

Exploration du diagramme de phase de
 $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ avec l'effet Hall et l'effet de
proximité

par

Sophie Charpentier

thèse présentée au département de physique
en vue de l'obtention du grade de docteur ès sciences (Ph.D.)

FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 20 janvier 2011

« *Soyez réaliste ; demandez l'impossible* »
- Che Guevara

Sommaire

Dans cette thèse, nous nous sommes attaqués au problème du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique en étudiant le diagramme de phase des cuprates dopés aux électrons. Ce sujet est l'objet d'intenses recherches théoriques et expérimentales depuis des années et se trouve au cœur des préoccupations de recherche dans le domaine de la supraconductivité à haute température critique.

D'abord, les mesures de résistivité et d'effet Hall en fonction de la température et du dopage ont permis d'établir la présence de deux anomalies dans le diagramme de phase, l'une à $x = 0,125$ et l'autre pour $x = 0,165$. En particulier, une analyse complète de la dérivée de la constante de Hall en fonction de la température a permis d'établir que l'ordre antiferromagnétique et la supraconductivité ne semblent pas coexister, ou du moins, qu'ils coexistent sur une plage de dopage très réduite, contrairement à ce que plusieurs autres mesures semblent indiquer. Ainsi, le diagramme de phase pour les cuprates dopés aux trous et aux électrons serait symétrique, ce qui impose des contraintes très claires aux approches théoriques pour résoudre l'énigme de la supraconductivité à haute température critique.

Ensuite, l'étude de l'effet de proximité pour la première fois sur les jonctions Josephson avec les cuprates dopés aux électrons a permis de montrer que la longueur caractéristique du couplage Josephson n'était pas celle attendue théoriquement mais pas non plus « géante » comme celle mesurée expérimentalement pour certains cuprates dopés aux trous [1]. De plus, malgré le fait que les données expérimentales ne permettent pas de déterminer quantitativement cette longueur caractéristique en fonction du dopage de la barrière, elles permettent tout de même de conclure que le couplage Josephson est possible, quelle que soit la nature de la barrière : antiferromagnétique métallique ou isolante ou encore paramagnétique métallique. Ces résultats indiquent d'une part que le

mécanisme qui permet l'effet de proximité n'a apparemment rien à voir avec le magnétisme et d'autre part que le couplage Josephson n'est pas conventionnel. Cela souligne le caractère non-conventionnel des supraconducteurs à haute température critique. Également cela signale que l'absence d'une théorie valide pour expliquer la supraconductivité à haute température critique dans les cuprates est probablement intimement reliée à notre incapacité à expliquer pourquoi un couplage Josephson par effet de proximité est possible à travers une barrière de Pr_2CuO_4 par exemple.

Remerciements

Ce projet n'aurait pas été ce qu'il est sans la collaboration de plusieurs personnes. Je tiens tout particulièrement à remercier mon superviseur, le professeur Patrick Fournier. Patrick, tu m'as pris sous ton aile dans un moment de ma vie où j'étais perdue. Je savais que je voulais faire de la physique et oui, je m'étais résignée à faire de la physique du solide. Grâce à toi, cette résignation s'est transformée en vraie passion. Ton intérêt pour une multitude de choses est contagieux! Merci d'avoir cru en moi, même quand moi je ne le faisais pas. Même si par moment, c'était plus difficile, je n'ai jamais regretté de t'avoir choisi comme directeur de recherche. Merci pour les conseils, les encouragements et ton enthousiasme, ce sont ces petites choses-là qui m'ont permis de persévérer jusqu'ici.

Je souhaite également remercier les professeurs du département, en particulier André-Marie Tremblay, pour sa patience d'ange et son savoir sans bornes, Claude Bourbonnais pour tous ces petits jeux de mots qui permettent d'avoir le sourire même dans les discussions sérieuses de physique, Serge Jandl pour son intérêt pour mon parcours pendant toutes ces années. Je remercie également les membres du jury de cette thèse, les professeurs Mario Poirier, David Sénéchal et Peter Armitage (membre externe) d'avoir accepté de juger de mon travail. Un merci très spécial au professeur Serge Charlebois, qui avec son énergie sans fin, m'a remis du vent dans les voiles pour continuer en recherche. Serge, merci de m'avoir fait découvrir la Suède (bien malgré moi je dois dire), c'est un très beau cadeau. Merci aussi au professeur Bertrand Reulet qui a accepté si facilement de me laisser travailler pour lui l'an prochain. Je remercie également mes professeurs de physique du secondaire, Claude Vallée, et du Cégep, Martin Aubé, de m'avoir donné la piqure de la physique.

Rien de ce qui est présenté dans cette thèse n'aurait été possible sans la collaboration des techniciens et assistants de recherche du département. Merci à Stéphane Pelletier qui

était toujours là pour réparer ce que je brisais et pour améliorer ou créer une station de mesure. Merci à Kim Truong d'avoir fabriqué toutes les cibles de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (certaines deux fois plutôt qu'une!) sans lesquelles rien n'aurait été possible. Un merci spécial à Michael Lacerte pour sa patience et son assistance en salle propre : sans toi, il aurait été impossible de faire la moitié du travail que j'ai fait. Finalement, merci à l'équipe du liquéfacteur d'hélium, Marcel Zakorzerny et Mario Castonguay, qui ont bien voulu m'amener des contenants d'hélium « à ma hauteur » lorsque cela était possible. Je tiens aussi à remercier Judith Camden pour sa patience et son assistance dans toutes sortes de tâches administratives pas toujours très agréables.

Je ne peux passer sous silence le nom de ceux qui ont fait partie de *Team Fournier* et qui ont contribué de près ou de loin à mon projet : Jonathan Laverdière, Sébastien Godin-Proulx, Xavier Béchamp-Laganière, Stéphane Savard, Jessica Gauthier, Simon Fissette (pour ta nonchalance et ta tête sur les épaules), Olivier Thériault (pour tes *pick up line* incroyables!), Fred Guérin (pour les prières!), Dominique Matte (d'avoir fait en sorte que Patrick paie le vin!) et Maxime Dion (pour ses jokes pas toujours si drôles mais au combien divertissantes!). Un premier merci spécial à Mangala Singh pour l'organisation de dîners de groupe et aussi d'avoir partagé ses vastes connaissances sur les matériaux et la croissance. Un deuxième merci spécial à Guillaume Roberge, pour son soutien technique pendant que je faisais des jonctions. Je suis très contente que nos sujets se soient entremêlés, cela m'a donné l'occasion de te connaître mieux. Je ne peux trouver les mots pour exprimer à quel point les discussions que nous avons eues, quoique pas toujours reliées à la recherche, m'ont toujours vraiment fait plaisir.

Je remercie également mes amis du département, sans qui la vie aurait été pas mal plus plate pendant toutes ces années, en particulier : Jean-François Allard, Maxime Boissonneault, David Fournier, Dany Plouffe et Jonathan Vermette. Merci aussi à Alexandre Langlois sans qui la vie au bureau aurait été bien ennuyeuse. Merci Alex pour tous tes jeux de mots savoureux (et moins savoureux!). Merci pour ton écoute et ta confiance. Merci à Jérôme Bourassa d'avoir toujours été là pour écouter mes histoires abracadabrantes sans jamais me juger. Tu n'as pas idée comment ça faisait du bien de me sentir un peu normale! Un autre merci spécial à Jean-Philippe Reid. JP, je sais que ça n'a pas toujours été facile entre nous, mais j'ai encore autant de plaisir à passer du temps avec toi. Merci à mes amis du RECSUS (Alexei, Sébastien, Martin et Raphaël) et du G3 (Aljosa, C-Lyne et Bernie), c'est un plaisir de travailler avec vous. Un merci spécial à

Élise Saint-Jacques pour son enthousiasme et son implication au sein du RQMP.

Je souhaite également remercier mes amis « non-physiciens » pour tout leur soutien. C'est grâce à vous que j'ai su rester saine d'esprit et que j'ai pu me changer vraiment les idées. Mes amis du Cégep : Louis-Philippe Bérubé et Jean-Denis Giguère pour les superbes soirées passées ensemble. Merci également aux deux femmes de ma vie : Éoui Gagnon-Grenier et Geneviève Garriss. Merci Éoui pour ton énergie et ta curiosité sans fin. Merci pour ton « pas de gêne » c'est *tellement* rafraîchissant ! Merci Jenn d'avoir partagé les moments difficiles de la recherche et de ma vie personnelle. J'ai vraiment senti que je pouvais toujours compter sur toi quand la catastrophe frappait à ma porte. Un petit merci à Simon B. qui était toujours là pour me changer merveilleusement les idées ! Merci à Josée Viens, grâce à qui j'ai bougé ses derniers mois. Sans toi, je n'aurais jamais trouvé le courage d'aller courir aussi souvent. Merci aussi à Zoée Couture (pour nos conversations non censurées), Hélène Fillion, Charles Brillon et Yann Lemonnier d'avoir été de si bons amis.

Je tiens à remercier tout spécialement les membres de ma famille, qui m'ont épaulées pendant tout ce temps sans nécessairement comprendre les ramifications de mon travail. Merci à ma mère Suzanne et à son conjoint Daniel pour les petits déjeuners incroyables. Merci à mon père Claude et à sa conjointe Judi pour toute l'aide qu'ils m'ont apportée. Merci spécialement à ma soeur Lisa qui comprend très bien que les autres soient bouche bée devant notre travail. Merci Liz d'être aussi *fuckée* que moi !

Finalement, je remercie le Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada (CRSNG) et le Fond québécois de la recherche sur la nature et les technologies (FQRNT) pour avoir financé mon salaire pendant presque la totalité de ces 5 ans. Un merci aussi à la Fondation canadienne pour l'innovation (FCI) et à l'Institut canadien de recherche avancées (ICRA) pour le support financier accordé au projet de recherche.

Table des matières

Sommaire	iii
Table des matières	viii
Liste des tableaux	xi
Liste des figures	xii
Introduction	1
1 Les supraconducteurs à haute température critique	4
1.1 Généralités	4
1.1.1 Structure cristalline des composés 2-1-4	4
1.1.2 Le diagramme de phases des cuprates	8
1.2 Revue de la littérature	10
1.2.1 Surface de Fermi	10
1.2.2 Point critique quantique	15
1.2.3 Le dôme supraconducteur	15
1.2.4 La zone antiferromagnétique	18
1.2.5 La région pseudo-gap	25
2 Effet Josephson	27
2.1 Concepts de base	28
2.1.1 Effet Josephson DC	29
2.1.2 Effet Josephson AC	30
2.2 Modèle RCSJ	31
2.2.1 Le paramètre Stewart-McCumber	32

2.3	Effet du champ magnétique	33
2.3.1	Jonctions étroites	34
2.3.2	Jonctions larges	36
2.3.3	Le passage du régime large au régime étroit	37
2.4	Effet des micro-ondes	39
2.5	Effet de proximité dans les supraconducteurs conventionnels	40
2.6	Effet de proximité dans les SHTC	44
2.7	Jonctions Josephson de cuprates	45
2.7.1	Jonctions de type bi-cristaux	46
2.7.2	Jonctions de type FIB	49
2.7.3	Jonctions en rampe	50
2.7.4	Jonctions de type mesa	56
3	Méthode expérimentale	61
3.1	Ablation laser	61
3.1.1	Le système	62
3.1.2	Croissance du $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$	64
3.2	Techniques de caractérisation des couches minces	65
3.2.1	Propriétés de surface	65
3.2.2	Propriétés structurales	66
3.2.3	Propriétés magnétiques et de transport	67
3.3	Fabrication des jonctions Josephson	72
3.3.1	Première électrode	73
3.3.2	Gravure de la rampe	73
3.3.3	Barrière et deuxième électrode	74
3.3.4	Définition des jonctions Josephson	75
3.4	Caractérisation des jonctions Josephson	76
3.4.1	Montage expérimental	76
3.4.2	Courbes IV	78
3.4.3	Résistance dynamique	79
4	Transport dans les couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$	81
4.1	Résultats de résistivité	82
4.2	Résultats d'effet Hall	85

4.3	Résumé	95
5	Effet de proximité dans les jonctions Josephson à base de PCCO	97
5.1	Préliminaires	97
5.1.1	Propriétés des électrodes	98
5.1.2	Propriétés de la rampe	101
5.1.3	Propriétés de la barrière	103
5.2	Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$	105
5.2.1	Courbes IV en champ magnétique	105
5.2.2	Courbes IV en champ électromagnétique	108
5.2.3	Effet de la température	109
5.2.4	Effet de proximité	112
5.3	Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$	116
5.3.1	Courbes IV en champ magnétique	116
5.3.2	Effet de la température	117
5.3.3	Effet de proximité	118
5.4	Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$	119
5.4.1	Courbes IV en champ magnétique	120
5.4.2	Effet de la température	121
5.4.3	Effet de proximité	123
5.5	Jonctions avec une barrière de Pr_2CuO_4	124
5.5.1	Courbes IV en champ magnétique	124
5.5.2	Effet de la température	125
5.5.3	Effet de proximité	127
5.6	Résumé	128
	Conclusion	131
	Annexe A Article publié	135
A.1	Résumé	135
	Bibliographie	157

Liste des tableaux

2.1	Paramètres permettant d'évaluer le libre parcours moyen dans différents cuprates.	45
2.2	Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions de type bicristaux.	49
2.3	Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions fabriquées avec du FIB.	51
2.4	Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions en rampe. . .	56
2.5	Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions de type méso. . .	59
2.6	Récapitulatif des données expérimentales pour l'effet de proximité.	60

Liste des figures

1.1	Structure cristalline des cuprates	5
1.2	Paramètre c en fonction du dopage dans pour des couches minces de PCCO.	6
1.3	Diagramme de phases des supraconducteurs à haute température.	9
1.4	Évolution de la surface de Fermi en fonction du dopage pour les dopés aux électrons.	12
1.5	Surface de Fermi mesurée par ARPES sur des cristaux de NCCO.	13
1.6	Relation de dispersion des bandes de Hubbard calculées pour différents dopages pour le composé NCCO.	14
1.7	Zone d'influence d'un PCQ sur le diagramme de phase	16
1.8	Température critique en fonction du dopage pour les dopés aux électrons.	17
1.9	Coefficient de Hall en fonction du dopage dans des couches minces de PCCO.	21
1.10	Longueur de corrélation AF en fonction du dopage et de la température pour des cristaux de NCCO.	23
2.1	Différents types de jonction Josephson explorés avec les supraconducteurs à haute température critique.	28
2.2	Courbe IV d'une jonction Josephson	30
2.3	Circuit montrant le modèle RSJC.	31
2.4	Potentiel en forme de planche à laver inclinée.	33
2.5	Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonction Josephson dans le régime étroit.	35
2.6	Différentes configurations de densité de courant dans une jonction Josephson rectangulaire et graphique du courant critique en fonction du champ magnétique associé.	36
2.7	Fonction $I_c(B)$ théorique pour une jonction Josephson dans le régime large.	37

2.8	Fonction $I_c(B)$ pour une jonction Josephson qui passe du régime large au régime étroit.	38
2.9	Caractéristique IV d'une jonction Josephson soumise à un rayonnement électromagnétique.	39
2.10	Dépendance en température du courant critique pour des jonctions de type S-I-N-S.	43
2.11	Données expérimentales permettant de déterminer la longueur de cohérence ξ_n dans les jonctions de YBCO - PBCO - YBCO.	53
2.12	Données expérimentales permettant de déterminer la longueur de cohérence ξ_n dans les jonctions de YBCO - CaRuO ₃ - YBCO.	55
3.1	Schéma montrant le système de croissance par ablation laser.	62
3.2	Configuration pour la mesure de diffraction des rayons-X.	66
3.3	Configuration des contacts pour la mesure de résistivité et d'effet Hall.	69
3.4	Exemple de données obtenues en microscopie électronique à balayage.	70
3.5	Courbe de résistivité obtenue pour une couche mince de Pr _{1,85} Ce _{0,15} CuO _{4-δ}	70
3.6	Vue schématique d'une jonction Josephson en rampe.	73
3.7	Vue schématique des différentes étapes de fabrication des jonctions Josephson en rampe.	77
3.8	Schéma d'un filtre π , utilisé pour filtrer le signal sortant du cryostat écrané qui a été utilisé pour les mesures sur les jonctions Josephson.	78
4.1	Résistivité en fonction de la température à différents dopages pour les couches minces de PCCO.	82
4.2	Résistivité en fonction de la température à différents dopages pour les couches minces de PCCO, mesurée avec et sans champ magnétique.	84
4.3	T_{min} et résistivité sous champ à 2 K en fonction du dopage.	85
4.4	Coefficient de Hall en fonction de la température pour tous les dopages étudiés.	86
4.5	Coefficient de Hall en fonction de la température pour l'ancienne génération de couches minces.	87
4.6	Coefficient de Hall à basse température en fonction du dopage.	88
4.7	Dérivée première du coefficient de Hall en fonction de la température, à certains dopages.	92
4.8	Cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage.	93

