, la seule présence du ferromagnétique au contact d'une couche S modifie la réflexion d'Andreev et induit de la réflexion ordinaire, comme nous l'avons évoqué au chapitre précédent. Les conditions de Kuprianov et Lukichev peuvent donc être généralisées aux structures S/F à la condition que la polarisation  $\eta = \frac{h}{E_F}$  soit faible. Au contraire, si la polarisation n'est pas négligeable, elles ne sont plus valables. Cependant, les résultats obtenus à partir des conditions de Kuprianov-Lukichev dans le cas d'une polarisation non négligeable restent qualitativement corrects à défaut de l'être quantitativement.

Dans les chapitres suivants, il sera donc toujours implicitement supposé que la polarisation est négligeable pour permettre l'application des conditions aux limites de Kuprianov-Lukichev.

#### 3.3.4 Conditions rigides

Les conditions rigides s'appliquent quand la couche supraconductrice n'est pas affectée par la présence de la couche ferromagnétique, ce qui est possible si la couche F a une faible conductivité ou si l'interface est très peu transparente. Les conditions rigides sont donc valables si [47]

$$\frac{\sigma_f \xi_s}{\sigma_s \xi_f} \ll \max(1, \gamma_B). \quad (3.20)$$

### 3.4 Comportement de la fonction d'onde supraconductrice dans les structures S/N et S/F

Je voudrais revenir dans cette section sur le comportement du paramètre d'ordre supraconducteur dans la limite diffusive, dans une couche ferromagnétique et une couche de métal normal au contact d'une couche supraconductrice.

Considérons une bicouche S/F telle que la couche ferromagnétique est très épaisse (c'est-à-dire beaucoup plus élevée que  $\xi_f$ ). L'axe  $x$  est normal à l'interface et la couche ferromagnétique occupe le demi-espace infini  $x \geq 0$ . Pour simplifier, supposons que les équations d'Usadel peuvent être linéarisées. Alors, la solution de l'équation (3.15) avec  $\Delta$

nul est

$$F_f = F_f(x=0) \exp\left(- (1+i) \frac{x}{\xi_f}\right), \quad (3.21)$$

où, pour  $h \gg T_c$ ,  $\xi_f = \sqrt{\frac{D_f}{h}}$ . Etant donné que la fonction d'onde d'une paire de Cooper  $\psi$  est assimilable à

$$\psi \sim \sum_{\omega} F(x, \omega),$$

on constate que le paramètre d'ordre supraconducteur subit effectivement une modulation spatiale dans un matériau ferromagnétique.

Dans le cas d'un métal normal,  $h = 0$ , et la fonction d'onde supraconductrice se comporte comme une exponentielle réelle décroissante, dont la longueur caractéristique ne dépend que de la température et vaut  $\xi_n = \sqrt{\frac{D_f}{2\pi T}}$ .

### 3.5 Conclusion

Finalement, dans l'étude des systèmes hybrides, la théorie de Gor'kov (dont le contenu est équivalent à la théorie BCS) est peu maniable. L'approche quasiclassique, valable si  $E_F \gg \Delta$  est plus adaptée pour déterminer les grandeurs physiques, tels que par exemple le courant critique d'une jonction Josephson ou la densité d'états d'une bicouche S/F. Enfin, une simplification des équations d'Eilenberger est possible dans la limite sale, et conduit aux équations d'Usadel, dont l'utilisation est possible si  $T_c \tau \ll 1$  (et  $h\tau \ll 1$  dans un ferromagnétique).

Ces équations ne sont pas valables près de la frontière entre un supraconducteur et un métal normal ou un ferromagnétique et sont complétées par des conditions de passage déterminées par Kuprianov et Lukichev. Pour l'étude des structures S/F, les conditions de Kuprianov-Lukichev sont applicables si la polarisation au niveau de Fermi est faible.

# Chapitre 4

## Diffusion due aux impuretés magnétiques et diffusion par couplage spin-orbite

Les équations d'Usadel usuelles appliquées à un ferromagnétique considèrent le champ d'échange comme principal mécanisme conduisant à la destruction des paires dans une couche ferromagnétique. Cependant, d'autres sources d'affaiblissement des corrélations supraconductrices existent, comme la diffusion des électrons par des impuretés magnétiques (ou "spin-flip") ou la diffusion à cause du couplage "spin-orbite".

Dans ce chapitre, je compare les processus de "spin-flip" et "spin-orbite" dont l'importance dans les échantillons utilisés pour des expériences est soulignée. Ensuite, je montre comment des études microscopiques commencées dans les années soixante permettent l'introduction des diffusions spin-flip et spin-orbite dans les équations d'Usadel. Enfin, je présente l'effet de la diffusion magnétique sur le paramètre d'ordre supraconducteur dans une couche ferromagnétique d'une structure hybride S/F.

### 4.1 Mécanismes de destruction des paires supraconductrices

#### 4.1.1 Impuretés magnétiques et couplage spin-orbite

- Dans un métal, les électrons peuvent interagir avec des moments magnétiques localisés dus aux impuretés magnétiques. Le hamiltonien correspondant est de la forme

$$H_m = J\delta(\vec{r}) \vec{S} \cdot \vec{\sigma}, \quad (4.1)$$

où  $\vec{S}$  est le spin d'une impureté et  $\vec{\sigma}$  est l'opérateur dont les composantes sont les matrices de Pauli. L'interaction locale entre un électron et une impureté magnétique est

décrite par l'élément de matrice

$$\left\langle \vec{k}_1 \alpha | H_m | \vec{k}_2 \beta \right\rangle = J \vec{S} \cdot \vec{\sigma}_{\alpha\beta}, \quad (4.2)$$

où  $\vec{\sigma}_{\alpha\beta} = \langle \alpha | \vec{\sigma} | \beta \rangle$ . L'interaction entre un électron et l'une de ces impuretés peut conduire au retournement du spin de l'électron; c'est pourquoi la diffusion magnétique est aussi appelée diffusion spin-flip. Par la suite, j'utiliserai indifféremment l'un ou l'autre terme.

• L'électron de vitesse  $\vec{v}$  se déplaçant dans un potentiel  $v(\vec{r})$  est soumis à un champ électrostatique tel que  $e\vec{E} = -\vec{\nabla}v$ . La relativité restreinte indique qu'il apparaît alors dans le référentiel de l'électron un champ magnétique  $\vec{B} = -\frac{1}{c^2}\vec{v} \times \vec{E}$ . L'interaction du spin de l'électron avec ce champ magnétique est  $-\mu_B \vec{B} \cdot \vec{\sigma}$ . Le hamiltonien décrivant cette interaction est

$$H_{so} = \frac{\hbar}{4mc^2} \vec{\sigma} \cdot (\vec{\nabla}v \times \vec{v}). \quad (4.3)$$

L'importance de ce couplage "spin-orbite" dépend des impuretés considérées et augmente quadratiquement avec leur numéro atomique. Les éléments de matrice sont

$$\left\langle \vec{k}_1 \alpha | H_m | \vec{k}_2 \beta \right\rangle = i v_{so} \vec{\sigma}_{\alpha\beta} \cdot (\hat{k}_1 \times \hat{k}_2), \quad (4.4)$$

où  $\hat{k}_i = \vec{k}_i/k$  et  $v_{so} = \frac{\hbar^2}{4m^2c^2}v(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$ . La diffusion spin-orbite peut être aussi désignée sous le terme spin-flip. Cependant, dans cette thèse, le mot "spin-flip" correspondra uniquement à la diffusion magnétique.

• En tenant compte de l'interaction de la diffusion sur une impureté non magnétique noté  $v_0(\vec{r})$ , le potentiel d'interaction total est finalement

$$v_{\alpha\beta}(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = v_0 \delta_{\alpha\beta} + i v_{so} \vec{\sigma}_{\alpha\beta} \cdot (\hat{k}_1 \times \hat{k}_2) + J \vec{S} \cdot \vec{\sigma}_{\alpha\beta}. \quad (4.5)$$

### 4.1.2 Mécanismes de destruction de la supraconductivité

• Les diffusions sur les impuretés magnétiques et par couplage spin-orbite agissent sur le spin des électrons, comme le montrent les expressions (4.2) et (4.4). Etant donné que ces processus ont des effets différents sur les deux spins d'une paire de Cooper, ils impliquent donc une diminution de la corrélation entre deux électrons de la paire. La diffusion magnétique est donc un mécanisme de destruction de la supraconductivité et contribue à l'affaiblissement des corrélations supraconductrices dans un supraconducteur comme dans un ferromagnétique.

• Dans un supraconducteur, des impuretés magnétiques peuvent être introduites (volontairement ou non) dans l'échantillon et induisent la diffusion magnétique. D'autre part, la présence de diffusion par couplage spin-orbite due aux dislocations, inhomogénéités et autres joints de grains n'est pas négligeable pour des éléments lourds.

- Dans un ferromagnétique : la première cause évidente de destruction des corrélations supraconductrices est le champ d'échange, dont l'action a déjà été discutée dans les chapitres précédents. Par ailleurs, même si le terme d'impureté magnétique est impropre dans une couche contenant un ordre magnétique, un agencement irrégulier des atomes magnétiques de la couche F ou des ondes de spin créent des centres de diffusion magnétique. La diffusion magnétique peut donc exister dans une couche ferromagnétique. De même, le couplage spin-orbite contribue à la destruction des paires d'Andreev pour des éléments lourds.

### 4.1.3 Résultats expérimentaux : de la nécessité d'introduire la diffusion magnétique

Expérimentalement, on utilise souvent des alliages assez faiblement ferromagnétiques dans les structures S/F.

- Nous avons vu dans les chapitres qui précèdent que l'effet de proximité dans la limite diffusif a lieu sur des longueurs caractéristiques de l'ordre de  $\xi_f$ , ce qui signifie que les couches à réaliser doivent avoir une épaisseur de l'ordre de quelques  $\xi_f$ . Or,  $\xi_f = \sqrt{\frac{D_f}{h}}$  est inversement proportionnel au champ d'échange. Donc, plus le champ d'échange est élevé, plus les couches à fabriquer sont minces. Pour un élément pur, les champs d'échange sont très élevés ( $h \sim 10^4 K$ ), ce qui conduit à des couches d'épaisseur de l'ordre de 0.1 nm. Expérimentalement, il est difficilement envisageable de constituer des échantillons si fins, épais de quelques couches atomiques.

Dans des alliages tels que  $\text{Cu}_x\text{Ni}_{1-x}$ , la température de Curie évolue de façon quasi linéaire avec la concentration en Ni. Ces alliages ont donc l'avantage de présenter un champ d'échange contrôlable, que l'on peut choisir suffisamment faible de façon à ce que  $\xi_f$  ait une valeur assez élevée : pour un champ d'échange de l'ordre de la centaine de Kelvins,  $\xi_f$  devient de l'ordre du nanomètre. Or, des couches nanométriques sont réalisables depuis les progrès récents des techniques de constitution de couches.

- Cependant, du fait de la faible valeur de  $h$ , ces alliages sont généralement proches de la limite paramagnétique, et donc favorables aux fluctuations spatiales du champ d'échange, ce qui crée de la diffusion magnétique. De plus, les positions aléatoires occupées par les atomes des deux constituants de l'alliage sont encore une source de désordre magnétique et, par conséquent, d'apparition de spin-flip.

En 2001, Ryazanov et *al.* [34] ont mesuré le courant critique parcourant une jonction Josephson Nb/CuNi/Nb en fonction de la température. Cependant, le courant mesuré est beaucoup plus faible que les résultats théoriques utilisant l'équation d'Usadel dans laquelle  $\omega + ih$  se substitue à  $\omega$  (dans la couche ferromagnétique). De même, en 2003, Sellier et *al.* [48] ont obtenu des courants critiques (en fonction de la température) de

l'ordre du  $\mu V$  pour une jonction Nb/Cu<sub>52</sub>Ni<sub>48</sub>/Nb. Leurs résultats ne peuvent pas être reproduits quantitativement par l'utilisation des équations d'Usadel usuelles, d'autant que les interfaces de cette jonction sont quasiment transparentes. Sellier et ses collaborateurs ont alors suggéré que le fort écart entre données expérimentales et résultats théoriques est dû à la diffusion magnétique dans la couche de l'alliage ferromagnétique.

Par ailleurs, des mesures de courant critique sur une jonction constituée de PdNi et de Nb ont été obtenues en 2002 par Kontos et *al.* [35]. Les valeurs de ces mesures sont plus élevées et peuvent être décrites théoriquement par les équations d'Usadel en tenant compte des barrières à l'interface. Or, le PdNi est un alliage plus nettement ferromagnétique, dans lequel sans doute les fluctuations magnétiques sont plus faibles, et par conséquent la diffusion magnétique moins importante.

Enfin, Ryazanov et *al.* [49] ont par la suite mesuré le courant critique d'une jonction Josephson en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique. Ils ont observé que la longueur de décroissance caractéristique  $\xi_{f1}$  est très différente de la période des oscillations  $\xi_{f2}$ . Or, en considérant le champ d'échange comme seul mécanisme de destruction des corrélations supraconductrices et en procédant à la substitution  $\omega \rightarrow \omega + ih$ , nous avons vu dans le chapitre 2 que  $\xi_{f1} = \xi_{f2}$ . Le champ d'échange seul ne pouvant expliquer cette différence, la diffusion magnétique doit être ajoutée dans la théorie.

- Dans ces alliages, le numéro atomique étant faible, le spin-orbite ne peut pas expliquer la différence entre expérience et théorie.

#### 4.1.4 Récapitulation

L'écart entre les résultats expérimentaux et les valeurs prédites par la théorie d'Usadel considérant le champ d'échange comme seul mécanisme de destruction de la supraconductivité suggère que la diffusion magnétique n'est pas négligeable dans les échantillons expérimentaux. Le but des travaux menés durant ma recherche est de déterminer l'action de ce mécanisme de destruction des paires supraconductrices, notamment pour comprendre si elle peut expliquer les résultats observés. Pour cela, il faut introduire la diffusion spin-flip dans la théorie existante.

## 4.2 Introduction de la diffusion magnétique et spin-orbite dans les équations d'Usadel

### 4.2.1 Etude microscopique d'un supraconducteur contenant impuretés magnétiques et couplage spin-orbite

- En 1958, Matthias et *al.* [50] ont mesuré que l'ajout dans un échantillon de lanthane de 1% d'élément terre rare entraîne une baisse appréciable de sa température critique. Au contraire, des impuretés non magnétiques affectent peu la valeur de la température critique d'un supraconducteur conventionnel. De plus, leurs résultats expérimentaux indiquent une dépendance linéaire de la température critique d'un échantillon de lanthane en fonction de la concentration d'impuretés de gadolinium introduites.

- En 1960, Abrikosov et Gor'kov [51] ont développé une théorie microscopique d'un supraconducteur contenant des impuretés paramagnétiques en faible concentration; théorie qui permet de comprendre les données expérimentales obtenues deux ans plus tôt. Le principe de leur étude consiste à considérer l'interaction entre un électron et une impureté magnétique par un potentiel  $v(\vec{r})$  qui contient à la fois un terme de diffusion simple sans spin-flip  $v_0(\vec{r})$ , et un terme de spin-flip dépendant du spin de l'impureté noté  $u(\vec{r}) \vec{S} \vec{\sigma}$  :  $v(\vec{r}) = v_0(\vec{r}) + u(\vec{r}) \vec{S} \vec{\sigma}$ . L'hamiltonien  $H_{int}$  traduisant l'interaction entre les électrons et les impuretés magnétiques est de la forme  $H_{int} = \psi^+ \sum_a v(\vec{r} - \vec{r}_a) \psi$ , où  $\vec{r}_a$  désigne la position des impuretés magnétiques. La détermination de la température critique est réalisée à partir de l'équation d'auto-cohérence du potentiel de paires supraconductrices dont la moyenne sur les positions des impuretés est obtenue par développement diagrammatique de la fonction de Green. Puis la moyenne sur l'orientation des spins (en supposant qu'il n'existe pas d'interaction entre les impuretés) conduit finalement à l'expression suivante pour la température critique du système (notée  $T_c$ )

$$\ln\left(\frac{T_{c0}}{T_c}\right) = \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2\pi\tau_s T_c}\right) - \psi\left(\frac{1}{2}\right), \quad (4.6)$$

où  $\psi$  est la fonction digamma et  $T_{c0}$  est la température critique de l'échantillon sans impuretés magnétiques. De plus,  $\tau_s$  est un temps qui ne dépend que du spin de l'impureté et de l'amplitude de l'interaction spin-flip  $|u|^2 : \frac{1}{\tau_s} = 2\pi n_a N(0) |u|^2$  où  $n_a$  est la concentration d'impuretés magnétiques. Autrement dit,  $\tau_s$  peut être interprété comme le temps de diffusion du au spin-flip.

- En 1962, Abrikosov et Gor'kov [52] s'intéressent à l'évolution de la susceptibilité paramagnétique en fonction de la température dans un supraconducteur dont il a été observé dans certaines expériences qu'elle ne s'annule pas à  $T = 0$ , contrairement ce qui est prédit par la théorie BCS (c'est le problème du déplacement de Knight). Ils expliquent

ce phénomène par la prise en compte d'un terme de spin-orbite du à la diffusion des électrons sur les joints de grains des échantillons utilisés (qui présentent une structure poly-cristalline). Pour cela, ils décomposent l'amplitude de diffusion sur une impureté en deux termes similaires à ceux de l'expression (4.5) dans laquelle le premier est la diffusion statique, et le second caractérise le spin-orbite (la diffusion magnétique est négligée). Le rapport des deux termes étant proportionnel au carré du nombre atomique  $Z$ , le spin-orbite n'est pas négligeable pour les éléments lourds. Leurs calculs permettent alors de rendre compte d'une susceptibilité finie à température nulle et de reproduire certains résultats expérimentaux obtenus par Androes et Knight en 1961 [53].

- En 1966, Fulde et Maki [54] étendent les études précédentes à un supraconducteur dans lequel il existe en plus de la diffusion spin-orbite un alignement ferromagnétique des impuretés magnétiques suivant l'axe  $z$ . Ils supposent la présence d'un champ d'échange, et tiennent compte des impuretés par l'introduction de deux potentiels de sorte que le potentiel total se met sous la forme de l'expression (4.5). De plus, il est supposé qu'il y a invariance par rotation autour de l'axe  $z$ , qui implique que  $\langle S_x^2 \rangle = \langle S_y^2 \rangle$  et que  $\tau_x = \tau_y$ . Ils introduisent l'effet des impuretés dans la fonction de Green normale par une renormalisation de la self-énergie.

Dans leurs calculs interviennent des temps caractéristiques, que je note  $\tau_x$ ,  $\tau_z$  et  $\tau_{so}$ . Le temps  $\tau_{so}$  peut être défini comme le temps entre deux diffusions dues au spin-orbite

$$\frac{1}{\tau_{so}} = 2\pi n_b N(0) v_{so}^2 \left\langle \left( \hat{k}_1 \times \hat{k}_2 \right)^2 \right\rangle, \quad (4.7)$$

où  $n_b$  est la concentration d'impuretés conduisant au couplage spin-orbite et  $N(0)$  est la densité d'états au niveau de Fermi. Les temps  $\tau_x$ ,  $\tau_z$  s'écrivent

$$\tau_x = \tau_2 \frac{\langle S^2 \rangle}{\langle S_x^2 \rangle}, \quad \tau_z = \tau_2 \frac{\langle S^2 \rangle}{\langle S_z^2 \rangle}, \quad (4.8)$$

où  $\tau_2$  est le temps de diffusion spin-flip défini par

$$\frac{1}{\tau_2} = 2\pi n_a N(0) J^2 \langle S^2 \rangle, \quad (4.9)$$

où  $n_a$  est la concentration d'impuretés magnétiques.

- Par ailleurs, la diffusion magnétique caractérisée par le temps  $\tau_x$  sera appelée diffusion spin-flip "perpendiculaire" et la diffusion magnétique correspondante à  $\tau_z$  selon l'axe  $z$  sera appelée diffusion spin-flip "parallèle".

## 4.2.2 Etude microscopique d'une couche ferromagnétique dans une bicouche S/F. Equations d'Usadel

Les études microscopiques d'un supraconducteur dans lequel spin-flip et spin-orbite ne sont pas négligeables présentées dans la section précédente datent des années soixante;

elles sont donc antérieures aux équations d'Usadel. Depuis cette époque, le renouveau du domaine des structures hybrides et la nécessité d'introduire les diffusions par impuretés magnétiques et couplage spin-orbite dans les équations d'Usadel décrivant les couches ferromagnétiques a conduit à la continuation de ces travaux entamés il y a plus de quarante ans.

Plus précisément, en 2005, Houzet, Vinokur et Pistoiesi [55] ont repris les travaux théoriques microscopiques exposés dans la section précédente pour décrire un composé ferromagnétique au contact d'une couche supraconductrice. Dans la limite diffusive de l'approche classique, ils ont finalement obtenu les équations d'Usadel en présence de diffusion spin-flip et de diffusion spin-orbite. Comme ces deux mécanismes mélangent les états de spins, apparaissent dans ces équations les fonctions de Green :  $F_{\uparrow\downarrow}$  noté  $F_+$ ,  $F_- = F_{\downarrow\uparrow}$  ainsi que  $G_+ = G_{\uparrow\uparrow}$  et  $G_- = G_{\downarrow\downarrow}$ . Pour  $\omega > 0$  les équations s'écrivent [55, 56]

$$\Delta(x) G_+ = -\frac{D}{2} \left[ G_+ \frac{\partial^2}{\partial x^2} F_+ - F_+ \frac{\partial^2}{\partial x^2} G_+ \right] + \left[ \omega + ih + \left( \frac{1}{\tau_z} + \frac{2}{\tau_x} \right) G_+ \right] F_+ \quad (4.10)$$

$$+ G_+ (F_- - F_+) \left( \frac{1}{\tau_x} - \frac{1}{\tau_{so}} \right) + F_+ (G_- - G_+) \left( \frac{1}{\tau_{so}} + \frac{1}{\tau_x} \right), \quad (4.11)$$

et

$$G_+(x, \omega, h) + F_+(x, \omega, h) F_+^+(x, \omega, h) = 1.$$

La fonction  $F_-$  vérifie une équation semblable à (4.10) dans laquelle les indices + et - doivent être intervertis et  $h$  devient  $-h$ . De plus, les fonctions  $F_{\uparrow\uparrow}$  et  $G_{\downarrow\downarrow}$  restent nulles.

### 4.2.3 Simplification : anisotropie et absence de spin-orbite

- Dans le cas d'une forte anisotropie uniaxiale de la couche ferromagnétique, la diffusion perpendiculaire est négligeable ( $\frac{1}{\tau_x} \rightarrow 0$ ) et seule subsiste la diffusion magnétique selon l'axe  $z$ . Alors, seule la diffusion due au couplage spin-orbite mélange les états de spins. Enfin, quand le nombre atomique de l'élément composant la couche ferromagnétique est faible, le couplage spin-orbite peut lui aussi être négligé.

Alors, les équations d'Usadel linéarisées s'écrivent dans la couche supraconductrice comme

$$\left( \omega - \frac{D_s}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) F_s(\omega, x) = \Delta(x), \quad (4.12)$$

et dans la couche ferromagnétique avec forte anisotropie uniaxiale et sans spin-orbite :

$$\left( \omega - \frac{D_f}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + ih + \frac{1}{\tau_m} \right) F_f(\omega, x) = 0, \quad (4.13)$$

où  $\tau_m$  est le temps de diffusion magnétique et est égal à  $\tau_z$ .

- Un autre travail théorique mené par Cottet et Belzig [57] analyse l'effet de la diffusion magnétique située à l'interface, ce qui peut être réalisé expérimentalement en ajoutant par exemple une couche supplémentaire entre la couche supraconductrice et la couche ferromagnétique.

- Les équations d'Usadel en présence de diffusion spin-flip et de diffusion spin-orbite ont été déterminées à partir de théories microscopiques. Par la suite, je tiendrai compte de la forte anisotropie uniaxiale ainsi que du faible nombre atomique et j'appliquerai essentiellement les équations (4.12) et (4.13).

### 4.3 Effet de proximité en présence de spin-flip

Considérons une bicouche S/F pour laquelle la couche ferromagnétique est très large ( $d_f \gg \xi_f$ ). L'axe  $x$ , perpendiculaire à l'interface, a son origine à l'interface des deux couches. Le ferromagnétique est situé dans le demi espace des  $x$  positifs. La solution de l'équation (4.13) est dans ce cas pour  $x \geq 0$  :

$$F_f = F_{f0} \exp(- (k_1 + ik_2) x), \quad (4.14)$$

où,  $F_{f0}$  est la fonction de Green anormale à l'interface S/F et  $k_1$  et  $k_2$  s'écrivent dans le cas  $h \gg T_c$  :

$$\begin{aligned} k_1 &= \frac{1}{\xi_f} \sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} + \alpha} = \frac{1}{\xi_{f1}}, \\ k_2 &= \frac{1}{\xi_f} \sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} - \alpha} = \frac{1}{\xi_{f2}}. \end{aligned} \quad (4.15)$$

Le paramètre  $\alpha$  est sans dimension, et défini par  $\alpha = \frac{1}{h\tau_m}$ . Le paramètre d'ordre supraconducteur se comporte donc comme

$$\psi \sim \sum_{\omega} F(x, \omega) \sim \Delta \cos\left(\frac{x}{\xi_{f1}}\right) \exp\left(-\frac{x}{\xi_{f2}}\right). \quad (4.16)$$

Si la diffusion spin-flip est importante, alors  $\alpha$  devient de l'ordre de l'unité, ce qui implique que  $\xi_{f1}$  devient beaucoup plus petite que  $\xi_f$  pendant que  $\xi_{f2}$  est beaucoup plus grande que  $\xi_f$ . De plus, en l'absence de diffusion spin-flip,  $\alpha = 0$ , on retrouve que  $\xi_{f1} = \xi_{f2} = \xi_f$ .

Autrement dit, la diffusion spin-flip a deux effets sur la fonction d'onde d'une paire de Cooper : elle conduit à une décroissance plus rapide de la fonction d'onde et en même temps entraîne une augmentation de la période de ses oscillations.

### 4.4 Conclusion

Finalement, la prise en compte de la diffusion spin-flip semble une piste intéressante pour essayer de concilier résultats expérimentaux et données théoriques. La connaissance

des équations d'Usadel en présence d'impuretés magnétiques constitue la base qui va permettre dans les chapitres suivants de caractériser l'action de ce mécanisme de destruction de paires sur la température critique d'une multicouche S/F, ainsi que la densité d'états d'une bicouche ou encore le courant critique d'une jonction Josephson. Par ailleurs, la diffusion spin-flip a deux conséquences sur le paramètre d'ordre supraconducteur dans une couche F, ce qui laisse présager qu'elle ait aussi deux effets sur les grandeurs mesurables.

Enfin, il convient d'ajouter que les conséquences de la diffusion spin-orbite dans les structures hybrides S/F ont déjà été étudiées. En 1997, Demler et ses collaborateurs [27] ont déterminé l'évolution de la température critique d'une bicouche S/F. En 2002, Krivoruchko et Petryuk [58] précisent son influence sur le courant critique de structures SFIFS et en 2005, Fauré et *al.* [56] se sont attachés à décrire son effet sur le courant critique de jonctions S/F/S. Dans la suite du manuscrit, il sera donc très peu question de la diffusion due au couplage spin-orbite.



# Chapitre 5

## Etude de la température critique des multicouches S/F. Première partie : influence de la diffusion magnétique

L'une des caractéristiques communes à toutes les structures hybrides S/F est l'évolution non monotone de la température critique  $T_c^*$  en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Ce comportement a été prédit par Buzdin et Kuprianov [28], ainsi que Radovic et *al.* [29] et a été depuis étudié intensivement ([18] et ses références). La première observation des oscillations de la température critique est due à Jiang et ses collaborateurs [30] en 1995, sur des multicouches Gd/Nb, et dont les résultats sont reproduits sur la figure 5.1.

Nous nous sommes intéressés à deux phénomènes qui influencent le comportement de la température critique : d'une part la diffusion spin-flip, dont le rôle a été établi au chapitre précédent et, parce qu'elle est un mécanisme supplémentaire de destruction des paires supraconductrices, modifie l'évolution de la température critique; d'autre part, la transparence de l'interface est un paramètre important dans la mesure où elle fixe le couplage entre les deux couches, et donc la "force" de l'effet de proximité. Nous avons considéré le cas particulier d'une bicouche S/F pour laquelle la couche F est très fine, et montrons que dans ce cas la couche ferromagnétique contribue à renforcer la supraconductivité. Par ailleurs, dès qu'une multicouche contient au moins deux couches supraconductrices, il faut tenir compte de la différence de phase du paramètre d'ordre supraconducteur dans les deux couches S adjacentes, qui peut être soit 0 soit  $\pi$ .

Dans ce chapitre, après avoir rappelé ce qu'est la jonction  $\pi$ , j'expose l'effet de la diffusion magnétique sur la température critique. Je présente d'abord les résultats qui portent sur la prise en compte de la diffusion magnétique "parallèle", puis aborde le cas de la diffusion "perpendiculaire" et de la diffusion spin-orbite. Enfin, j'établis comment la température critique peut augmenter avec la transparence, alors qu'on pourrait s'attendre

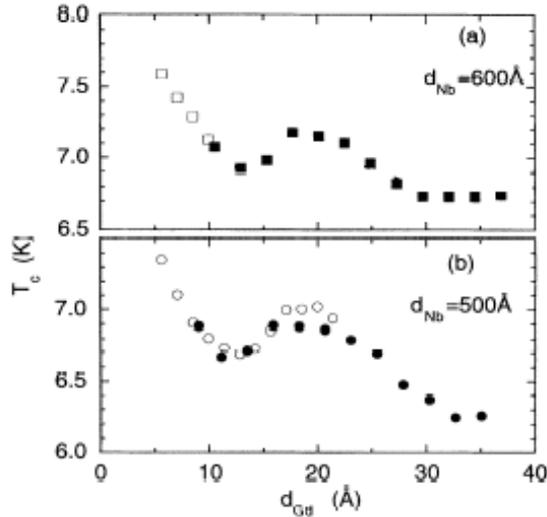


Figure 5.1: Résultats expérimentaux obtenus par Jiang *et al.* [30] : mesure de la température critique d’une multicouche Nb/Gd en fonction de l’épaisseur de la couche ferromagnétique.

au comportement contraire.

## 5.1 Modèle théorique

- La température critique peut être déterminée pour plusieurs types de multicouches. Le système le plus simple est une bicouche S/F dans laquelle la couche supraconductrice a une température critique affectée par la couche ferromagnétique parce qu’elle est soumise à l’effet de proximité inverse.

- On peut aussi considérer une tricouche F/S/F; notons  $d_f$  l’épaisseur des couches ferromagnétiques et  $d_s$  l’épaisseur de la couche supraconductrice (voir la figure 5.2). Plusieurs cas sont alors envisageables selon les directions des aimantations dans les couches ferromagnétiques. Quand l’aimantation de l’une des couches est fixée et que celle de l’autre couche est soit parallèle (même direction et même sens) soit anti-parallèle (même direction mais des sens opposés) à la première, le système réalise une vanne de spin, dont il sera question dans la seconde partie de ce chapitre. Dans cette partie, on considèrera une tricouche F/S/F dont les aimantations sont fixées et parallèles.

- On peut aussi étudier la température critique d’une jonction S/F/S (la géométrie est la même que celle de la tricouche présentée dans la figure 5.2; il suffit d’invertir les couches supraconductrices et les couches ferromagnétiques). Dans ce cas, il faut tenir compte de la différence de phase entre les fonctions d’onde d’une paire de Cooper dans les deux couches supraconductrices. En fait, cette différence de phase peut être soit nulle

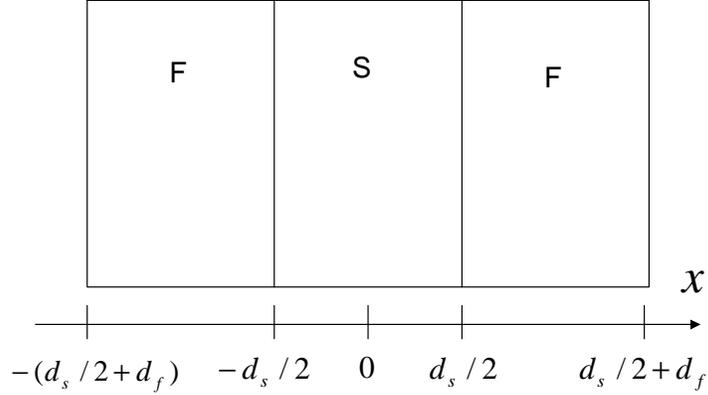


Figure 5.2: Géométrie du système étudié.

soit égale à  $\pi$  (on parle dans ce cas de "jonction  $\pi$ " ou de "couplage  $\pi$ ").

Plus précisément, j'ai rappelé dans le chapitre 1 que le paramètre d'ordre supraconducteur décroît en oscillant dans une couche ferromagnétique. La longueur de décroissance caractéristique étant  $\xi_{f1}$  (et  $\xi_{f1} = \xi_f$  en absence de diffusion magnétique), si  $d_f < \xi_{f1}$ , la fonction d'onde d'une paire supraconductrice varie peu dans la couche F, et le signe des fonctions d'onde supraconductrices dans les deux couches S est le même. La différence de phase entre les fonctions d'onde dans les deux couches S est donc nulle. On dit que la phase 0 est réalisée.

Si la couche ferromagnétique est plus épaisse que  $\xi_{f1}$  mais plus fine que  $\xi_{f1} + \xi_{f2}$ , la fonction d'onde change de signe dans la couche F. Les fonctions d'onde dans les deux couches S adjacentes sont de signes opposés, c'est-à-dire que leur différence de phase devient égale à  $\pi$ . Le principe est le même pour les oscillations suivantes.

- De plus, la dérivée de la fonction de Green anormale s'annule aux centres des couches dans une tricouche F/S/F, et aux interfaces couches/vide dans une bicouche S/F comme on le voit sur la figure 5.3. Donc une jonction F/S/F dans la phase 0 est équivalente à une bicouche S/F dont les épaisseurs de couches sont  $d_f/2$  et  $d_s/2$ . Plus généralement, une bicouche S/F dont les couches ont des épaisseurs  $d_f/2$  et  $d_s/2$  est équivalente à toute multicouche (S/F/S, F/S/F, F/S/F/S/F, S/F/S/F/S, ...) tant que celles-ci sont dans la phase 0 avec les aimantations des couches ferromagnétiques parallèles.

- Enfin, l'influence de la couche ferromagnétique sur la supraconductivité, et donc le changement de la température critique par effet de proximité inverse, est d'autant plus marqué que les couches sont "couplées", c'est-à-dire que la couche supraconductrice est fine. C'est pour cette raison que dans tout ce chapitre, on supposera que  $d_s < \xi_s$ .

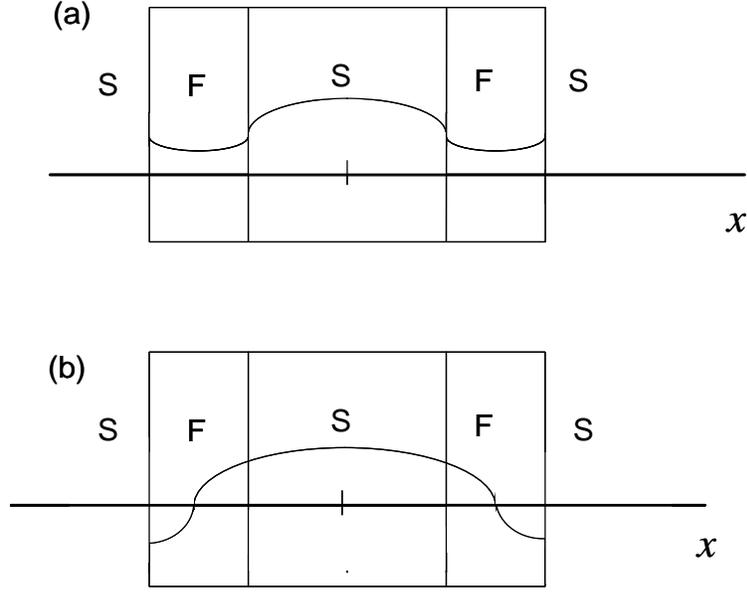


Figure 5.3: Evolution du paramètre d'ordre supraconducteur dans une multicouche S/F. (a) phase 0 et (b) phase  $\pi$ .

## 5.2 Influence de la diffusion spin-flip sur $T_c^*$

### 5.2.1 Tricouche F/S/F

- Considérons une jonction F/S/F pour laquelle l'épaisseur de la couche S est notée  $d_s$  et celle des couches F est  $d_f$ . Puisque  $d_s < \xi_s$ , la fonction de Green  $F_s$  change peu dans la couche S et peut être approximée par un développement au second ordre en  $x$  [59, 60]

$$F_s(x, \omega) = F_0 \left( 1 - \frac{\beta_\omega}{2} x^2 \right), \quad (5.1)$$

où  $F_0$  est la valeur de la fonction de Green anormale au centre de la couche S. De plus, la variation spatiale du potentiel de paires  $\Delta(x)$  peut être négligée :  $\Delta(x) \sim \Delta$ .

- La résolution de l'équation d'Usadel linéarisée dans la couche S permet de déterminer  $F_0$ . L'équation d'Usadel s'écrit

$$\left( \omega - \frac{D_s}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) F_s(\omega, x) = \Delta. \quad (5.2)$$

On obtient que  $F_0 = \Delta / (\omega + \tau_s^{-1})$  où  $\tau_s^{-1} = \frac{D_s}{2} \beta_\omega$  est un paramètre complexe de destruction de paires.

- L'équation d'auto-cohérence du potentiel de paires dans la couche S relie la température critique en présence des couches ferromagnétiques  $T_c^*$  à la température critique

de la couche supraconductrice isolée  $T_c$  comme

$$\Delta \ln \frac{T_c^*}{T_c} + \pi T_c^* \sum_{\omega} \left( \frac{\Delta}{|\omega|} - F_s(x, \omega) \right) = 0. \quad (5.3)$$

L'introduction de l'expression de la fonction de Green anormale dans la couche F donne l'équation suivante pour la température critique  $T_c^*$

$$\ln \frac{T_c^*}{T_c} = \Psi \left( \frac{1}{2} \right) - \operatorname{Re} \Psi \left\{ \frac{1}{2} + \frac{1}{2\pi T_c^* \tau_s} \right\}. \quad (5.4)$$

On retrouve alors l'expression déterminée par Abrikosov et Gor'kov et que j'ai commentée dans le chapitre précédent. On constate d'après l'expression (5.4) que la détermination de  $T_c^*$  est directement apportée par la connaissance de  $\tau_s$ . L'étape suivante du calcul consiste donc à trouver  $\tau_s$ . De plus, si la variation de température est faible ( $\tau_s^{-1} \ll T_c$ ), cette expression se simplifie et (5.4) devient

$$\frac{T_c - T_c^*}{T_c} = \frac{\pi}{4T_c} \operatorname{Re} (\tau_s^{-1}). \quad (5.5)$$

• La dérivée de la fonction  $F_s$  en  $d_s/2$  ainsi que la première condition aux limites de Kuprianov-Luckichev (3.16) permettent d'exprimer le paramètre  $\tau_s^{-1}$  de la façon suivante

$$\tau_s^{-1} = -\frac{D_s \sigma_n}{d_s \sigma_s} \frac{1}{F_0} \left( \frac{\partial F_f}{\partial x} \right)_{d_s/2}, \quad (5.6)$$

où  $\sigma_n$  ( $\sigma_s$ ) est la conductivité de la couche F(S). Puis la seconde condition aux limites de Kuprianov-Luckichev en  $d_s/2$  qui s'écrit  $F_s(d_s/2) = F_f(d_s/2) - \xi_n \gamma_B (\partial F_f / \partial x)_{d_s/2}$  donne  $F_0$  en fonction de la fonction de Green anormale dans la couche ferromagnétique. Plus précisément

$$\tau_s^{-1} = -\frac{D_s \sigma_n}{d_s \sigma_s} \frac{F_f'(d_s/2)/F_f(d_s/2)}{1 - \xi_n \gamma_B F_f'(d_s/2)/F_f(d_s/2)}, \quad (5.7)$$

où le paramètre  $\xi_n = \sqrt{\frac{D_f}{2\pi T_c}}$  et  $\gamma_B = \frac{R_b \sigma_n}{\xi_n}$  est le paramètre de transparence de l'interface qui dépend de la résistance d'interface par unité d'aire  $R_b$ .

• Enfin, la résolution de l'équation d'Usadel linéarisée (4.13) dans les couches F conduit à la détermination de la fonction de Green anormale dans la couche F. En utilisant le paramètre sans dimension  $\alpha$ , l'équation d'Usadel est

$$\left( \omega - \frac{D_f}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} + ih + \alpha h \right) F_f(\omega, x) = 0. \quad (5.8)$$

La solution de cette équation est

$$F_f(x, \omega > 0) = F_f(d_s/2) \cosh [k(x - d_s/2 - d_f/2)]. \quad (5.9)$$

Si  $T_c < (\tau_m^{-1}, h)$ , les fréquences de Matsubara peuvent être négligées et  $k$  s'écrit

$$k = \frac{\sqrt{2}}{\xi_f} \sqrt{i + \alpha} = \frac{1}{\xi_{f1}} + i \frac{1}{\xi_{f2}}, \quad (5.10)$$

où  $\xi_f = \sqrt{\frac{D_f}{h}}$  et  $\alpha = \frac{1}{\tau_m h}$ . Les longueurs  $\xi_{f1}$  et  $\xi_{f2}$  sont celles qui ont été introduites au chapitre 3 :  $\xi_{f1}$  est la longueur de décroissance caractéristique et  $\xi_{f2}$  est la période des oscillations, telles que

$$\xi_{f1} = \frac{\xi_f}{\sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} + \alpha}}, \quad (5.11)$$

$$\xi_{f2} = \frac{\xi_f}{\sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} - \alpha}}. \quad (5.12)$$

Enfin, on obtient les expressions pour le paramètre de destruction de paires dans la phase 0 et dans la phase  $\pi$  :

$$\tau_{s,0}^{-1}(\omega > 0) = \tau_0^{-1} \frac{q \tanh\left(q\tilde{d}_f/2\right)}{1 + \tilde{\gamma}q \tanh\left(q\tilde{d}_f/2\right)}, \quad (5.13)$$

avec  $\tau_0^{-1} = \frac{D_s}{d_s} \frac{\sigma_n}{\sigma_s} \frac{1}{\xi_f}$ ,  $\tilde{\gamma} = \frac{\xi_n}{\xi_f} \gamma_B$ ,  $q = k\xi_f$  et  $\tilde{d}_f = \frac{d_f}{\xi_f}$ .

### 5.2.2 Jonction S/F/S

Pour une telle jonction, les deux phases 0 et  $\pi$  sont à considérer.

- Dans la phase 0, le paramètre de destruction des paires  $\tau_{s,0}^{-1}$  est donné par l'expression (5.13) ci-dessus.

- Dans la phase  $\pi$ , la solution de l'équation d'Usadel linéarisée dans la couche ferromagnétique est

$$F_f(x, \omega > 0) = B \sinh [k(x - d_s/2 - d_f/2)], \quad (5.14)$$

ce qui conduit à l'expression suivante pour le paramètre de destruction de paires :

$$\tau_{s,\pi}^{-1}(\omega > 0) = \tau_0^{-1} \frac{q \coth\left(q\tilde{d}_f/2\right)}{1 + \tilde{\gamma}q \coth\left(q\tilde{d}_f/2\right)}. \quad (5.15)$$

### 5.2.3 Résultats

• Tout d'abord, si l'interface est supposée transparente, une expression analytique de la variation de température peut être obtenue si  $\frac{T_c - T_c^*}{T_c} \ll 1$  :

$$\frac{4\tau_0}{\pi} (T_c - T_c^{*0}) = \frac{1}{2} \frac{a \sinh(a\tilde{d}_f) - b \sin(b\tilde{d}_f)}{\cosh^2(a\tilde{d}_f) \cos^2(b\tilde{d}_f) + \sin^2(b\tilde{d}_f) \sinh^2(a\tilde{d}_f)}, \quad (5.16)$$

$$\frac{4\tau_0}{\pi} (T_c - T_c^{*\pi}) = \frac{1}{2} \frac{a \sinh(a\tilde{d}_f) + b \sin(b\tilde{d}_f)}{\cosh^2(a\tilde{d}_f) \sin^2(b\tilde{d}_f) + \cos^2(b\tilde{d}_f) \sinh^2(a\tilde{d}_f)}, \quad (5.17)$$

où ont été introduits deux paramètres sans dimension,  $a = \frac{\xi_f}{\xi_{f1}} = \sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} + \alpha}$  et  $b = \frac{\xi_f}{\xi_{f2}} = \sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} - \alpha}$ , tels que  $q = a + ib$ .

• Dans le cas général, il faut procéder à une analyse numérique. Par ailleurs, le rapport des deux longueurs caractéristiques

$$\frac{\xi_{f1}}{\xi_{f2}} = \frac{\sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} - \alpha}}{\sqrt{\sqrt{1 + \alpha^2} + \alpha}}, \quad (5.18)$$

indique que la diffusion magnétique diminue la longueur de décroissance caractéristique et en même temps conduit à une augmentation de la période des oscillations. La diffusion spin-flip a donc deux effets sur le comportement de la température critique. Notons d'ailleurs que la diminution de  $\xi_{f1}$  rend plus difficile l'observation de la dépendance non monotone de  $T_c^*$ .

L'évolution obtenue pour la température critique  $T_c^*$  par analyse numérique, avec et sans spin-flip, est représentée sur la figure 5.4. On remarque qu'effectivement  $\xi_{f1}$  diminue en présence de spin-flip pendant que  $\xi_{f2}$  augmente.

## 5.3 Influence de la diffusion spin-orbite et de la diffusion spin-flip "perpendiculaire"

En présence de spin-orbite, et dans le cas plus général de diffusion magnétique homogène (on suppose  $\frac{1}{\tau_x}$  n'est pas nul), l'évolution de la température critique est modifiée.

• Dans le cas où les diffusions spin-flip et spin-orbite sont considérées en plus du champ d'échange, les équations d'Usadel valables sont celles données au chapitre 3 (voir l'expression (4.10)). L'équation d'Usadel linéarisée dans le ferromagnétique s'écrit alors sous la forme suivante

$$-\frac{\xi_f^2}{2} \frac{\partial^2 F_+}{\partial x^2} + (\tilde{\omega} + i + \alpha + \alpha_\perp) F_+ - \alpha_\perp F_- = 0, \quad (5.19)$$

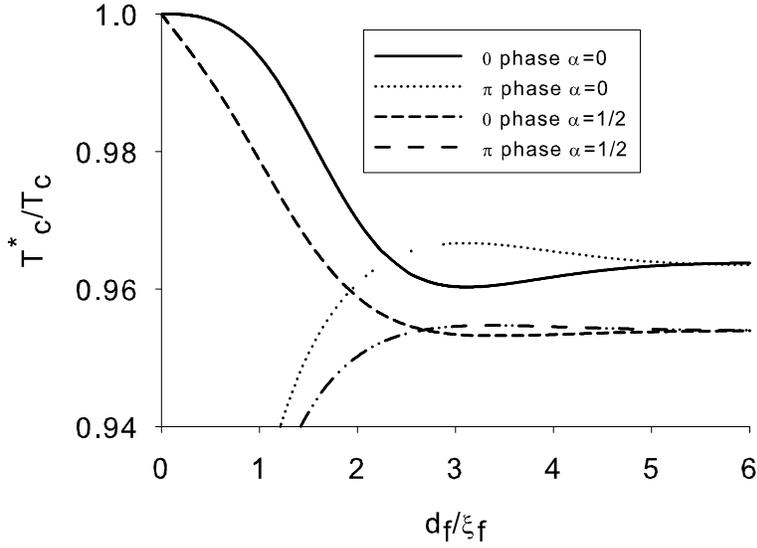


Figure 5.4: Evolution de la température critique dans la phase 0 et dans la phase  $\pi$  pour une jonction S/F/S aux interfaces transparentes et pour  $\tau_0 = 22/h$ . La phase effectivement réalisée est celle qui correspond à la température critique la plus élevée.

où  $\tilde{\omega} = \omega/h$  et les paramètres  $\alpha_{\perp}$  et  $\alpha$  sont définis par

$$\alpha_{\perp} = \frac{1}{h} \left( \frac{1}{\tau_{so}} - \frac{1}{\tau_x} \right), \quad \alpha = \frac{1}{h} \left( \frac{1}{\tau_z} + \frac{2}{\tau_x} \right). \quad (5.20)$$

Si la diffusion magnétique "parallèle" est négligeable (c'est-à-dire que  $\frac{1}{\tau_x} \sim 0$ ), le paramètre  $\alpha$  redevient égal à sa première définition :  $\alpha = \frac{1}{h\tau_z}$ .

On peut souligner que la formule précédente montre qu'il est possible que spin-flip perpendiculaire et spin-orbite se compensent (quand  $\tau_{so} = \tau_x$ ), auquel cas seule subsiste la diffusion spin-flip parallèle. Si la diffusion magnétique parallèle est négligeable, alors les oscillations sont restaurées et tout se passe comme s'il n'y avait aucune diffusion, ce qui est tout à fait remarquable.

- Alors, le paramètre  $q$  est modifié. Si  $\alpha_{\perp} < 1$ ,  $q$  est tel que

$$q^2 = 2 \left( \tilde{\omega} + \alpha + \alpha_{\perp} + i\sqrt{1 - \alpha_{\perp}^2} \right), \quad (5.21)$$

et si  $\alpha_{\perp} > 1$ ,

$$q^2 = 2 \left( \tilde{\omega} + \alpha + \alpha_{\perp} + \sqrt{\alpha_{\perp}^2 - 1} \right). \quad (5.22)$$

Donc, quand  $\alpha_{\perp} > 1$ ,  $q$  devient réel et les oscillations de la température critique disparaissent. En particulier, si la diffusion magnétique est négligeable, on retrouve le résultat de

Demler *et al.* [27] selon lequel les oscillations sont détruites par une forte diffusion spin-orbite (en effet, dans ce cas, la condition  $\alpha_{\perp} > 1$  est aussi  $\tau_{so}^{-1} > h$ ).

Dans le cas de faible diffusion de spin-orbite, les longueurs caractéristiques de décroissance et d'oscillations deviennent

$$\xi_{f1} = \frac{\xi_f}{\sqrt{\sqrt{\tilde{\omega} + \alpha + \alpha_{\perp} + \sqrt{(\tilde{\omega} + \alpha)^2 + 2(\tilde{\omega} + \alpha)\alpha_{\perp} + 1}}}},$$

$$\xi_{f2} = \frac{\xi_f}{\sqrt{\sqrt{(\tilde{\omega} + \alpha)^2 + 2(\tilde{\omega} + \alpha)\alpha_{\perp} + 1} - (\tilde{\omega} + \alpha + \alpha_{\perp})}}.$$

On constate donc que la prise en compte de la diffusion magnétique homogène et de la diffusion spin-orbite a le même effet (qualitativement) sur le comportement de la température critique que la diffusion magnétique parallèle. Elles conduisent à une diminution de la longueur caractéristique de décroissance et à une augmentation des oscillations de la température critique.

• Les expressions obtenues pour le paramètre de destruction des paires ((5.13) dans la phase 0 et (5.15) dans la phase  $\pi$ ) sont modifiées pour tenir compte de l'influence de la diffusion spin-orbite et la diffusion magnétique perpendiculaire sur la température critique. Plus précisément, dans la phase 0, le terme  $q \tanh(q\tilde{d}_f)$  doit être remplacé par

$$q \tanh(q\tilde{d}_f/2) + \beta \frac{q^* \tanh(q^*\tilde{d}_f/2) - q \tanh(q\tilde{d}_f/2)}{\beta + \kappa_0}, \quad (5.23)$$

où les paramètres  $\beta$  et  $\kappa_0$  sont

$$\beta = -\alpha_{\perp} \frac{\alpha_{\perp} - i\sqrt{1 - \alpha_{\perp}^2}}{1 + \sqrt{1 - \alpha_{\perp}^2}}, \quad \kappa_0 = \frac{1 + \tilde{\gamma}q^* \tanh(q^*\tilde{d}_f/2)}{1 + \tilde{\gamma}q \tanh(q\tilde{d}_f/2)}. \quad (5.24)$$

De la même façon, dans la phase  $\pi$ ,  $q \coth(q\tilde{d}_f/2)$  est remplacé par

$$q \coth(q\tilde{d}_f/2) + \beta \frac{q^* \coth(q^*\tilde{d}_f/2) - q \coth(q\tilde{d}_f/2)}{\beta + \kappa_{\pi}}, \quad (5.25)$$

où  $\kappa_{\pi} = \frac{1 + \tilde{\gamma}q^* \coth(q^*\tilde{d}_f/2)}{1 + \tilde{\gamma}q \coth(q\tilde{d}_f/2)}$ . L'introduction de ces expressions dans la relation d'auto-cohérence du potentiel de paires permet d'en déduire la température critique.

## 5.4 Influence du paramètre de transparence de l'interface $\gamma_B$ sur la température critique d'une bicouche S/F

### 5.4.1 Introduction

Le paramètre de transparence de l'interface  $\gamma_B$  joue un rôle important sur le comportement de  $T_c^*$ . Son influence a été étudiée, notamment par Aarts et *al.* [61], Fominov et *al.* [62] et Tagirov [63].

Dans le cas général, quand l'interface est peu transparente (c'est-à-dire pour  $\gamma_B \gg 1$ ), la couche supraconductrice est protégée des effets destructeurs de la couche F. En d'autres termes, l'effet de proximité inverse est plus faible, et  $T_c^*$  plus élevée quand  $\gamma_B$  est élevée. La température critique est donc une fonction monotone croissante en fonction du paramètre de transparence; ce résultat est d'ailleurs assez intuitif.

### 5.4.2 Evolution contre-intuitive de la température critique

- Considérons le cas d'une bicouche fine, telle que l'épaisseur du ferromagnétique est très inférieure à  $\xi_f$  ( $d_f < \xi_f$ ). Comme on le constate sur la figure 5.5, quand l'interface est très transparente,  $T_c^*$  devient une fonction décroissante de  $\gamma_B$ . Dans ce cas, les paires de Cooper qui quittent la couche S sont réfléchies à l'interface F/vide, et retournent dans la couche S. Autrement dit, la couche F contribue à renforcer la supraconductivité. Cependant, quand  $\gamma_B$  augmente (et que la transparence diminue), cette particularité disparaît et  $T_c^*$  retrouve un comportement conforme au cas général. Par ailleurs, comme on peut le voir sur la figure 5.5, cet effet est très faible et a peu de chance de pouvoir être observé.

- Une approche analytique peut être conduite en utilisant la formule (5.5) et en supposant que  $\tilde{d}_f < 1$ . Le paramètre de destruction de paires dans la phase 0 devient

$$\text{Re}(\tau_m^{-1}) = \tau_0^{-1} \frac{\tilde{\gamma} + \frac{\tilde{d}_f}{6}}{\left(\tilde{\gamma} + \frac{\tilde{d}_f}{6}\right)^2 + \left(\frac{1}{\tilde{d}_f}\right)^2}. \quad (5.26)$$

Deux comportements sont possibles selon que  $\tilde{\gamma}\tilde{d}_f \gg 1$  ou non. Si  $\tilde{\gamma} > \tilde{d}_f^{-1}$ , l'évolution de la température est décrite par

$$\left(\frac{T_c^*}{T_c}\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f > 1} = 1 - \frac{\pi}{4T_c} \frac{\tau_0^{-1}}{\tilde{\gamma}}, \quad (5.27)$$

qui est une fonction croissante de  $\tilde{\gamma}$ . Au contraire, si  $\tilde{\gamma} < \tilde{d}_f^{-1}$ , la température diminue

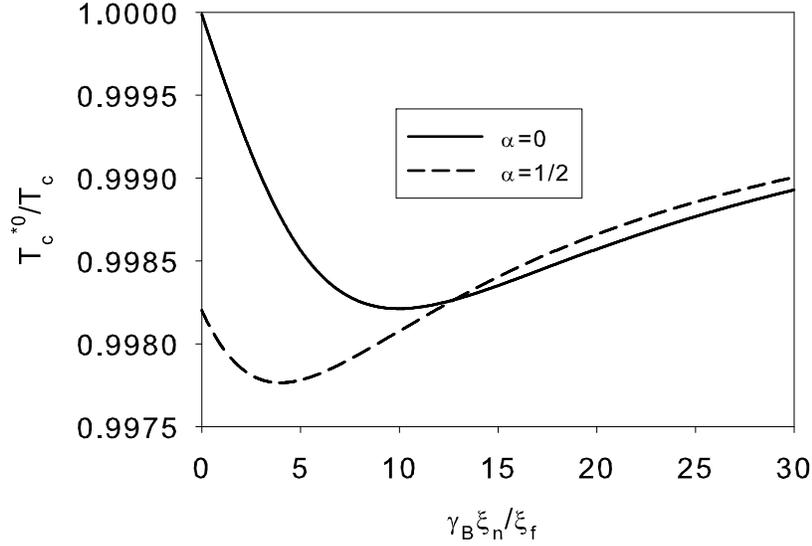


Figure 5.5: Evolution de la température critique d'une bicouche S/F en fonction du paramètre de transparence de l'interface. La couche ferromagnétique est d'épaisseur  $d_f = 0.1\xi_f$  et  $\tau_0 = 22/h$ .

quand  $\tilde{\gamma}$  augmente suivant l'expression :

$$\left(\frac{T_c^*}{T_c}\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f < 1} = 1 - \frac{\pi}{4T_c} \tilde{d}_f^2 \tau_0^{-1} \tilde{\gamma}. \quad (5.28)$$

Finalement, la condition  $\tilde{\gamma}\tilde{d}_f = 1$  établit le changement de régime.