5.1	Images AFM de chacunes des électrodes.	98
5.2	Résistance en fonction de la température des électrodes supraconductrices.	100
5.3	Images AFM de la rampe, juste après qu'elle ait été gravée.	101
5.4	Exemples de profils de rampe qui permettent de déterminer la valeur de l'angle θ	102
5.5	Résistivité en fonction de la température pour Pr_2CuO_4 et $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$	104
5.6	Courbes IV à différents champs magnétiques pour des jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurées à 4,2 K.	106
5.7	Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonction qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurée à 4,2 K.	108
5.8	Courbes IV pour une jonction dans un champ électromagnétique à différentes fréquences pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurée à 4,2 K.	109
5.9	Courant critique en fonction de la température pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$	110
5.10	Courant critique en fonction du champ magnétique à deux températures pour des jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$	111
5.11	Couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière pour $x = 0,05$ à 4,2 K.	113
5.12	Courbes IV à différents champs magnétiques pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurée à 4,2 K.	117
5.13	Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$, à 4,2 K.	117
5.14	Courant critique en fonction de la température pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$	118
5.15	Couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière pour $x = 0,11$ à 4,2 K.	119
5.16	Courbes IV à différents champs magnétiques pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurée à 4,2 K.	120
5.17	Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$, à 4,2 K.	121
5.18	Courant critique en fonction de la température pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$	122

5.19	Couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière pour $x = 0,22$ à 4,2 K.	123
5.20	Courbes IV à différents champs magnétiques pour une jonction possédant une barrière de Pr_2CuO_4 mesurée à 4,2 K.	124
5.21	Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonctions possédant une barrière de Pr_2CuO_4 , à 4,2 K.	125
5.22	Courant critique en fonction de la température pour deux jonctions possédant une barrière de Pr_2CuO_4	126
5.23	Couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière pour $x = 0$ à 4,2 K.	127

Introduction

En 1986, G. Bednorz et K. A. Müller publient un article [2] dans lequel ils prouvent avoir obtenu un composé ($\text{Ba}_x\text{La}_{5-x}\text{Cu}_5\text{O}_{5(3-y)}$) dont la température critique supraconductrice, qui se trouve autour de 40 K, est bien au-dessus du maximum prédite par la théorie conventionnelle de la supraconductivité [3]. Cette découverte entraîna par la suite une véritable effervescence dans la communauté scientifique, certains rivalisant pour trouver de nouveaux composés présentant de plus en plus hautes températures critiques, les autres tentant de trouver la clé qui permettrait de comprendre ce phénomène, que l'on appelle la supraconductivité à haute température critique [4]. Près de 25 ans plus tard, les supraconducteurs à haute température critique fascinent toujours les physiciens. Malheureusement, malgré que tous les efforts déployés aient amené plusieurs réponses, plusieurs questions restent toujours en suspens et de nouvelles interrogations ont même surgi au fil des ans.

Pour les premiers composés supraconducteurs à haute température critique découverts, les porteurs de charge sont positifs [2, 5] (ce qui est en fait le cas de la majorité de ces composés). Cependant, il fallut quelques années à peine avant que des composés dopés aux électrons soient découverts [6, 7]. Ces derniers possèdent les mêmes blocs élémentaires que les composés dopés aux trous, soit des plans d'oxyde de cuivre, ce qui leur valut par la suite le nom de *cuprates*. Les cuprates dopés aux électrons sont en quelque sorte les moutons noirs de la famille des supraconducteurs à haute température critique. Les températures critiques maximales atteintes ne rivalisent tout simplement pas avec celles des cuprates dopés aux trous. Ils sont aussi assez difficiles à synthétiser étant donné que le dopage effectif doit se faire par le contrôle de deux atomes différents. Conséquemment, les efforts déployés pour continuer la recherche dans ce sous-domaine sont beaucoup moins importants que ceux pour comprendre les cuprates dopés aux trous. Il va sans dire que les mécanismes qui gouvernent la supraconductivité dans les dopés aux trous et dans les dopés aux électrons sont deux morceaux du même casse-tête. Il est donc primordial

d'attaquer le problème de la supraconductivité à haute température critique dans son ensemble si on veut arriver un jour à le résoudre.

Pour les cuprates dopés aux trous, le diagramme de phase semble assez bien établi, avec un dôme supraconducteur clairement séparé de la zone antiferromagnétique. Toutefois, cela n'est pas le cas pour les cuprates dopés aux électrons, où l'allure du diagramme de phase est toujours sujet à controverse [8]. Certaines mesures semblent indiquer que la zone antiferromagnétique s'étend au-delà du dopage où apparaît la supraconductivité [9–11], ce qui semble indiquer la coexistence de ces deux phases sur une très large gamme de dopage. D'autres expériences indiquent plutôt un diagramme de phase à l'image de celui des cuprates dopés aux trous, où les deux phases sont séparées ou encore se recoupent, mais sur une plage de dopage très réduite [12, 13]. Il va sans dire que l'approche théorique qui viendra éventuellement résoudre l'énigme de la supraconductivité à haute température critique devra tenir compte de la symétrie ou de l'asymétrie du diagramme de phase en fonction du signe des porteurs. Il semble donc impératif de venir clarifier la situation pour le diagramme de phase des cuprates dopés aux électrons.

Le but de cette thèse est de tenter d'éclaircir cette situation en explorant le diagramme de phase du composé $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, un cuprate dopés aux électrons, avec la résistivité, l'effet Hall et l'effet de proximité. Nous avons choisi ce composé pour deux raisons principales : ses conditions de croissance sont bien maîtrisées et le magnétisme qui vient des terres rares est peu important, ce qui permet de négliger cette contribution lors des mesures. Les mesures de transport, résistivité et effet Hall, peuvent être très fortement couplées à la présence de certaines phases comme l'antiferromagnétisme et la supraconductivité. Ainsi, ces techniques peuvent potentiellement être utilisées pour détecter l'emplacement des différentes lignes de transitions dans le diagramme de phase. L'étude présentée ici regroupe des données en fonction de la température prises sur des couches minces de treize compositions différentes, une des plus larges gammes de dopage étudiées pour les cuprates dopés aux électrons [14]. Une revue de la littérature nous a permis d'identifier un problème avec la valeur absolue du coefficient de Hall à basse température. Ici, nous avons pris grand soin d'optimiser au maximum les propriétés cristalline et supraconductrice pour chacune de ces compositions, ce qui nous a essentiellement permis d'expliquer et de corriger ce problème. Cette étape a été cruciale pour la réalisation de la seconde moitié du projet.

L'effet de proximité est quant à lui mesuré à l'aide de jonctions Josephson. La force

du couplage Josephson entre deux électrodes supraconductrices est affectée par la nature de la barrière qui se trouve entre ces deux électrodes. Par exemple, certaines études expérimentales ont démontré l'absence de couplage Josephson pour une barrière antiferromagnétique isolante [15] alors que d'autres études semblent au contraire indiquer une augmentation du couplage pour des structures avec une couche intermédiaire antiferromagnétique [16,17]. Finalement, des résultats sur les cuprates dopés aux trous ont également montrés la présence d'un effet de proximité géant lorsque la barrière est dans le régime de pseudo-gap [15]. Il serait ainsi possible d'utiliser cet effet pour étudier cette région du diagramme de phase. Dans ce projet, nous avons choisi de fabriquer les jonctions Josephson entièrement avec du $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Une revue de la littérature nous a permis de réaliser qu'il n'existe pas d'étude sur des jonctions Josephson en rampe où les électrodes et la barrière sont à base de dopés aux électrons. Dans cette thèse, nous explorerons les propriétés de telles jonctions. Pour les électrodes supraconductrices, nous avons utilisé $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ et nous avons étudié des jonctions possédant des barrières à différents dopages. Pour pouvoir bien évaluer l'effet de la nature de la barrière, nous avons choisi des dopages qui couvrent tout le diagramme de phase : antiferromagnétique métallique ($x = 0,05$ et $x = 0,11$) ou isolante ($x = 0$) ou encore paramagnétique métallique ($x = 0,22$). Aucune étude de l'effet de proximité en fonction du dopage de la barrière n'avait été entreprise auparavant, même sur les cuprates dopés aux trous.

Pour permettre au lecteur de bien saisir les enjeux, le chapitre 1 se veut une présentation des propriétés générales des cuprates dopés aux électrons en insistant tout particulièrement sur une présentation du débat sur le diagramme de phase et l'étendue de la zone antiferromagnétique. Dans le chapitre 2, nous présentons les bases pour comprendre les résultats sur les jonctions Josephson, ainsi qu'une revue des différents essais déjà effectués pour en fabriquer avec différents cuprates. Les méthodes expérimentales utilisées pour compléter les projets sont quant à elles présentées au chapitre 3. Les chapitres 4 et 5 présentent les résultats expérimentaux de transport et sur les jonctions Josephson, respectivement.

Chapitre 1

Les supraconducteurs à haute température critique

Ce chapitre se veut un survol des propriétés des supraconducteurs à haute température critique (SHTC), en insistant tout particulièrement sur celles des dopés aux électrons. Dans la première section, on s'intéresse plus particulièrement à la structure cristalline et à l'aspect général de leur diagramme des phases. Les sections suivantes présentent des mesures des différentes propriétés qui ont permis d'établir ce diagramme de phases pour les dopés aux électrons.

1.1 Généralités

1.1.1 Structure cristalline des composés 2-1-4

Les composés 2-1-4, de formule générale TR_2CuO_4 (où TR est une terre rare) se présentent avec l'une ou l'autre des trois structures présentées à la Figure 1.1. Ces trois structures sont caractérisées par la présence de plans d'oxyde de cuivre, séparés par des plans incluant des atomes d'oxygène et de terre rare qui servent de réservoirs de charges dans les composés dopés. Les axes cristallins a et b sont souvent définis suivant les plans d'oxyde de cuivre (CuO_2) et l'axe c leur est perpendiculaire. La théorie des bandes prédit que La_2CuO_4 et Pr_2CuO_4 devraient être métalliques [18, 19]. Cependant, à cause de fortes interactions électroniques, ce sont des isolants de Mott antiferromagnétiques (AF) [20]¹.

¹Bien que pour les cuprates dopés aux trous, il semble en effet que le composé parent soit un isolant de Mott, la réalité est probablement plus subtile dans le cas des dopés aux électrons [21, 22]

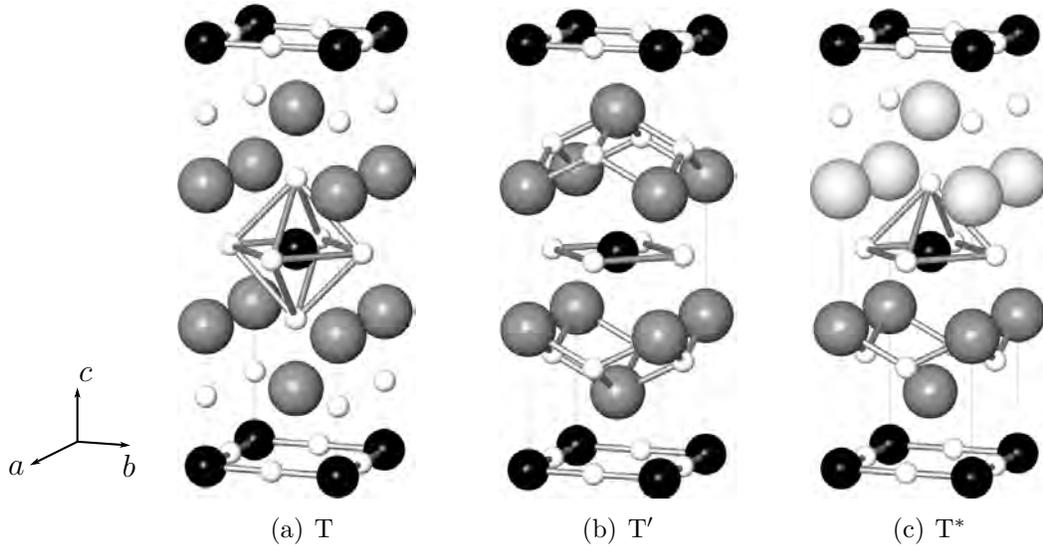


FIGURE 1.1 – Structure cristalline des cuprates de la famille des 2-1-4. En (a), la structure des dopés aux trous ($\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$), en (b), celles des dopés aux électrons ($\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$) et en (c), celle des composés $\text{Nd}_{2-x-y}\text{Ce}_x\text{Sr}_y\text{CuO}_4$. Les atomes de cuivre sont en noirs, ceux d’oxygène en blanc et les ions de terre rare sont en gris. Dans la structure T, ces atomes sont La ou Sr, dans la structure T’, Pr ou Ce et dans la structure T*, Nd ou Ce. Les atomes gris pâles représentent le Sr ou le Nd.

Ainsi, le composé isolant non-dopé La_2CuO_4 , qui cristallise dans la structure T (voir Fig. 1.1(a)), devient conducteur avec des trous dominant le transport électrique suite à une substitution partielle du La^{3+} par du Sr^{2+} . Pour un niveau de dopage suffisant, il devient même supraconducteur, avec une température critique maximale de presque 50 K (sous forme de couche mince) [23]. De la même manière, le composé isolant non-dopé Pr_2CuO_4 , qui cristallise dans la structure T’, devient conducteur avec des électrons dominant le transport électrique suite à une substitution partielle du Pr^{3+} par du Ce^{4+} . Avec un dopage suffisant, ce dernier devient aussi supraconducteur et possède une température critique maximale d’environ 23 K [24]. Sa structure, différente de celle des dopés aux trous, est présentée à la Fig. 1.1(b). On note que pour la structure T’, les atomes d’oxygène sont l’un au dessus de l’autre, alors que pour la structure T, les atomes d’oxygènes des plans de terre rare sont au dessus des atomes de cuivre. Ces derniers sont appelés oxygènes apicaux. Finalement, les composés $\text{Nd}_{2-x-y}\text{Ce}_x\text{Sr}_y\text{CuO}_4$ cristallisent dans la structure T* (voir la Fig. 1.1(c)), un croisement des structures T et T’. Pour les structures T et T’, la cellule unité conventionnelle, qui comprend deux cellules primitives, est tétragonale à volume centré.

La présente thèse s'intéresse plus particulièrement à la structure T' et au composé $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (PCCO). Sous forme de mono-cristaux, les paramètres de maille du composé parent (Pr_2CuO_4) sont $a = b = 3,95 \text{ \AA}$ et $c = 12,07 \text{ \AA}$ [7]. Ces derniers varient bien sûr en fonction du dopage en cérium, comme le montre la Figure 1.2, qui présente l'évolution de la valeur du paramètre c en fonction du dopage en cérium pour des couches minces de PCCO (001).

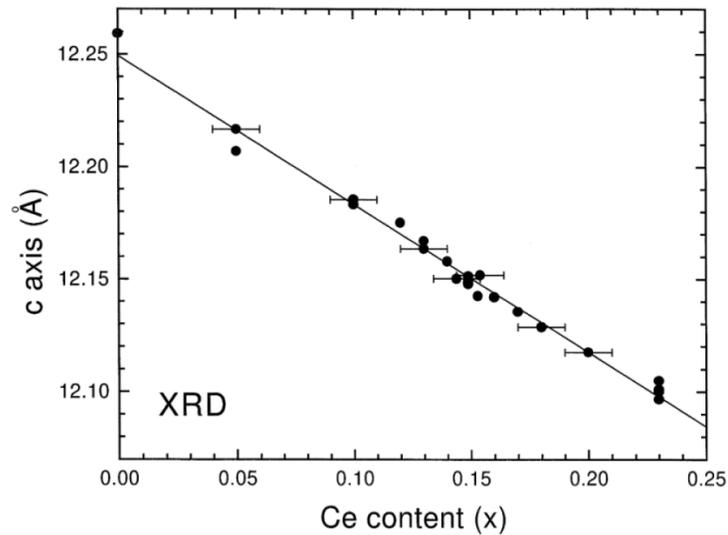


FIGURE 1.2 – Paramètre de maille hors plan (c) en fonction du dopage en cérium pour des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. L'image est extraite de la référence [24].