- En présence de diffusion magnétique faible, l'évolution de la température critique reste qualitativement la même. L'analyse analytique indique que le paramètre d'ordre s'écrit dans ce cas

$$\text{Re}(\tau_m^{-1}) = \tau_0^{-1} \frac{\tilde{\gamma} + \frac{\alpha}{d_f} + \frac{\tilde{d}_f}{6}}{\left(\tilde{\gamma} + \frac{\alpha}{d_f} + \frac{\tilde{d}_f}{6}\right)^2 + \left(\frac{1}{d_f}\right)^2}. \quad (5.29)$$

La température est alors décrite par

$$\left(\frac{T_c^*}{T_c}\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f > 1} = \left(\frac{T_c^*}{T_c}(\alpha = 0)\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f > 1} + \frac{\pi}{4T_c} \frac{\tau_0^{-1}}{\tilde{\gamma}} \frac{\alpha}{\tilde{d}_f \tilde{\gamma}}, \quad (5.30)$$

quand  $\tilde{d}_f \tilde{\gamma} > 1$ . Dans ce cas, la diffusion magnétique implique l'augmentation de la température de transition. Au contraire, si  $\tilde{\gamma}\tilde{d}_f < 1$ ,

$$\left(\frac{T_c^*}{T_c}\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f < 1} = \left(\frac{T_c^*}{T_c}(\alpha = 0)\right)_{\tilde{\gamma}\tilde{d}_f < 1} - \frac{\pi}{T_c} \tilde{d}_f \tau_0^{-1} \alpha, \quad (5.31)$$

et le spin-flip fait décroître la température de transition.

## 5.5 Conclusion

Pour conclure, nous avons étudié dans ce chapitre l'influence de la diffusion magnétique sur la température critique. Nous avons montré que, de même que pour le paramètre d'ordre supraconducteur dans une couche ferromagnétique, la diffusion magnétique a pour effets de diminuer la longueur caractéristique de décroissance et d'augmenter la période des oscillations. En particulier, ce résultat implique que dans les couches ferromagnétiques sensibles à la diffusion spin-flip tels que les alliages faiblement ferromagnétiques, les oscillations de la température critique sont plus difficilement observables qu'en l'absence de spin-flip. Cependant, la diffusion magnétique ne détruit pas les oscillations, elle ne fait que les modifier.

Au contraire, la diffusion spin-orbite peut faire disparaître complètement les oscillations, comme l'ont montré Demler et *al.* [27] et comme nous le retrouvons aussi. De plus, nous avons montré que diffusion perpendiculaire et diffusion spin-orbite peuvent se compenser; dans ce cas, la température critique se comporte comme s'il n'y avait pas de diffusion.

Par ailleurs, la température critique peut devenir une fonction décroissante de la transparence de l'interface dans le cas où la couche ferromagnétique est mince et pour des transparences élevées, ce qui signifie qu'alors le ferromagnétisme renforce la supraconductivité.

# Chapitre 6

## Etude de la température critique des multicouches S/F. Seconde partie : étude de l'effet de vanne de spin

### 6.1 Introduction

Une vanne de spin est une structure composée de deux couches ferromagnétiques séparées par une fine couche non magnétique. La direction d'aimantation de l'une des couches magnétique est fixée (par exemple par couplage avec un substrat anti-ferromagnétique) alors que l'autre couche a une aimantation sensible au champ extérieur. La direction de l'aimantation qui n'est pas piégée peut être, selon le champ appliqué, soit parallèle à l'autre aimantation et de même sens (on parle de configuration parallèle, notée P), soit être parallèle et de sens opposé (c'est la configuration anti-parallèle, AP). Les vanes de spin sont notamment utilisées pour des applications industrielles de têtes de lecture fonctionnant sur le principe de la magnétorésistance géante.

Une tricouche F/S/F réalise une vanne de spin dans le sens où la température critique de la configuration parallèle  $T_c^P$  est différente de celle de la configuration anti-parallèle  $T_c^{AP}$ . Cet effet a été introduit pour la première fois en 1966 par de Gennes [64] dans un système F/I/S/I/F. Il a ensuite été observé en 1969 par Deutscher et Meunier [65] sur une tricouche FeNi/In/FeNi contenant des couches d'oxyde de part et d'autre de la couche d'indium et par Hauser [66] dans le système  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{In}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ . L'effet de vanne de spin a été plus récemment mesuré sur des systèmes F/S/F métalliques dans lesquels le ferromagnétique utilisé est un alliage de CuNi [67, 68] ou du nickel pur [69]. La figure 6.1 présente le principe des mesures expérimentales.

Plus précisément, la température critique est plus faible dans la configuration parallèle que dans la configuration anti-parallèle ([59, 60] et [70, 71]); ce résultat a d'abord été

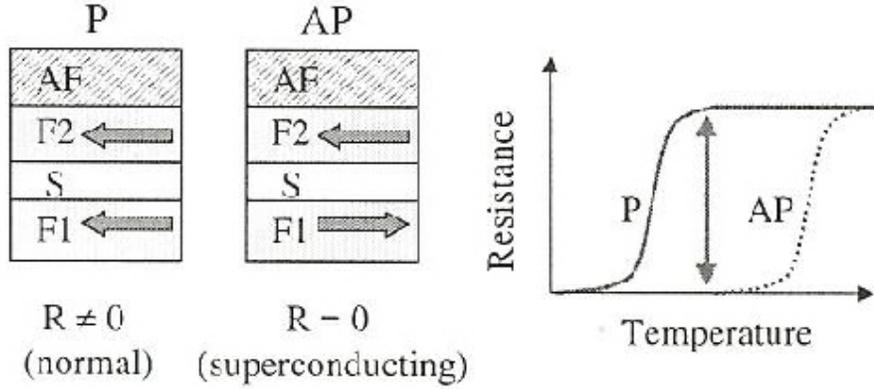


Figure 6.1: Principe de l'effet de vanne de spin. Selon la température appliquée, le passage d'une configuration à l'autre (par application d'un champ faible, ne pouvant pas détruire la supraconductivité) produit un changement de la résistivité mesurée.

démonstré par Buzdin et *al.* [59] (pour une structure aux interfaces transparentes et pour laquelle la couche supraconductrice est fine) et par Tagirov [70]. En effet, dans le cas AP, le champ d'échange effectif ressenti par les paires de Cooper est plus faible et donc moins destructeur pour les propriétés supraconductrices. On peut toutefois noter qu'à température nulle le potentiel de paires peut être au contraire plus élevé dans la configuration anti-parallèle que dans la configuration parallèle pour des couches d'épaisseurs atomiques. Ce cas particulier a été étudié par Mélin et Feinberg en 2004 [72] et par Tollis et *al.* en 2005 [73].

Dans les études théoriques menées dans la limite d'une fine couche supraconductrice, seul le rôle de la transparence de l'interface a été considéré pour des couches ferromagnétiques identiques [71]. Pourtant d'autres paramètres tels que les champs d'échange, les transparences des interfaces et les épaisseurs des couches conditionnent les valeurs des températures critique parallèle et anti-parallèle. Par ailleurs, l'influence de la diffusion magnétique devrait aussi être déterminée. Nous nous sommes donc intéressés à l'effet de chaque paramètre dont dépend la différence  $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^P$  pour spécifier les situations favorables à l'observation de l'effet de vanne de spin dans des structures F/S/F.

Dans ce chapitre, je présente d'abord les calculs relatifs à l'effet de vanne de spin qui permettent de déterminer  $\Delta T_c$  avant d'étudier le rôle des différents paramètres en jeu.

## 6.2 Formalisme général

- Le système étudié est une tricouche  $F_L/S/F_R$  pour laquelle l'épaisseur de la couche S est notée  $d_s$  et les épaisseurs des couches ferromagnétiques à gauche et à droite sont

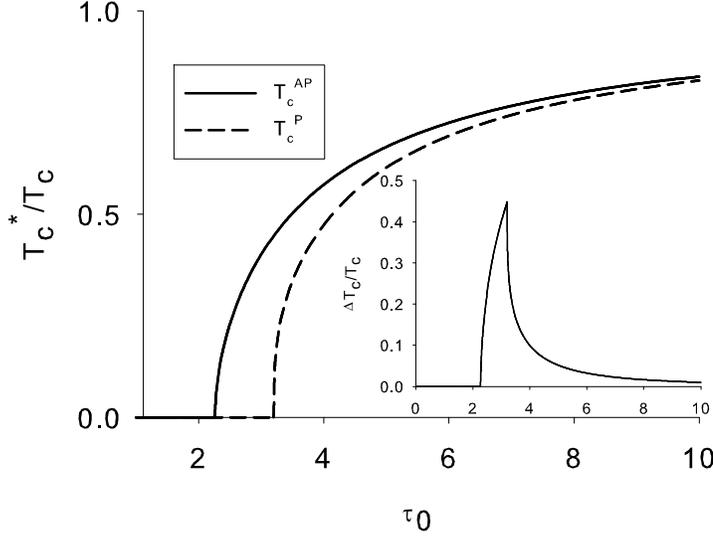


Figure 6.2: Evolution de  $T_c^{AP}/T_c$  et  $T_c^P/T_c$  en fonction de  $\tau_0$  pour des interfaces transparentes. Le sigle \* correspond à AP et à P (interne : évolution de  $\Delta T_c/T_c$ ).

respectivement  $d_{fL}$  et  $d_{fR}$ . Les directions des aimantations sont soit parallèles (P) soit anti-parallèles (AP). Dans cette partie la couche supraconductrice est, comme dans la partie précédente, supposée fine,  $d_s \ll \xi_s$ .

- Pour déterminer la température critique  $T_c^*$  (l'étoile signifie P ou AP), le principe de la méthode est le même que dans la partie précédente.

L'équation d'Usadel linéarisée dans la couche supraconductrice donne l'expression  $F_0 = \Delta/(\omega + \tau_s^{-1})$  pour la fonction de Green anormale au centre de la couche supraconductrice. Puis, la relation d'auto-cohérence du potentiel de paires (5.3) montre que la température critique peut être calculée à partir du paramètre de destruction des paires  $\tau_s^{-1}$ . Celui-ci est déterminé à partir des conditions aux limites de Kuprianov-Lukichev et se met sous la forme suivante

$$\tau_s^{-1} = \frac{D_s \sigma_n}{2d_s \sigma_s} \left[ \frac{F'_f(d_s/2)/F_f(-d_s/2)}{1 + \xi_n \gamma_{BL} F'_f(d_s/2)/F_f(d_s/2)} - \frac{F'_f(d_s/2)/F_f(d_s/2)}{1 - \xi_n \gamma_{BR} F'_f(d_s/2)/F_f(d_s/2)} \right], \quad (6.1)$$

où  $\gamma_{BL}$  ( $\gamma_{BR}$ ) est le paramètre de transparence de l'interface gauche (droite).

Enfin, la résolution de l'équation d'Usadel linéarisée dans la couche ferromagnétique conduit à l'expression générale pour le paramètre de destruction des paires dans la configuration parallèle et dans la configuration anti-parallèle :

$$\tau_{s,P}^{-1}(\omega > 0) = \frac{D_s \sigma_n}{2d_s \sigma_s} \left[ \frac{k_L \tanh(k_L d_{fL}/2)}{1 + \xi_n \gamma_{BL} k_L \tanh(k_L d_{fL}/2)} + \frac{k_R \tanh(k_R d_{fR}/2)}{1 + \xi_n \gamma_{BR} k_R \tanh(k_R d_{fR}/2)} \right], \quad (6.2)$$

dans la configuration parallèle et

$$\tau_{s,AP}^{-1}(\omega > 0) = \frac{D_s \sigma_n}{2d_s \sigma_s} \left[ \frac{k_L^* \tanh(k_L^* d_{fL}/2)}{1 + \xi_n \gamma_{BL} k_L^* \tanh(k_L^* d_{fL}/2)} + \frac{k_R \tanh(k_R d_{fR}/2)}{1 + \xi_n \gamma_{BR} k_R \tanh(k_R d_{fR}/2)} \right], \quad (6.3)$$

dans la configuration antiparallèle, où

$$k_L = \frac{\sqrt{2}}{\xi_{fL}} \sqrt{i + \alpha_L}, \quad k_R = \frac{\sqrt{2}}{\xi_{fR}} \sqrt{i + \alpha_R}, \quad \xi_{fL(R)} = \sqrt{\frac{D_{fL(R)}}{h_{L(R)}}}. \quad (6.4)$$

Les longueurs  $\xi_{fL}$  et  $\xi_{fR}$  sont les longueurs caractéristiques dans chaque couche. Les paramètres  $D_{fL(R)}$  et  $h_{L(R)}$  sont respectivement le coefficient de diffusion et le champ d'échange dans la couche ferromagnétique gauche (droite). Les deux paramètres sans dimension  $\alpha_L$  et  $\alpha_R$  sont définis par  $\tau_{mL}^{-1} = \alpha_L h_L$  and  $\tau_{mR}^{-1} = \alpha_R h_R$ , où  $\tau_m^{-1}$  est le temps de diffusion magnétique dans la couche F considérée.

Les formules (6.2) et (6.3) donnent une description générale de l'effet de vanne de spin dans le cas le plus général à condition que  $d_s < \xi_s$ .

• Si les deux champs d'échange sont identiques et notés  $h$  les formules précédentes (5.13) et (5.15) deviennent

$$\tau_{s,P}^{-1}(\omega > 0) = \frac{\tau_0^{-1}}{2} \left[ \frac{q_L \tanh(q_L \tilde{d}_{fL}/2)}{1 + \tilde{\gamma}_L q_L \tanh(q_L \tilde{d}_{fL}/2)} + \frac{q_R \tanh(q_R \tilde{d}_{fR}/2)}{1 + \tilde{\gamma}_R q_R \tanh(q_R \tilde{d}_{fR}/2)} \right], \quad (6.5)$$

$$\tau_{s,AP}^{-1}(\omega > 0) = \frac{\tau_0^{-1}}{2} \left[ \frac{q_L^* \tanh(q_L^* \tilde{d}_{fL}/2)}{1 + \tilde{\gamma}_L q_L^* \tanh(q_L^* \tilde{d}_{fL}/2)} + \frac{q_R \tanh(q_R \tilde{d}_{fR}/2)}{1 + \tilde{\gamma}_R q_R \tanh(q_R \tilde{d}_{fR}/2)} \right], \quad (6.6)$$

où

$$\tau_0^{-1} = \frac{D_s \sigma_n}{d_s \sigma_s \xi_f}, \quad q_{L/R} = \frac{\sqrt{2}}{\xi_f} \sqrt{i + \alpha_{L(R)}}, \quad (6.7)$$

$$\tilde{d}_{fL(R)} = d_{fL(R)} / \xi_{fL(R)}, \quad \tilde{\gamma}_{L(R)} = \gamma_{BL} \xi_n / \xi_{fL(R)}. \quad (6.8)$$

Dans ce cas, les deux longueurs caractéristiques  $\xi_{fL}$  et  $\xi_{fR}$  sont égales à  $\xi_f$ . De plus, si les interfaces sont identiques et les épaisseurs des couches ferromagnétiques sont égales, la formule ci-dessus dans le cas parallèle se transforme en (5.13).

Enfin, la connaissance du paramètre de destruction des paires permet de déterminer les températures critiques de la configuration parallèle et de la configuration anti-parallèle, et ainsi d'accéder à la différence  $\Delta T_c = T_c^{AP} - T_c^P$ .

### 6.3 Caractérisation du rôle des paramètres

Les expressions précédentes montrent clairement que les paramètres importants sont le taux de destruction des paires  $1/\tau_0$ , les paramètres de transparence des interfaces  $\gamma_{BL}$

et  $\gamma_{BR}$  ainsi que les épaisseurs des couches ferromagnétiques  $d_{fL}$  et  $d_{fR}$ . Par ailleurs, l'influence de la diffusion magnétique est aussi à prendre en compte.

### 6.3.1 Conditions d'observation de l'effet de vanne de spin pour une tricouche F/S/F avec des couches ferromagnétiques épaisses

#### Influence du paramètre de destruction des paires $1/\tau_0$

- Considérons une tricouche pour laquelle les interfaces sont transparentes. Les évolutions de  $T_c^{AP}$  et  $T_c^P$  en fonction de l'inverse du paramètre de destruction des paires ( $\tau_0$ ) sont reportées sur la figure 6.2. Les interfaces sont supposées transparentes. Comme on peut le constater, il existe trois zones de comportements différents. Pour des faibles valeurs du paramètre de destruction des paires  $1/\tau_0$ , les températures  $T_c^{AP}$  et  $T_c^P$  sont non nulles, proches de la température critique sans effet de proximité; donc  $\Delta T_c$  est non nulle mais faible. Puis, quand  $1/\tau_0$  augmente, la température critique dans la configuration parallèle décroît plus rapidement que dans la configuration anti-parallèle : la supraconductivité est détruite dans la configuration parallèle alors qu'elle subsiste dans la configuration antiparallèle et  $\Delta T_c$  augmente. Enfin, pour des valeurs plus élevées du paramètre de destruction des paires, donc pour  $\tau_0$  presque nul, la supraconductivité est supprimée dans les deux configurations.

- Le choix de la valeur de  $\tau_0$  est donc important pour l'observation de l'effet de vanne de spin. Dans la suite, ce que j'appellerai valeurs élevées de  $\tau_0$  correspondent à des valeurs supérieures à 3.5, des valeurs faibles à des valeurs inférieures à 2 et le domaine compris entre 2 et 3.5 constitue la zone des valeurs intermédiaires.

#### Influence du paramètre de transparence de l'interface

- Si les deux interfaces sont identiques, on note  $\gamma_{BL} = \gamma_{BR} = \gamma_B$ . La figure 6.3 représente les évolutions de  $T_c^{AP}$ ,  $T_c^P$  et  $\Delta T_c$  en fonction de  $\gamma_B$ .

Tout d'abord, on remarque que  $\Delta T_c$  est très faible presque partout excepté dans un domaine restreint de valeurs du paramètre d'interface. Ce résultat indique que le choix de  $\gamma_B$  est primordial pour l'observation de l'effet de vanne de spin.

Par ailleurs, on pourrait croire que l'effet est d'autant plus prononcé que l'interface est transparente. Pour  $\tau_0$  élevé ( $2\pi T_c \tau_0 = 3.5$ ), l'effet de vanne de spin est effectivement maximal pour des interfaces transparentes, mais pour des valeurs plus faibles ( $2\pi T_c \tau_0 = 3$  ou  $2\pi T_c \tau_0 = 2$ ), il l'est pour une valeur finie non nulle de  $\gamma_B$ . On remarque que pour  $2\pi T_c \tau_0 = 2$  il n'y a plus d'effet de vanne de spin ( $\Delta T_c = 0$ ) pour des interfaces complètement transparentes.

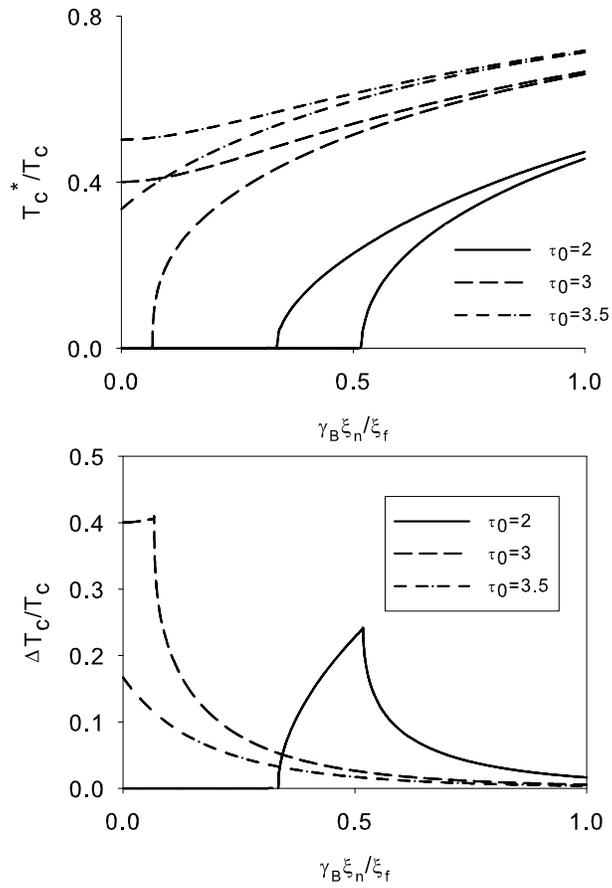


Figure 6.3: Evolution de  $T_c^{AP}/T_c$ ,  $T_c^P/T_c$  et de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction du paramètre de transparence. Le sigle \* correspond à AP et à P. (Les courbes sont telles que  $T_c^{AP} > T_c^P$ ).

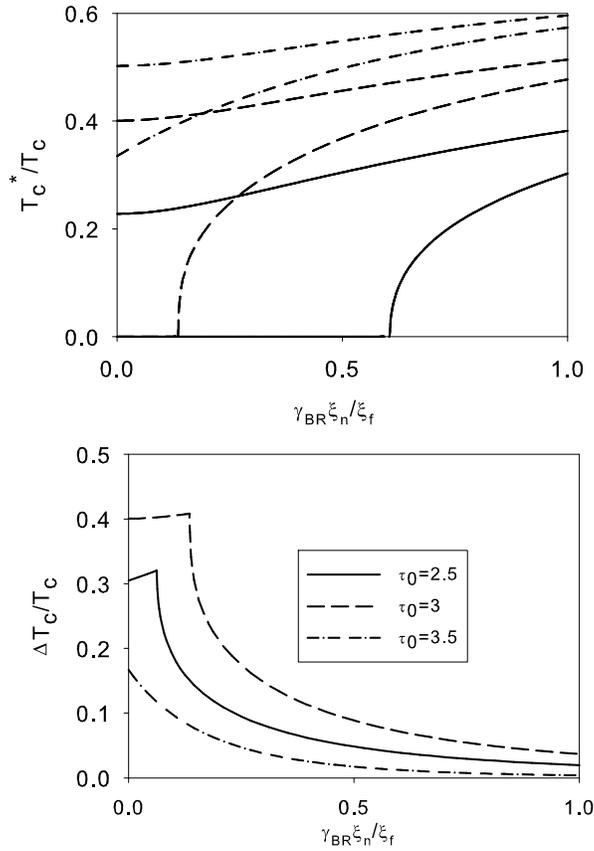


Figure 6.4: Evolution de  $T_c^{AP}/T_c$ ,  $T_c^P/T_c$  et de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction du paramètre de transparence de l'interface droite. L'interface gauche est supposée transparente. (Les courbes sont telles que  $T_c^{AP} > T_c^P$ ).

- Supposons maintenant que l'une des interfaces est transparente (on considère  $\gamma_{BL} = 0$ ). La figure 6.4 montre que l'effet maximal a lieu pour  $\gamma_{BR} = 0$  pour des paramètres de destruction des paires faibles (pour  $2\pi T_c \tau_0 = 3.5$  sur la figure 6.4) mais pour une valeur finie non nulle de  $\gamma_{BR}$  pour des valeurs de  $\tilde{\tau}_0$  plus faibles ( $2\pi T_c \tau_0 = 2.5$  et  $2\pi T_c \tau_0 = 3$  sur la figure 6.4).

### Influence de l'épaisseur des couches ferromagnétiques

Souvent, dans les expériences, l'une des couches ferromagnétiques est épaisse (supposons que  $d_{fR} \gg \xi_{fR}$ ). Si les deux interfaces sont transparentes et si  $d_{fR}$  est fixée, seuls deux paramètres sont en jeu,  $\tau_0$  et  $d_{fL}$ . Alors, la figure 6.5 montre que l'effet maximal n'est pas obtenu pour la couche  $F_L$  épaisse mais pour  $d_{fL} \sim \xi_{fL}$ . La valeur exacte de  $d_{fL}$  pour laquelle l'effet est maximal dépend de la valeur du paramètre  $\tau_0$ . Plus précisément, pour  $2\pi T_c \tau_0 = 3.5$  (et plus),  $T_c^{AP}$  et  $T_c^P$  oscillent en fonction de  $d_{fL}$  donc  $\Delta T_c$  aussi. Puis, pour

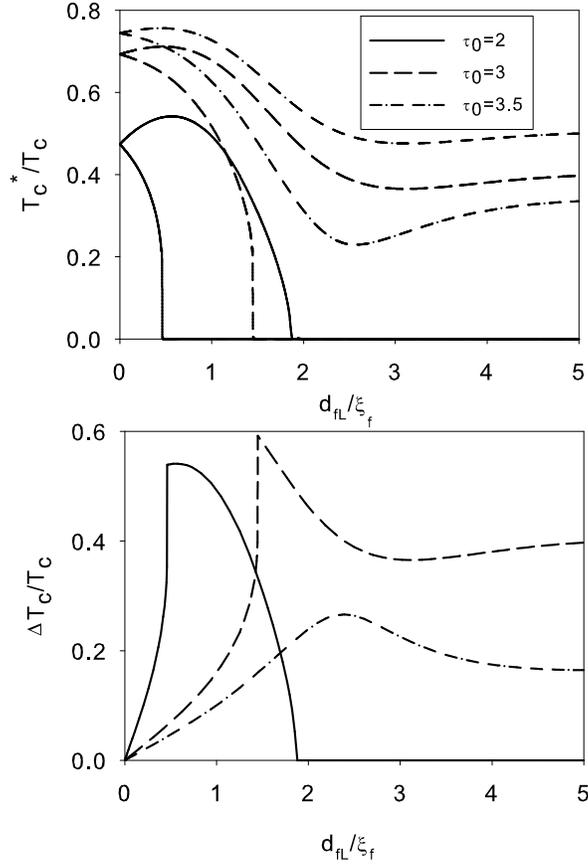


Figure 6.5: Evolution de  $T_c^{AP}/T_c$ ,  $T_c^P/T_c$  et de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. (Les courbes sont telles que  $T_c^{AP} > T_c^P$ ).

un paramètre de destruction des paires plus fort,  $T_c^{AP}$  et  $T_c^P$  sont rapidement supprimées et  $\Delta T_c$  n'est pas nulle uniquement pour des épaisseurs faibles de ferromagnétique.

### 6.3.2 Influence de la diffusion magnétique

- Gu et *al.* [67] ont mesuré la différence  $\Delta T_c$  pour une tricouche CuNi/Nb/CuNi et l'effet maximal obtenu est seulement de 6 mK pour une température critique de 2.8 K. Ils ont comparé leurs résultats avec la théorie existante utilisant les équations d'Usadel et ont constaté que les mesures expérimentales sont environ 100 plus faibles que les prédictions. Leurs résultats expérimentaux ont été confirmés par Potenza et *al.* [68] qui ont obtenu des valeurs similaires sur le même système. Plus récemment, Moraru et *al.* [69] ont mesuré  $\Delta T_c = 28$  mK pour une température de 0.51 K pour une tricouche Ni/Nb/Ni.