En plus du dopage, l'oxygénation est un autre facteur important pour l'apparition de la supraconductivité dans les cuprates dopés aux électrons. Pour que ces derniers deviennent supraconducteurs, il faut effectuer une réduction, c'est-à-dire leur enlever une toute petite quantité d'oxygène (comprise entre 0.1 et 2%). A priori, la réduction devrait contribuer au transport en libérant des porteurs de charge négative, comme le fait la substitution $\text{Pr}^{3+} \rightarrow \text{Ce}^{4+}$. Par contre, elle possède un effet plus complexe, qu'il est impossible de compenser par une substitution plus importante de cérium [8, 25]. L'idée généralement acceptée pour expliquer l'effet de la réduction était au départ que les oxygènes enlevés étaient des oxygènes apicaux, ne faisant pas partie de la structure attendue; la réduction permettrait donc hypothétiquement d'enlever ces défauts. Plusieurs mesures [26–28] ont permis d'écarter cette possibilité et d'établir que les oxygènes enlevés de la structure cristalline se trouvent sur des sites réguliers, en particulier dans

les plans d'oxyde de cuivre. Un autre scénario proposé [29] est que le recuit permet aux atomes de cuivre de se déplacer dans la structure cristalline. Cela implique que, tels quels, les échantillons possèdent des lacunes de cuivre intrinsèques, qui sont éventuellement comblées pendant le recuit, laissant certaines régions pauvres en cuivre (i. e. $(\text{Pr,Ce})_2\text{O}_3$ ou $(\text{Pr,Ce})\text{O}_2$). Ce faisant, cela enlève des centres diffuseurs de la structure, qui auraient tendance à briser les paires supraconductrices et créer des régions non supraconductrices. Cependant, plus récemment, notre groupe de recherche a effectué une étude sur des couches minces ne présentant pas cette phase parasite pauvre en cuivre [30]. Cette dernière a permis d'une part d'obtenir des couches minces dont la résistivité est comparable à celles des meilleures couches minces déposées par épitaxie par jet moléculaire. D'autre part, il a aussi été démontré que les propriétés supraconductrices sont inchangées en l'absence de la phase parasite, ce qui suggère que la migration des atomes de cuivre n'est pas nécessaire pour obtenir des couches minces supraconductrices. En somme, malgré beaucoup d'efforts pour comprendre le mécanisme exact qui permet à la réduction de rendre ces composés supraconducteurs, aucun consensus n'existe sur le sujet.

Le contenu en oxygène est aussi un facteur déterminant pour les propriétés supraconductrices du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, un dopé aux trous. Effectivement il est possible de rendre La_2CuO_4 supraconducteur (avec une température critique pouvant atteindre 25 K) en lui faisant subir des traitements sous oxygène (ou ozone), qui augmentent son contenu en oxygène [31, 32].

Finalement, pour conclure cette section, mentionnons que dans ces composés, les interactions entre les différents plans d'oxyde de cuivre sont beaucoup plus faibles que celles à l'intérieur de chacun de ces plans, ce qui entraîne une anisotropie dans pratiquement toutes les propriétés physiques mesurables. Sans en faire la liste exhaustive, mentionnons tout de même deux exemples. La longueur de cohérence des paires de Cooper (ξ) est très différente dans les plans ab et dans la direction c : pour des monocristaux de $\text{Pr}_{1,84}\text{Ce}_{0,16}\text{CuO}_{4-\delta}$ possédant une température critique d'environ 20,5 K, $\xi_{ab}(0) \approx 70\text{--}80$ Å alors que $\xi_c(0) \approx 3\text{--}4$ Å [33]². Aussi, la résistivité hors plan (ρ_c) et celle dans les plans (ρ_{ab}) diffèrent par plusieurs ordres de grandeur : pour $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$, le rapport ρ_c/ρ_{ab} atteint pratiquement 30 000 à basse température [34].

²La longueur de cohérence est calculée à l'aide de la théorie de Ginzburg-Landau et de la valeur de H_{c2} mesurée expérimentalement.

1.1.2 Le diagramme de phases des cuprates

Tel que mentionné dans la section précédente, les composés parents des SHTC (La_2CuO_4 et Pr_2CuO_4) sont, à cause de fortes corrélations électroniques, des isolants AF et ce, bien que la théorie des bandes ne prédise qu'ils sont métalliques. Le mécanisme qui permet au dopage de ces composés d'entraîner la supraconductivité n'est toujours pas bien compris et leur diagramme de phases est complexe. Par contre, nous savons que des deux côtés du diagramme de phase, la supraconductivité émerge grâce aux plans d'oxyde de cuivre et on s'attend donc à ce que le mécanisme de la supraconductivité soit aussi le même [35]. Cependant, nous allons voir que la réalité est beaucoup plus subtile et qu'il n'est pas du tout évident que le diagramme de phases soit symétrique par rapport au dopage électrons/trous.

Le diagramme de phases de ces matériaux présente, à faible dopage, une phase AF métallique (à dopage nul, la phase est AF isolante), un dôme supraconducteur à basse température pour des dopages intermédiaires et une phase métallique à haute température et fort dopage. Finalement, il existe une phase mystérieuse, logée entre les dômes AF et supraconducteur, appelée pseudo-gap. L'origine de cette dernière ou même son lien avec d'une part la phase AF ou d'autre part la supraconductivité est encore sujet à d'intenses débats. La Figure 1.3 montre le diagramme de phases des dopés aux électrons et des dopés aux trous, respectivement à droite et à gauche.

Pour les dopés aux trous, la phase AF faiblit extrêmement rapidement en fonction du dopage et disparaît à $x \approx 0,03$, alors que du côté dopés aux électrons, elle survit jusqu'à au moins $x \approx 0,125$. Ce phénomène serait dû au fait que le dopage en trous introduit des porteurs sur les atomes d'oxygènes de plans d'oxyde de cuivre, alors que le dopage en électrons introduit des porteurs sur les atomes de cuivre. Dans le premier cas, l'oxygène devient magnétique et frustre le magnétisme des atomes de cuivre, alors que le dopage en électrons le dilue en neutralisant le moment magnétique sur les atomes de cuivre [12]. Cette asymétrie dans la dimension de la zone AF par rapport au dopage apparaît sans trop d'efforts dans une modélisation basée sur le modèle de Hubbard à une bande avec des sauts au premiers et deuxièmes voisins [36]. Un autre argument est de voir cette asymétrie comme une conséquence du meilleur emboîtement de la surface de Fermi par le vecteur AF du côté dopés aux électrons que du côté dopés aux trous.

Le dôme supraconducteur est beaucoup plus étendu pour les dopés aux trous, où il

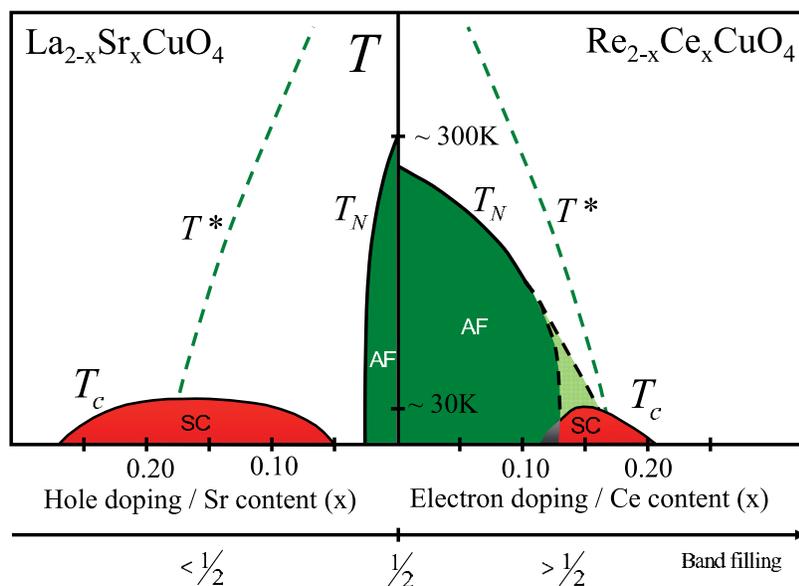


FIGURE 1.3 – Diagramme de phases des supraconducteurs à haute température critique en fonction du dopage (x) : à gauche, les dopés aux trous, à droite, les dopés aux électrons. Les dômes AF et supraconducteur sont en vert forêt et rouge, respectivement. La région pseudo-gap est entre les deux dômes, sous la ligne T^* (également en verte forêt). Du côté dopés aux électrons, l'emplacement de la ligne de transition T_N est encore sujet à controverse, en particulier la valeur de dopage pour laquelle $T_N = 0$. La région vert lime montre la portion du dôme AF concernée. L'image est extraite de la référence [8].

s'étend pour des dopages compris entre $x \approx 0,07$ et $x \approx 0,27$, que pour les dopés aux électrons, où il est confiné entre $x \approx 0,125$ et $x \approx 0,23$. Enfin, on note que l'emplacement exact des différentes lignes de transition des diagramme de phases, en particulier de celles du diagramme de phases des dopés aux électrons, est encore sujet à débat. Dans le cas des dopés aux trous, les dômes AF et supraconducteurs sont clairement séparés. Du côté dopés aux électrons, les conclusions sont beaucoup moins claires : certaines mesures semblent indiquer une coexistence entre les phases AF et supraconductrice, alors que d'autres révèlent deux phases distinctes (nous reviendrons sur ce point à la section suivante). Évidemment, s'il y a coexistence de phases, les deux côtés du diagramme de phase des cuprates seraient donc fondamentalement différents. C'est à cette différence que nous ferons référence lorsque nous parlerons de l'asymétrie du diagramme de phase. Avant d'aller plus loin, notons la différence entre la « coexistence de phase » (macroscopique) et la « coexistence homogène » (microscopique) de l'AF et de la supraconductivité. La

première implique que le matériau n'est pas homogène et que certaines régions sont AF, alors que d'autres sont supraconductrices. La deuxième constitue une phase différente de l'AF et de la supraconductivité, pour laquelle les deux paramètres d'ordre sont présents en même temps.

L'asymétrie du diagramme de phase quant à la région de coexistence homogène pourrait avoir un impact majeur sur notre approche pour résoudre le problème de la supraconductivité dans ces composés. Dans la prochaine section, nous ferons un survol des différentes mesures expérimentales utilisées pour établir le diagramme de phase dans le but de mieux expliciter ce désaccord.

Nous concluons cette sous-section sur le diagramme de phases, en revenant sur le pseudo-gap. Cette phase, présente dans tous les cuprates, est caractérisée par une diminution considérable de la densité d'états au niveau de Fermi en dessous d'une température T^* . Cette température diminue avec le dopage et devient nulle dans le régime sur-dopé, à environ $x = 0,17$. Son origine pourrait être reliée à l'apparition d'une onde de densité de spins³ [36,37] qui affecte grandement la structure électronique à proximité de l'énergie de Fermi.

1.2 Revue de la littérature

Maintenant que nous avons rapidement présenté les différentes phases observées dans le diagramme de phases des cuprates, nous allons passer en revue une partie de la littérature qui a permis de son établissement, en particulier nous nous attarderons au cas des dopés aux électrons. Aussi, sans délaisser complètement le côté théorique, nous nous intéressons plus spécifiquement aux mesures expérimentales.

1.2.1 Surface de Fermi

Avant de parler du diagramme de phases à proprement parler, il convient de présenter l'évolution de la surface de Fermi des dopés aux électrons en fonction du dopage. Cette analyse est essentielle pour comprendre les données qui seront présentées par la suite et permettra de corréliser les modifications de la surface de Fermi aux changements de phase

³Par convention, une onde de densité de spin qui possède une périodicité de $(\pm a, \pm a)$ dans l'espace réciproque est équivalente à un ordre AF à longue portée.

obtenus par diverses techniques. Nous verrons plus loin dans cette section qu'il n'est pas toujours évident que ces composés ont une surface de Fermi. Pour une certaine gamme de dopage, il s'agirait en effet d'arcs de Fermi plutôt que de surface fermée.

Tel que mentionné précédemment, les dopés aux électrons sont des composés aux propriétés très anisotropes. Étant donné que le couplage entre les plans d'oxyde de cuivre est très faible, il n'existe pratiquement pas de relation de dispersion selon cette direction. Leur surface de Fermi est donc cylindrique et la forme de sa section varie grandement en fonction du dopage. Ainsi, dans ce qui suit, lorsque nous utiliserons le terme « surface de Fermi » nous entendons la section du cylindre uniquement⁴. Aussi, le réseau est symétrique sous rotation de 90° , de même que la surface de Fermi. Pour alléger le texte et les figures, nous parlerons uniquement du premier quadrant de la zone de Brillouin dans ce qui suit.

Spectroscopie de photoémission résolue en angle (ARPES)

Le composé parent des dopés aux électrons (Pr_2CuO_4) est un isolant de Mott AF et ne possède donc pas de surface de Fermi. En dopant, des états apparaissent près du niveau de Fermi. À faible dopage, ces états sont concentrés près des points $(\pi,0)$ ⁵ et $(0,\pi)$ de la zone de Brillouin et forment des arcs de Fermi avec un caractère de type électron. Lorsque le dopage augmente, la longueur de ces arcs croît également. Comme suggéré par Lin et Millis [37], la présence d'une onde de densité de spins avec une périodicité de $(\pm a, \pm a)$ dans l'espace direct provoque une reconstruction de la surface de Fermi en bordure de la zone de Brillouin AF dans l'espace réciproque entraînant un repliement des bandes par rapport aux bords de la zone. Ainsi, dans un schéma de zones répétées les arcs semblent faire partie de surfaces de Fermi centrées à $(0,\pi)$ et $(\pi,0)$ et entourant donc un volume dans l'espace réciproque proportionnel au dopage x (voir Figure 1.4(a)). À fort dopage, les états contribuant au transport forment plutôt un cylindre de Fermi possédant un caractère de type trou centré au point (π,π) de la zone de Brillouin et dont le volume varie comme $\sim 1 - x$ [38] (voir Fig. 1.4(c)). Pour des dopages intermédiaires, la surface de trous que l'on retrouve à fort dopage est tronquée à des points appelés points chauds (hot-spots) (indiqués par des flèches à la Fig. 1.4(b)), qui correspondent à l'intersection de la surface de Fermi et de la zone de Brillouin AF. Cette dernière correspond à la

⁴Le commentaire est aussi applicable à la zone de Brillouin, que l'on va considérer dans le plan uniquement.

⁵Tous les points de la zone de Brillouin sont en unités de $1/a$.

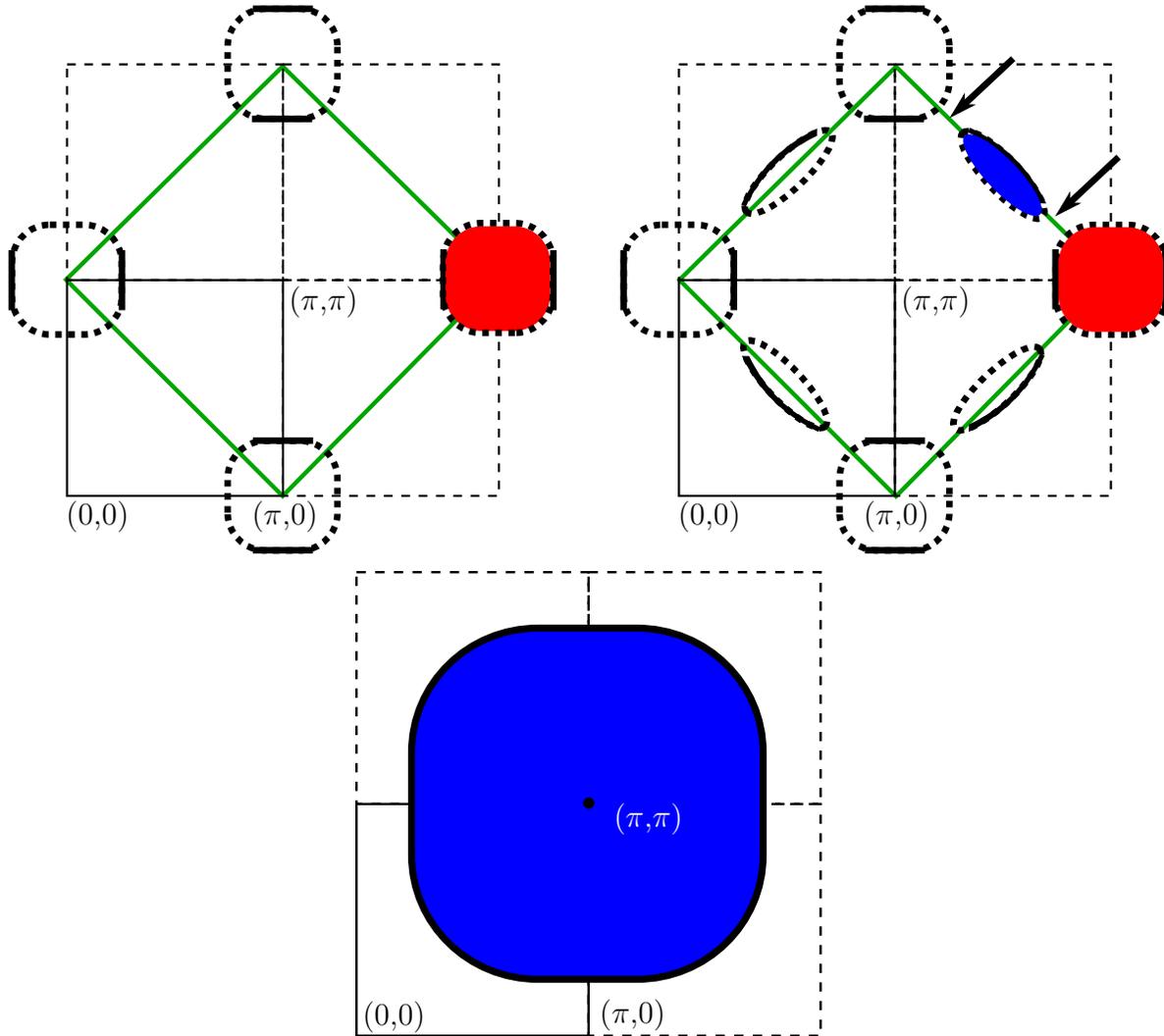


FIGURE 1.4 – Évolution de la surface de Fermi en fonction du dopage pour les cuprates dopés aux électrons. Dans les trois schémas, le premier quadrant de la zone de Brillouin est en ligne continue et la zone de Brillouin AF est tracée en vert. Aussi, l'intensité mesurée expérimentalement par ARPES [38, 39] (voir Figure 1.5) est tracée avec les traits épais. Les traits en pointillés épais décrivent les pochettes qui sont obtenues suite au repliement des bandes aux bordures de la zone de Brillouin AF. On a aussi indiqué le caractère des porteurs pour chacun des types de pochettes : rouge pour les électrons, bleu pour les trous. En haut à gauche, $x = 0,05$, en haut à droite $x = 0,15$ et en bas $x = 0,20$.

surface délimitée par les diagonales qui relient le centre des côtés de la zone de Brillouin régulière (entre les points $(\pi,0)$ et $(0,\pi)$ par exemple). Le repliement des bandes prédit par Lin et Millis [37], a comme résultat remarquable l'ouverture d'un gap aux points

chauds. Ce modèle permet d'obtenir une pochette d'électrons autour de $(\pi,0)$ (et tous les points équivalents par symétrie) et une pochette de trous centrée au point $(\pi/2,\pi/2)$ (voir Fig. 1.4(b)). L'évolution de la surface de Fermi, obtenue expérimentalement par ARPES, est présentée à la Fig. 1.5. En mettant les deux séries de données ensemble, on peut voir l'évolution de la surface de Fermi sur pratiquement l'ensemble des dopages possibles pour les composés dopés aux électrons. On note que la variation du poids spectral et les règles de sélection optiques de la mesure font en sorte que pour la pochette de trous à $(\pi/2,\pi/2)$ et pour la pochette d'électrons $(\pi,0)$ (et points équivalents), on ne voit qu'un arc de Fermi, et non une pochette fermée. La présence probable de ces pochettes a été confirmée récemment par des mesures de résistivité en champ magnétique intense montrant la présence d'oscillations Shubnikov–de Haas, au moins pour $x \geq 0,15$ [40].

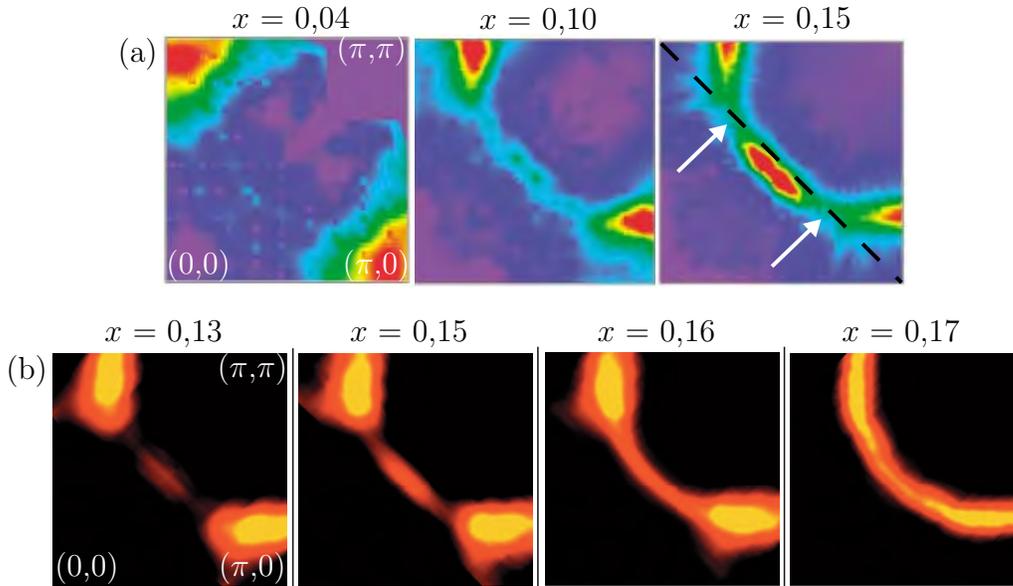


FIGURE 1.5 – Surface de Fermi mesurée par ARPES sur des cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ à différents dopages. (a) De gauche à droite, $x = 0,04$, $x = 0,10$ et $x = 0,15$. Les données sont obtenues en intégrant l'intensité recueillie entre -40 meV et 20 meV (par rapport au niveau de Fermi) entre 10 K et 20 K. Sur l'image de droite, les flèches blanches montrent l'emplacement des points chauds et la ligne pointillée, l'emplacement du bord de la zone de Brillouin AF. La figure est adaptée de la figure 3 de la référence [38]. (b) Encore de gauche à droite $x = 0,13$, $x = 0,15$, $x = 0,16$ et $x = 0,17$. Les données sont obtenues en intégrant l'intensité recueillie entre -20 meV et 20 meV (par rapport au niveau de Fermi) à 30 K. La figure est extraite de la référence [41].

Un autre modèle théorique permet de comprendre, au moins qualitativement, l'appar-

rition des trous pour les composés sur-dopés. En effet, en utilisant le modèle de Hubbard, Kusko *et al.* [36] arrivent à reproduire les données d'ARPES [38] sans avoir à postuler explicitement la présence d'un ordre AF. La méthode utilisée par ces auteurs permet également de calculer la variation du poids spectral en fonction de la position dans la zone de Brillouin, ce qui permet de reproduire très fidèlement les données expérimentales. L'Hamiltonien utilisé dans leur modèle comporte deux termes : un terme cinétique, permettant le saut des particules d'un site à l'autre et un terme potentiel, qui prend en compte l'interaction de deux électrons sur un même site du réseau. La Figure 1.6 illustre, pour différents dopages, les bandes de Hubbard supérieure (UHB) et inférieure (LHB) calculées avec des paramètres de couplage sur site et inter-site permettant de reproduire quantitativement les résultats d'ARPES [38]. À dopage nul (c. f. Fig. 1.6 (a)), le niveau

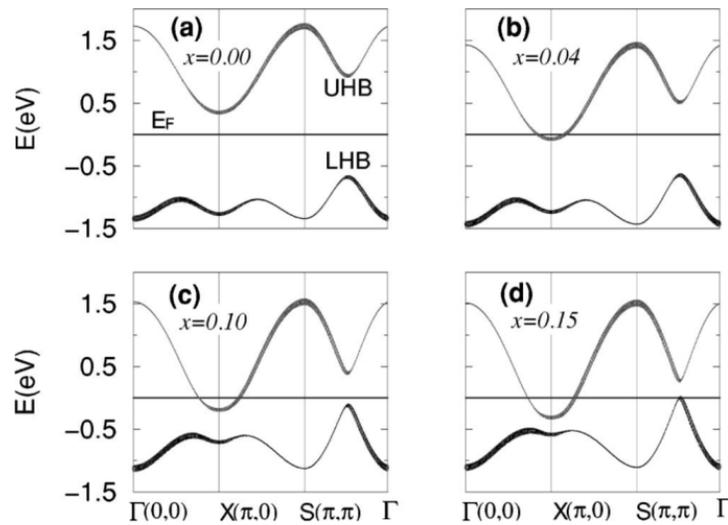


FIGURE 1.6 – Relation de dispersion des bandes de Hubbard calculées pour différents dopages pour le composé $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Les abréviations UHB et LHB réfèrent aux bandes de Hubbard supérieures et inférieures, respectivement. L'importance du poids spectral est représenté schématiquement par la largeur du trait : les parties de la relation de dispersion qui viennent du repliement de la zone de Brillouin à l'intérieur de la zone de Brillouin magnétique sont dessinées en traits fins. L'image est extraite de la référence [36].

de Fermi se trouve dans le gap de Hubbard et le composé est isolant. En dopant avec des électrons (c. f. Fig. 1.6(b) et 1.6(c)), la valeur du gap diminue et le niveau de Fermi croise la bande de Hubbard supérieure autour du point $(\pi,0)$. En augmentant encore le dopage (c. f. Fig. 1.6(d)), les bandes se déforment suffisamment pour que le niveau de Fermi croise non seulement la bande supérieure, mais également la bande de Hubbard

inférieure, autour du point $(\pi/2, \pi/2)$. À cet endroit, cette bande possède les caractéristiques d'un bande de trous, dont la masse effective est inférieure à celle des électrons au point $(\pi, 0)$. Aussi, l'importance du poids spectral est représenté schématiquement par la largeur du trait : les parties de la relation de dispersion qui viennent du repliement de la zone de Brillouin à l'intérieur de la zone de Brillouin magnétique sont dessinées en traits fins. On comprend ainsi pourquoi il n'est pas évident de voir, dans les mesures d'ARPES, les parties de la relation de dispersion venant du repliement des bandes puisque le poids spectral correspondant est très faible selon cette théorie.

1.2.2 Point critique quantique

Dans les sous-sections qui suivront, nous allons parler de différentes transitions de phase. Aussi, un terme qui reviendra souvent est le concept de point critique quantique (PCQ) [42–44]. Le point critique quantique est l'aboutissement d'une ligne de transition, typiquement une transition magnétique, soit l'emplacement x ou $T_c(x) = 0$. Ici, x est un paramètre qui permet de changer les propriétés du matériau, qui peut être le champ magnétique, la pression ou encore le dopage. Dans le cas qui nous intéresse, x est le dopage en cérium. Dans le diagramme de phase du matériau, la zone d'influence du point critique quantique s'étend beaucoup plus loin qu'en un seul point, tel qu'il a été démontré dans plusieurs matériaux comme certains fermions lourds [45, 46]. Au point critique et dans une région en forme de V centrée sur ce point critique quantique, le système est sans gap : les états excités et fondamentaux sont dégénérés. Également, la longueur de corrélation devient infinie. Conséquemment, la longueur d'onde thermique de de Broglie, qui varie comme l'inverse de la température, devient la longueur caractéristique pertinente puisqu'elle est inférieure à la longueur de corrélation (sauf à température nulle). Dans la région en V, les effets de la température vont ainsi dominer le système. Ce dernier pourra être décrit par la statistique classique puisqu'il n'y aura pas de discrétisation en énergie. La Figure 1.7 montre une représentation schématique du diagramme de phase possible et la zone d'influence d'un PCQ.

1.2.3 Le dôme supraconducteur

Dans cette section, nous allons présenter quelques résultats qui établissent les limites du dôme supraconducteur dans le diagramme de phase des dopés aux électrons. En règle générale, la température critique est déterminée par la résistivité, l'aimantation

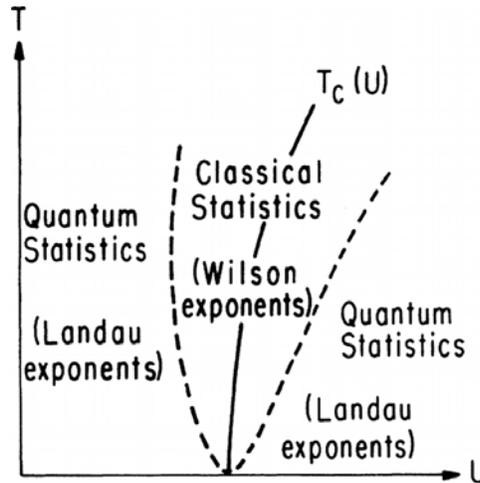


FIGURE 1.7 – Schéma montrant l'influence (en forme de V) d'un PCQ sur le diagramme de phase (x peut être le champ magnétique, la pression, le dopage...). Dans la région en V, les effets de la température vont dominer le système qui pourra être décrit par la statistique classique. La figure est extraite de la référence [42].

ou encore avec la susceptibilité magnétique AC. Le premier diagramme de phase des dopés aux électrons présenta la température de supraconductivité, déterminée à l'aide de l'aimantation en fonction du dopage en cérium pour les composés $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ et $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ [7]. Ce dernier, présenté à la Figure 1.8(a) montre que le dôme supraconducteur est compris entre $x = 0,14$ et $x = 0,18$. La forme du dôme est très asymétrique : en augmentant progressivement le dopage, on entre abruptement dans la phase supraconductrice ; à $x = 0,13$, $T_c = 0$, alors que pour $x = 0,14$, $T_c = 20$ K. Une dizaine d'années après cette première étude sur les monocristaux, une étude systématique sur des couches minces de PCCO vient confirmer les grandes lignes de cette étude [24]. Cette fois, c'est la position du pic de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique AC qui est utilisée pour déterminer T_c . Le dôme supraconducteur, quoiqu'encore asymétrique, est beaucoup moins abrupt du côté faible dopage, comme le montre la Figure 1.8(b). Aussi, on remarque que le dôme supraconducteur est plus étendu pour les couches minces que pour les monocristaux, probablement grâce aux contraintes dues au substrat. On a ainsi présence de supraconductivité pour tous les dopages compris entre $x = 0,12$ et $x = 0,20$ inclusivement.

Pour les supraconducteurs à haute température dopés aux trous, la symétrie $d_{x^2-y^2}$ du paramètre d'ordre supraconducteur a été confirmée par ARPES [47–49], effet tunnel [50,

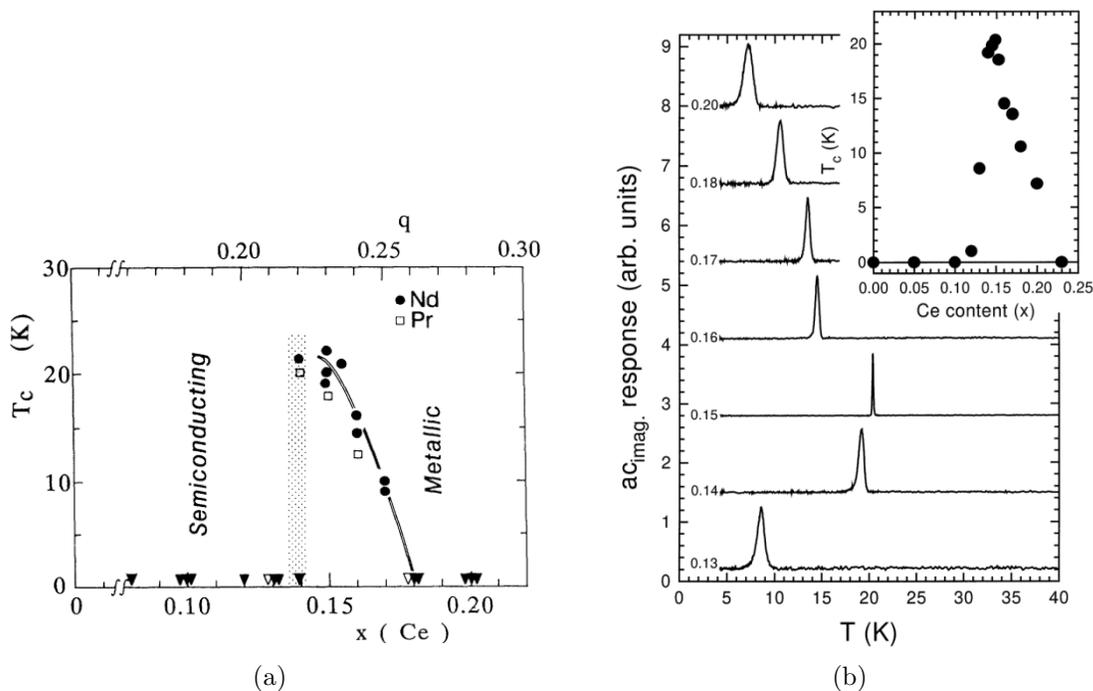


FIGURE 1.8 – Température critique en fonction du dopage pour les dopés aux électrons. (a) Température critique de matériaux polycristallins de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (carrés) et $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (cercles) en fonction du contenu en cérium (x) et du dopage chimique (q), qui tient compte du contenu en cérium et en oxygène. Les triangles montrent les échantillons non-supraconducteurs. La température critique est déterminée avec l'aimantation magnétique. La figure est extraite de la référence [6]. (b) Transition supraconductrice mesurée à l'aide de la susceptibilité magnétique AC et température critique pour des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ en fonction de la concentration en cérium (x). La figure est extraite de la référence [24].