- Le système étudié est une tricouche telle que les deux couches ferromagnétiques sont identiques, d'épaisseurs  $d_f$ , et les interfaces sont transparentes. Comme les figures 6.6

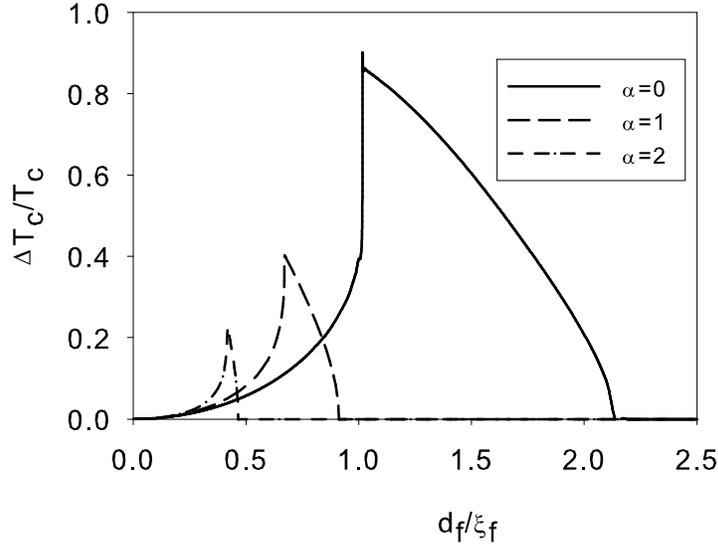


Figure 6.6: Evolution de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique pour  $2\pi T_c \tau_0 = 2$ .

et 6.7 le montrent, la diffusion magnétique diminue fortement l'amplitude de l'effet de vanne de spin ainsi que la région des paramètres où celui-ci peut être observé. Pour les alliages ferromagnétiques dont il a déjà été question, la diffusion magnétique ne peut pas être négligée et représente donc un obstacle pour l'observation de l'effet de vanne de spin. En particulier, elle peut expliquer pourquoi l'effet mesuré expérimentalement est faible quand le ferromagnétique est CuNi [67, 68]. Au contraire, la diffusion magnétique joue un rôle mineur dans les éléments purs qui doivent être plus adaptés aux vannes de spin. D'ailleurs, les mesures plus élevées de  $\Delta T_c$  ont été relevées pour des tricouches Ni/Nb/Ni [69]. Dans ce dernier cas cependant, il semble que les couches soient dans la limite propre et que la polarisation ne soit pas négligeable. La théorie présentée dans ce chapitre ne peut donc sans doute pas s'appliquer à ce système.

- Dans le cas d'une tricouche pour laquelle les couches ferromagnétiques sont épaisses, deux paramètres sont à prendre en compte,  $\alpha$  et  $1/\tau_0$ . L'évolution de  $\Delta T_c$  en fonction de l'inverse du paramètre de destruction des paires montre que la diffusion magnétique a deux conséquences : elle diminue l'effet de vanne de spin et modifie la valeur de  $\tau_0$  pour laquelle l'effet est maximal (voir la figure 6.8).

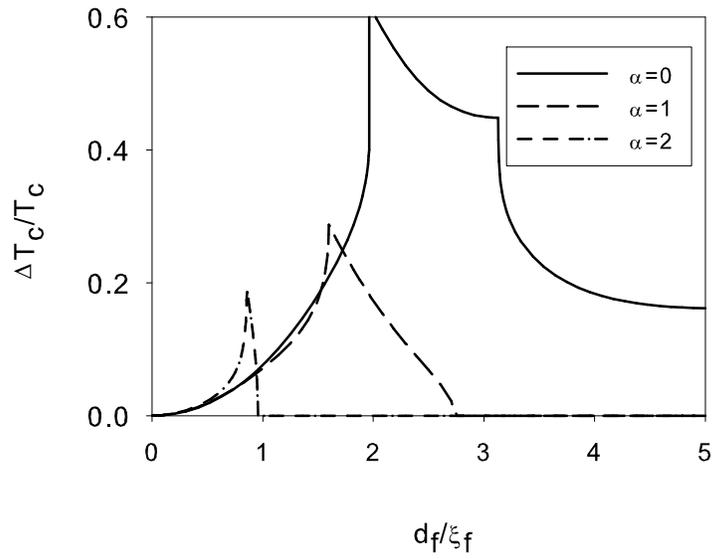


Figure 6.7: Evolution de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique pour  $2\pi T_c \tau_0 = 3.5$ .

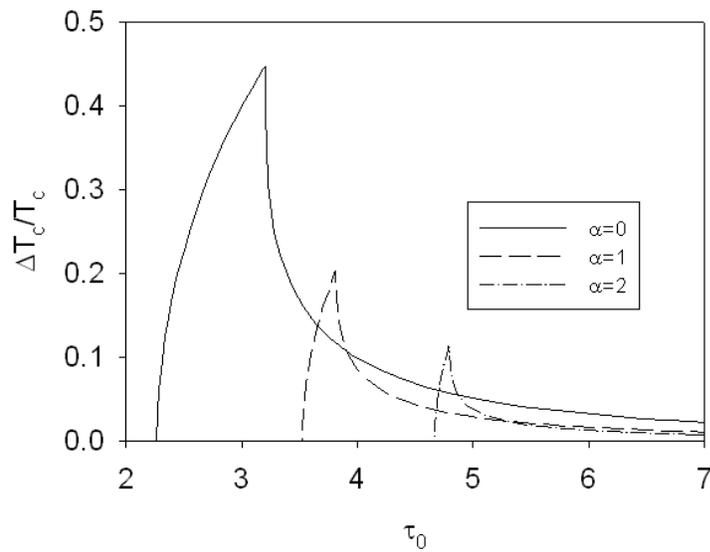


Figure 6.8: Evolution de  $\Delta T_c/T_c$  en fonction de  $\tau_0$  pour différentes valeurs de  $\alpha$  pour des couches ferromagnétiques très épaisses.

## 6.4 Conclusion

Finalement, nous avons obtenu une expression permettant de déterminer la température critique dans les configurations parallèle et anti-parallèle, pour des valeurs arbitraires des paramètres (épaisseurs des couches ferromagnétiques, transparences d'interface, champs d'échange...), la seule condition étant que la couche supraconductrice soit fine (autrement, il n'existe pas d'effet de vanne de spin). Les formules (6.2) et (6.3) sont générales et peuvent guider les expérimentateurs dans le choix des paramètres de façon à optimiser les conditions pour l'observation de l'effet de vanne de spin.

L'importance du paramètre de destruction des paires a été soulignée, de même que celle du paramètre de transparence des interfaces. Pour des paramètres de destruction de paires fort, contrairement à ce que l'on pourrait croire, l'effet maximal n'a pas lieu pour des interfaces transparentes ni même identiques. Enfin, la diffusion magnétique réduit fortement l'effet de vanne de spin; le choix du ferromagnétique doit donc être en faveur de composés pour lesquels la diffusion spin-flip est négligeable.



# Chapitre 7

## Description théorique de l'influence de la diffusion magnétique sur la densité d'états d'une bicouche S/F

L'effet de proximité dans les structures S/N et S/F se traduit aussi par la modification de la densité d'états électroniques, dont la connaissance est primordiale pour la compréhension de ces nanosystèmes. La densité d'états sera notée  $N(E)$  par la suite.

En ce qui concerne les structures S/N dans la limite diffusive, on sait [74, 75] qu'un gap s'ouvre dans la couche de métal normal quand celle-ci est d'épaisseur plus fine que la longueur de cohérence. Ce "minigap" est plus étroit que le gap supraconducteur. Quand au contraire la couche de métal normal devient épaisse, un "pseudogap" apparaît. Dans ce cas, la densité d'états évolue linéairement avec l'énergie jusqu'à s'annuler au niveau de Fermi. De nombreuses expériences ont permis l'observation de minigaps, de pseudogaps dans la couche N ou encore le passage d'un pseudogap à un minigap ([76] et ses références, [77]). Par exemple, en 1996, Guéron et ses collaborateurs [78] ont mesuré, par des expériences de spectroscopie tunnel, la densité d'états d'un fil de cuivre au contact d'un fil d'aluminium supraconducteur dans laquelle un pseudogap est nettement visible. En 2001, Moussy et *al.* [76] ont suivi par des expériences de microscopie à effet tunnel (STM) l'évolution de la densité d'états d'un vrai gap à un pseudogap en utilisant des bicouches Au/Nb.

Etant donné les particularités de l'effet de proximité dans les structures S/F, Buzdin [79, 18] s'est intéressé à l'évolution de la densité d'états dans la couche F dans le régime diffusif. Il a montré que celle-ci acquiert un comportement oscillatoire avec l'épaisseur de la couche ferromagnétique notée  $d_f$ , ce qui implique en particulier que la densité d'états au niveau de Fermi devient plus élevée qu'au niveau du gap pour des valeurs données de  $d_f$ . Cette inversion a été observée en 2001 par Kontos et *al.* [38] dans une bicouche constituée d'un alliage ferromagnétique PdNi et de niobium.

Jusqu'à présent, les études théoriques analytiques dans la limite diffusive se sont placées à des températures proches de la température critique pour que l'utilisation des équations d'Usadel linéarisées soit valable [79, 80]. Cependant, cette contrainte est trop restrictive dans la mesure où les expériences de STM ont lieu à des températures très faibles (inférieures à 1 K). Nous avons donc cherché à déterminer la densité d'états à toute température, et pour cela avons considéré l'équation d'Usadel complète. De plus, nous avons introduit la diffusion spin-flip dans notre modèle théorique pour pouvoir évaluer son influence sur le comportement de la densité d'états. Je voudrais souligner que cette étude a été stimulée par H. Courtois qui souhaitait comparer les résultats expérimentaux obtenus par son équipe au CRTBT à Grenoble avec une théorie valable pour des valeurs arbitraires de la température et considérant l'interface S/F transparente.

Dans ce chapitre, je rappelle brièvement la forme de la densité d'états d'un supraconducteur homogène, et évoque comment des expériences à effet tunnel donnent accès à la connaissance de la densité d'états. Ensuite, j'expose comment est établi le comportement oscillatoire de la densité d'états dans le cas simple d'une couche F très épaisse pour des températures proches de la température critique. Enfin, je présente les calculs menant à la détermination de  $N(E)$  en présence de spin-flip, avant de discuter la comparaison avec les résultats de l'équipe de H. Courtois [81].

## 7.1 Densité d'états dans un supraconducteur et microscope à effet tunnel

### 7.1.1 Densité d'états dans un supraconducteur homogène

Dans un supraconducteur homogène, la théorie BCS prévoit que la densité d'états électroniques est de la forme

$$\frac{N(E)}{N(0)} = \begin{cases} \frac{|E|}{(E^2 - \Delta^2)^{1/2}}, & |E| > \Delta, \\ 0, & |E| < \Delta, \end{cases} \quad (7.1)$$

où  $N(0)$  est la densité d'états du métal normal. La présence d'un gap de largeur  $\Delta$  est spécifique de l'état supraconducteur; au contraire, dans le métal normal, toute excitation électronique au-dessus du niveau de Fermi est possible. En outre, on remarque que la densité d'états diverge pour  $E = \Delta$ , comme présenté dans la figure 7.1. En 1960, des expériences d'effet tunnel menées par I. Giaver [82] ont permis de confirmer que la densité d'états est effectivement conforme à celle prédite par la théorie BCS.

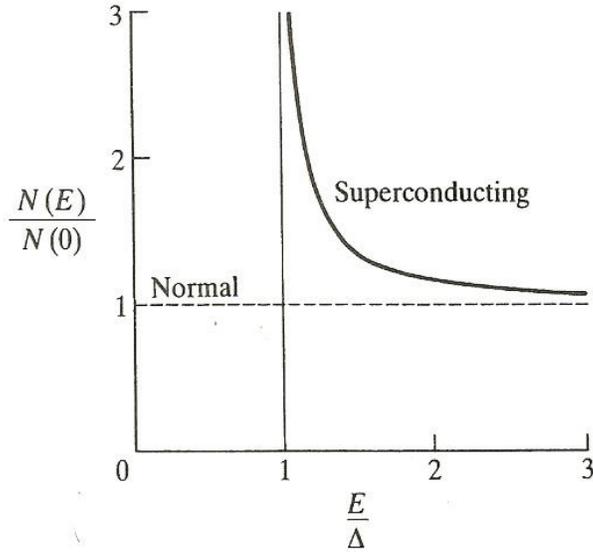


Figure 7.1: Evolution de la densité d'états décrite par la théorie BCS [83].

### 7.1.2 Mesure du courant tunnel

- La mesure du courant tunnel entre un supraconducteur et un métal normal, ou un métal ferromagnétique, rend directement accessible la densité d'états. En effet, le courant tunnel est lié à la densité d'états électroniques selon la relation

$$I \sim \int N(E) (f(E - eV) - f(E)) dE, \quad (7.2)$$

où  $V$  est la tension appliquée,  $f$  représente la distribution de Fermi-Dirac, et  $N(E)$  est la densité d'états de la surface à étudier.

- A température nulle, le courant devient  $I(T = 0) \sim \int_{E_f}^{E_f + eV} N(E) dE$ , et la conductance différentielle vérifie  $\frac{dI}{dV} = N(E + eV)$ . Ainsi, à  $T = 0$ , la conductance différentielle donne une connaissance directe de la densité d'états.

- A température non nulle, il faut tenir compte de la modification de la distribution de Fermi-Dirac. Dans ce cas, le courant tunnel est de la forme

$$\frac{dI(T \neq 0)}{dV} \sim \int \frac{e}{4\pi k_B T} \cosh^{-2} \left( \frac{E - eV}{k_B T} \right) N(E) dE, \quad (7.3)$$

La fonction  $\cosh^{-2} \left( \frac{E - eV}{k_B T} \right)$  est en forme de cloche. Sa largeur à mi-hauteur de l'ordre de  $4k_B T$  donne la limite de résolution en énergie de l'expérience.

## 7.2 Effet de proximité en présence de spin-flip

### 7.2.1 Effet de proximité et densité d'états dans les structures S/F

• Le système étudié est une bicouche S/F dont les couches sont d'épaisseurs  $d_f$  et  $d_s$ . Dans tout ce chapitre, il sera supposé que le supraconducteur n'est pas affecté par la couche ferromagnétique, c'est-à-dire que l'on se place dans le cadre des conditions aux limites rigides ( $\frac{\sigma_f \xi_s}{\sigma_s \xi_f} \ll \max(1, \gamma_B)$ ). Les fonctions de Green dans le supraconducteur  $F_s$  et  $G_s$  s'écrivent

$$\begin{aligned} F_s &= \frac{\Delta}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}, \\ G_s &= \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} \end{aligned} \quad (7.4)$$

• Il me semble pertinent de rappeler le principe de calculs conduisant à la détermination de la densité d'états. En particulier, le caractère oscillatoire de la densité d'états électroniques dans la couche F peut se déduire en quelques lignes dans le cas simple d'une couche ferromagnétique épaisse (qu'on peut considérer infinie), pour une température proche de la température critique (ce cas a été traité dans la référence [79]). Dans le cadre des conditions rigides, la résolution de l'équation d'Usadel linéarisée est immédiate et la fonction de Green normale s'écrit comme

$$F_f = \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + \omega^2}} \exp\left(-\frac{1+i}{\xi_f} x\right), \quad (7.5)$$

où  $x$  est la distance à l'interface. Puis, considérant que  $F_f^2 + G_f^2 = 1$ , on peut en déduire la fonction de Green normale. Enfin, la densité d'états est liée à la fonction de Green normale par la relation

$$N_f(\epsilon) = N(0) \operatorname{Re} G(x, \omega \rightarrow i\epsilon), \quad (7.6)$$

où  $\epsilon = E - E_f$  et  $N(0)$  est la densité d'états dans le ferromagnétique en l'absence d'effet de proximité. Pour des distances éloignées de l'interfaces ( $x \gg \xi_f$ ), la densité d'états au niveau de Fermi s'écrit comme

$$N_f(\epsilon = 0) = N(0) \left[ 1 - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{2x}{\xi_f}\right) \cos\left(\frac{2x}{\xi_f}\right) \right]. \quad (7.7)$$

L'expression précédente montre qu'effectivement la densité d'états oscille en fonction de  $x$  dans la couche ferromagnétique. Ce résultat implique en particulier que pour certaines valeurs de  $x$ , la densité d'états au niveau de Fermi est plus élevée qu'en l'absence de couche supraconductrice. Cette inversion représente en fait une spécificité des structures hybrides S/F qui n'est pas réalisable pour une bicouche S/N.

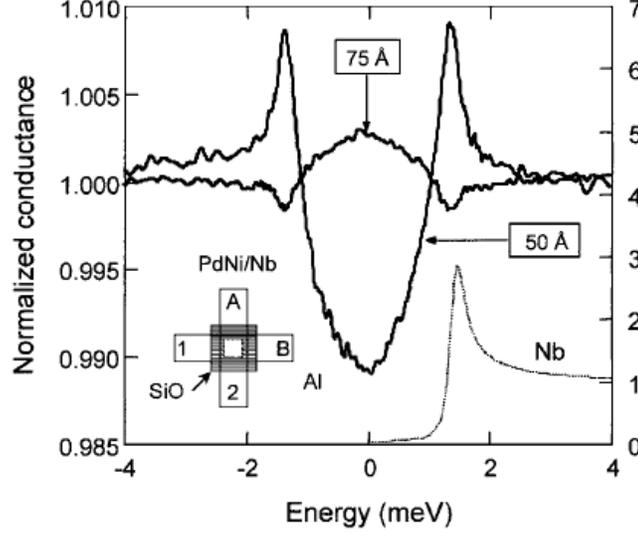


Figure 7.2: Résultats expérimentaux obtenus par Kontos et *al.* [38] pour une bicouche PdNi/Nb. Le graphe représente l'évolution de la densité d'états en fonction de l'énergie pour deux distances à l'interface (du côté ferromagnétique) :  $d_f = 5$  nm et  $d_f = 7.5$  nm.

- En 2001, Kontos et *al.* [38] ont observé cette inversion de la densité d'états dans une couche de PdNi au contact d'une couche de Nb (voir figure 7.2). Depuis, d'autres expériences ont été réalisées mais aucune n'a permis de détecter de nouveau cette inversion.

### 7.2.2 Calcul de la densité d'états pour une température quelconque et introduction de la diffusion magnétique

Jusqu'à présent, les études théoriques analytiques se sont restreintes à l'utilisation de l'équation d'Usadel linéarisée. Cependant, pour des bicouches à l'interface transparente, l'équation d'Usadel ne peut pas être linéarisée à basse température, ce qui est d'autant plus restrictif que les expériences dans ce domaine se font justement à très faibles températures. Dans ce cas, il faut traiter l'équation d'Usadel complète.

Pour cela, considérons une bicouche S/F avec une interface complètement transparente. La couche supraconductrice est très épaisse et la couche F a une épaisseur  $d_f$ .

- L'équation d'Usadel complète peut se réécrire à l'aide d'une fonction de paramétrisation complexe  $\Theta$  définie par  $F = \sin \Theta$  et  $G = \cos \Theta$ . En introduisant le temps de diffusion spin-flip  $\tau_m$  et des paramètres sans dimension, elle est de la forme suivante :

$$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Theta}{\partial x^2} = (\tilde{\omega} + i) \sin \Theta + \alpha \sin \Theta \cos \Theta, \quad (7.8)$$

où  $\tilde{\omega} = \frac{\omega}{h}$ ,  $\alpha^{-1} = \tau_m h$  et  $\tilde{x} = \frac{x}{\xi_f}$ .

• Pour déterminer la fonction  $\Theta$ , il faut tenir compte des conditions aux limites à l'interface F/vide. La première condition est l'annulation de la dérivée de  $\Theta$  :  $\left(\frac{\partial\Theta}{\partial\tilde{x}}\right)_{d_f} = 0$ . La seconde condition est simplement la valeur finie non nulle à l'interface de  $\Theta$ , que l'on note  $\Theta_{d_f}$ , et que l'on suppose faible. L'intégration de l'équation (8.5) conduit alors à l'expression

$$d\tilde{x} = \pm \frac{d\Theta}{\sqrt{2(\cos\Theta_{d_f} - \cos\Theta)(2(\tilde{\omega} + i) + \alpha(\cos\Theta_{d_f} + \cos\Theta))}}. \quad (7.9)$$

• L'étape suivante consiste donc à intégrer l'équation ci-dessus. Pour déterminer l'intégrale du terme de droite entre  $\Theta_0$  (valeur de  $\Theta$  à l'interface S/F) et  $\Theta_{d_f}$ , l'idée est de décomposer en deux intégrales (en utilisant la borne intermédiaire  $\sqrt{\Theta_{d_f}}$ ) notées  $I$  et  $J$ . Dans la première zone, de  $\Theta_0$  à  $\sqrt{\Theta_{d_f}}$ , l'intégrale  $I$  peut être approximée par

$$I \simeq \int_{\Theta_0}^{\sqrt{\Theta_{d_f}}} \frac{d\Theta}{\sqrt{2(1 - \cos\Theta)(2i + \alpha(1 + \cos\Theta))}}. \quad (7.10)$$

Dans la seconde zone, l'intégrale  $J$  s'écrit sous la forme

$$J \simeq \int_{\sqrt{\Theta_{d_f}}}^{\Theta_{d_f}} \frac{d\Theta}{\sqrt{2(\Theta^2 - \Theta_{d_f}^2)(i + \alpha)}}. \quad (7.11)$$

Finalement, après calculs, on obtient donc une expression analytique pour  $\Theta_{d_f}$

$$\Theta_{d_f} \simeq \frac{8}{\sqrt{1 - \mu^2}} \exp(-q\tilde{d}_f) \sqrt{\frac{\sqrt{1 - \mu^2 \sin^2(\frac{\Theta_0}{2}) - \cos(\frac{\Theta_0}{2})}}{\sqrt{1 - \mu^2 \sin^2(\frac{\Theta_0}{2}) + \cos(\frac{\Theta_0}{2})}}}, \quad (7.12)$$

où avec  $\mu^2 = \frac{\alpha}{i + \alpha}$  et  $q = \frac{\xi_f}{\xi_{f1}} + i \frac{\xi_f}{\xi_{f2}}$ .

De plus, puisque  $\Theta_{d_f}$  est une fonction de  $\cos(\frac{\Theta_0}{2})$  et  $\sin(\frac{\Theta_0}{2})$ , elle peut donc être exprimée à partir des fonctions de Green  $G_s$  et  $F_s$  dans le supraconducteur.

• La densité d'états dans la couche ferromagnétique se déduit de l'expression (7.12)

$$N_f(\epsilon) = N(0) \operatorname{Re}(\cos\Theta_{d_f}(x, \omega \rightarrow i\epsilon)).$$

## 7.3 Comparaison avec l'expérience

### 7.3.1 Résultats expérimentaux

Le protocole expérimental est décrit dans la référence [81].

- Les échantillons expérimentaux sont des bicouches S/F pour lesquelles une mince couche de l'alliage ferromagnétique  $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$  est déposée sur une épaisse couche de Nb. L'épaisseur de la couche S est d'environ 200 nm et la couche F a une épaisseur inférieure à 6 nm. Le tracé de la densité d'état au niveau de Fermi en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique et son extrapolation vers une couche F infiniment fine permettent d'affirmer que la transparence de l'interface est très grande (on supposera dans les calculs que  $\gamma_B = 0$ ).

- Les mesures ont été effectuées à une température inférieure à 100 mK. La manipulation consiste à mesurer la caractéristique  $I(V)$  qui est dérivée numériquement de façon à obtenir la conductance différentielle  $dI/dV$ .

- La mesure du spectre tunnel d'un substrat de Nb permet de déterminer la température effective des électrons. Il s'agit en fait de comparer la conductance différentielle obtenue avec la forme BCS, les paramètres de fit étant le gap et la température. Dans l'expérience présentée ici, le gap a été évalué à  $\Delta = 1.50$  meV et la température effective est  $T = 170$  mK.

### 7.3.2 Comparaison avec la théorie

- Pour pouvoir comparer prédictions théoriques et résultats expérimentaux, il faut intégrer l'expression de la densité d'états obtenue par continuité analytique de l'équation (7.12) en tenant compte de la température effective. Les paramètres de fit sont la longueur de cohérence ferromagnétique  $\xi_f$  et la longueur de collision due à la diffusion spin-flip  $L_s$  définie par  $L_s = \sqrt{D_s \tau_m}$ .

- La figure 7.3 montre les meilleurs fits obtenus, pour lesquels  $\xi_f = 15$  nm et  $L_s \sim 3$  nm. On peut constater qu'il y a bon accord entre théorie et expérience.

- La valeur élevée obtenue pour  $\xi_f$  conduit à un champ d'échange très faible, de l'ordre de la dizaine de Kelvins. Or, la température de Curie pour l'alliage  $\text{Cu}_{52}\text{Ni}_{48}$  est de l'ordre de 20 – 30 K, ce qui correspond à un champ d'échange de la centaine de Kelvins. Par ailleurs, la valeur de  $L_s$  implique que  $\alpha$  est de l'ordre de 10.

Dans le chapitre suivant, nous avons comparé des mesures expérimentales de courant critique d'une jonction Josephson avec notre description théorique. Sans anticiper les résultats concernant le courant critique, je peux tout de même mentionner le fait que les mesures expérimentales en question ont été réalisées sur une jonction  $\text{NbCu}_{52}\text{Ni}_{48}\text{Nb}$ , c'est-à-dire avec un alliage de même composition. A priori, les résultats pour les paramètres

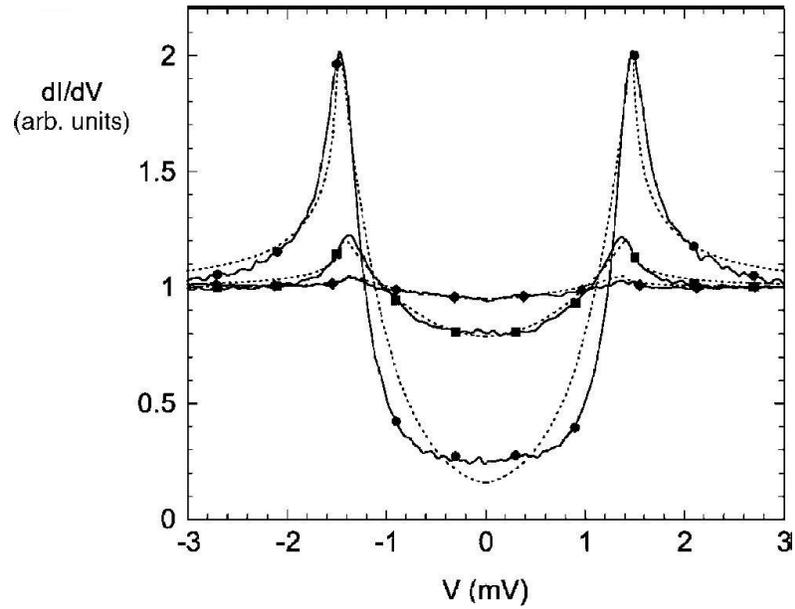


Figure 7.3: Comparaison entre la densité d'états obtenue par le calcul (pointillés) et densité d'états expérimentale (lignes). Les spectres sont mesurés à la surface d'une bicouche Nb/CuNi pour différentes épaisseurs de la couche ferromagnétique : 2.5 nm (disques), 3.3 nm (carrés), 5.3 nm (losanges). Les paramètres de fit sont  $\xi_f = 15$  nm et respectivement  $L_s = 3.4$ , 2.6 et 3 nm et  $\Delta = 1.5$ , 1.45 et 1.4 nm. La température effective est  $T = 170$  mK.

de fit devraient être sensiblement les mêmes. Cependant, dans ce cas, nous trouvons un champ d'échange de l'ordre de 200 K et  $\alpha$  de l'ordre de 3. La valeur du champ d'échange est en accord avec la valeur de la température de Curie, et la valeur de  $\alpha$  indique le rôle significatif (et attendu) joué par la diffusion magnétique.

- On peut chercher à comprendre la très faible valeur du champ d'échange et de la valeur élevée de la "force" de la diffusion déduites des mesures de la densité d'états ainsi que leur différence avec celles obtenues par la mesure du courant critique.

Tout d'abord, la couche ferromagnétique est très fine dans l'expérience présentée ici (ce n'est pas le cas pour les mesures de courant critique), ce qui doit sans doute modifier la mise en place de l'ordre ferromagnétique et l'affaiblir notablement.

De plus, une couche si fine doit présenter un très fort désordre magnétique du fait de la disposition aléatoire des atomes de nickel, ce qui conduit à une valeur très faible de la longueur magnétique  $L_s$ .