51] et par des expériences de phase [52–55]. Malheureusement, la situation est beaucoup moins claire pour les dopés aux électrons. D’une part, certaines mesures de longueur de pénétration [56–58], de Raman [59], d’effet tunnel [60,61] et certaines expériences de phase [62] semblent indiquer un paramètre d’ordre de type s . D’autre part, certaines de ces mêmes techniques expérimentales ont été utilisées [63–67] pour démontrer que le paramètre d’ordre est de symétrie d , ou du moins, possède des nœuds. Cette conclusion a ensuite été confirmée de manière très convaincante par des mesures d’ARPES [38, 39, 68, 69] et également par plusieurs expériences de phase [70, 71]. Les expériences sensibles à la phase du paramètre d’ordre permettent non seulement de montrer la modulation de la norme du paramètre d’ordre mais également le changement du signe de sa phase, deux signatures distinctes de la présence d’un paramètre d’ordre de type d . Certaines de ces mesures [39, 65, 72] permettent de conclure que la symétrie du paramètre d’ordre n’est pas simplement de type d , mais bien de type « d non monotone », caractérisé par la présence de minimums secondaires là où normalement le paramètre de type d est maximal. Ainsi, cette fonction possède huit maximums orientés à un angle d’une vingtaine de degrés par rapport aux axes cristallographiques, dont les positions coïncident avec l’intersection de la surface de Fermi et de la zone de Brillouin AF. Finalement, d’autres mesures semblent indiquer une évolution du paramètre d’ordre en fonction du dopage [73–75], ce qui complique encore plus le tableau. Ces contradictions sont probablement dues à la difficulté de fabrication de ces matériaux, comme l’illustre des mesures de longueur de pénétration sur des couches minces de différente qualité [67], ce qui rend une conclusion simple et définitive impossible. Dans ce qui suit, nous allons considérer que le paramètre d’ordre est de type d uniquement, puisque les mesures les plus convaincantes avec les matériaux de plus grande qualité démontrent qu’il en est ainsi.

1.2.4 La zone antiferromagnétique

Dans cette section, nous allons présenter plusieurs résultats expérimentaux qui tentent d’établir la dépendance en dopage de la ligne de transition AF. D’une part, nous verrons que les mesures de diffusion élastiques de neutrons [10, 11] et de transport [9] suggèrent une coexistence d’AF et de supraconductivité sur une grande plage de dopages. D’autre part, les mesures de relaxation de spins de muons [12] et les récents résultats de diffusion inélastiques de neutrons [13] semblent indiquer que le dôme supraconducteur et la zone AF sont clairement séparés, ce qui rend le positionnement exact de la ligne de transition

AF assez difficile à déterminer. On note que la susceptibilité magnétique et l'aimantation ne peuvent être utilisées pour déterminer efficacement la température de Néel puisque les moments magnétiques impliqués sont non seulement faibles mais en plus, T_N étant élevé (des centaines de Kelvin), les fluctuations thermiques rendent la détermination de T_N pratiquement impossible. Même s'il était possible de détecter, le moment magnétique du cuivre est très faible, la transition ne serait observable expérimentalement puisque la contribution du magnétisme des terres rares, qui est beaucoup plus important, masque la transition magnétique due aux moments du cuivre [76].

Diffusion élastique des neutrons

La manière la plus directe de détecter l'apparition de l'ordre AF est de faire de la diffusion élastique de neutrons (non-polarisés ou polarisés). On utilise les neutrons car ces derniers peuvent être diffusés par les spins du réseau et seront ainsi sensibles à la présence d'AF. En particulier, la température de Néel est déterminée en notant l'apparition d'un pic supplémentaire dans le spectre mesuré dû au changement de taille de la zone de Brillouin. Dans la phase AF du diagramme de phase des cuprates, la périodicité de l'ordre AF est suivant les axes $(1, 1, 0)$ et $(1, -1, 0)$ ou (π, π) dans l'espace réciproque. Ainsi, la surface de la zone de Brillouin dans le plan $k_x k_y$ diminue de moitié et est orientée à 45° par rapport à la zone de Brillouin découlant de la symétrie cristalline, comme illustré à la Fig. 1.4(b). Des mesures effectuées sur des échantillons de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ [10] à différents dopages montrent que la température de Néel, T_N , est maximale à dopage nul (~ 250 K) et devient nulle près du dopage optimal. En particulier, pour des cristaux non recuits, T_N tend vers zéro pour $x = 0,20$, alors que, lorsque les cristaux sont réduits, $T_N = 0$ pour $x = 0,17$. Dans tous les cas, ces mesures de diffusion élastique des neutrons indiquent la coexistence entre supraconductivité et AF sur une plage assez large de dopage, soit au moins entre $x = 0,14$ et $x = 0,17$, pratiquement tout le dôme supraconducteur. Par la suite, d'autres mesures de diffusion élastique de neutrons sont venues confirmer l'apparente coexistence de ces deux phases. Des mesures sur $\text{Pr}_{0,88}\text{LaCe}_{0,12}\text{CuO}_{4-\delta}$, en fonction du contenu en oxygène, montrent que des cristaux peuvent posséder à la fois une température de Néel et une température de transition supraconductrice [11, 77]. Par contre, les cristaux dont la réduction est optimale et qui présentent la meilleure T_c ne présentent pas de température de Néel et donc pas de coexistence entre AF et supraconductivité. On note finalement que le fait que le même cristal présente les deux transitions n'est pas du tout un gage qu'une seule et même région de

l'échantillon possède ces deux propriétés simultanément (coexistence homogène). En effet, ces matériaux sont extrêmement difficiles à synthétiser en cristaux homogènes et les cristaux étudiés par diffusion des neutrons sont en général assez gros. Ainsi, il n'est pas du tout évident que les cristaux étudiés ici soient assez homogènes pour conclure qu'il y ait réellement coexistence homogène de phases.

Transport : résistivité et effet Hall

Les mesures de transport peuvent être utilisées pour détecter la présence d'une transition de phase. Par contre, la signature d'une telle transition ne nous donnera pas nécessairement d'information directe sur la nature de la phase, mais sur l'endroit où la transition vers cette phase se produit. Des mesures de résistivité et d'effet Hall sur des couches minces de PCCO en fonction du dopage obtenues par le groupe du Maryland suggèrent que le point critique quantique AF se trouve à $x > x_{opt}$ [9]. Les données obtenues par ce groupe montrent que l'effet Hall présente une dépendance importante en température (Figure 1.9(a)) et une résistivité proportionnelle à T^2 sauf près du point critique quantique. L'analyse de ces données est basée principalement sur le fait que l'effet Hall à basse température étant affranchi des processus inélastiques, reflète la structure électronique du matériau dans l'état fondamental. La preuve la plus convaincante de la présence d'un point critique quantique est ainsi le changement abrupt du coefficient de Hall mesuré à 350 mK (la plus basse température atteinte) pour un dopage de $x_c \sim 0,165$, tel que présenté à la Figure 1.9(b). Les données de résistivité entre 350 mK et 20 K peuvent être lissées avec l'expression $\rho = \rho_0 + AT^\beta$, où ρ_0 est la résistivité résiduelle à température nulle, A et β sont les paramètres du lissage et varient en fonction du dopage. À faible et fort dopage, la résistance présente une dépendance quadratique en fonction de la température, alors qu'à $x_c \sim 0,165$, elle est linéaire. Ces résultats sont interprétés comme une preuve supplémentaire de la présence d'un point critique quantique. Soulignons que l'analyse des données de Dagan *et al.* permettent d'identifier la présence d'un seul point critique quantique, dont l'emplacement est déterminé avec le changement de comportement du coefficient de Hall en fonction du dopage. Ce changement abrupt du coefficient de Hall présent dans les données expérimentales est aussi en accord avec les prédictions théoriques de Lin et Millis [37] faisant intervenir un ordre à longue portée et une onde de densité de spins provoquant une reconstruction de la surface de Fermi (tel que mentionné à la section 1.2.1). En effet, en ajustant les paramètres de leur modèle pour reproduire les données de photo-émission [38] présentées précédemment, Lin et Millis prédisent une

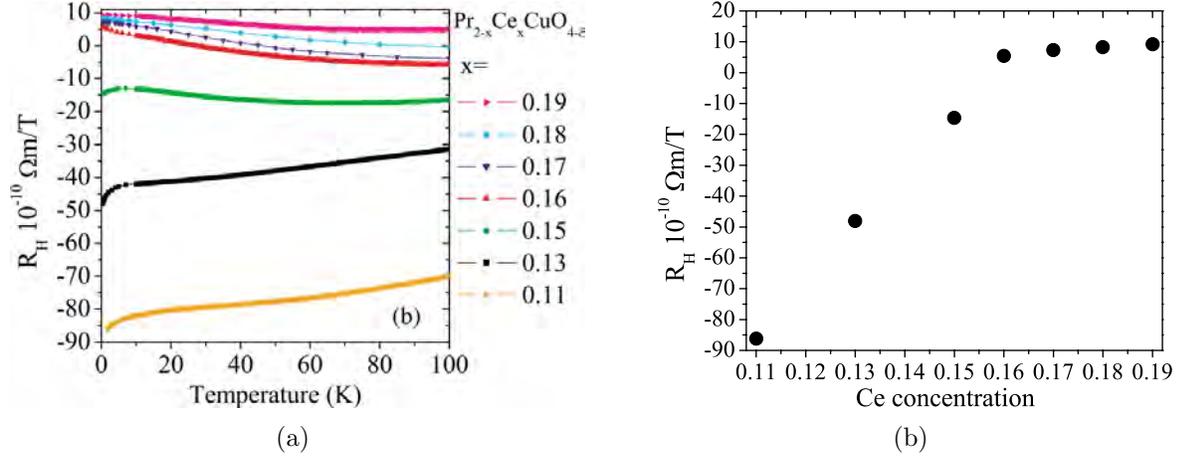


FIGURE 1.9 – Effet Hall pour des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (a) Coefficient de Hall en fonction de la température pour différents dopages. (b) Coefficient de Hall à $0,35 \text{ K}$ en fonction du dopage. L’erreur est approximativement de la taille du point et vient principalement de l’incertitude sur la mesure de l’épaisseur. La figure est extraite de la référence [9].

dépendance similaire du coefficient de Hall à basse température. Ils prédisent aussi la présence d’un point critique quantique à $x_c = 0,165$, en accord avec les mesures de Dagan *et al.* [9]. Dans le modèle de Lin et Millis, ce point critique quantique est identifié comme la fin de la zone AF. Ainsi, il y aurait coexistence des phases AF et supraconductivité sur une très large plage de dopage, soit de $x = 0,13$ à $x = 0,165$. Le modèle théorique de Lin et Millis reproduit correctement l’allure générale de la courbe du coefficient de Hall à basse température en fonction du dopage. Par contre, la valeur expérimentale du coefficient de Hall à bas dopage, ainsi que la tendance à fort dopage divergent des prédictions théoriques [37]. À bas dopage, en accord avec les résultats d’ARPES, la seule contribution à l’effet Hall est donnée par la pochette d’électrons dont le volume dans l’espace réciproque est proportionnel à x , alors que c’est la pochette de trous de volume proportionnel à $1 - x$ qui contribue à fort dopage. Pour des dopages intermédiaires, l’effet Hall est ainsi borné par ces deux valeurs, soit $R_H^{Electrons} = \frac{-V_{UC}(x)}{2xe}$ et $R_H^{Trous} = \frac{V_{UC}(x)}{2(1-x)e}$, où $V_{UC}(x)$ est le volume de la cellule unité en fonction du dopage, x , qui tient compte des paramètres de réseau tels que mesurés par diffraction des rayons-X (voir entre autre la Fig. 1.2). Le facteur 2 vient du fait que la cellule unité conventionnelle présentée précédemment contient deux fois la formule chimique (il y a donc deux atomes de cuivres par cellule unité, tel qu’illustré à la Fig. 1.1(b)). Les données expérimentales présentées à la Fig. 1.9(b) ne respectent pas ces valeurs limites, comme il a été souligné par Lin

et Millis [37] : les valeurs de la constante de Hall pour $x = 0,11$, $x = 0,13$, $x = 0,18$ et $x = 0,19$ sont trop élevées (en valeur absolue), ce qui pourrait être expliqué en supposant une concentration de dopants réelle différente de la concentration attendue. Quoi qu'il en soit, ces deux résultats indiquent que l'AF disparaît dans le régime sur-dopé, ce qui implique une coexistence de supraconductivité et d'AF sur une grande plage de dopages en comparaison des cuprates dopés aux trous.

Relaxation de spins de muons

La relaxation des spins de muons est une technique expérimentale qui permet de sonder localement le magnétisme d'un matériau. Les muons sont implantés dans l'échantillon à caractériser et sont sensibles à l'environnement magnétique local à cet endroit [12]. Après quelques microsecondes, les muons se désintègrent en émettant un positron dans la direction instantanée de leur spin au moment de leur désintégration. Il est ainsi possible de corrélérer le spectre de désintégration des muons avec leur fonction de polarisation, qui elle-même reflète l'environnement magnétique local de l'échantillon. Cette technique a été utilisée pour caractériser des matériaux polycristallins de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ à différents dopages et en fonction de la température [12], ce qui a permis d'établir les limites de l'AF dans le diagramme de phase de ces composés. Pour de faibles dopages, les résultats correspondent assez bien aux résultats de diffusion élastique des neutrons [10, 11, 77]. Par contre, les résultats de relaxation de spins de muons montrent que l'ordre AF disparaît rapidement lorsque la concentration approche de celle nécessaire pour entrer dans le dôme supraconducteur. Pour une concentration $x = 0,14$, $T_N = 80$ K, alors qu'aucun ordre magnétique n'est détecté au dessus de 5 K pour $x = 0,15$. Malheureusement, ce groupe n'a pas effectué de mesures de température supraconductrice sur les mêmes échantillons. Cependant, on peut tout de même noter une différence fondamentale entre leur résultats et les résultats présentés dans les deux sous-sections précédentes, soit qu'ici, la température de Néel devient nulle dans le régime sous-dopé. La région de coexistence potentielle entre l'AF et la supraconductivité est ainsi considérablement réduite ou même complètement absente.

Diffusion inélastique des neutrons

Nous avons déjà présenté l'intérêt d'utiliser la diffusion élastique des neutrons pour déterminer la présence d'AF dans les cristaux de cuprates. Dans cette section, nous pré-

senterons des résultats de diffusion inélastique des neutrons. Cette technique permet non seulement de confirmer la présence d'un ordre AF, mais aussi d'en mesurer la longueur de corrélation, ξ , en faisant une analyse approfondie de la largeur des pics du spectre de diffusion. Elle a été utilisée pour caractériser des mono-cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ à différents dopages et en fonction de la température [13]. La Figure 1.10 montre l'évolution de ξ en fonction de ces deux paramètres. En (a), on montre la longueur de corrélation

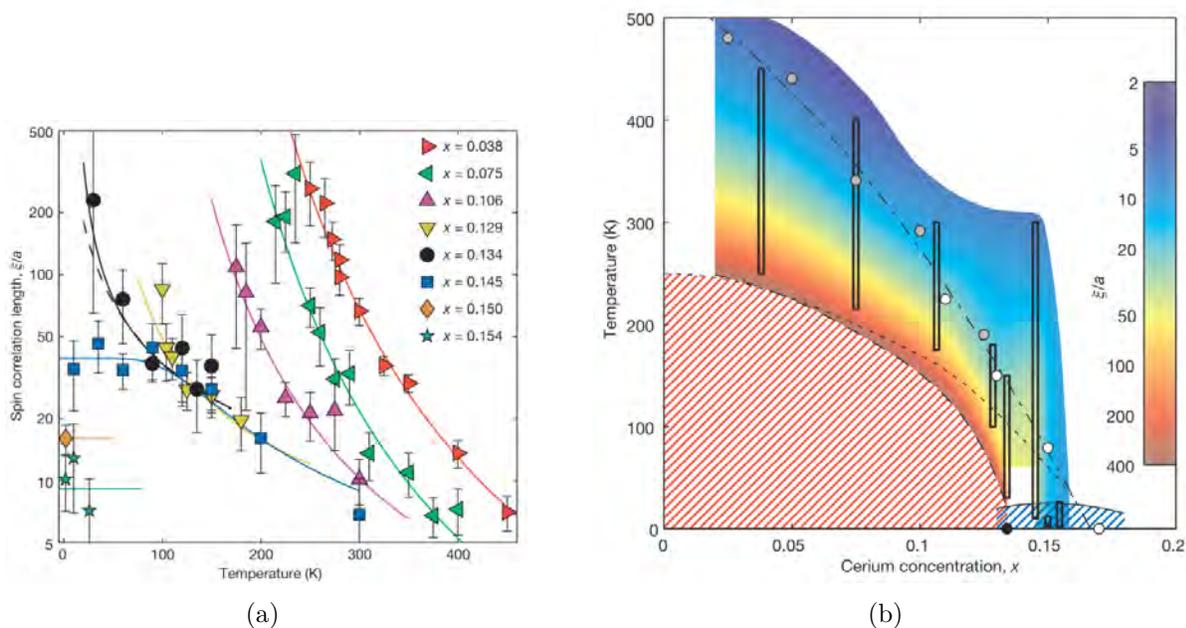


FIGURE 1.10 – (a) Longueur de corrélation AF en fonction de la température pour différents dopages. (b) Longueur de corrélation AF en fonction du dopage et de la température pour des cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Les zones hachurées rouge et bleue indiquent l'AF à longue portée et la supraconductivité, respectivement. Le cercle noir à température nulle indique l'emplacement approximatif de la transition critique quantique AF. L'échelle des couleurs indique la valeur de ξ en unité du paramètre de maille dans le plan (a). Les cercles vides et gris représentent les valeurs de T^* obtenues par mesures optiques sur des cristaux de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ [34] et des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ [78], respectivement. La figure est extraite de la référence [13].

AF en fonction de la température pour différents dopages. On remarque aisément que la longueur de corrélation diverge pour tous les dopages inférieurs à $x = 0,134$, alors qu'elle sature pour les dopages plus élevés. Ces données indiquent clairement un changement de régime autour de ce dopage pour $x < 0,134$, l'état à basse température est clairement AF à longue portée, alors que pour $x > 0,134$, la taille des domaines AF semble saturer et l'ordre ne s'établit donc apparemment pas à longue portée. En (b), on montre l'évolution

de cette longueur de corrélation en fonction de la température et du dopage, sous la forme d'un diagramme de phase. La longueur de corrélation AF (ξ) est obtenue avec des données de diffusion inélastique des neutrons. Les données expérimentales, déjà présentées en a), sont encadrées en noir. Le reste des valeurs présentées sont interpolées à partir des données expérimentales. Les mesures sont prises pour les plages de température et de dopage indiquées par les rectangles noirs. La température de Néel obtenue pour de faibles dopages et définie comme étant la température en dessous de laquelle $\xi = 400a$ (a étant le paramètre de maille dans le plan) correspond encore une fois aux mesures précédentes. Par contre, tel que mentionné précédemment en parlant de la partie (a) de la Fig. 1.10, les données expérimentales montrent clairement la fin de la zone AF à un dopage d'environ $x = 0,134$, soit dans le régime sous-dopé. L'analyse présentée par Motoyama *et al.* montre clairement qu'il est dangereux de se fier uniquement aux résultats de diffusion élastique des neutrons pour déterminer où se situe la limite du dôme AF puisqu'elle semble élargir artificiellement la zone AF à des dopages trop élevés. Les auteurs concluent aussi que la présence du pic de Bragg magnétique pour des concentrations supérieures est due à une inhomogénéité du contenu en oxygène dans l'échantillon. Leurs résultats permettent de conclure que la coexistence entre l'AF et la supraconductivité est essentiellement absente dans le diagramme de phase de $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$: au pire, la coexistence est restreinte à un très faible intervalle en dopage du côté sous-dopé.

Nous avons vu dans les dernières sous-sections les résultats qui ont permis d'établir les limites de la zone AF dans le diagramme de phases des dopés aux électrons. D'une part, nous avons vu que certaines mesures semblaient indiquer une coexistence des phases AF et supraconductrice à basses températures sur une large plage de dopages, $x \in [0,12; 0,17]$. D'autre part, nous avons aussi vu que d'autres mesures semblaient indiquer qu'une telle coexistence était essentiellement absente du diagramme de phase. L'une des explications possibles est que les cristaux utilisés par le premier groupe sont inhomogènes, ce qui expliquerait la présence d'ordre AF et de supraconductivité, qui seraient alors présents pour un même échantillon sans pour autant coexister dans la même portion de cet échantillon. Il semble pourtant impératif de déterminer de manière définitive l'emplacement de la ligne de transition AF : du côté dopé aux trous, la zone AF et le dôme supraconducteur sont clairement séparés et s'il advenait que cela ne soit pas le cas du côté des cuprates dopés aux électrons, il faudrait revoir notre approche pour résoudre l'énigme de la SHTC pour tenir compte de cette importante asymétrie dans le diagramme

de phase. On note que la coexistence homogène des phases AF et supraconductrices apparaît naturellement dans le modèle de Hubbard [79,80]. Par contre, elle apparaît des deux côtés du diagramme de phases et pas uniquement du côté des dopés aux électrons, ce qui souligne encore une fois notre incapacité à prendre en compte cette possible asymétrie. Les résultats obtenus dans cette thèse semblent indiquer qu'il est possible de réconcilier les résultats de transport avec un scénario où les phases supraconductrice et AF sont séparées.

1.2.5 La région pseudo-gap

Découvert en 1989 [81] par des mesures de résonance magnétique nucléaire, la présence du pseudo-gap du côté des cuprates dopés aux trous a par la suite été confirmée par ARPES [82–84], effet tunnel [85], résistivité [86,87], conductivité optique [88], conductivité thermique [89], etc. (voir [90] pour une revue complète). Cette région se trouve *grosso modo* entre la zone AF et le dôme supraconducteur et s'étend au-dessus de ces derniers, comme le montrait la Figure 1.3. Les mesures d'ARPES [82,84] ont établi que ce pseudo-gap possède la même symétrie, la même orientation et la même échelle d'énergie que le gap supraconducteur pour un certain intervalle de dopage et ce, même pour des températures plus élevées que la température supraconductrice. Certains modèles théoriques prédisent la présence de paires de Cooper (que l'on appelle paires préformées) dans cette zone du diagramme de phase même au-dessus de T_c , mais ne possédant pas la cohérence de phase nécessaire à la supraconductivité.

Du côté des cuprates dopés aux électrons, le régime de pseudo-gap a été mis en évidence par des mesures de conductivité optique [34,91,92], d'effet Hall [92], de résistivité électrique [34], de spectroscopie Raman [65,93], de spectroscopie tunnel [94] et d'ARPES [38,41]. Cependant, il n'est pas du tout évident que ce dernier ait la même origine que celui présent du côté des cuprates dopés aux trous, comme le démontrent plusieurs techniques. Par exemple, des résultats de conductivité optique [91] établissent une différence d'au moins un ordre de grandeur entre les énergies caractéristiques du gap supraconducteur et du pseudo-gap. Quant à la symétrie du pseudo-gap, les mesures d'ARPES semblent indiquer la présence de huit maximums, orientés à un angle d'une vingtaine de degrés par rapport aux axes cristallographiques [39,72]. Ces maximums coïncident avec les intersections de la surface de Fermi et de la zone de Brillouin AF et *grosso modo* avec la position des maximums du gap supraconducteur [39,72], ce qui semble sug-

gérer un lien relativement direct entre ce dernier et le mécanisme de la supraconductivité. Pour être en mesure de comprendre les mécanismes générant la supraconductivité dans les SHTC, il est donc impératif de démystifier la nature du pseudo-gap. Une des pièces du casse-tête pourrait venir de l'effet Josephson. Cet effet pourrait être utilisé pour sonder l'état pseudo-gap en comparant le couplage Josephson pour des jonctions qui possèdent une barrière métallique avec le couplage mesuré pour des jonctions où la barrière est dans le régime de pseudo-gap.

Chapitre 2

Effet Josephson

Ce chapitre se veut en premier lieu une présentation des différents concepts de base autour de l'effet Josephson : les divers procédés de fabrication des jonctions, la manifestation de l'effet et sa caractérisation. En second lieu, nous allons présenter certains modèles qui permettent sa description. Nous finirons ce chapitre par une présentation de différents résultats sur les supraconducteurs à haute température critique.

L'effet Josephson se produit lorsque deux électrodes supraconductrices sont couplées faiblement via une zone (appelée barrière) où la supraconductivité est moins importante, ou encore carrément absente. Si l'épaisseur de cette zone est assez faible, il y aura recouvrement des fonctions d'ondes des paires de Cooper qui pourront ainsi passer d'un supraconducteur à l'autre par effet tunnel. Cet effet tunnel est cohérent, c'est à dire que la cohérence de phase des paires sera conservée pendant leur transit entre les deux électrodes, rendant les phases de chaque côté de la barrière interdépendantes. Cet effet fut prédit théoriquement en 1962 par Brian David Josephson [95], qui reçut le prix Nobel de physique en 1973. Cet effet a été confirmé expérimentalement en 1963 [96].

Avant d'aller plus loin, examinons comment on peut fabriquer une jonction Josephson. En pratique, la barrière qui se trouve entre les deux électrodes peut être un rétrécissement (à des tailles de l'ordre de la longueur de cohérence des électrodes supraconductrices), un isolant, un métal ou une zone de défauts. Les barrières peuvent être intrinsèques, ou extrinsèques. Dans le premier type, la nature et l'épaisseur de la barrière ne sont pas facilement contrôlables, alors que dans le second cas, la barrière est un matériau généralement différent, dont la croissance se fait de manière distincte. Ce dernier type de

jonction est ainsi plus polyvalent, quoique en pratique beaucoup plus difficile à fabriquer. La Figure 2.1 montre différentes façons d’obtenir des jonctions Josephson, qui ont toutes été appliquées aux supraconducteurs à haute température critique.

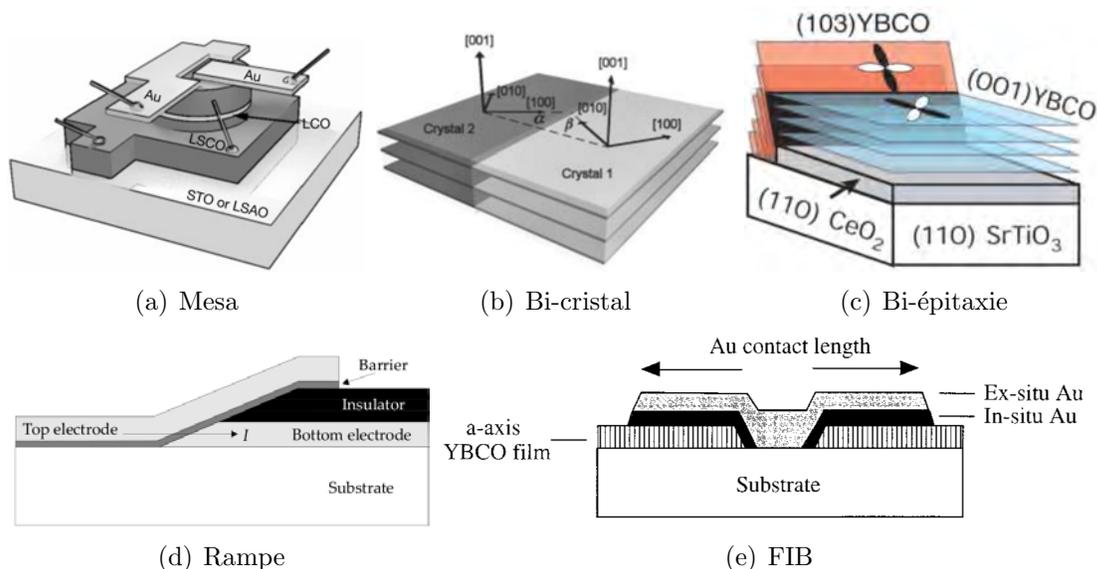


FIGURE 2.1 – Différents types de jonctions Josephson explorés avec les supraconducteurs à haute température critique. (a) Jonction de type méso [15]. La barrière est extrinsèque et le courant circule verticalement. (b) Jonction de type bi-cristal ou jonction de grains [97]. La barrière est intrinsèque et créée à cause d’une reconstruction entre deux zones où les cristaux sont orientés dans des directions différentes. Le courant circule dans le plan de la couche (dans un plan transverse à la direction [001]). (c) Jonction de type bi-épitaxie, ou jonction de grains (un autre type) [98]. La barrière est intrinsèque et le courant circule dans le plan de la couche. (d) Jonction en rampe [99]. La barrière est généralement extrinsèque. Elle pourrait aussi être créée uniquement par la reconstruction à l’interface des deux électrodes ou par oxydation de la première électrode, elle serait alors intrinsèque. Le courant circule horizontalement. (e) Jonctions de type FIB (pour *Focused Ion Beam*) [100]. La barrière est extrinsèque, ou intrinsèque dans le cas où le faisceau d’ion n’est pas utilisé pour faire un trou entre les deux électrodes mais uniquement pour détruire les propriétés supraconductrices dans certaines régions. Le courant circule horizontalement.

2.1 Concepts de base

Cette section se veut une présentation des différents concepts de base de l’effet Josephson. Elle n’est en aucun cas exhaustive et ne s’attarde pas à démontrer les résultats

qui y sont présentés. Le lecteur désirant avoir un traitement plus détaillé est référé au chapitre 5 de la référence [101] ou encore aux chapitres 6 et 7 de la référence [102] pour un traitement plus rigoureux et complet. À moins d'avis contraire, les résultats qui sont présentés dans cette section sont tirés de ces deux références.

2.1.1 Effet Josephson DC

Avant que le contact ne soit établi entre les deux supraconducteurs¹, leurs phases supraconductrices sont découplées et leurs fonctions d'onde respectives sont données par :

$$\Psi_{1,2} = |\psi_{1,2}|e^{i\varphi_{1,2}} \quad (2.1)$$

où $|\psi_{1,2}|$ est l'amplitude de la fonction d'onde supraconductrice et $\varphi_{1,2}$ sa phase. La différence de phase des fonctions d'onde des deux supraconducteurs est donnée par :

$$\delta\varphi = \varphi_1 - \varphi_2. \quad (2.2)$$

Une fois que les supraconducteurs sont à proximité, le recouvrement entre les fonctions d'onde des deux supraconducteurs crée l'effet Josephson. La première relation de Josephson décrit l'effet Josephson DC :

$$J_s(\delta\varphi) = J_c \sin(\delta\varphi) \quad (2.3)$$

où $J_s(\delta\varphi)$ est le supercourant qui traverse la jonction et J_c , la densité de courant critique, qui donne la densité de courant maximale qui peut traverser la jonction sans que celle-ci ne perde ses propriétés. Le courant est obtenu simplement en intégrant la densité de courant sur la section de la jonction. Cette équation nous indique que même s'il n'y a pas de différence de potentiel appliquée sur la jonction, il y a tout de même un courant tunnel qui la traverse en présence d'un gradient de phase. Inversement, si on applique un courant à la jonction et que ce dernier est inférieur à I_c , la différence de potentiel aux bornes de la jonction sera nulle. Dans ce cas, le courant est créé uniquement par l'effet tunnel des paires de Cooper. Si le courant appliqué est supérieur à I_c , le courant total devra inclure des quasi-particules, ce qui crée un canal résistif et fait que la courbe

¹Dans ce qui suit, nous simplifierons la discussion en considérant uniquement les jonctions ayant 2 électrodes identiques.

IV tend vers une droite dont la pente, R_n , est la résistance normale de la jonction. La caractéristique IV d'une jonction Josephson est présentée dans le schéma à la Figure 2.2.