Par ailleurs, la longueur théorique obtenue pour  $\xi_f$  étant si élevée devant  $L_s$ , il se peut qu'il faille considérer aussi la diffusion magnétique perpendiculaire.

## 7.4 Conclusion

Finalement, les calculs que nous avons menés permettent la résolution analytique de l'équation d'Usadel complète pour une bicouche S/F dans le cas où la valeur de l'amplitude de paire est faible à l'interface entre la couche ferromagnétique et le vide. En particulier, nos résultats sont applicables pour décrire les expériences de spectroscopie à effet tunnel réalisées à très basses températures. Une comparaison avec des mesures expérimentales effectuées à la surface de la couche ferromagnétique d'une bicouche Nb/CuNi met en évidence l'effet primordial que joue la diffusion magnétique dans les alliages faiblement ferromagnétiques.



# Chapitre 8

## Etude de l'influence de la diffusion magnétique sur le comportement du courant critique d'une jonction S/F/S

En 1962, B. D. Josephson [16] prédit qu'un courant supraconducteur traverse une jonction constituée de deux couches supraconductrices séparées d'une mince couche d'isolant sans qu'aucune différence de potentiel ne soit appliquée. Ce courant est spécifique de la supraconductivité dans la mesure où il est dû au passage de paires de Cooper entre les deux supraconducteurs et dépend de la différence de phase des paramètres d'ordre supraconducteur des deux couches S. En fait, une tricouche S/Isolant/S n'est pas la seule structure réalisant une jonction Josephson, mais il existe plusieurs catégories de jonctions Josephson suivant le type de lien qui permet le couplage entre les deux supraconducteurs (couche de métal, constriction...).

En 1977, Bulaevskii et *al.* [84] se sont intéressés à une tricouche S/I/S contenant des impuretés magnétiques dans la couche d'isolant. Ils ont montré que la différence de phase entre les deux fonctions d'onde des paires de Cooper dans deux couches supraconductrices peut être soit 0 soit  $\pi$ . Dans ce dernier cas, on parle de "jonction  $\pi$ ". Cependant, la jonction  $\pi$  n'a jamais été observée pour ce type de tricouches.

Une tricouche S/F/S réalise aussi une jonction Josephson. On peut montrer que le supracourant  $J_s(\varphi)$  circulant dans cette structure peut s'exprimer comme  $J_s(\varphi) = I_c \sin(\varphi)$  [47], où  $I_c$  est le courant maximal pouvant traverser la jonction et appelé courant critique et  $\varphi$  est la différence de phase. A l'équilibre, pour une jonction standard  $I_c > 0$  et  $\varphi = 0$ . Cependant, comme nous le verrons au cours de ce chapitre, le courant critique  $I_c$  peut devenir négatif, ce qui implique une différence de phase à l'équilibre  $\varphi = \pi$ . Une jonction  $\pi$  peut donc aussi exister pour une tricouche S/F/S. Elle a été d'abord prédite

par Buzdin et *al.* [32] en 1982 dans la limite propre, puis en 1990 dans la limite diffusive [33].

La première preuve expérimentale de la jonction  $\pi$  a été apportée par Ryazanov et *al.* [34] qui ont observé l'évolution non monotone du courant critique d'une jonction Nb/CuNi/Nb en fonction de la température. Puis, Kontos et *al.* [35] et Blum et *al.* [36] ont mesuré les oscillations de  $I_c$  en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Depuis, de nombreuses expériences ont été menées dont les résultats sont conformes aux premières manipulations [48, 85]. Par ailleurs, d'autres types d'expériences (boucle S/F/S, réseaux de jonctions) permettent de mesurer directement la phase et constituent un accès direct à la jonction  $\pi$  ([86, 87, 88] et [37] et ses références).

Le comportement du courant critique des jonctions S/F/S est contrôlé par plusieurs paramètres comme le champ d'échange de la couche F, le paramètre de transparence de l'interface  $\gamma_B$ , mais aussi les mécanismes de diffusions spin-flip et spin-orbite. Dans ce chapitre, l'attention sera concentrée sur l'influence de la diffusion magnétique. Comme je l'ai exposé dans le chapitre 4, les mesures de courants critiques donnent des valeurs beaucoup plus faibles que les prédictions. Dans les structures expérimentales, les ferromagnétiques utilisés sont des alliages dans lesquels doit apparaître une diffusion spin-flip non négligeable voire forte. Dans ce chapitre, j'évalue l'effet de la diffusion magnétique sur le courant critique de telles jonctions. L'une de nos motivations est de chercher à comprendre si cette diffusion magnétique peut effectivement expliquer la différence entre données expérimentales et résultats théoriques.

Dans un premier temps, je rappelle comment les oscillations du courant critique révèlent les transitions  $0/\pi$ . Puis, je développe les calculs qui permettent la détermination du courant critique pour des températures proches de la température critique et montrent comment celui-ci dépend de la diffusion magnétique. Ensuite, j'indique le raisonnement mené pour obtenir l'expression du courant critique d'une jonction aux interfaces transparentes, pour une température quelconque; résultat qui permet en particulier la description théorique de l'évolution de  $I_c$  en fonction de la température. Enfin, j'expose une comparaison du comportement théorique du courant critique avec deux séries de mesures faites récemment [19, 20], qui met en évidence le rôle significatif joué par la diffusion spin-flip dans les alliages ferromagnétiques utilisés pour ce genre de manipulations.

## 8.1 Modèle théorique

- Le système étudié est une structure symétrique S/F/S pour laquelle la couche F est d'épaisseur  $d_f$ , tandis que les deux couches supraconductrices sont supposées très épaisses (voir figure 8.1).

- L'énergie  $E$  d'une jonction Josephson est donnée par  $E = \frac{\Phi_0}{2\pi c} (1 - \cos \varphi)$  où  $\Phi_0$  est

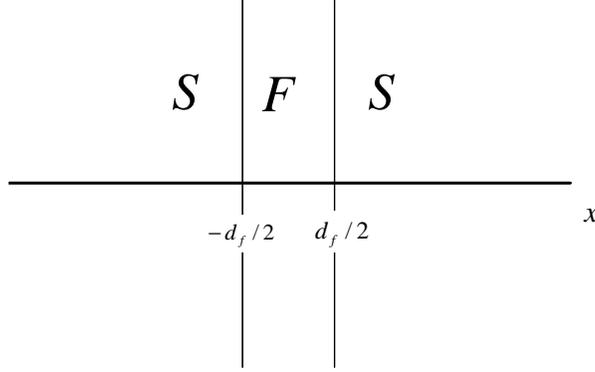


Figure 8.1: Géométrie de la jonction Josephson étudiée.

le quantum de flux. La relation courant-phase est définie par

$$J_s(\varphi) = \frac{2e}{\hbar} \frac{\partial E}{\partial \varphi} = I_c \sin \varphi. \quad (8.1)$$

La phase à l'équilibre est celle qui annule le supracourant  $J_s(\varphi)$  et rend maximale la dérivée seconde de l'énergie par rapport à la phase. Quand le courant critique est positif, on constate d'après les formules précédentes que la différence de phase à l'équilibre est  $\varphi = 0$ . Quand le courant critique est négatif, la différence de phase à l'équilibre devient  $\varphi = \pi$ .

J'ai rappelé dans le chapitre 4 que la différence de phase est 0 quand la couche ferromagnétique est très fine. Puis, quand l'épaisseur de celle-ci devient de l'ordre de  $\xi_f$ , la différence de phase est  $\pi$ . Cela signifie que pour des épaisseurs de la couche F inférieures à  $\xi_f$ , le courant critique est positif, puis pour des épaisseurs plus élevées, le courant critique devient négatif. Les oscillations du courant critique en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique sont donc dues aux transitions de la phase 0 vers la phase  $\pi$  (et de la phase  $\pi$  vers la phase 0) avec annulation du courant critique aux changements de phase. Le caractère oscillatoire de  $I_c$  représente donc une preuve non ambiguë de l'existence de la jonction  $\pi$ . Au contraire, la température critique oscillant même quand seule la phase 0 est possible, l'observation du comportement non monotone de  $T_c$  dans les tricouches S/F/S était considérée comme un indice plutôt que comme une preuve irréfutable de la réalisation de la phase  $\pi$ .

- En termes de fonctions de Green, le supracourant s'exprime comme

$$J_s(\varphi) = ieN(0)D_f\pi TS \sum_{-\infty}^{\infty} \left( F \frac{d\tilde{F}}{dx} - \tilde{F} \frac{dF}{dx} \right), \quad (8.2)$$

où  $\tilde{F}(x, h) = F^*(x, -h)$ ,  $S$  est l'aire de la jonction et  $N(0)$  est la densité d'états pour une projection de spin. Pour déterminer  $J_s(\varphi)$ , il faut donc connaître la fonction de Green anormale dans la couche ferromagnétique, solution de l'équation d'Usadel.

• Dans tout ce chapitre, il sera supposé que les propriétés supraconductrices ne sont pas affectées par l'effet de proximité, c'est-à-dire que les conditions rigides s'appliquent ( $\frac{\sigma_f \xi_s}{\sigma_s \xi_f} \ll \max(1, \gamma_B)$ ). Alors, la fonction de Green dans les couches supraconductrices s'écrit

$$F_s(-d_f/2) = \frac{\Delta}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} e^{-i\varphi/2},$$

$$F_s(d_f/2) = \frac{\Delta}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} e^{i\varphi/2}.$$

## 8.2 Influence de la diffusion spin-flip sur le courant critique : température proche de la température critique

Le courant critique d'une jonction Josephson pour des températures proches de la température critique a déjà été déterminé quand la diffusion magnétique est négligeable [89]. Nous nous intéressons dans cette partie à l'influence de la diffusion spin-flip.

• Quand la température est proche de la température critique, l'équation d'Usadel linéarisée peut être appliquée. Puis, l'utilisation des conditions aux limites de Kuprianov-Lukichev permet de déterminer la fonction de Green anormale qui est de la forme suivante

$$F(x) = \frac{\Delta \cos(\varphi/2)}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} \frac{1}{\cosh\left(q \frac{d_f}{2\xi_f}\right) + q\tilde{\gamma} \sinh\left(q \frac{d_f}{2\xi_f}\right)} \cosh\left(q \frac{x}{\xi_f}\right) \quad (8.3)$$

$$+ i \frac{\Delta \sin(\varphi/2)}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} \frac{1}{\sinh\left(q \frac{d_f}{2\xi_f}\right) + q\tilde{\gamma} \cosh\left(q \frac{d_f}{2\xi_f}\right)} \sinh\left(q \frac{x}{\xi_f}\right),$$

$\tilde{\gamma} = \gamma_B \xi_n / \xi_f$  et  $q$  est toujours défini par  $q = \frac{\xi_f}{\xi_{f1}} + i \frac{\xi_f}{\xi_{f2}}$ .

Enfin, l'expression (8.2) permet d'obtenir la formule suivante pour  $I_c$

$$I_c R_N = \frac{d_f T \pi}{e \xi_f} \operatorname{Re} \left( \sum_{-\infty}^{\infty} \frac{\Delta^2}{\omega^2 + \Delta^2} \frac{2q}{\sinh(q\tilde{d}_f) (1 + \tilde{\gamma}^2 q^2) + 2q\tilde{\gamma} \cosh(q\tilde{d}_f)} \right), \quad (8.4)$$

où  $\tilde{d}_f = d_f / \xi_f$  et  $R_N$  est la résistance de l'interface définie par  $R_N = \frac{d_f}{\sigma_f S}$ ,  $S$  étant la surface de l'interface. Cette formule contient la dépendance du courant critique en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique, de la température (via les fréquences de Matsubara  $\omega$ ), du champ d'échange et de la diffusion magnétique (via  $q$ ), et de la transparence de l'interface (via  $\tilde{\gamma}$ ).

Quand la diffusion spin-flip peut être négligée, l'expression ci-dessus devient effectivement celle obtenue dans la référence [89].

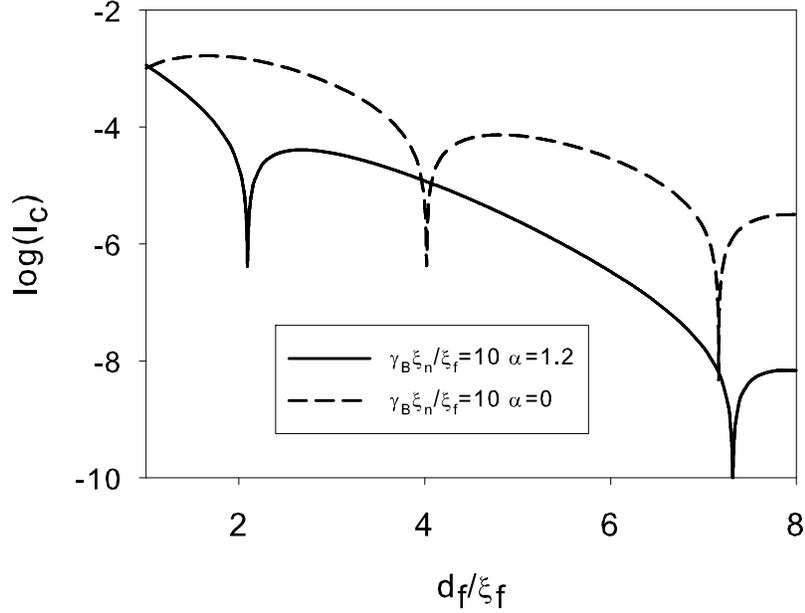


Figure 8.2: Influence de la diffusion magnétique sur l'évolution du courant critique d'une jonction Josephson en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique.

- L'expression (8.4) pour le courant critique peut être généralisée au cas où les deux interfaces sont différentes (avec pour paramètres de transparence  $\gamma_{B1}$  et  $\gamma_{B2}$ ). Alors, le terme  $\tilde{\gamma}^2$  dans (8.4) doit être remplacé par  $\gamma_{B1}\gamma_{B2} (\xi_n/\xi_f)^2$  et le terme  $\tilde{\gamma}$  par  $\frac{\gamma_{B1}+\gamma_{B2}}{2} \frac{\xi_n}{\xi_f}$ .

De plus, cette expression est aussi valable à toutes températures pour  $\gamma_B \gg 1$  à condition d'effectuer la substitution  $\tilde{\gamma} \rightarrow \tilde{\gamma}/G_s$ , où  $G_s = \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}$ .

A température et paramètre de transparence donnés, l'expression (8.4) permet d'extraire l'influence de la diffusion magnétique sur le courant critique, comme présenté dans la figure 8.2. On remarque que le mécanisme de spin-flip a deux conséquences sur l'évolution de  $I_c$  : son amplitude décroît plus vite en fonction de  $d_f$  et la période des oscillations augmente.

### 8.3 Influence de la diffusion spin-flip sur le courant critique : température arbitraire

L'expression du courant critique obtenue dans la section précédente est valable pour des températures proches de la température critique (si les interfaces sont transparentes) et ne permet donc pas d'accéder au comportement du courant critique en fonction de la température.

Pour des températures faibles, l'utilisation de l'équation d'Usadel linéarisée n'est plus valable si l'interface est transparente. Il faut alors traiter l'équation d'Usadel complète. Si la couche ferromagnétique est épaisse, c'est-à-dire si  $d_f \gg \xi_f$ , on peut considérer que les deux interfaces S/F sont indépendantes l'une de l'autre. Alors, la jonction S/F/S peut être "décomposée" en deux bicouches S/F et F/S dans lesquelles la couche ferromagnétique est très épaisse. La fonction de Green anormale dans la couche F de la jonction est alors la superposition des deux fonctions de Green  $F_1$  et  $F_2$  pour les deux bicouches. En d'autres termes, il s'agit de déterminer l'évolution de la fonction de Green anormale dans une bicouche S/F infinie, puis de superposer les deux solutions trouvées.

### 8.3.1 Détermination de la fonction de Green pour une bicouche S/F "infinie"

Considérons une bicouche S/F avec une interface complètement transparente. La couche F occupe l'espace demi-infini  $x \geq 0$ . L'équation d'Usadel complète peut se réécrire à l'aide d'une fonction complexe de paramétrisation  $\Theta$  définie telle que  $F = \sin \Theta$  et  $G = \cos \Theta$ . En introduisant le temps de diffusion spin-flip  $\tau_m$  et des paramètres sans dimension, elle est de la forme suivante :

$$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 \Theta}{\partial x^2} = (\tilde{\omega} + i) \sin \Theta + \alpha \sin \Theta \cos \Theta, \quad (8.5)$$

où  $\tilde{\omega} = \frac{\omega}{h}$ ,  $\alpha^{-1} = \tau_m h$  et  $\tilde{x} = \frac{x}{\xi_f}$ .

- La couche ferromagnétique étant très épaisse, les conditions aux limites qui s'appliquent sont l'annulation de la fonction  $\Theta$  et de sa dérivée à l'interface F/vide :  $\Theta(x \rightarrow \infty) = \left( \frac{\partial \Theta}{\partial \tilde{x}} \right)_{\infty} = 0$ .

- En multipliant l'équation (8.5) par  $\frac{\partial \Theta}{\partial \tilde{x}}$ , puis en intégrant, on obtient que

$$\frac{\partial \Theta}{\partial \tilde{x}} = 2\sqrt{2} \sin \left( \frac{\Theta}{2} \right) \sqrt{\tilde{\omega} + i + \alpha} \sqrt{1 - \mu^2 \sin^2 \left( \frac{\Theta}{2} \right)}, \quad (8.6)$$

avec  $\mu^2 = \frac{\alpha}{i + \alpha}$ .

- L'étape suivante consiste à intégrer une seconde fois. Par souci de clarté, nous avons défini une fonction intermédiaire  $g$  telle que  $g = \exp(-2qx/\xi_f) g_0$ , où  $g_0$  est une constante déterminée par les conditions aux limites. Cette fonction vérifie l'équation

$$g = \frac{\sqrt{1 - \mu^2 \sin^2 \left( \frac{\Theta}{2} \right)} + \cos \left( \frac{\Theta}{2} \right)}{\sqrt{1 - \mu^2 \sin^2 \left( \frac{\Theta}{2} \right)} - \cos \left( \frac{\Theta}{2} \right)}. \quad (8.7)$$

A partir de (8.7), on en déduit finalement la fonction de Green  $F_{bicouche}$

$$F_{bicouche} = \frac{4\sqrt{g}}{\sqrt{1-\mu^2}}. \quad (8.8)$$

• Il reste à déterminer  $g_0$ , valeur de la fonction  $g$  à l'interface S/F. En se plaçant dans le cadre des conditions rigides et par continuité des fonctions de Green à l'interface, on obtient finalement que  $g_0$  est de la forme suivante

$$g_0 = \frac{(1-\mu^2)\mathcal{F}(n)}{\left[\sqrt{(1-\mu^2)\mathcal{F}(n)+1}+1\right]^2}, \quad (8.9)$$

où

$$\mathcal{F}(n) = \frac{(\Delta/(2\pi T))^2}{\left[n+1/2+\sqrt{(n+1/2)^2+(\Delta/(2\pi T))^2}\right]^2}. \quad (8.10)$$

### 8.3.2 Superposition des solutions et courant critique de la jonction Josephson

• La fonction de Green  $F_f$  dans la couche ferromagnétique de la jonction Josephson peut être considérée comme la superposition des deux solutions  $F_1$  et  $F_2$ . Cette approximation est valable parce que la couche ferromagnétique est épaisse ( $d_f \gg \xi_f$ ), ce qui assure que la relation courant-phase est sinusoïdale; les harmoniques suivantes dans l'expression du supracourant qui rendent la relation courant-phase non sinusoïdale sont négligées. Les fonctions  $F_1$  et  $F_2$  (respectivement solutions de l'équation d'Usadel de la bicouche S/F et dans la bicouche F/S) s'écrivent

$$F_1 = \frac{4\sqrt{g_1}}{\sqrt{1-\mu^2}}e^{-i\varphi/2}, \quad F_2 = \frac{4\sqrt{g_2}}{\sqrt{1-\mu^2}}e^{i\varphi/2}, \quad (8.11)$$

où

$$g_1 = g_0 \exp\left(-2q\frac{x+d_f/2}{\xi_f}\right), \quad g_2 = g_0 \exp\left(2q\frac{x-d_f/2}{\xi_f}\right).$$

La fonction de Green recherchée est alors

$$F_f = \frac{4}{\sqrt{1-\mu^2}}\sqrt{g_0} \left( \exp\left\{-q\frac{d_f/2+x}{\xi_f} - i\frac{\varphi}{2}\right\} + \exp\left\{q\frac{x-d_f/2}{\xi_f} + i\frac{\varphi}{2}\right\} \right). \quad (8.12)$$

• Finalement, on obtient l'expression suivante pour le courant critique

$$I_c R_N = 64\pi \frac{d_f T}{\xi_f e} \operatorname{Re} \left( \sum_0^{\infty} \frac{\mathcal{F}(n)q}{\left[\sqrt{(1-\mu^2)\mathcal{F}(n)+1}+1\right]^2} \exp\left(-q\frac{d_f}{\xi_f}\right) \right). \quad (8.13)$$

- On remarque que le courant critique est proportionnel au facteur  $(-qd_f/\xi_f)$ . Les termes négligés dans notre approche (qui contribuent à la seconde harmonique dans la relation courant-phase) sont proportionnels à  $\exp(-2qd_f/\xi_f)$ . Ils sont donc très faibles et jouent un rôle mineur, ce qui signifie que l'approche utilisée pour nos calculs est valable.

Dans la limite de diffusion magnétique négligeable, l'expression obtenue est celle déterminée par Buzdin et Kuprianov en 1990 [33] pour  $T_c \ll h$ .

Quand la température est proche de la température critique, l'expression (8.13) se simplifie comme

$$I_c R_N = \frac{\Delta^2 \pi d_f}{2e T_c \xi_{f2}} \frac{1}{\cos(\Psi)} \exp\left(-\frac{d_f}{\xi_{f1}}\right) \sin\left(\Psi + \frac{d_f}{\xi_{f2}}\right), \quad (8.14)$$

où  $\Psi$  est définie par  $\tan(\Psi) = \frac{\xi_{f2}}{\xi_{f1}}$ . Cette expression montre explicitement que le courant critique diminue en oscillant avec l'épaisseur de la couche ferromagnétique. De plus, cette formule peut être retrouvée à partir de l'expression (8.4) dans laquelle  $\tilde{\gamma} = 0$  et  $d_f \gg \xi_f$ .

## 8.4 Comparaison avec l'expérience

L'expression (8.13) obtenue peut être utilisée pour décrire l'évolution expérimentale du courant critique dans des jonctions S/F/S de très grandes transparences d'interfaces.

- Nous avons en particulier cherché à décrire l'expérience de Sellier *et al.* [20] mesurant le courant critique d'une jonction  $\text{NbCu}_{0.52}\text{Ni}_{0.48}\text{Nb}$ . La figure 8.3 représente les points expérimentaux et la courbe théorique associée. Le meilleur accord est obtenu pour les paramètres  $h = 220$  K et  $\alpha = 3$ , avec  $d_f = 18$  nm (expérimentalement, l'épaisseur du ferromagnétique a été évaluée à 18 nm à 1 nm près), ce qui correspond à  $\xi_f = 4,8$  nm et  $L_s = 2,7$  nm.

Nous avons aussi obtenu une évolution théorique cohérente avec les mesures expérimentales de Ryazanov *et al.* [19] sur une jonction  $\text{NbCu}_{0.47}\text{Ni}_{0.53}\text{Nb}$  avec pour paramètres de fit  $h = 650$  K et  $\alpha = 1,35$ , avec  $d_f = 21$  nm (expérimentalement, l'épaisseur du ferromagnétique a été évaluée à 22 nm à 1 nm près), ce qui correspond à  $\xi_f = 2,8$  nm et  $L_s = 2,4$  nm (voir figure 8.4).

- La différence d'épaisseur du ferromagnétique entre la valeur de fit et la mesure expérimentale peut s'expliquer par l'incertitude de la mesure d'une part et d'autre part par la possibilité que l'échantillon contienne une couche morte, non magnétique, d'épaisseur environ 1 nm.

On constate que pour les deux courbes l'introduction de la diffusion magnétique permet de rendre compte des points expérimentaux. De plus, la valeur importante du paramètre  $\alpha$  montre que ce mécanisme de destruction des paires ne peut pas être négligé dans ces alliages faiblement ferromagnétiques mais qu'au contraire, il y joue un rôle primordial.

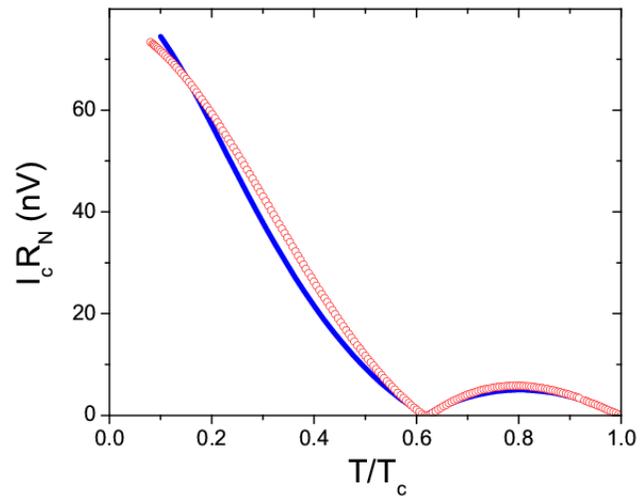


Figure 8.3: Comparaison entre mesures expérimentales (ligne) et description théorique (cercles). Les paramètres de fit sont  $h = 220$  K et  $\alpha = 3$ .

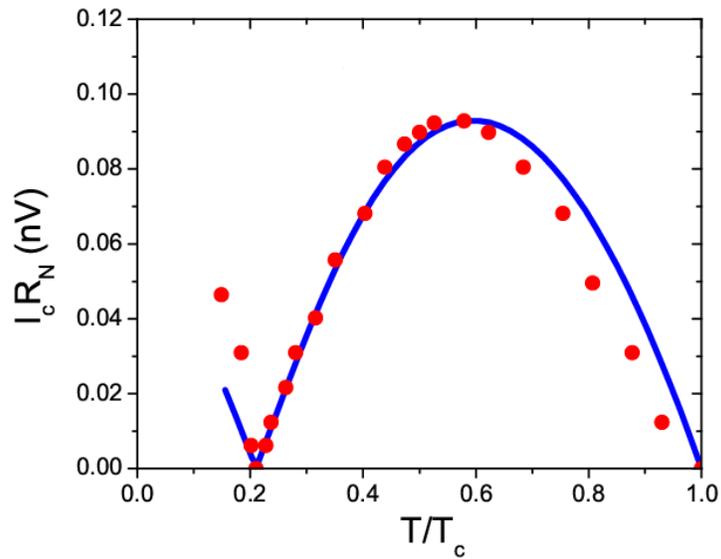


Figure 8.4: Comparaison entre mesures expérimentales et description théorique. Les paramètres de fit sont  $h = 650$  K et  $\alpha = 1.35$ .

Par ailleurs, les valeurs obtenues pour le champ d'échange sont cohérentes avec la température de Curie qui augmente linéairement avec la concentration  $x$  d'atomes de Ni et qui est de l'ordre de 20 K pour  $x = 0.48$  jusqu'à 150 K pour  $x = 0.57$ .

## 8.5 Conclusion

Pour conclure, le comportement du courant critique dépend de la diffusion magnétique, qui diminue la longueur caractéristique de son amplitude et augmente la période de ses oscillations. De plus, la prise en compte du spin-flip réduit fortement les valeurs théoriques, ce qui permet une meilleure description théorique des mesures expérimentales. Au contraire, la seule considération du champ d'échange comme mécanisme de destruction des paires est insuffisante pour expliquer les mesures obtenues.

# Chapitre 9

## Effet de proximité et aimantation d'une bicouche S/F

### 9.1 Introduction

L'effet de proximité dans les structures S/F et ses conséquences sur la température critique, la densité d'états et le courant critique sont des phénomènes très étudiés, comme on peut le constater à la lecture des chapitres précédents. Cependant, il existe une autre conséquence de l'effet de proximité, qui a été assez peu traitée jusqu'à présent : il s'agit de l'aimantation électronique dans chaque couche d'une bicouche S/F.