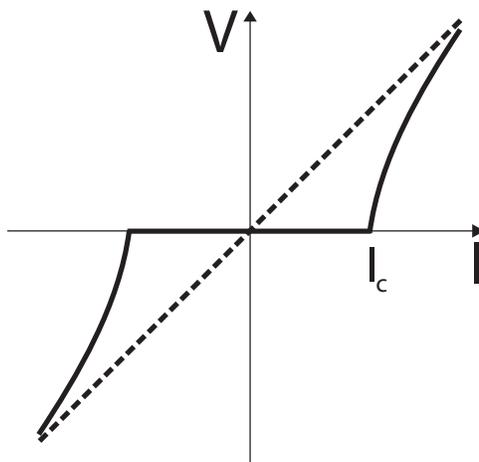


FIGURE 2.2 – Courbe IV typique d'une jonction Josephson. Lorsque le courant appliqué est inférieur à I_c , la différence de potentiel est nulle. Lorsque le courant est supérieur à I_c , la courbe tend vers une droite dont pente, R_n , est la résistance normale de la jonction. La figure est adaptée de la figure 2.4 (b) de la référence [99].

Expérimentalement, pour mesurer la qualité des jonctions Josephson, on utilise la valeur du produit $I_c R_n$ [103]. Ce produit est indépendant de la géométrie de l'échantillon et il a été montré [104, 105] qu'il est au théoriquement donné par :

$$I_c R_n = \frac{\pi \Delta}{2e}. \quad (2.4)$$

Ceci constitue la limite supérieure possible pour la valeur de ce produit. Ainsi, plus la valeur expérimentale est près de la valeur du gap supraconducteur des électrodes (Δ), meilleure est la jonction (le facteur $\pi/2$ devant est approximé par 1).

2.1.2 Effet Josephson AC

L'effet Josephson AC se manifeste quant à lui lorsque la différence de potentiel à travers la jonction n'est pas nulle. Dans ce cas, la différence de phase varie dans le temps en accord avec :

$$\frac{d\varphi}{dt} = \frac{2e}{\hbar} V. \quad (2.5)$$

En intégrant cette dernière équation et en insérant le résultat dans l'équation 2.3, on obtient :

$$J_s = J_c \sin\left(\frac{2eV}{\hbar}t + \varphi_0\right) \quad (2.6)$$

où φ_0 est une constante d'intégration. Ainsi, lorsque $V > 0$, le courant à travers la jonction oscille à la fréquence :

$$f_J = \frac{V}{\Phi_0} \quad (2.7)$$

où $\Phi_0 \sim 2 \times 10^{-15} \text{ Tm}^2$ est le quantum de flux magnétique, donc la fréquence est de 483,6 MHz/ μV .

2.2 Modèle RCSJ

Le modèle théorique le plus souvent utilisé pour décrire les jonctions Josephson est le modèle RCSJ (*Resistively and capacitively Shunted Junctions*) [106]. Dans ce modèle la jonction Josephson est modélisée par une jonction idéale, comme celle décrite par l'équation 2.3, avec laquelle on met en parallèle une résistance et une capacité, comme illustré à la Figure 2.3. Lorsque le voltage est nul, la résistance n'a pas d'effet, c'est le

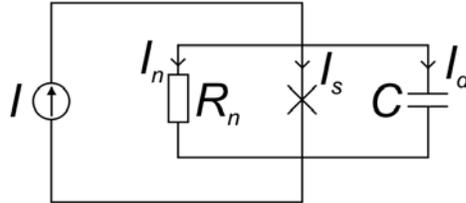


FIGURE 2.3 – Circuit montrant le modèle RSJC. La figure est extraite de la référence [99].

régime DC sans perte décrit précédemment. Pour un voltage fini, la résistance est ajoutée pour créer de la dissipation. Quant à elle, la capacité est ajoutée pour tenir compte des effets capacitifs présents entre les deux électrodes supraconductrices. Dans ce modèle, le courant total à travers la jonction est donné par :

$$I = I_s + I_n + I_d = I_c \sin(\delta\varphi) + \frac{V}{R_n} + C \frac{dV}{dt}. \quad (2.8)$$

Cette équation peut être réécrite uniquement en terme de la différence de phase en utilisant l'équation 2.5,

$$0 = -\frac{I}{I_c} + \sin(\delta\varphi) + \frac{\hbar}{2eI_c R_n} \frac{d(\delta\varphi)}{dt} + \frac{\hbar C}{2eI_c} \frac{d^2(\delta\varphi)}{d^2t}. \quad (2.9)$$

On remarque que cette dernière est identique à l'équation qui décrit le mouvement d'une particule se déplaçant sur une surface ayant la forme d'une planche à laver inclinée (voir Figure 2.4) et soumise à la gravité et la viscosité :

$$0 = \frac{\partial}{\partial\phi} [mg(1 - \cos\phi - T\phi)] + \eta \frac{\partial\phi}{\partial t} + m \frac{\partial^2\phi}{\partial^2t} \quad (2.10)$$

où m est la masse de la particule, η est la viscosité (friction), g est l'accélération gravitationnelle et T est l'inclinaison de la surface. On peut ainsi associer la position à la différence de phase, la vitesse à la différence de potentiel, la masse à la capacité, la viscosité à la conductivité, l'inclinaison de la surface au courant appliqué et la profondeur des modulations au courant critique [99]. Ainsi, le rapport du courant sur le courant critique (I/I_c) détermine l'inclinaison et la profondeur des modulations. Imaginons une particule se trouvant dans un minimum local de la surface. Si le rapport I/I_c est inférieur à 1, le potentiel est tel que la particule ne peut s'échapper du minimum local où elle se trouve initialement. C'est l'effet Josephson et aucune différence de potentiel n'est générée. En augmentant le courant appliqué, le rapport I/I_c va éventuellement atteindre 1. Cette valeur est le seuil limite à partir duquel la particule pourra s'échapper de son minimum local (si on ne tient pas compte des fluctuations thermiques). En augmentant encore le courant, la particule pourra rouler vers le bas de la surface (voir Fig. 2.4), ce qui va générer une différence de potentiel.

2.2.1 Le paramètre Stewart-McCumber

Une manière de caractériser le régime dans lequel la jonction se trouve est d'utiliser le paramètre de Stewart-McCumber :

$$\beta_c = \frac{2eI_c R_n^2 C}{\hbar}. \quad (2.11)$$

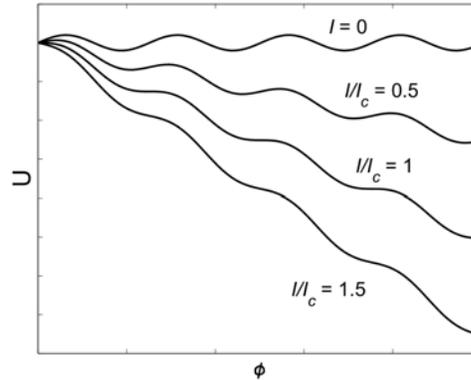


FIGURE 2.4 – Potentiel en forme de planche à laver inclinée pour 4 rapports de I/I_c . On voit aisément que lorsque $I/I_c > 1$, la particule peut sortir sans problème de son minimum local et se déplacer sur la surface.

Ce paramètre sans dimension est relié au facteur de qualité Q de la jonction :

$$Q = \sqrt{\beta_c}. \quad (2.12)$$

La valeur de β_c détermine si la jonction se trouve dans le régime sous-amorti et irréversible² ($\beta_c \gg 1$), sur-amorti et réversible ($\beta_c \ll 1$) ou dans le régime d'amortissement critique ($\beta_c \sim 1$). Pour revenir à l'analogie avec la particule sur la planche à laver, le paramètre β_c peut être vu comme une mesure de son inertie, ou en d'autres termes, la facilité avec laquelle la particule sera repiégée par un minimum local lorsque le courant sera abaissé sous sa valeur critique. Dans les jonctions sur-amorties, la particule sera facilement repiégée, alors que pour les jonctions sous-amorties, la particule continue de rouler sur la surface, même si le courant appliqué est inférieur au courant critique : elle sera éventuellement repiégée, mais dans un minimum se trouvant plus loin.

2.3 Effet du champ magnétique

Voyons maintenant comment la courbe IV d'une jonction Josephson est modifiée par l'application d'un champ magnétique. Un autre paramètre important pour la caractérisation des jonctions Josephson est la longueur de pénétration, λ_J . Cette dernière représente la longueur de pénétration caractéristique d'un champ magnétique sur les bords de la

²La courbe IV présentera un courant critique différent lorsque le courant est augmenté et diminué.

jonction Josephson. Elle est donnée par l'expression [106] :

$$\lambda_J = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi J_c \mu_0 (2\lambda_L + d)}} \quad (2.13)$$

où J_c est la densité de courant critique de la jonction, μ_0 est la perméabilité magnétique du vide, λ_L est la longueur de pénétration de London et d l'épaisseur de la barrière. Si la largeur de la jonction est inférieure à la longueur de pénétration Josephson, la jonction est dite en régime étroit. Au contraire, si elle est plus large que λ_J , elle est dans le régime large. Cette distinction est importante puisque la dépendance en champ magnétique sera affectée par le régime dans lequel se trouve la jonction, comme nous le verrons dans les prochaines sous-sections. Pour les cuprates on a $\lambda_L \sim 150\text{-}200$ nm. Ainsi, en utilisant les paramètres typiques (nous y reviendrons) $d \sim 20$ nm et $J_c \sim 10$ kA/cm², on obtient une longueur λ_J de l'ordre de quelques μm . Ainsi, pour se trouver dans le régime des jonctions étroites, les jonctions avec de tels couplages devront atteindre des largeurs inférieures à 10 microns.

2.3.1 Jonctions étroites

Examinons premièrement le cas d'une jonction rectangulaire étroite pour laquelle le champ magnétique pénètre de manière uniforme. Dans ce cas, le courant est simplement donné par la densité de courant multipliée par la section de la jonction. Si le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au courant, le courant critique sera modulé en fonction du champ magnétique suivant l'équation :

$$I_c(\Phi) = I_c(0) \left| \frac{\sin(\pi\Phi/\Phi_0)}{\pi\Phi/\Phi_0} \right|, \quad (2.14)$$

où Φ est le flux magnétique qui traverse la jonction, soit

$$\Phi = BL(2\lambda_L + d), \quad (2.15)$$

où L est la largeur de la jonction et d , l'épaisseur de la barrière. À chaque fois qu'un quantum de flux entre dans la jonction, le courant critique devient nul. Ainsi, la fonction décrite par l'équation 2.14 possède plusieurs minimums régulièrement espacés. La

distance entre chacun d'eux est obtenue avec l'équation 2.15 pour $\Phi = \Phi_0$. La Figure 2.5 montre l'allure de la fonction $I_c(\Phi)$ ($I_c(B)$), que l'on appelle aussi patron de diffraction de Fraunhofer par analogie au patron d'interférence d'une onde passant par une ouverture carrée. Si la jonction est dans le régime étroit, mais d'une forme différente, par exemple

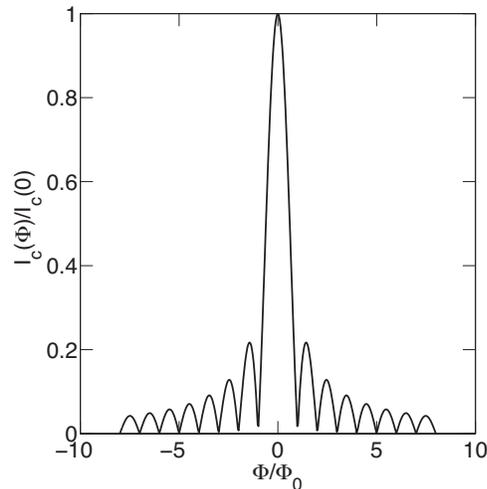


FIGURE 2.5 – Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonction Josephson rectangulaire dans le régime étroit.

circulaire, l'enveloppe de la fonction du graphique du courant critique en fonction du champ magnétique sera semblable sans pour autant être exactement identique [106].

Dans tous les cas, il est important de retenir que le courant critique passe par un zéro à chaque fois que le flux magnétique dans la jonction atteint un multiple du quantum de flux. Aussi, l'enveloppe est une fonction décroissante en fonction du champ magnétique, dont la hauteur des maximums secondaires de la fonction diminuent lorsque le champ magnétique augmente.

Dans une jonction réelle, il n'est pas du tout évident que la densité de courant sera uniforme sur toute la largeur de la jonction même pour des jonctions étroites. Par exemple, les interfaces des électrodes peuvent être rugueuses et conséquemment, l'épaisseur de la barrière ne sera pas uniforme. Dans ce cas, la fonction $I_c(B)$ sera vraiment différente : elle présentera toujours des zéros, mais pas nécessairement régulièrement espacés et l'enveloppe de la fonction pourrait aussi présenter des maximums secondaires au lieu d'une décroissance en fonction du champ magnétique. La Figure 2.6 présente différents exemples de distribution de densité de courant ainsi que les graphiques du courant critique en fonction du champ magnétique correspondant qui montrent bien que l'enveloppe

de la fonction peut avoir des formes variées.

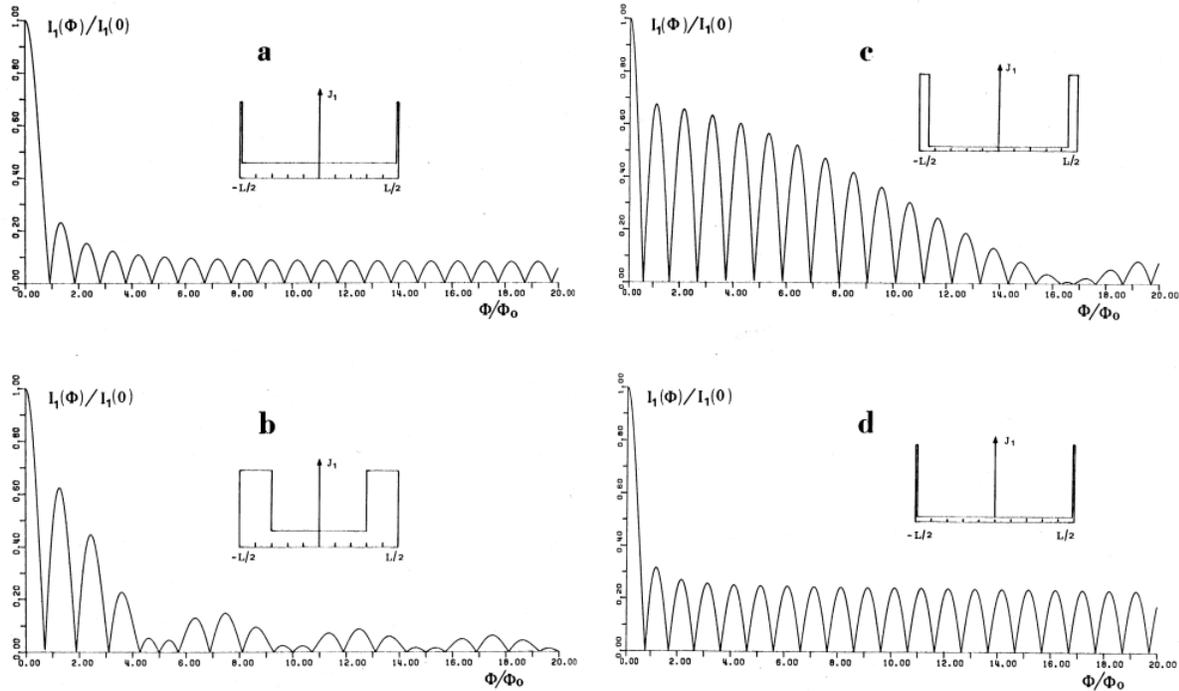


FIGURE 2.6 – Différentes configurations de densité de courant hypothétique pour une jonction Josephson rectangulaire et courbes théoriques du courant critique en fonction du champ magnétique associé. La figure est extraite de la référence [106].

2.3.2 Jonctions larges

Si la jonction est dans le régime large, l'allure de la fonction $I_c(B)$ sera aussi modifiée. Comme nous l'avons vu précédemment, ce régime correspond à la situation où la largeur de la jonction Josephson est plus grande que la longueur de pénétration du champ magnétique. Ainsi, la fonction $I_c(B)$ est modifiée parce qu'il n'est plus possible de négliger le champ magnétique produit par le courant circulant à travers la jonction ainsi que la non-uniformité de la densité de courant.

Pour une jonction rectangulaire et large dont la densité de courant est uniforme, le fonction $I_c(B)$ aura encore une forme de sinus cardinal, comme à l'équation 2.14, mais le lobe central sera asymétrique : le maximum ne sera pas à champ tout à fait nul. Par contre, les endroits où le courant critique s'annule restent les mêmes. Comme nous l'avons

dit précédemment, pour des jonctions réelles, la densité de courant ne sera pas uniforme sur toute la largeur de la jonction ce qui modifie encore plus l'allure de la fonction $I_c(B)$. Sans entrer dans les détails des calculs, qui sont assez lourds, notons tout de même que cela entraîne des oscillations non complètes de la fonction $I_c(B)$. Par oscillation non complète, on entend que le courant critique présente des minimums, mais ne va jamais jusqu'à zéro. De plus, la fonction $I_c(B)$ possède encore des maximums, mais ils ne sont pas régulièrement espacés et tellement larges qu'ils se chevauchent, comme le montre la Figure 2.7.