Un supraconducteur homogène étant diamagnétique ne possède pas d'aimantation. Cependant, il a été montré que la présence d'une couche ferromagnétique au contact d'une couche supraconductrice conduit à l'apparition d'une aimantation dans le supraconducteur, dans le régime diffusif [90, 91, 92] comme dans le régime balistique [93, 73, 92] (sans application de champ externe). Dans le régime balistique, l'aimantation induite est parallèle ou anti-parallèle à l'aimantation présente dans la couche F, selon les valeurs des paramètres. Dans le régime diffusif, les avis divergent : selon certains [91, 92], elle est toujours anti-parallèle, alors que pour d'autres [90] elle peut être soit parallèle soit anti-parallèle. L'aimantation induite dans le supraconducteur a été étudiée en fonction de la transparence de l'interface et du désordre au sein de la couche. Cependant, il serait intéressant et complémentaire de connaître son évolution en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique. En particulier, on peut se demander pour quelle épaisseur de la couche ferromagnétique l'aimantation induite dans la couche supraconductrice est la plus élevée.

De même, une couche ferromagnétique au contact d'un supraconducteur subit l'effet de proximité et son aimantation doit être aussi modifiée. D'ailleurs, Bergeret et *al.* [91] soulignent que l'aimantation du ferromagnétique est réduite à cause de la présence du supraconducteur. En fait, le caractère oscillatoire de la densité d'états de la couche ferromagnétique en fonction de la distance à l'interface (comme vu au chapitre 7) suggère

que l'aimantation d'une couche ferromagnétique au contact d'un supraconducteur n'est pas simplement réduite mais qu'elle est aussi modulée spatialement.

Dans ce chapitre sont développés les calculs permettant la description théorique de l'évolution de l'aimantation induite de la couche supraconductrice en fonction de l'épaisseur du ferromagnétique, ainsi que le changement de l'aimantation dans la couche ferromagnétique selon les conditions aux limites considérées et la présence ou non de diffusion magnétique.

## 9.2 Géométrie et principe du calcul

- Le système étudié est une bicouche S/F; l'axe  $x$  est choisi perpendiculaire à l'interface. L'aimantation dans la couche ferromagnétique due aux électrons de conduction est supposée être parallèle à l'interface et homogène.

- Le changement de l'aimantation  $\delta M$  que l'on considère dans chaque couche est du aux électrons de conduction. La couche supraconductrice isolée n'ayant pas d'aimantation, l'aimantation qu'elle acquiert au contact d'une couche ferromagnétique, notée  $M_s$ , est donc aussi le changement  $\delta M$ .

Au contraire, les électrons de conduction dans la couche ferromagnétique sont responsables du paramagnétisme de Pauli (noté  $M_p$ ). Dans la couche ferromagnétique,  $\delta M$  désigne la variation de l'aimantation due à l'effet de proximité, c'est-à-dire que l'aimantation totale de la couche ferromagnétique dans la bicouche est  $M_p + \delta M$ . Dans les deux cas,  $\delta M$  est défini par la relation

$$\delta M = \mu_B [\langle n_\uparrow(x) \rangle - \langle n_\downarrow(x) \rangle], \quad (9.1)$$

où  $\langle n_\sigma(x) \rangle$  est la densité électronique moyenne pour la projection de spin  $\sigma$  et  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr. Cette expression est valable dans un supraconducteur comme dans un ferromagnétique. Puis, connaissant l'expression de la densité d'états,  $\delta M$  s'écrit comme

$$\delta M = iN(0)\pi T\mu_B \sum_{\omega} (G_{\uparrow\uparrow} - G_{\downarrow\downarrow}). \quad (9.2)$$

- Si la température est proche de la température critique, la fonction de Green anormale devient faible,  $F \ll 1$ . De plus, étant donné la condition de normalisation  $G^2 + F^2 = 1$ , la fonction de Green normale peut s'écrire comme  $G(\omega) \sim 1 - \frac{F^2(\omega)}{2}$ . Alors,  $\delta M$  devient

$$\delta M = iN(0)\pi T\mu_B \sum_{\omega>0} (F^{*2}(\omega > 0) - F^2(\omega > 0)). \quad (9.3)$$

Pour déterminer  $\delta M$ , il faut donc connaître la fonction de Green anormale. En fait, dans un ferromagnétique, l'expression ci-dessus est aussi valable à toutes températures quand la distance à l'interface est grande (car les corrélations supraconductrices sont faibles).

### 9.3 Aimantation induite dans le supraconducteur

- Quelques études analytiques portent sur l'apparition d'une aimantation non nulle dans une couche supraconductrice au contact d'une couche ferromagnétique. Dans la référence [91], Bergeret et *al.* décrivent l'évolution des fonctions de Green dans une bicouche S/F à partir de l'équation d'Usadel et montrent que l'aimantation dans le ferromagnétique est réduite pendant que le supraconducteur acquiert une aimantation finie dans la direction opposée. Puis, dans la référence [92], Bergeret et *al.* présentent un modèle microscopique avec des paramètres arbitraires (degrés de désordre, transparences d'interface et épaisseurs de couche). Plus particulièrement, pour une bicouche fine, ils confirment que l'aimantation est négative dans la limite diffusive alors que selon la transparence de l'interface, elle peut être positive ou négative dans la limite balistique.

- Nous nous sommes intéressés à l'évolution de l'aimantation induite dans le supraconducteur en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique. Pour cela, considérons une couche S/F pour laquelle la couche supraconductrice est fine,  $d_s \ll \xi_s$ . Dans ce cas, le potentiel de paires, de même que la fonction de Green anormale  $F_s$  et par conséquent,  $\delta M$  peuvent être supposés indépendants de la distance à l'interface. Alors,  $F_s$  est donnée par l'expression déterminée au chapitre 4

$$F_s(x, \omega > 0) = \frac{\Delta}{\omega + \tau_{s0}^{-1}(\omega > 0)}, \quad (9.4)$$

où  $\tau_{s0}^{-1}(\omega > 0)$  a été défini dans le chapitre sur la température critique.

- L'aimantation induite dans le supraconducteur est déterminée par l'introduction de (9.4) dans l'expression (9.3) et en tenant compte du paramètre de l'interface s'écrit

$$M_s = -4N(0)\pi T\Delta^2\mu_B \sum_{\omega>0} \frac{(\omega + X)Y}{[(\omega + X)^2 + Y^2]^2}, \quad (9.5)$$

où

$$\begin{aligned} X &= \tilde{\tau}_0^{-1} \frac{A + \gamma_B(A^2 + B^2)}{1 + \gamma_B^2(A^2 + B^2) + 2\gamma_B A}, \\ Y &= \tilde{\tau}_0^{-1} \frac{B}{1 + \gamma_B^2(A^2 + B^2) + 2\gamma_B A}. \end{aligned} \quad (9.6)$$

Les fonctions  $A$  et  $B$  s'expriment comme

$$\begin{aligned} A &= \frac{\tanh(\tilde{d}_f/2) / \cos^2(\tilde{d}_f/2) - \tan(\tilde{d}_f/2) / \cosh^2(\tilde{d}_f/2)}{1 + \tanh^2(\tilde{d}_f/2) \tan^2(\tilde{d}_f/2)}, \\ B &= \frac{\tanh(\tilde{d}_f/2) / \cos^2(\tilde{d}_f/2) + \tan(\tilde{d}_f/2) / \cosh^2(\tilde{d}_f/2)}{1 + \tanh^2(\tilde{d}_f/2) \tan^2(\tilde{d}_f/2)}. \end{aligned}$$

- Tout d’abord, on peut remarquer que  $A$  et  $B$  sont toujours positives quelle que soit la valeur de l’épaisseur du ferromagnétique, ce qui implique que  $M_s$  est toujours négative, c’est-à-dire de sens contraire à l’aimantation dans le ferromagnétique. Ce résultat est en accord avec les calculs des références [91] et [92], mais contredit la référence [90].

Le signe de l’aimantation induite dans la couche supraconductrice peut être expliqué par un raisonnement qualitatif donné par Efetov et ses collaborateurs [91]. On suppose que les paires de Cooper sont des objets rigides constitués de deux électrons de spins opposés, de sorte que le moment magnétique total de la paire est nul. Les paires contenues dans le supraconducteur ne contribuent donc pas à l’aimantation de la couche. Par contre, les paires telles que l’un des électrons est dans la couche F pendant que l’autre est dans la couche S sont à l’origine de l’apparition d’une aimantation dans la couche S. En effet, l’électron de la paire contenu dans la couche F subit l’effet Zeemann, et a donc tendance à aligner son spin dans le sens de l’aimantation du ferromagnétique. Alors, nécessairement, l’électron associé et présent dans la couche S oriente son spin de façon anti-parallèle, ce qui crée une aimantation induite et anti-parallèle dans le supraconducteur.

Ce raisonnement est valable dans la limite diffusive, puisque dans la limite balistique l’aimantation induite peut être soit parallèle soit anti-parallèle. En fait, il ne semble pas exister de raisonnement équivalent dans la limite propre et l’on peut se demander dans quelle mesure celui-ci est applicable.

- Par ailleurs, on pourrait croire que l’effet de la couche ferromagnétique sur le supraconducteur, et par conséquent la valeur de l’aimantation induite, est d’autant plus fort que son épaisseur est grande. Mais en fait, l’expression précédente (9.5) révèle que l’évolution de  $M_s$  est non monotone en fonction  $d_f$ . De plus, l’aimantation induite atteint sa valeur maximale pour  $d_f \sim \xi_f$  et non pas pour une épaisseur très élevée. L’évolution de  $M_s$  est présentée dans la figure 9.1 pour une interface transparente.

- La présence de la barrière à l’interface conduit à une diminution de la valeur de l’aimantation induite dans le supraconducteur, comme l’illustre la figure 9.2. Ce résultat est en accord avec celui trouvé dans la référence [92] où  $\delta M$  est tracé en fonction du coefficient de transmission de l’interface : il y est montré que dans la limite diffusive le comportement de  $\delta M$  décroît de façon monotone avec ce coefficient.

## 9.4 Changement de l’aimantation dans la couche ferromagnétique

Le système étudié est une bicouche S/F constituée d’une couche ferromagnétique épaisse. Le changement que subit l’aimantation de la couche F à cause de la présence du supraconducteur est noté  $\delta M$  et est défini par la formule (9.2). Pour le déterminer, il faut donc obtenir l’expression de la fonction de Green anormale dans le ferromagnétique

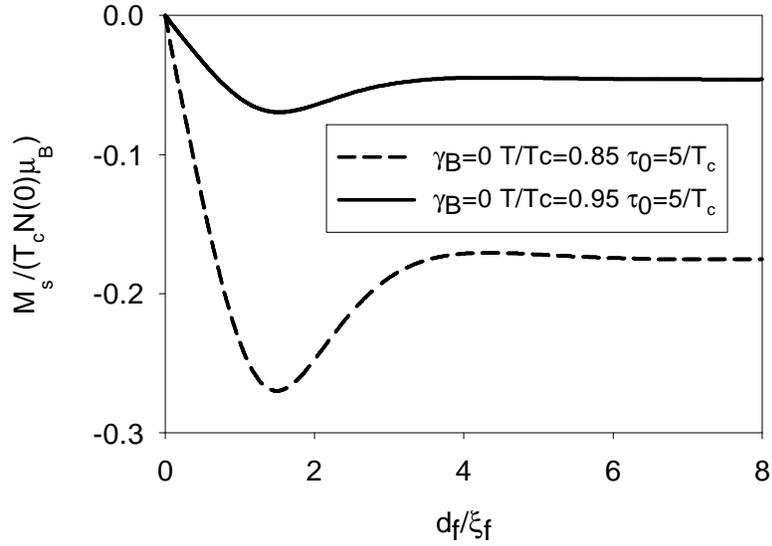


Figure 9.1: Evolution de l'aimantation induite (notée  $M_s$ ) dans le supraconducteur en contact avec une couche ferromagnétique. L'interface est complètement transparente.

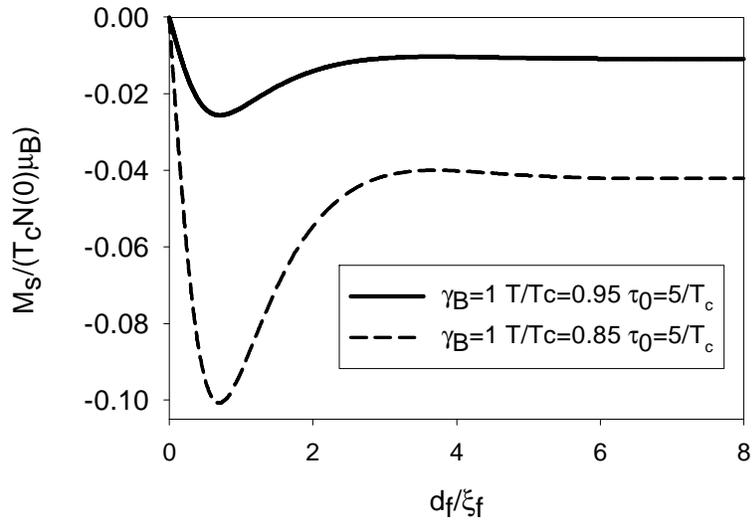


Figure 9.2: Evolution de l'aimantation induite dans le supraconducteur en contact avec une couche ferromagnétique. L'interface est telle que  $\gamma_B = 1$ .

en résolvant l'équation d'Usadel :

$$-\frac{D_f}{2} \frac{\partial^2 \Theta}{\partial x^2} + (\omega + ih + \alpha \cos \Theta) \sin \Theta = 0, \quad (9.7)$$

où  $\Theta$  est la fonction de paramétrisation telle que  $F = \sin \Theta$  and  $G = \cos \Theta$ . Je rappelle que le parametre  $\alpha$  est sans dimension et compare le champ d'échange au temps de diffusion magnétique. La fonction de Green anormale dépendant des conditions aux limites appliquées, plusieurs cas sont à considérer.

### 9.4.1 Conditions aux limites rigides

Quand la couche S est peu affectée par la présence de la couche F, les conditions rigides s'appliquent. Si la couche supraconductrice est fine, la fonction de Green dans le supraconducteur est

$$G_s = \frac{\omega}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}}. \quad (9.8)$$

Quand l'interface entre les couches ferromagnétique et supraconductrice est parfaitement transparente, une solution analytique de (9.7) peut être obtenue, comme exposé au chapitre précédent. La fonction de Green normale dans le ferromagnétique est alors de la forme [81, 56]

$$G_f(x, \omega) = 1 - 8 \frac{g_0 \exp(-2qx/\xi_f)}{1 - \mu^2}, \quad (9.9)$$

où

$$g_0 = \frac{(1 - \mu^2) \mathcal{F}(n)}{\left[ \sqrt{(1 - \mu^2) \mathcal{F}(n) + 1} + 1 \right]^2}, \quad (9.10)$$

et

$$\mathcal{F}(n) = \frac{(\Delta / (2\pi T))^2}{\left[ n + 1/2 + \sqrt{(n + 1/2)^2 + (\Delta / (2\pi T))^2} \right]^2}. \quad (9.11)$$

Le paramètre  $\mu$  est défini par  $\mu^2 = \frac{\alpha}{\alpha + i}$ .

- A partir de ces expressions, l'aimantation  $\delta M$  peut être déduite par calculs numériques avec l'introduction de l'expression (9.9) dans la formule (9.2). La figure 9.3 illustre l'évolution de  $\delta M$  en fonction de la distance à l'interface S/F. Comme on peut le constater,  $\delta M$  acquiert un comportement oscillant, c'est-à-dire que la présence de la supraconductivité implique la modulation spatiale de l'aimantation dans le ferromagnétique. En particulier,  $\delta M$  peut devenir positif; dans ce cas la supraconductivité renforce l'aimantation dans la couche ferromagnétique.

- Par ailleurs, la diffusion magnétique conduit à une réduction de l'amplitude de  $\delta M$ , ce qui est à prendre en compte pour les expériences.

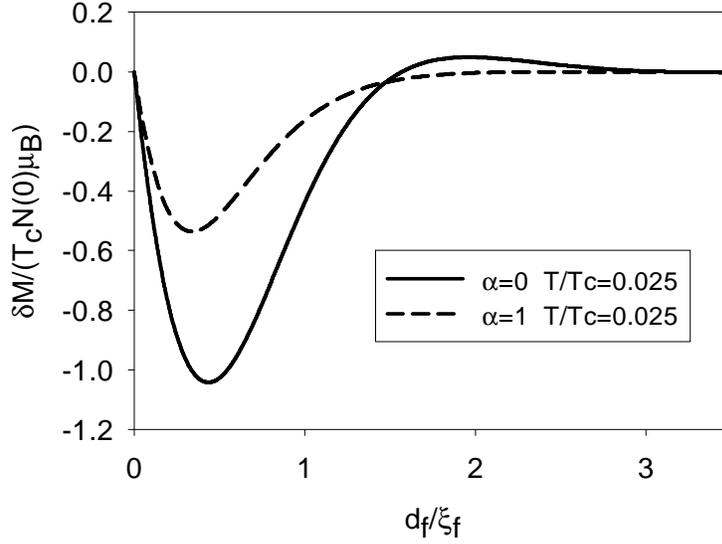


Figure 9.3: Evolution du changement de l'aimantation dans la couche ferromagnétique au contact d'un supraconducteur avec et sans diffusion magnétique.

- En utilisant la fonction de Green anormale dans la couche ferromagnétique déterminée au chapitre précédent, et considérant que, quand la distance à l'interface S/F est grande,  $G_f(\omega > 0) \sim 1 - F_f^2/2$ , l'aimantation dans la couche ferromagnétique sans diffusion magnétique s'écrit

$$\delta M = -16N(0)\pi T\mu_B \exp(-2x/\xi_f) \sin(2x/\xi_f) \sum_{\omega} \frac{\mathcal{F}(n)}{(\sqrt{\mathcal{F}(n)+1}+1)^2}. \quad (9.12)$$

Pour une température proche de la température critique, l'expression se simplifie et devient

$$\delta M = -\frac{N(0)\pi\mu_B\Delta^2}{4T} \exp(-2x/\xi_f) \sin(2x/\xi_f). \quad (9.13)$$

Dans ce cas, l'expression (9.13) est valable quelle que soit la distance à l'interface. On peut par ailleurs noter que  $\delta M$  s'annule à l'interface ( $x = 0$ ), ce qui est directement lié avec le fait que les conditions rigides s'appliquent.

En présence de diffusion magnétique, la modification de l'aimantation se transforme en

$$\delta M = -\frac{N(0)\pi\mu_B\Delta^2}{4T} \exp(-2x/\xi_{f1}) \sin(2x/\xi_{f2}). \quad (9.14)$$

où les longueurs caractéristiques sont  $\xi_{f1} = \xi_f / (\sqrt{1 + \alpha^2} + \alpha)$  et  $\xi_{f2} = \xi_f / (\sqrt{1 + \alpha^2} - \alpha)$ .

La diffusion magnétique est donc responsable de la diminution de la longueur caractéristique de décroissance et l'augmentation de la période des oscillations.

## 9.4.2 Conditions Kuprianov-Lukichev

• Quand l'équation d'Usadel linéarisée est valable, la fonction de Green anormale s'écrit comme

$$F_f(x, \omega > 0) = \frac{\Delta}{\sqrt{\omega^2 + \Delta^2}} \frac{1 + \tilde{\gamma} - i\tilde{\gamma}}{1 + 2\tilde{\gamma}^2 + 2\tilde{\gamma}} \exp\left(-\frac{1+i}{\xi_f}x\right),$$

où  $\tilde{\gamma} = \frac{\xi_n}{\xi_f} \gamma_B$ . Alors, le changement dans l'aimantation devient

$$\delta M = -\frac{N(0)\pi\Delta\mu_B}{2} \tanh\left(\frac{\Delta}{2T}\right) \exp(-2x/\xi_f) \frac{2(1+\tilde{\gamma})\tilde{\gamma} \cos(2x/\xi_f) + (1+2\tilde{\gamma}) \sin(2x/\xi_f)}{(1+2\tilde{\gamma}^2+2\tilde{\gamma})^2}. \quad (9.15)$$

Comme le montre la formule précédente (9.15),  $\delta M$  a dans ce cas aussi un comportement oscillatoire. De plus, le changement d'aimantation est d'autant plus fort que la température est faible et la transparence grande. Si  $\gamma_B = 0$ , l'expression (9.15) est valable pour des températures proches de la température critique. Dans cette limite, le terme  $\tanh(\Delta/(2T))$  peut être approximé par  $\Delta/(2T)$  et l'expression (9.15) se simplifie pour devenir égale à (9.13).

• Quand la couche supraconductrice est affectée par la présence de la couche ferromagnétique, les conditions rigides ne s'appliquent plus. Alors, la fonction de Green dans la couche S n'est plus celle d'un supraconducteur homogène. Si la couche S est fine  $d_s \ll \xi_s$ ,  $F_s$  est donnée par l'expression (9.4).

Alors si  $\gamma_B = 0$ , la fonction de Green dans la couche ferromagnétique s'écrit comme

$$F_f(\omega > 0) = \frac{\Delta}{\omega + \tau_0^{-1}} \exp\left(-\frac{1+i}{\xi_f}x\right), \quad (9.16)$$

où  $\tau_0^{-1} = \frac{D_s}{d_s} \frac{\sigma_n}{\sigma_s} \frac{1}{\xi_f}$ . Finalement, le changement dans l'aimantation de la couche ferromagnétique est

$$\delta M = -2N(0)\pi T \Delta^2 \mu_B \exp(-2x/\xi_f) [A(\omega) \sin(2x/\xi_f) + B(\omega) \cos(2x/\xi_f)], \quad (9.17)$$

où

$$\begin{aligned} A(\omega) &= \sum_{\omega>0} \frac{\omega(\omega + 2\tau_0^{-1})}{\left((\omega + \tau_0^{-1})^2 + \tau_0^{-2}\right)^2}, \\ B(\omega) &= \sum_{\omega>0} \frac{2\tau_0^{-1}(\omega + \tau_0^{-1})}{\left((\omega + \tau_0^{-1})^2 + \tau_0^{-2}\right)^2}. \end{aligned} \quad (9.18)$$

Si le paramètre de destruction des paires est faible,  $\tau_0^{-1} \ll 1$ , l'expression (9.17) se simplifie en (9.13), ce qui est attendu puisque dans cette limite l'effet de proximité inverse est négligeable et les conditions aux limites deviennent les conditions rigides.

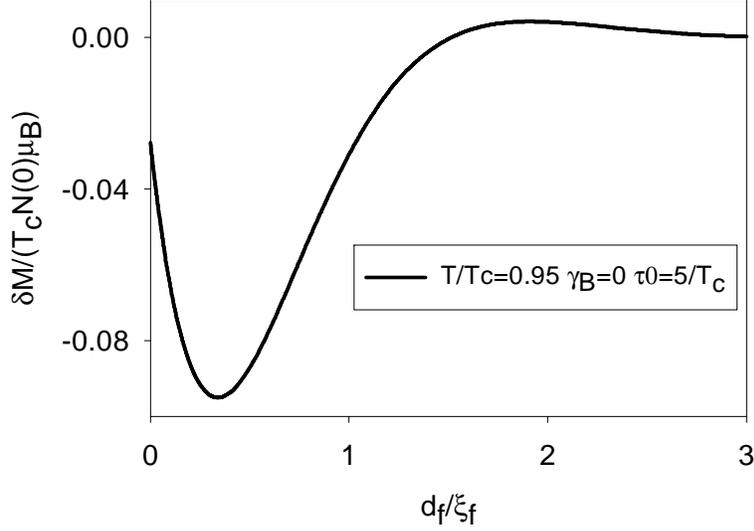


Figure 9.4: Evolution du changement de l'aimantation dans la couche ferromagnétique en fonction de la distance à l'interface. A l'interface, l'aimantation est réduite du fait de la présence du supraconducteur.

Au contraire, si le paramètre de destruction des paires est élevé, on retrouve que l'effet de proximité inverse conduit à l'aimantation de la couche supraconductrice. A l'interface S/F, la valeur de  $\delta M$  est la même pour les deux couches en contact et comme le montre l'expression (9.17), cette valeur est négative. On retrouve donc que l'aimantation induite dans le supraconducteur est anti-parallèle. La présence du supraconducteur conduit à la réduction de l'aimantation du ferromagnétique, comme souligné dans [91] et représenté dans la figure 9.4.

Si l'interface est très peu transparente, la fonction de Green anormale est

$$F_f(x, \omega > 0) = \frac{\Delta(1-i)}{2\tilde{\gamma}(\omega + \tau_0^{-1}/\tilde{\gamma})} \exp\left(-\frac{1+i}{\xi_f}x\right), \quad (9.19)$$

où  $\tilde{\gamma} = \frac{\xi_n}{\xi_f} \gamma_B$ . Dans ce cas,  $\delta M$  est

$$\delta M = -N(0)\pi T \frac{\Delta^2}{\tilde{\gamma}^2} \mu_B \exp(-2x/\xi_f) \cos(2x/\xi_f) \sum_{\omega>0} \frac{1}{\left(\omega + \frac{\tau_0^{-1}}{\tilde{\gamma}}\right)^2}. \quad (9.20)$$

On remarque que, dans ce cas encore,  $\delta M$  acquiert un caractère oscillatoire. Cependant, le changement dans l'aimantation est faible puisque proportionnel à l'inverse de  $\gamma_B^2$ .

## 9.5 Conclusion

Dans le supraconducteur, nous avons obtenu que l'aimantation qui apparaît est anti-parallèle à l'aimantation dans la couche ferromagnétique. Nous avons montré que cette aimantation induite dépend de façon non monotone de l'épaisseur de la couche ferromagnétique et que sa valeur maximale est atteinte quand la couche ferromagnétique a une épaisseur de l'ordre de  $\xi_f$ . Dans la couche ferromagnétique, nous avons établi que le changement d'aimantation local est modulé spatialement et non pas simplement réduit comme précédemment avancé.

## Partie II

# Coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme



# Chapitre 10

## Etude de la structure en domaines des composés à la fois supraconducteurs et ferromagnétiques

### 10.1 Introduction

En 1979, Steglich et *al.* [94] ont montré que le composé  $\text{CeCu}_2\text{Si}$ , dans lequel la masse effective des électrons est de l'ordre d'une centaine de fois la masse d'un électron libre, est supraconducteur, ouvrant la voie à l'étude des systèmes appelés "fermions lourds". Dans ces systèmes, les masses effectives sont très élevées du fait de la délocalisation des électrons 4f. Plus récemment, la découverte spectaculaire du caractère supraconducteur du fermion lourd  $\text{UGe}_2$  dans sa phase ferromagnétique [9] a été une surprise et constitue la toute première preuve de coexistence de la supraconductivité et du ferromagnétisme.

Depuis la découverte de ce premier "supraconducteur ferromagnétique", d'autres composés présentant simultanément des propriétés supraconductrices et ferromagnétiques ont été mis en évidence. De nombreuses questions sont soulevées par cette nouvelle classe de matériaux. Par exemple, la supraconductivité qui apparaît est sans doute non conventionnelle (type triplet) : le domaine de coexistence est au-delà de la limite paramagnétique, ce qui suggère que seul l'effet orbital intervient et donc qu'il ne s'agit pas de supraconductivité conventionnelle. Cependant, des études sont en cours pour comprendre en détail ce qui se passe au niveau microscopique [95, 96].

Nous nous sommes intéressés à l'évolution des domaines ferromagnétiques quand l'échantillon devient supraconducteur. En particulier, on peut se demander si la supraconductivité conduit à un élargissement ou au contraire à une densification de la structure

des domaines. En fait, cette question a été traitée auparavant par Sonin [22] dans la limite où la longueur de pénétration du champ est nulle. Il en a conclu que l'état Meissner est incompatible avec une structure en domaines, ce qui signifie qu'un supraconducteur ferromagnétique est mono-domaine. Cependant, il n'a pas tenu compte de l'énergie des parois dans son calcul. D'autre part, quand un film ferromagnétique est déposé sur un supraconducteur, la supraconductivité contribue au renforcement de l'énergie magnétique et conduit à une réduction de la taille des domaines [21]. Pour comprendre ces résultats qui semblent contradictoires, nous avons étudié l'évolution de la structure en domaines d'un film de grande anisotropie magnéto-cristalline dont l'aimantation est perpendiculaire à l'une des faces. Nous avons considéré le cas général d'une longueur de pénétration arbitraire.

Tout d'abord, je présente les composés susceptibles d'être des supraconducteurs ferromagnétiques. Ensuite, je décris la méthode de calculs qui a été utilisée dans des travaux précédents portant sur l'influence d'un supraconducteur déposé sur un film ferromagnétique. Puis, je détaille les calculs qui mènent à la détermination de la largeur des domaines à l'équilibre pour un film à la fois supraconducteur et ferromagnétique. Enfin, pour compléter l'étude, l'apparition de vortex est envisagée et son influence sur la structure en domaines discutée.

## 10.2 Données expérimentales

- L'étude de poly-cristaux puis de mono-cristaux du composé  $UGe_2$  ont montré que supraconductivité et ferromagnétisme peuvent coexister. Plus précisément, le diagramme de phase de  $UGe_2$  révèle que pour des pressions comprises entre 10 et 15 kbar et pour des températures inférieures à 1 K, une phase supraconductrice apparaît dans l'état ferromagnétique. Ces résultats ont été obtenus en 2001 par Saxena *et al.* [9, 97]. Les caractéristiques prouvant la supraconductivité de l'échantillon et qui ont été observées expérimentalement sont : la chute brutale (avec annulation) de la résistivité à la transition supraconductrice, l'effet Meissner (par des mesures de susceptibilités *a.c.*), ainsi que la discontinuité de la chaleur spécifique à la température critique. De plus, des expériences de diffusion de neutrons ont montré que le composé supraconducteur est toujours dans la phase ferromagnétique.

- De même, le composé URhGe est un "supraconducteur ferromagnétique" [10] à pression atmosphérique. Il présente une chute brutale de la résistivité, une anomalie de la chaleur spécifique et l'effet Meissner.

- La supraconductivité a été établie pour le fer dans la phase  $\epsilon$  (pour des températures inférieures à 2 K pour des pressions entre 15 et 30 GPa) par des mesures de résistivité (chute et annulation), ainsi qu'un faible signal Meissner (détecté par un changement de

l'aimantation à la transition supraconductrice) [12, 98]. Etant donné l'importance du fer dans le magnétisme de la Terre, on comprend l'intérêt qu'ont suscité ces résultats. Par ailleurs, il se pourrait que dans cette phase, le fer ne soit pas ferromagnétique mais plutôt anti-ferromagnétique; cependant il n'y a pas encore de certitude à ce propos.

- Matthias et Bozorth ont découvert en 1958 que le composé  $ZrZn_2$  est ferromagnétique [99]. En 2001, celui-ci est devenu un "supraconducteur ferromagnétique" potentiel quand la chute brutale de la résistivité a été observée dans des mono-cristaux (mais sans annulation) [11]. Cependant, aucune anomalie de la chaleur spécifique n'a été détectée. En 2005, Yelland *et al.* [100] ont réalisé des mesures (de résistivité, susceptibilité, chaleur spécifique et rayons X) qui permettent d'affirmer que la supraconductivité n'est pas une propriété intrinsèque du composé mais une conséquence de la méthode de découpage utilisée : quand l'échantillon est obtenu par "spark erosion", une couche supraconductrice est créée à la surface du composé, alors que si une autre méthode est employée (gravure), l'échantillon ne présente pas de propriétés supraconductrices.

## 10.3 Etude dans l'état normal

### 10.3.1 Géométrie et hypothèses

- Le système étudié est un parallélépipède ferromagnétique d'épaisseur  $2L_z$  selon l'axe  $z$  et de dimensions  $L_x$  et  $L_y$  selon les axes  $x$  et  $y$  respectivement (telles que  $L_z$  est plus petite que  $L_x$  et  $L_y$ ).

- On suppose que l'échantillon présente une symétrie uniaxe dont l'axe d'aimantation facile est l'axe  $z$  et dont les domaines sont en ruban, comme présenté dans la figure 10.1 ci-dessous. Les domaines sont séparés par des parois dont la largeur est notée  $w$ .

- De plus, on considère l'aimantation homogène dans chaque domaine, ce qui implique que la taille des parois est beaucoup plus petite que la largeur des domaines.

Quand la température devient plus faible que la température critique, l'échantillon devient supraconducteur, tout en restant ferromagnétique. Le but de notre étude est de déterminer quelle est alors l'évolution de la structure en domaines. Mais avant de présenter nos calculs, il me semble préférable de décrire un peu plus précisément l'organisation du composé dans l'état normal.

### 10.3.2 Détermination de la largeur des parois

Les parois sont les interfaces entre domaines et correspondent au meilleur compromis entre les termes d'énergie qui entrent en jeu : l'énergie d'échange d'une part et l'énergie d'anisotropie d'autre part.

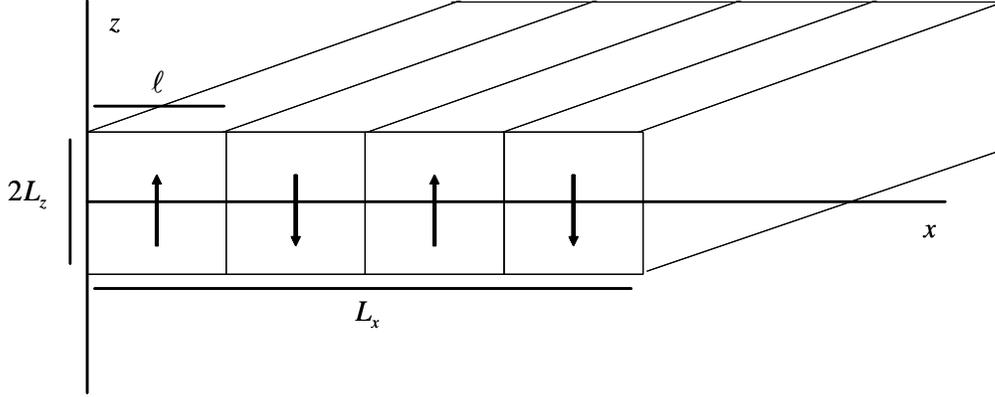


Figure 10.1: Géométrie du système étudié. L'échantillon est un parallélépipède de longueurs  $L_x$ ,  $L_y$  et  $2L_z$ . La largeur des domaines est  $\ell$  et la largeur des parois  $w$  ( $w$  n'est pas représentée sur le schéma). Les flèches dans chaque domaine représentent l'aimantation.

- D'origine quantique, l'énergie d'échange tend à aligner les moments parallèlement les uns aux autres; elle favorise donc une aimantation uniforme. A l'interface entre deux domaines, deux moments magnétiques adjacents ne sont pas dans la même direction mais ils font un angle, générant une élévation locale de l'énergie d'échange. Ce surcoût d'énergie est atténué si l'angle entre les deux moments est faible, c'est-à-dire si la paroi est épaisse. L'énergie d'échange dans la paroi par unité de surface est  $E_{ech}^{paroi} = \frac{\Theta}{2aw}$ , où  $a$  est la distance interatomique et  $\Theta$  est la valeur absolue de l'énergie d'échange entre deux voisins parallèles.

- L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline est due à l'interaction entre les orbitales des électrons magnétiques et le champ électrique des ions environnants. Elle s'écrit comme  $E_{anis}^{paroi} = \frac{Kw}{2a^3}$ , où  $K$  est la constante d'anisotropie magnéto-cristalline; elle favorise donc les parois étroites.

- L'énergie par unité de surface de la paroi est  $E_{paroi} = E_{ech}^{paroi} + E_{anis}^{paroi}$ , dont la minimisation par rapport à  $w$  conduit à l'expression de la largeur de la paroi à l'équilibre :  $w = \sqrt{\Theta/K}a$ . Alors, à l'équilibre, l'énergie de la paroi est  $E_{paroi} = \frac{\sqrt{\Theta K}}{a^2} = \frac{Kw}{a^3}$ .

Par ailleurs, la constante  $K$  est liée à l'interaction dipolaire  $\Theta_{em} = 2\pi M_0^2 a^3$ , de sorte que l'énergie de la paroi peut se réécrire comme  $E_{paroi} = M_0^2 \tilde{w}$  où  $\tilde{w}$  peut être définie comme l'épaisseur effective des parois, avec  $\tilde{w} = 2\pi w \frac{K}{\Theta_{em}}$ .

- L'énergie totale due aux parois est  $E_{paroi} L_z \frac{L_x}{\ell} L_y$ , donc par unité de longueur est  $F_{DW} = E_{paroi} L_z \frac{L_x}{\ell}$ . Enfin, l'énergie due aux parois par unité de surface dans le plan  $(x, y)$  est

$$\mathcal{F}_{DW} = E_{\text{paroi}}L_z/\ell = \tilde{w}M_0^2L_z/\ell. \quad (10.1)$$

### 10.3.3 Détermination de la largeur des domaines dans l'état normal

La répartition en domaines dans les substances ferromagnétiques résulte d'un équilibre entre l'énergie magnétique et l'énergie des parois. L'énergie magnétique  $E_{\text{magn}}$  favorise les domaines petits de façon à réduire le champ démagnétisant :  $E_{\text{magn}} \sim M_0^2\ell$ . Au contraire, l'énergie des parois favorise les grands domaines, comme le montre l'expression (10.1).

L'énergie totale est alors  $E_{\text{magn}} + \mathcal{F}_{DW}$ , dont la minimisation conduit au résultat connu pour l'expression de la largeur des domaines [102], à savoir  $\ell \propto \sqrt{\tilde{w}L_z}$ .

## 10.4 Etude de la structure en domaines dans un film ferromagnétique à la surface d'un supraconducteur

L'influence de la supraconductivité sur la structure en domaines ferromagnétiques a déjà été étudiée pour une bicouche S/F dans les références [21], et son influence maximale est de l'ordre de 20%, comme nous le voyons dans cette partie. Au contraire, quand le composé est à la fois supraconducteur et ferromagnétique, la supraconductivité a un effet beaucoup plus fort [101], comme nous le verrons dans la section suivante.

### 10.4.1 Principe

Dans ces études, une couche supraconductrice est déposée sur un film ferromagnétique. De plus, il est supposé que soit le ferromagnétique est isolant, soit les deux couches sont séparées par une barrière isolante, ce qui permet de négliger l'effet paramagnétique et de ne considérer que l'effet orbital. La géométrie et les hypothèses présentées ci-dessus sont toujours valables, à condition que l'échantillon ne devienne pas supraconducteur.

- Le principe de la méthode est de déterminer l'énergie totale du système en fonction des paramètres et de la minimiser. Celle-ci se compose de quatre termes : l'énergie dans la couche supraconductrice, dans la couche ferromagnétique, l'énergie des parois et l'énergie dans le vide qui les entoure.

Pour calculer l'énergie, il faut spécifier la distribution magnétique en utilisant la divergence nulle de l'induction  $\mathbf{B}$ , l'équation de London dans le supraconducteur et l'équation de Laplace dans le vide, ainsi que les continuités des composantes de l'induction selon  $x$  et  $z$ .

## 10.4.2 Résultats

Ces études montrent que l'effet de la couche supraconductrice est de réduire la taille des domaines ferromagnétiques. On peut comprendre ce résultat de la façon suivante : la présence du supraconducteur, qui expulse le champ magnétique quand  $\ell > \lambda$ , concentre les lignes magnétiques à l'interface S/F et renforce l'énergie magnétique, réduisant ainsi la largeur des domaines à l'équilibre.

De plus, l'influence du supraconducteur est d'autant plus forte que la couche S est épaisse, et que la longueur de pénétration est faible. La réduction maximale des domaines est de l'ordre de 20%.

## 10.5 Calculs dans l'état Meissner

Nous nous intéressons à l'évolution de la taille des domaines ferromagnétiques quand la température devient inférieure à la température critique. Pour cela, nous supposons dans cette partie que l'aimantation est faible et décrivons l'état Meissner par opposition à la structure contenant des vortex dont il sera question dans la section suivante. Sonin a déjà conclu dans la référence [22] que l'état Meissner est incompatible avec la structure en domaines. Autrement dit, selon lui, dès que l'échantillon devient supraconducteur, il devient aussi mono-domaine. Cependant, le raisonnement de Sonin est qualitatif et ne s'appuie pas par des calculs.

### 10.5.1 Hypothèses

- La géométrie est présentée dans la section 1. Je rappelle que l'aimantation  $\mathbf{M}$  est supposée homogène dans chaque domaine et de norme  $M_0$ , ce qui implique que la taille des domaines est beaucoup plus grande que celle des parois,  $\ell \gg w$ . Étant donnée la forte anisotropie magnéto-cristalline des supraconducteurs ferromagnétiques, on considère que l'aimantation dans les domaines ne peut être que parallèle ou anti-parallèle aux parois des domaines; il n'y a donc pas de domaines de fermeture à envisager. L'aimantation peut être approximée par une fonction créneau  $\mathbf{M} = M(x) \mathbf{e}_z$ , avec  $M(x) = \pm M_0$ .

- De manière générale, la largeur des parois est supposée être la plus petite longueur du système. En particulier, elle est plus faible que la longueur de pénétration London notée  $\lambda$ , c'est-à-dire que  $w \ll \min(\ell, \lambda)$ . Cette hypothèse permet de ne pas tenir compte de la modification d'énergie des parois due à la supraconductivité.

## 10.5.2 Contributions à l'énergie

Le but de cette étude est de déterminer l'état d'équilibre du ferromagnétique soumis à une température plus faible que la température critique et qui devient donc supraconducteur (tout en demeurant ferromagnétique). En d'autres termes, il s'agit d'établir l'état d'équilibre d'un échantillon à la fois supraconducteur et ferromagnétique. Pour cela, il faut minimiser l'énergie totale du système, qui est constituée de l'énergie magnétique, de l'énergie cinétique des courants supraconducteurs ainsi que le coût d'énergie généré par les parois.

Etant donnée la configuration du système, les grandeurs (champ magnétique, induction et aimantation) ne dépendent pas de  $y$ , ce qui conduit à s'intéresser aux contributions énergétiques par unité de longueur suivant l'axe  $y$ .

- L'énergie magnétique notée  $F_M$  s'écrit

$$F_M(\mathbf{B}, \mathbf{M}) = \frac{1}{8\pi} \int dx dz (\mathbf{B} - 4\pi\mathbf{M})^2, \quad (10.2)$$

dans le matériau et dans le vide (avec  $\mathbf{M} = \mathbf{0}$ ).

- L'énergie cinétique des courants supraconducteurs  $F_{SC}$  est donnée par

$$F_{SC}(\mathbf{B}, \mathbf{M}) = \frac{1}{8\pi} \int dx dz \left[ \lambda^2 \left( \vec{\nabla} \times (\mathbf{B} - 4\pi\mathbf{M}) \right)^2 \right], \quad (10.3)$$

- L'énergie due aux parois est

$$F_{DW} = \tilde{w} M_0^2 L_z L_x / \ell. \quad (10.4)$$

- L'énergie totale du système est la somme de ces trois termes

$$F(\mathbf{B}, \mathbf{M}) = F_M(\mathbf{B}, \mathbf{M}) + F_{SC}(\mathbf{B}, \mathbf{M}) + F_{DW},$$

## 10.5.3 Détermination de la distribution de l'induction magnétique

Pour déterminer l'énergie du système, il faut connaître la distribution de l'induction magnétique  $\mathbf{B}$  dans l'échantillon supraconducteur ferromagnétique et dans le vide qui l'entoure. Pour cela, il faut tenir compte de la divergence nulle de l'induction  $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$  ainsi que de l'équation de Laplace dans le vide :  $\Delta \mathbf{B} = \mathbf{0}$  et de l'équation de London dans le matériau,  $\Delta (\mathbf{B} - 4\pi\mathbf{M}) = \lambda^{-2} \mathbf{B}$ . Il faut aussi considérer la continuité des composantes  $B_x$  et  $B_z$  (respectivement selon les axes  $x$  et  $z$ ) à l'interface entre le composé et le vide. De plus, l'aimantation est représentée par une fonction créneau; sa transformée de Fourier est donc

$$M(x) = \frac{4M_0}{\ell} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\sin(qx)}{q},$$

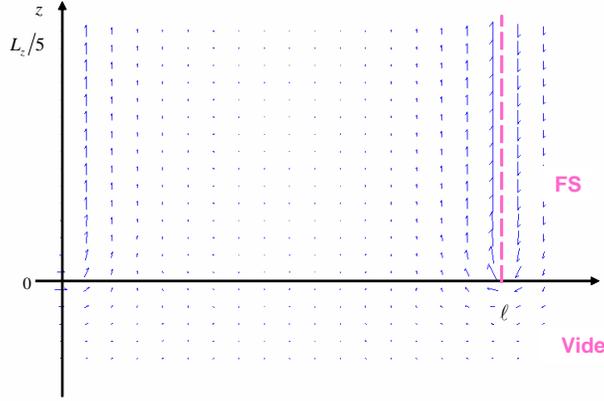


Figure 10.2: Distribution de l'induction  $\mathbf{B}$  pour un échantillon avec  $L_z = 1$  mm,  $\ell = 10$   $\mu\text{m}$  et  $\lambda = 0.5$   $\mu\text{m}$ .

où  $q = (2k + 1)\pi/\ell$ . Finalement, on peut en déduire l'induction sous forme d'une série de Fourier de. Près de l'interface à  $z = L_z$ , elle s'écrit dans l'échantillon comme

$$\mathbf{B}(x, z) = \sum_{k=0}^{\infty} -C(q)e^{qz(z-L_z)} \cos(qx)\mathbf{e}_x + \sum_{k=0}^{\infty} \left( -\frac{q}{q_z} C(q)e^{qz(z-L_z)} + \frac{q}{q_z^2} \frac{16\pi M_0}{\ell} \right) \sin(qx)\mathbf{e}_z, \quad (10.5)$$

et dans le vide pour  $z > L_z$

$$\mathbf{B}(x, z) = -\sum_{k=0}^{\infty} C(q)e^{-q(z-L_z)} \cos(qx)\mathbf{e}_x + \sum_{k=0}^{\infty} C(q)e^{-q(z-L_z)} \sin(qx)\mathbf{e}_z, \quad (10.6)$$

où  $q_z = \sqrt{q^2 + \lambda^{-2}}$  et  $C(q) = \frac{q}{q_z} \frac{1}{q + q_z} \frac{16\pi M_0}{\ell}$ . La distribution de l'induction près de l'interface  $z = -L_z$  s'obtient facilement par symétrie. Tant que la condition  $q_z L_z \gg 1$  est remplie, les deux distributions peuvent être traitées indépendamment l'une de l'autre.

La figure 10.2 ci-après illustre l'évolution de l'induction magnétique dans l'échantillon et dans le vide. On voit que les courants supraconducteurs écrantent effectivement l'induction dans les domaines. Par contre, l'écrantage n'est que partiel autour des parois.

### 10.5.4 Energie totale du système

L'introduction de la distribution de l'induction dans les expressions des trois termes énergétiques (10.2), (10.4) et (10.3) permet de déterminer l'énergie du système par unité

de surface ( $\mathcal{F} = F/L_x$ )

$$\begin{aligned} \mathcal{F} = & 32\pi M_0^2 \sum_{k=0}^{\infty} \frac{L_z \ell^2}{\pi^4 \lambda^2 (2k+1)^2 \left( (2k+1)^2 + \frac{\ell^2}{\pi^2 \lambda^2} \right)} + \\ & 32\pi M_0^2 \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\ell}{\pi^3 \left( (2k+1)^2 + \frac{\ell^2}{\pi^2 \lambda^2} \right)^{\frac{3}{2}} \left( 1 + \sqrt{1 + \frac{\ell^2}{\pi^2 \lambda^2} \frac{1}{(2k+1)^2}} \right)} + \mathcal{F}_{DW}, \end{aligned} \quad (10.7)$$

### 10.5.5 Détermination de la largeur des domaines dans l'état normal

Tout d'abord, l'énergie du système dans l'état normal s'obtient à partir de l'expression ci-dessus dans la limite où  $\lambda$  devient infinie et s'écrit comme

$$\mathcal{F} = \frac{14}{\pi^2} \zeta(3) M_0^2 \ell + \tilde{w} M_0^2 \frac{L_z}{\ell}, \quad (10.8)$$

Dans ce cas la minimisation de  $\mathcal{F}$  par rapport à  $\ell$  permet d'établir la largeur d'équilibre du système dans l'état normal, autrement dit  $\ell_N$

$$\ell_N = \sqrt{\tilde{w} L_z} \sqrt{\pi^2 / (14\zeta(3))} \sim \sqrt{\tilde{w} L_z} \quad (10.9)$$

On retrouve alors le résultat obtenu dans la référence [102]. L'énergie des parois peut donc se réécrire

$$\mathcal{F}_{DW} = \frac{14}{\pi^2} \zeta(3) M_0^2 \frac{\ell_N^2}{\ell} \quad (10.10)$$

### 10.5.6 Détermination de la largeur des domaines dans l'état supraconducteur

Dans l'état supraconducteur, la détermination de la largeur à l'équilibre  $\ell$  s'obtient à partir de la minimisation de la formule complète pour l'énergie (10.7). Avant de considérer le cas général, des simplifications peuvent être faites selon que la largeur des domaines est beaucoup plus grande ou petite que la longueur de pénétration,  $\ell \ll \lambda$  ou  $\ell \gg \lambda$ .

#### Cas limites

- Dans le cas où  $\ell \ll \lambda$ , l'énergie totale devient

$$\mathcal{F} = 32\pi M_0^2 \left( \frac{1}{96} \frac{L_z \ell^2}{\lambda^2} + \frac{7}{16} \zeta(3) \frac{\ell}{\pi^3} \right) + \frac{14}{\pi^2} \zeta(3) M_0^2 \frac{\ell_N^2}{\ell}. \quad (10.11)$$

La comparaison des termes composant l'expression (10.11) permet de distinguer trois cas. Tout d'abord, si  $\lambda \gg (\tilde{w}L_z^3)^{1/4}$ , le nouvel état d'équilibre diffère peu de l'état normal et s'écrit comme

$$\ell = \ell_N \left( 1 - \frac{\pi^3}{42\zeta(3)} \frac{L_z \ell_N}{\lambda^2} \right). \quad (10.12)$$

L'effet de la supraconductivité dans ce cas est donc d'introduire une correction négative à la largeur d'équilibre dans l'état normal. La supraconductivité conduit donc à une réduction de la taille des domaines. D'un point de vue énergétique, on constate que l'énergie dans l'état monodomaine qui s'écrit  $\mathcal{F}_M = 4\pi M_0^2 L_z$  est plus élevée que l'énergie donnée par (10.11), qui est de l'ordre de  $\mathcal{F} \sim M_0^2 \sqrt{\tilde{w}L_z}$ . La structure en domaines est donc bien favorable énergétiquement.

Puis, quand  $\lambda$  diminue et si  $\lambda \ll (\tilde{w}L_z^3)^{1/4}$ , le second terme (10.11) est négligeable et la minimisation de  $\mathcal{F}$  donne

$$\ell = \left( \frac{3\lambda^2 \tilde{w}}{2\pi} \right)^{1/3} \left[ 1 - \frac{7\zeta(3)}{\pi^{8/3}} \left( \frac{2}{3} \right)^{1/3} \frac{\lambda^{4/3}}{L_z \tilde{w}^{1/3}} \right]. \quad (10.13)$$

Dans ce cas, la principale contribution à l'énergie magnétique est due à l'écrantage partiel du champ par les supracourants. L'énergie peut être approximée par

$$\mathcal{F} \sim M_0^2 (L_z \ell) / \lambda^2 \sim M_0^2 L_z (\tilde{w}/\lambda)^{2/3} \ll \mathcal{F}_M, \quad (10.14)$$

La structure en domaines est dans ce cas encore favorable comparée à l'état monodomaine.

De plus, Krey [103] a montré en 1972 que la taille des domaines d'un volume est de la forme de (10.13). La structure que nous considérons n'est pas volumique puisqu'il s'agit d'un film; cependant le film est assimilable à un volume pour des grandes valeurs de  $L_z$ , ce qui explique que l'expression précédente concorde avec celle obtenue par Krey. De plus, le terme correctif à (10.13) est proportionnel à  $\frac{\lambda^{4/3}}{L_z \tilde{w}^{1/3}}$ . Il dépend de l'épaisseur du film, ce qui montre que cette expression ne peut pas être déduite du cas volumique mais qu'elle est spécifique d'un film.

• Dans la limite  $\lambda \ll \ell$ , on peut remplacer les sommes apparaissant dans l'expression (10.7) par des intégrales. L'énergie totale devient

$$\mathcal{F} = 4M_0^2 \pi L_z \left( 1 - 2\frac{\lambda}{\ell} \right) + \frac{14}{\pi^2} \zeta(3) M_0^2 \frac{\ell_N^2}{\ell}. \quad (10.15)$$

La formule ci-dessus montre que les courants supraconducteurs diminuent l'énergie magnétique par écrantage. Tant que la longueur de pénétration est supérieure à  $\lambda_c = \frac{7}{4} \frac{\zeta(3)}{\pi^3} \frac{\ell_N^2}{L_z}$ , les domaines restent énergétiquement favorables. Puis, quand la longueur de pénétration devient plus faible que  $\lambda_c$ , l'expression précédente montre que les supracourants n'écrangent plus le champ magnétique et le minimum d'énergie est réalisé pour  $\ell$  la plus grande possible, c'est-à-dire que l'échantillon devient monodomaine.

Cependant, il faut garder à l'esprit que le modèle présenté reste valable tant que la largeur des parois est la plus petite longueur en jeu, ce qui permet à la fois de considérer l'aimantation homogène dans chacun des domaines et de négliger l'effet de la supraconductivité sur l'énergie des parois. Or, la longueur  $\lambda_c$  est de l'ordre de la largeur effective des parois  $\tilde{w}$  et représente donc la limite de validité de cette étude.

## Cas général

Les longueurs de pénétration et l'organisation des domaines dans les composés supraconducteurs ferromagnétiques ne sont pas bien connus mais il est peu probable que  $\lambda$  soit plus faible que la largeur des parois. Par exemple, il a été récemment mesuré que dans un film du composé URhGe de 0.4 mm dans l'état normal, la largeur des domaines est de l'ordre de 20  $\mu\text{m}$  [104], ce qui implique que la largeur effective des parois  $\tilde{w}$  est de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ . Si l'on considère que  $K$  est due à l'interaction dipolaire, la largeur des parois  $w$  est alors de l'ordre de 160 nm. Par ailleurs, on évalue la longueur de pénétration à  $T = 0$  à 900 nm dans le composé URhGe. Dans ces cas, la largeur des parois est bien la plus petite des longueurs.

Dans le cas général, la minimisation de  $\mathcal{F}$  peut être réalisée numériquement et permet de déterminer la largeur des domaines à l'équilibre,  $\ell$ . De plus, on peut introduire la dépendance en température de  $\lambda$ , ce qui donne accès à l'évolution de  $\ell$  en fonction de la température. Trois paramètres sont à prendre en compte, la largeur des domaines dans l'état normal  $\ell_N$ , la longueur de pénétration à température nulle  $\lambda(0)$  et la largeur effective des parois  $\tilde{w}$ .

La figure 10.3 ci-dessous présente l'évolution de la taille des domaines en fonction de la température pour différentes valeurs des paramètres. On constate que la taille des domaines est plus petite dans l'état supraconducteur que dans l'état normal, c'est-à-dire que la structure en domaines est plus dense pour  $T < T_c$ .

## Cas $\lambda < w$

Le cas  $\lambda < w$  doit être traité séparément car les calculs précédents ne sont pas valables. Dans la limite où la longueur de pénétration devient plus faible que la largeur des parois, la variation de l'aimantation dans la paroi ne peut plus être approximée par une fonction créneau et la supraconductivité modifie l'énergie magnétique dans la paroi. Le gain par unité de surface est de l'ordre de  $\delta E_{magn} \sim -(\Theta_{em}/a^3)(\lambda/w)^2 w$  [18] qui est très inférieur (en valeur absolue) à  $E_{paroi}$ . L'existence des domaines n'est donc pas énergétiquement favorable si  $\lambda < w$ .

C'est à cette conclusion qu'est parvenu Sonin [22]. Cependant, il a généralisé ce cas à toute valeur arbitraire de  $\lambda$ . Or, comme établi dans les paragraphes précédents, dès que la longueur de pénétration est plus grande que la largeur des parois, la structure en

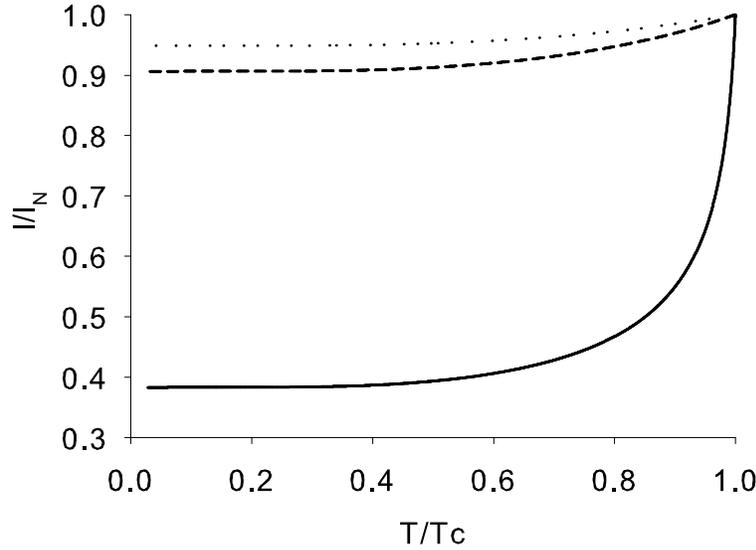


Figure 10.3: Evolution de la taille des domaines dans l'état supraconducteur en fonction de la température. La ligne solide correspond à  $\ell_N/\lambda(0) = 0.5$  et  $\lambda(0)/w = 100$ , la ligne en pointillés à  $\ell_N/\lambda(0) = 0.1$  et  $\lambda(0)/w = 100$  et les traits à  $\ell_N/\lambda(0) = 0.1$  et  $\lambda(0)/w = 200$ .

domaine est le cas le plus favorable énergétiquement. La limite où  $\lambda$  est presque nulle est donc un cas à part qui n'est pas représentatif des situations réelles.

## 10.6 Vortex

Jusqu'à présent, seul l'état Meissner a été considéré, c'est-à-dire que l'aimantation a été implicitement considérée comme faible (la condition mathématique sera déterminée plus loin dans ce paragraphe). Cependant, les supraconducteurs ferromagnétiques connus présentent des aimantations élevées. Par exemple, pour le composé  $\text{UGe}_2$ ,  $4\pi M_0 \sim 2 \text{ kOe}$  [9]. En fait, il faut considérer plusieurs cas selon la valeur de l'aimantation et celle de la température. Plus précisément, comme le montre le diagramme suivant, l'aimantation peut être inférieure au champ critique  $H_{c1}$ , ou bien comprise entre  $H_{c1}$  et  $H_{c2}$  ou enfin entre  $H_{c2}$  et  $H_{c3}$ , comme l'illustre la figure 10.4.

- Tout d'abord, considérons que l'aimantation est telle que  $4\pi M_0 = H_{c3}(T)$ . Dans le modèle de l'interaction électromagnétique, la supraconductivité apparaît d'abord dans les parois [105]. En effet, dans les parois, l'aimantation n'a pas une direction définie comme dans les domaines, mais au contraire tourne dans le plan  $(x, z)$  pour permettre le passage d'une aimantation égale à  $M_0 \mathbf{e}_z$  dans un domaine à une aimantation  $-M_0 \mathbf{e}_z$

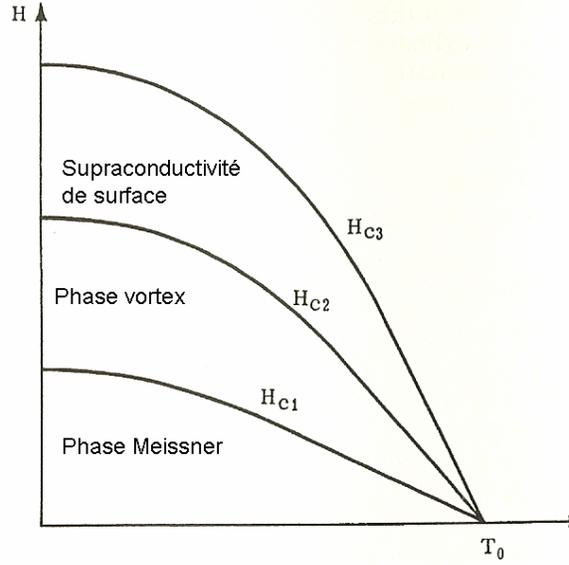


Figure 10.4: Evolution du champ  $H$  en fonction de la température. Dans le cas qui nous intéresse, le champ appliqué à la supraconductivité est  $H = 4\pi M$ .

dans le domaine adjacent. Alors, à cause de ce changement de direction, l'effet orbital est affaibli dans les parois et la supraconductivité peut y nucléer plus facilement. En fait, le mécanisme d'apparition de la supraconductivité localisée étant semblable à celui donnant naissance à une supraconductivité de surface dans un film fin, la condition pour qu'il ait lieu est donc  $H_{c3}(T) = 4\pi M_0$  [106]. La température critique correspondante notée  $T_C^{paroi}$  est définie par  $T_C^{paroi} = T_{C0} - 4\pi M_0 / (dH_{c3}/dT)_{T_{C0}}$ , où  $T_{C0}$  est la température critique de l'échantillon supraconducteur (sans effet orbital). Quand la température est juste inférieure à  $T_C^{DW}$ , la supraconductivité localisée diminue l'énergie dues aux parois d'une valeur de  $\delta E_{paroi} \sim -H_c^2 \xi$ , où  $H_c$  est le champ critique thermodynamique. Il en résulte donc une faible diminution de la taille des domaines.

- Etant donné la valeur élevée de l'aimantation dans les composés supraconducteurs ferromagnétiques, une structure en vortex [6, 107, 108] s'organise quand la température diminue et est telle que la condition  $H_{c2}(T) = 4\pi M_0$  est réalisée. Cette température, notée  $T_C$ , vérifie  $T_C - T_{C0} = -4\pi M_0 / (dH_{c2}/dT)_{T_{C0}}$ ; elle est donc plus faible que  $T_C^{paroi}$ .

- Si l'aimantation est proche de  $H_{c2}$ , c'est-à-dire si  $(H_{c2} - 4\pi M_0) / 4\pi M_0 \ll 1$ , l'énergie magnétique utilisée précédemment ( $M_0^2 \ell$ ) doit être modifiée de façon à tenir compte de l'aimantation  $M_s$  de l'état mixte. Elle s'écrit alors [109]

$$E_m \sim (M_0 + M_s)^2 \ell, \quad M_s = -\frac{H_{c2} - 4\pi M_0}{4\pi\beta_A(2)(2\kappa^2 - 1)} \quad (10.16)$$

où  $\kappa$  est le paramètre de Ginzburg-Landau et  $\beta_A$  est le paramètre d'Abrikosov. La condensation locale de la supraconductivité (d'énergie  $-H_c^2 L_z \xi / \ell$  avec  $\xi > w$ ) transforme

l'énergie des parois en

$$E_{paroi} \sim M_0^2 \frac{L_z \tilde{w}}{\ell} \left( 1 - \frac{\xi}{\tilde{w}} \frac{H_c^2}{M_0^2} \right). \quad (10.17)$$

De plus, il existe un terme supplémentaire à prendre en compte du fait de l'interaction entre le champ magnétique  $4\pi M_0$  et l'aimantation  $M_s$ . Ce terme s'écrit

$$E_{bulk} \sim M_0 M_s L_z (\ell - \xi) / \ell, \quad (10.18)$$

parce que les vortex sont à la distance  $\xi$  des parois. La taille des domaines à l'équilibre devient alors

$$(\ell_N - \ell) / \ell_N \sim \frac{\xi}{\tilde{w}} \frac{H_c^2}{M_0^2} = \frac{1}{4\pi\kappa^2} (\xi / \tilde{w}). \quad (10.19)$$

• Dans le régime  $H_{c1} \ll 4\pi M_0 \ll H_{c2}$ , de Gennes a montré que  $4\pi M_s \sim -H_{c1}$  [26] (en négligeant la correction logarithmique). Dans ce cas, l'énergie magnétique, l'énergie due aux parois et la contribution volumique sont

$$E_m \sim M_0^2 \left( 1 - \frac{H_{c1}}{4\pi M_0} \right)^2 \ell, \quad E_{paroi} \sim M_0^2 \frac{L_z \tilde{w}}{\ell} \left( 1 - \frac{H_{c1}}{4\pi M_0} \frac{\lambda}{\tilde{w}} \right), \quad E_{bulk} \sim M_0 H_{c1} L_z (\ell - \lambda) / \ell. \quad (10.20)$$

L'état d'équilibre est atteint pour une largeur  $\ell$  telle que

$$(\ell_N - \ell) / \ell_N \sim (H_{c1} / M_0) (\lambda / \tilde{w}). \quad (10.21)$$

Donc, dans la limite où  $\lambda > \tilde{w}$ , la structure en domaines est plus dense que dans le cas normal.

• La transition de l'état Meissner à l'état constitué de vortex apparaît quand les énergies de ces deux états sont égales. L'énergie de l'état Meissner est donné par (10.14) et l'état de vortex a pour énergie  $M_0 L_z H_{c1}$ . En conséquence, la transition a lieu pour  $4\pi M_0 = H_{c1} (\lambda / w)^{2/3}$ .

## 10.7 Effet orbital, effet paramagnétique. Supraconductivité singulet, supraconductivité triplet

Jusqu'à présent, seul l'effet orbital a été considéré. Cependant, supraconductivité et ferromagnétisme interagissent aussi via l'effet paramagnétique qui contribue à la modification de l'organisation des domaines. En fait, l'effet paramagnétique est négligeable à basse température mais doit être pris en compte pour des températures juste en dessous de la température critique.

• Plus précisément, si le type de paires dans un composé à la fois supraconducteur et ferromagnétique est dans un état singulet, on sait que l'effet paramagnétique favorise une structure en domaines [6]; il s'agit de l'état cryptoferromagnétique dont il a déjà

été fait mention en introduction. L'effet paramagnétique contribue donc à la réduction de la taille des domaines. On peut en conclure que la structure en domaines survit à la transition supraconductrice, et qu'elle est plus dense que dans l'état normal. De plus, si  $w < \xi_s$ , l'effet orbital et l'effet paramagnétique sont affaiblis dans les parois (du fait de l'inhomogénéité de l'aimantation, les deux effets sont moins destructeurs pour la supraconductivité), ce qui facilite l'apparition de la supraconductivité [106].

- Si le type de paires est dans un état triplet, les paramètres d'ordres sont différents dans deux domaines adjacents. Alors, au niveau des parois, l'interaction d'échange augmente et supprime localement la supraconductivité dans la paroi [105, 110]; il en résulte une augmentation de l'énergie de la paroi de l'ordre de  $\delta\mathcal{E}_{DW} \sim H_c^2 \xi_s$ , avec  $H_c^2(0) a^3 \sim T_C^2/E_F$  où  $E_F$  est le niveau de Fermi. En fait, étant donné que la température critique est très faible dans les supraconducteurs ferromagnétiques connus, cette contribution doit avoir très peu d'impact sur la structure en domaines.

Finalement, quand l'échantillon subit la transition supraconductrice, l'effet paramagnétique participe à la réduction de la taille des domaines dans le cas d'un supraconducteur singulet alors qu'au contraire, il retarde l'effet orbital dans le cas d'un supraconducteur dans l'état triplet.

## 10.8 Conclusion

Finalement, nous avons établi que la structure en domaines d'un film de forte anisotropie survit à la transition supraconductrice qui conduit à une densification de l'organisation, que ce soit dans l'état Meissner ou dans l'état mixte. Cependant, quand la longueur de pénétration devient très faible, l'énergie magnétique ne peut plus compenser l'énergie des parois et l'échantillon devient monodomaine. En fait, ce cas particulier est sans doute peu réaliste. On peut donc conclure que l'étude expérimentale de la structure ferromagnétique des composés supraconducteurs ferromagnétiques devrait permettre l'observation d'un rétrécissement de la largeur des domaines. D'ailleurs, K. Hasselbach a commencé des expériences de mesures de la taille des domaines pour des échantillons de URhGe dans l'état normal, avant, nous l'espérons, de continuer les expériences dans l'état supraconducteur.



# Chapitre 11

## Conclusion

La première partie de mon travail a été consacrée à l'étude des structures hybrides Supraconducteur/Ferromagnétique dans lesquelles les deux ordres interagissent via l'effet de proximité, qui correspond à la fuite des paires de Cooper de la couche supraconductrice vers la couche ferromagnétique. Dans une couche ferromagnétique au contact d'un supraconducteur, le paramètre d'ordre supraconducteur ne décroît pas de façon monotone comme dans une couche de métal normal mais décroît en oscillant en fonction de la distance à l'interface. Cette spécificité de l'effet de proximité dans les structures S/F a des conséquences spectaculaires sur les grandeurs mesurables qui sont étudiées théoriquement depuis les années quatre-vingt. Des progrès techniques récents permettant depuis les années quatre-vingt dix de contrôler la croissance de couches nanométriques ont rendu possible la vérification expérimentale des prédictions. En particulier, l'existence de la jonction  $\pi$  a été confirmée lors de mesures de températures critiques, de courant critique et de densité d'états.

Nous nous sommes intéressés à l'influence de la diffusion magnétique, qui correspond à l'interaction entre les électrons et les impuretés magnétiques, sur le comportement de ces grandeurs. Nous avons montré que ce mécanisme, qui contribue à la destruction des corrélations supraconductrices, a deux conséquences : d'une part l'amplitude de la température critique, courant critique et densité d'états diminue "plus vite" en fonction de l'épaisseur de la couche ferromagnétique et d'autre part la période de leurs oscillations augmente.

La théorie que nous avons utilisée, tenant compte de la diffusion spin-flip dans les équations d'Usadel, est bien adaptée à la description des systèmes hybrides S/F généralement utilisés expérimentalement. En effet, dans ces systèmes, les ferromagnétiques sont des alliages proches de la transition paramagnétique. Dans une couche ferromagnétique, on ne peut pas véritablement parler d'impuretés magnétiques. Pourtant, la position aléatoire des atomes magnétiques dans la couche crée des fluctuations du champ d'échange et donc des centres de diffusion magnétique qu'on peut assimiler à des impuretés ma

gnétiques. La comparaison entre nos résultats et trois expériences sur des structures dans lesquelles le ferromagnétique est l'alliage CuNi (une expérience de densité d'états et deux séries de mesures de courant critique en fonction de la température) permet de conclure que la diffusion magnétique ne peut pas y être négligée.

La deuxième partie de cette thèse porte sur l'évolution de la structure en domaines d'un composé "supraconducteur ferromagnétique". Il existe quelques matériaux dont on sait qu'ils sont à la fois supraconducteurs et ferromagnétiques. Etant donné la compétition entre supraconductivité conventionnelle et ferromagnétisme, la découverte récente de la coexistence des deux ordres est des plus surprenantes et ouvre la voie à de nombreuses questions.

Nous avons montré que la structure en domaines d'un film ferromagnétique de grande anisotropie survit à la transition supraconductrice; plus précisément la taille des domaines diminue avec la baisse de la température tant que la taille des parois est plus petite que la longueur de pénétration London. Quand, au contraire, la longueur de pénétration devient la plus petite des longueurs, l'écrantage du champ n'est plus efficace et les parois deviennent énergétiquement défavorables. En fait, ce cas est théorique et n'est sans doute pas réalisé dans les échantillons.

# Liste des publications

1. "*Domain Structure in a Superconducting Ferromagnet*", M. Fauré and A. I. Buzdin, Phys. Rev. Lett. **94**, 187202 (2005).
2. "*Fauré and Buzdin Reply*", M. Fauré and A. Buzdin, Phys. Rev. Lett. **95**, 269702 (2005).
3. "*Scanning tunneling spectroscopy of the superconducting proximity effect in a diluted ferromagnetic alloy*", L. Crétonon, A. K. Gupta, H. Sellier, F. Lefloch, M. Fauré, A. Buzdin, and H. Courtois, Phys. Rev. B **72**, 024511 (2005).
4. "*Properties of superconductor/ferromagnet structures with spin-dependent scattering*", M. Fauré, A. I. Buzdin, A. A. Golubov, and M. Yu. Kupriyanov, Phys. Rev. B **73**, 064505 (2006).
5. "*Proximity effect in superconductor/ferromagnet nanostructures*", A. I. Buzdin and M. Fauré, Physica C **437**, 34 (2006).
6. "*Superconductor-Ferromagnet heterostructures*", A. Buzdin, M. Fauré, and M. Houzet, Proceedings of NATO Conference, "Nanoscale devices fundamentals applications", Kishinev, Moldova, Elsevier editions 2005, in press.



# Bibliographie

- [1] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, 1175 (1957).
- [2] M. B. Maple and O. Fisher, "*Superconductivity in Ternary Compounds II, Topics in Current Physics*", Springer-Verlag, Berlin, 1982.
- [3] K. H. Müller and V. N. Narozhnyi, Rep. Prog. Phys. **64**, 942 (2001).
- [4] V. L. Ginzburg, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **31**, 202 (1956) [Sov. Phys. JETP **4**, 153 (1957)].
- [5] P. W. Anderson and H. Suhl, Phys. Rev. **116**, 898 (1959).
- [6] L. N. Bulaevskii, A. I. Buzdin, M. L. Kubic, and S. V. Panjukov, Adv. Phys. **34**, 175 (1985).
- [7] A. I. Larkin and Y. N. Ovchinnikov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **47**, 1136 (1964) [Sov. Phys. JETP **20**, 762 (1965)].
- [8] P. Fulde and R. A. Ferrell, Phys. Rev. **141**, 550 (1968).
- [9] S. S. Saxena et al., Nature (London) **406**, 587 (2000).
- [10] D. Aoki et al., Nature (London) **413**, 613 (2001).
- [11] C. Pfleiderer et al., Nature (London) **412**, 58 (2001).
- [12] K. Shimizu et al., Nature (London) **412**, 316 (2001).
- [13] B. Lorenz et al., Physica C **363**, 251 (2001).
- [14] G. Deutscher and P. G. de Gennes, "Proximity effects", p. 1005 (1969), in *Superconductivity*, edited by R. D. Parks, Dekker, New York.
- [15] A. F. Andreev, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **46**, 1823 (1964) [Sov. Phys. JETP **19**, 1228 (1964)].
- [16] B. D. Josephson, Phys. Lett. **1**, 251 (1962).

- [17] P. W. Anderson and J. M. Rowell, Phys. Lett. **10**, 230 (1963).
- [18] A. I. Buzdin, Rev. Mod. Phys. **77**, 935 (2005).
- [19] V. V. Ryazanov et al., J. Low. Temp. Phys **136**, 385 (2004).
- [20] H. Sellier et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 257005 (2004).
- [21] L. N. Bulaevskii, and E. M. Chudnovsky, Phys. Rev. B **63**, 012502 (2000); E. B. Sonin, Phys. Rev. B **66**, 136501 (2002); L. N. Bulaevskii, E. M. Chudnovsky, and M. Daumens, Phys. Rev. B **66**, 136502 (2002).
- [22] E. B. Sonin, Phys. Rev. B **66**, 100504(R) (2002); E. B. Sonin, Phys. Rev. Lett. **95**, 269701 (2005).
- [23] H. Meissner, Phys. Rev. **117**, 672 (1960).
- [24] P. H. Smith, S. Shapiro, J. L. Miles, and J. Nicol, Phys. Rev. Lett. **12**, 686 (1961).
- [25] B. D. Josephson, Nobel Lecture, 1973.
- [26] P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*, W. A. Benjamin, 1966.
- [27] E. A. Demler, G. B. Arnold, and M. R. Beasley, Phys. Rev. B **55**, 15174 (1997).
- [28] A. I. Buzdin and M. Yu. Kuprianov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **52**, 1089 (1990) [Sov. Phys. JETP **52**, 487 (1990)].
- [29] Z. Radovic et al., Phys. Rev. B **44**, 759 (1991).
- [30] J. S. Jiang, D. Davidovic, D. H. Reich, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett. **74**, 314 (1995).
- [31] Y. Obi, M. Ikebe, and H. Fujishiro, Phys. Rev. Lett. **94**, 057008 (2005).
- [32] A. I. Buzdin, L. N. Bulaevskii, and S. V. Panjukov, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **35**, 147 (1982) [JETP Lett. **35**, 178 (1982)].
- [33] A. I. Buzdin and M. Yu. Kuprianov, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **53**, 308 (1991) [JETP Lett. **53**, 321 (1991)].
- [34] V. Ryazanov et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 2427 (2001).
- [35] T. Kontos et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 137007 (2002).
- [36] Y. Blum, A. Tsukernik, M. Karpovskii and A. Palevski, Phys. Rev. Lett. **89**, 187004 (2002).

- [37] M. Aprili et *al.*, C. R. Physique **7** (2006).
- [38] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, and X. Grison, Phys. Rev. Lett. **86**, 304 (2001).
- [39] L. P. Gor'kov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **34**, 735 (1958) [Sov. Phys. JETP **34**, 505 (1958)].
- [40] A. A. Abrikosov, L. Gor'kov and I. E. Dzyaloshinski, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics*, Dover, New-York, 1975.
- [41] G. Eilenberger, Z. Phys. **214**, 195 (1968).
- [42] A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **55**, 2262 (1968) [Sov. Phys. JETP **28**, 1200 (1969)].
- [43] K. D. Usadel, Phys. Rev. Lett. **25**, 507 (1970).
- [44] Z. G. Ivanov et *al.*, Sov. J. Low Temp. Phys. **7**, 274 (1981).
- [45] A. V. Zaitsev, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **86**, 1742 (1984) [Sov. Phys. JETP **59**, 1015 (1984)].
- [46] M. Yu. Kuprianov and V. F. Lukichev, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **94**, 139 (1988) [Sov. Phys. JETP **67**, 1163 (1988)].
- [47] A. A. Golubov, M. Yu. Kupriyanov, and E. Il'ichev, Rev. Mod. Phys. **76**, 411-469 (2004).
- [48] H. Sellier, C. Baraduc, F. Lefloch, and R. Calemczuk, Phys. Rev. B **68**, 054531 (2003).
- [49] V. A. Oboznov et *al.*, cond-mat/0508573.
- [50] B. T. Matthias, H. Suhl, and E. Corenzwit, Phys. Rev. Lett. **1**, 92 (1958).
- [51] A. A. Abrikosov and L. P. Gor'kov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **39**, 1781 (1960) [Sov. Phys. JETP **12**, 1243 (1961)].
- [52] A. A. Abrikosov and L. P. Gor'kov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **42**, 1088 (1962) [Sov. Phys. JETP **15**, 752 (1962)].
- [53] G. M. Androes and W. D. Knight, Phys. Rev. **121**, 779 (1961).
- [54] P. Fulde and K. Maki, Phys. Rev. **141**, 275 (1966).
- [55] M. Houzet, V. Vinokur, and F. Pistolesi, Phys. Rev. B **72**, 220506(R) (2005).

- [56] M. Faure, A. I. Buzdin, A. A. Golubov, and M.Yu. Kupriyanov, Phys. Rev. B **73**, 064505 (2006).
- [57] A. Cottet and W. Belzig, Phys. Rev. B **72**, 180503(R) (2005).
- [58] V. N. Krivoruchko and R. V. Petryuk, Phys. Rev. B **66**, 134520 (2002).
- [59] A. I. Buzdin, A. V. Vedyayev and N. V. Ryzhanova, Europhys. Lett. **48**, 686 (1999).
- [60] I. Baladié and A. Buzdin, Phys. Rev. B **67**, 014523 (2003).
- [61] J. Aarts, J.M.E. Geers, E. Brueck, A.A. Golubov, R. Coehoorn, Phys. Rev. B **56**, 2779 (1997).
- [62] Ya. V. Fominov, N. M. Chtchelkatchev, and A. A. Golubov, Phys. Rev. B **66**, 014507 (2002).
- [63] L. R. Tagirov, Phys. C **307**, 145 (1998).
- [64] P. G. De Gennes, Phys. Lett. **23**, 10 (1966).
- [65] G. Deutscher and F. Meunier, Phys. Rev. Lett. **22**, 395 (1969).
- [66] J. J. Hauser, Phys. Rev. Lett. **23**, 374 (1969).
- [67] J. Y. Gu, C. Y. You, J. S. Jiang et *al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 267001 (2002).
- [68] A. Potenza and C. H. Marrows, Phys. Rev. B **71**, 180503 (2005).
- [69] I. C. Moraru, W. P. Pratt, N. O. Birge, cond-mat/0512623.
- [70] L. R. Tagirov, Phys. Rev. Lett. **83**, 2058 (1999).
- [71] I. Baladié, A. Buzdin, N. Ryzhanova, and A. Vedyayev, Phys. Rev. B **63**, 054518 (2001).
- [72] R. Mélin and D. Feinberg, Europhys. Lett. **65**, 96 (2004).
- [73] S. Tollis, M. Daumens, and A. Buzdin, Phys. Rev. B **71**, 024510 (2005).
- [74] W. Belzig, C. Bruder, and G. Schön, Phys. Rev. B **54**, 9443 (1996).
- [75] A. A. Golubov and M. Yu. Kupriyanov, Journ. Low. Temp. Phys **61**, 83 (1988).
- [76] N. Moussy, H. Courtois, and B. Pannetier, Europhys. Lett. **55**, 861 (2001).
- [77] A. K. Gupta et *al.*, Phys. Rev. B **69**, 104514 (2004).

- [78] S. Guéron et *al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 3025 (1996).
- [79] A. Buzdin, Phys. Rev. B **62**, 11377 (2000).
- [80] I. Baladié and A. Buzdin, Phys. Rev. B **64**, 224514 (2001).
- [81] L. Créteion, A. K. Gupta, H. Sellier, F. Lefloch, M. Fauré, A. Buzdin, and H. Courtois, Phys. Rev. **B** 72, 024511 (2005).
- [82] I. Giaever, Phys. Rev. Lett. **5**, 147, 464 (1960).
- [83] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, Dover, New York, 1996.
- [84] L. N. Bulaevskii, V. V. Kuzii, and A. A. Sobyenin, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **25**, 314 (1977) [JETP Lett. **25**, 290 (1977)].
- [85] V. Ryazanov et *al.*, cond-mat/0508573.
- [86] V. Ryazanov et *al.*, Phys. Rev. B **65**, 020501(R) (2001).
- [87] A. Bauer et *al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 187004 (2002).
- [88] S. M. Frolov et *al.*, Phys. Rev. B **70**, 144505 (2004).
- [89] A. Buzdin, JETP Lett. **78**, 583 (2003).
- [90] V. N. Krivoruchko and E. A. Koshina, Phys. Rev. B **66**, 014521 (2002).
- [91] F. S. Bergeret, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, Phys. Rev. B **69**, 174504 (2004).
- [92] F. S. Bergeret, A. Levy Yeyati, and A. Martin-Rodero, Phys. Rev. B **72**, 064524 (2005).
- [93] K. Halterman and O. T. Valls, Phys. Rev. B **69**, 014517 (2004).
- [94] F. Steglich et *al.*, Phys. Rev. Lett. **43**, 1892 (1979).
- [95] H. Suhl, Phys. Rev. Lett. **87**, 167007 (2001).
- [96] A. A. Abrikosov, J. Phys.: Condens. Matter **13**, L943 (2001).
- [97] A. Huxley et *al.*, Phys. Rev. B **63**, 144519 (2001).
- [98] D. Jaccard et *al.*, Phys. Lett. A **299**, 282 (2002).
- [99] B. T. Matthias and R. M. Bozorth, Phys. Rev. **109**, 604 (1958).
- [100] E. A. Yelland et *al.*, Phys. Rev. B **72**, 214523 (2005).

- [101] M. Fauré and A. I. Buzdin, Phys. Rev. Lett. **94**, 187202 (2005); M. Fauré and A. I. Buzdin, Phys. Rev. Lett. **95**, 269702 (2005).
- [102] L. D. Landau and E. M. Lifschitz, *Electrodynamics of Continuous Media* (Nauka, Moscow, 1982).
- [103] U. Krey, Int. J. Magn. **3**, **65** (1972).
- [104] K. Hasselbach, private communication.
- [105] A. I. Buzdin and A. S. Mel'nikov, Phys. Rev. B **67**, 020503(R) (2003).
- [106] A. I. Buzdin, L. N. Bulaevskii, and S. V. Panjukov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **87**, 299 (1984) [Sov. Phys. JETP **60**, 174 (1984)].
- [107] H. S. Greenside, E. I. Blount, and C. M. Varma, Phys. Rev. Lett. **46**, 49 (1981).
- [108] E. B. Sonin and I. Felner, Phys. Rev. B **57**, R14000 (1998).
- [109] A. A. Abrikosov, *Fundamentals of the Theory of Metals* (North-Holland, Amsterdam, 1988).
- [110] V. P. Mineev and K. V. Samokhin, *Introduction to Unconventional Superconductivity* (Gordon and Breach, Amsterdam, 1999).