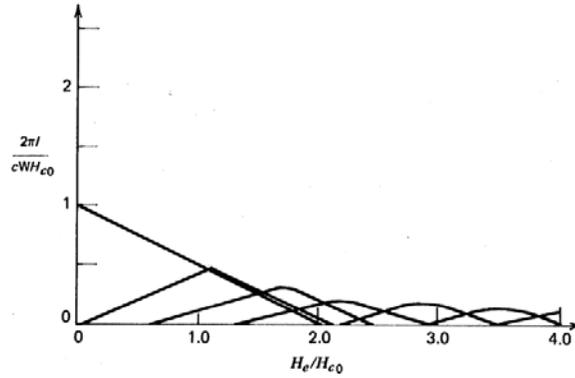


FIGURE 2.7 – Fonction $I_c(B)$ théorique pour une jonction Josephson dans le régime large. Expérimentalement, on devrait trouver des points uniquement sur la courbe dont la valeur de l'ordonnée est maximale. La figure est extraite de la référence [106].

2.3.3 Le passage du régime large au régime étroit

Finalement, pour une même jonction, on peut passer du régime large au régime étroit en changeant la température. Effectivement, la longueur de pénétration de Josephson, λ_J , dépend de la température via deux paramètres : la longueur de pénétration de London et la densité de courant critique. Pour mieux comprendre quelle sera la dépendance en température de λ_J , prenons le cas d'un supraconducteur conventionnel dans une gamme de température proche de sa température critique. Dans ce cas, la théorie de Ginzburg-Laudau nous dit que la dépendance en température de la longueur de pénétration de London est donnée par [107] :

$$\lambda_L(T) \propto \frac{1}{\sqrt{1 - T/T_c}} \quad (2.16)$$

Ainsi, plus la température est élevée, plus λ_L est grande. Quant à elle, la densité de courant critique diminuera lorsque la température augmentera. Plus spécifiquement, près de T_c , on a $J_c \propto (1 - T/T_c)$. Aussi, rappelons que λ_J dépend de ces deux paramètres comme :

$$\lambda_J \propto \frac{1}{\sqrt{\lambda_L J_c}}. \quad (2.17)$$

Ainsi, si on augmente la température, λ_L aura tendance à faire diminuer λ_J , alors que J_c la fera augmenter. Comme l'effet est plus prononcé pour la densité de courant critique, la longueur de pénétration de Josephson va augmenter avec la température. Il est donc tout à fait possible pour une jonction large à basse température de développer les caractéristiques d'une jonction étroite lorsque la température est plus élevée. Ceci résulterait en gros à la diminution de la distance entre les différents zéros de la fonction $I_c(B)$, qui est inversement proportionnelle à λ_L (c. f. équation 2.15), un recentrage du maximum principal et la présence éventuelle d'oscillations complètes. La Figure 2.8 montre très bien l'effet du passage du régime étroit au régime large. Bien que le paramètre qui permette de passer

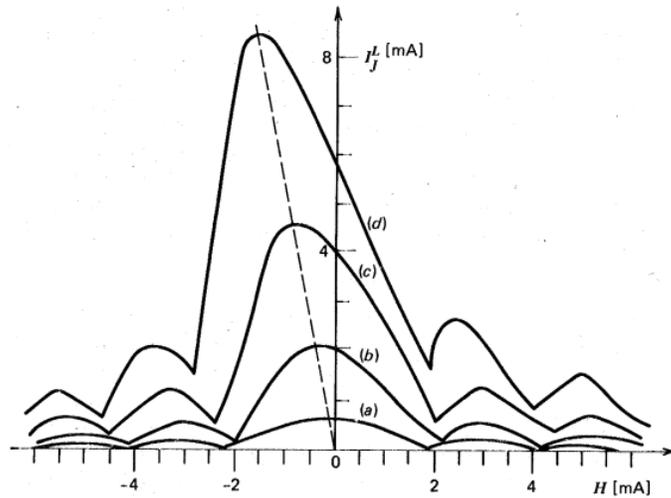


FIGURE 2.8 – Fonction $I_c(B)$ pour une jonction Josephson qui passe du régime large (courbe du haut) au régime étroit (courbe du bas). Dans cet exemple, ce n'est pas la température qui permet de passer d'un régime à l'autre mais le fait que l'exposition à la lumière change l'épaisseur effective de la barrière (un semi-conducteur). Ainsi, lorsque l'intensité de la lumière augmente (de la courbe du bas vers la courbe du haut), la valeur du courant critique augmente elle aussi, ce qui fait diminuer λ_J et augmenter le rapport de la largeur de la jonction sur λ_J . La figure est extraite de la référence [106].

d'un régime à l'autre ne soit pas le même (le courant critique de la barrière au lieu de la

température), l'effet est le même sur la fonction $I_c(B)$.

2.4 Effet des micro-ondes

Une autre manière d'influencer la courbe IV d'une jonction Josephson est de soumettre la jonction à un rayonnement électromagnétique. Nous avons vu à l'équation 2.6 que l'application d'une différence de potentiel constante faisait osciller le courant Josephson à une fréquence f_J , elle-même définie à l'équation 2.7. Physiquement, c'est le mouvement oscillant des paires de Cooper qui génère le rayonnement électro-magnétique micro-ondes. Le phénomène inverse existe aussi ; lorsque l'on irradie une jonction Josephson avec un rayonnement électromagnétique de fréquence f , la caractéristique IV de la jonction présente des plateaux espacés à intervalles réguliers de :

$$V_n = n\Phi_0 f. \quad (2.18)$$

Ces plateaux, appelés marches de Shapiro, sont causés par l'absorption de n quanta de radiation électromagnétique par la jonction. La Figure 2.9 présente un exemple de données expérimentales qui montre la présence de ces paliers. En augmentant la puissance micro-

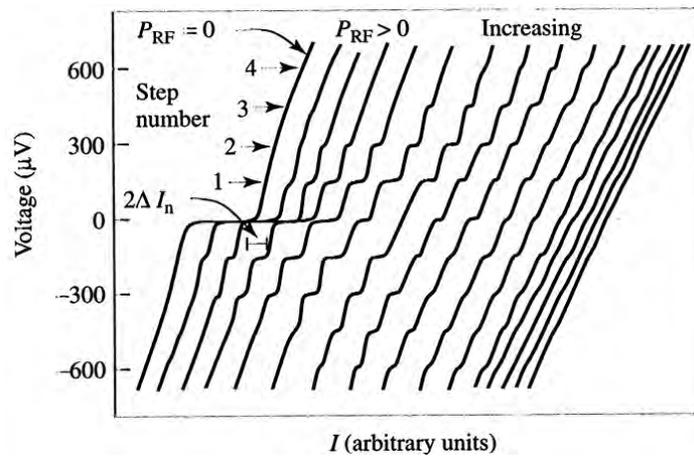


FIGURE 2.9 – Caractéristique IV d'une jonction Josephson soumise à un rayonnement électromagnétique montrant la présence des marches de Shapiro comme confirmation expérimentale de la présence d'une jonction Josephson. La figure est extraite de la référence [101].

onde, le premier plateau apparaît, puis, le second et ainsi de suite. Aussi, lorsque la

puissance continue d'augmenter, la largeur des plateaux oscillera, comme le montre la Fig. 2.9.

La présence de ces marches est acceptée comme une preuve de la présence d'une jonction Josephson.

2.5 Effet de proximité dans les supraconducteurs conventionnels

Jusqu'à maintenant, nous avons discuté des jonctions Josephson de façon générale, sans faire vraiment attention au type de barrière. Tout ce que nous avons précisé pour obtenir les équations 2.3 et 2.6 est que les deux fonctions d'onde des supraconducteurs se recouvrent, permettant un effet tunnel cohérent de paires de Cooper entre les deux électrodes. Dans cette section, nous verrons plus spécifiquement ce qu'il se passe lorsque la barrière est métallique.

Lorsqu'un métal normal est mis en contact avec un supraconducteur, ils sont affectés l'un par l'autre : les paires de Cooper diffusent à l'intérieur du métal le rendant supraconducteur et à l'opposé, les électrons du métal pénètrent à l'intérieur du supraconducteur empêchant la supraconductivité de s'établir complètement sur une certaine épaisseur. Cet effet, découvert expérimentalement en 1960 par Meissner [108] s'appelle effet de proximité. Grâce à lui, le couplage Josephson peut s'établir pour des jonctions possédant des barrières beaucoup plus épaisses que lorsque la barrière est isolante. Quatre ans plus tard, de Gennes élabore une théorie qui permet d'expliquer ce résultat [109]. En plus de confirmer la conclusion de Meissner, sa théorie permet d'obtenir une expression donnant le courant critique à travers une jonction de type supra-métal-supra (S-N-S)³ en fonction de ξ_n , la longueur de cohérence des paires de Cooper dans le métal. Le courant critique peut être approximée, si la barrière est plus épaisse que ξ_n , par :

$$I_c \approx \frac{\pi}{2eR_n} \frac{|\Delta_i(T)|^2}{kT_c} \frac{d}{\xi_n(T)} e^{-d/\xi_n(T)} \quad (2.19)$$

où R_n est la résistance de la jonction dans son état normal, T_c est la température critique

³Pour simplifier le texte, on utilise la notation S - N - S, où S est le matériau utilisé pour les électrodes supraconductrices et N est celui utilisé pour la barrière, pour présenter les matériaux constituants d'une jonction.

des électrodes supraconductrices, d est l'épaisseur de la barrière normale et Δ_i est le gap supraconducteur à l'interface⁴. Ce dernier est directement relié au gap supraconducteur loin des bords de l'échantillon, qui peut lui-même être prédit par la théorie B.C.S. [3]. Grâce à l'approximation utilisée, les détails précis des interfaces deviennent moins important et le mouvement des électrons peut être assez bien décrit par un processus de diffusion. L'équation 2.19 prédit une augmentation du courant critique lorsque la température ou l'épaisseur de la barrière diminue.

Il est possible de trouver une expression simple pour ξ_n dans deux cas limites du rapport de la longueur de cohérence dans le supraconducteur (ξ_s) et du libre parcours moyen (l_n) dans le métal. Dans « la limite propre », $\xi_s \ll l_n$ et

$$\xi_{np} = \hbar\nu_n/2\pi kT, \quad (2.20)$$

où ν_n est la vitesse de Fermi. À l'opposé, si $\xi_s \gg l_n$, c'est-à-dire dans la limite sale, la longueur de cohérence devient

$$\xi_{ns} = \sqrt{\frac{\xi_{np}l_n}{n_d}} = \sqrt{\frac{\hbar\nu_n l_n}{2n_d\pi kT}} \quad (2.21)$$

où n_d est la dimensionnalité. Pour les cuprates, nous avons déjà mentionné que les propriétés sont très anisotropes. En particulier, la très faible interaction dans la direction c nous permet de considérer ces matériaux comme pratiquement bidimensionnels. Ainsi, pour ces matériaux, n_d est égal à 2. Dans le régime intermédiaire, la longueur de cohérence est donnée par :

$$\xi_n = \left(\frac{1}{\xi_{np}^2} + \frac{1}{\xi_{ns}^2} \right)^{-1/2} \quad (2.22)$$

On note également que la valeur de l_n qu'il faut insérer dans ces équations est limitée au maximum par l'épaisseur de la barrière.

L'effet de proximité conventionnel a été testé de manière rigoureuse expérimentalement pour des jonctions dont les électrodes sont des supraconducteurs conventionnels [110, 111].

Intéressons-nous maintenant plus particulièrement au régime sale, car les jonctions

⁴Encore une fois, on se limitera au cas où les deux électrodes sont identiques pour simplifier la discussion.

Josephson étudiées dans cette thèse possèdent des barrières dans ce régime⁵. Les jonctions de type S-N-S peuvent avoir deux types de dépendance en température, selon les conditions aux interfaces S-N. Dans le cas « mou », il y a dépression du paramètre d'ordre supraconducteur à l'interface comme nous l'avons mentionné auparavant. Près de la température critique, la dépendance en température du courant critique sera donnée par :

$$I_c \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2. \quad (2.23)$$

Dans le cas « rigide », la dépression du paramètre d'ordre supraconducteur à l'interface est pratiquement nulle et le gap sera ainsi le même à l'interface qu'à l'intérieur de l'électrode (cela peut venir d'une grande disparité entre les propriétés de transport des deux côtés de l'interface) et cette dépendance est plutôt :

$$I_c \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \quad (2.24)$$

près de T_c . À basse température, si la barrière est beaucoup plus épaisse que ξ_n , le courant critique augmentera comme $I_c \propto \sqrt{T}e^{-A\sqrt{T}}$ dans les deux limites. Si la barrière est plus épaisse que ξ_n , mais du même ordre de grandeur, la dépendance en température donnée par les équations 2.23 et 2.24 restera valide même à basses températures (voir Figure 2.10). Expérimentalement, l'effet de proximité est observable uniquement si le contact entre les différentes couches est assez bon pour permettre aux paires de passer d'un matériau à l'autre. Si ce n'est pas le cas, au lieu d'avoir une jonction de type S-N-S, la jonction sera S-I-N-S où I est un isolant. La présence de cet isolant peut être détectée avec la dépendance en température du courant critique de la jonction. À l'interface entre un matériau isolant et un supraconducteur, le paramètre d'ordre supraconducteur ne va pas diminuer comme c'est le cas si le matériau est métallique. Ainsi, le courant critique, qui possède une dépendance en température quadratique pour une jonction S-N-S, aura une dépendance linéaire pour une jonction S-I-S. Si la jonction est de type S-I-N-S, la dépendance en température sera une combinaison linéaire d'un terme linéaire et d'un terme quadratique. La Fig. 2.10 montre des données sur des jonctions de type S-I-N-S qui illustrent comment la dépendance en température du courant critique est influencée par l'importance de la barrière isolante. En (a), la caractéristique est celle d'une jonc-

⁵C'est aussi généralement le cas de toutes les jonctions faites entièrement de supraconducteurs à haute température critique.

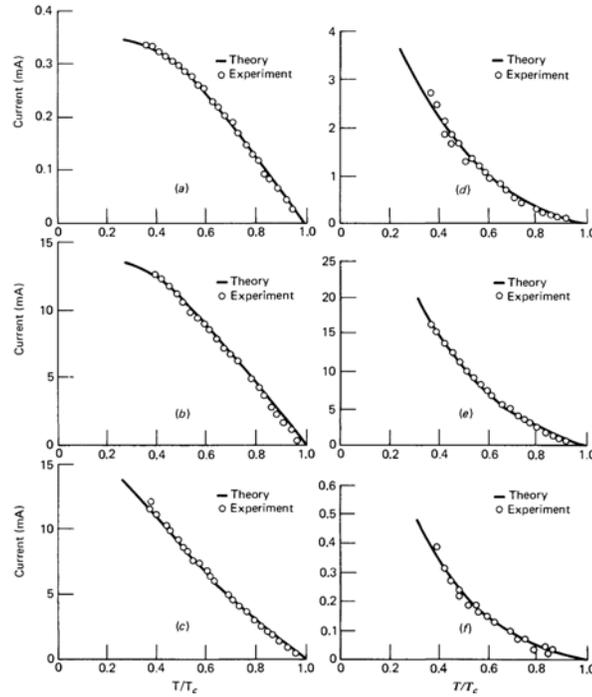


FIGURE 2.10 – Dépendance en température du courant critique pour des jonctions de type Sn-SnO-Zn-Sn (S-I-N-S). Les 6 courbes correspondent à 6 échantillons différents. Dans tous les cas, la jonction est de type S-I-N-S mais les paramètres de la couche métallique (épaisseur et libre parcours moyen) sont modifiés pour faire ressortir plus ou moins la présence de la barrière isolante. Les traits continus sont les prédictions théoriques obtenues à l'aide des équations de Ginzburg-Landau et de l'application des conditions aux limites de de Gennes. La figure est extraite de la référence [106].

tion de type S-I-S et la dépendance est linéaire à partir de T_c jusqu'à $T \sim 0,5T_c$, alors qu'en (f), c'est celle d'une jonction S-N-S et elle est quadratique à partir de T_c jusqu'à $T \sim 0,4T_c$. Entre les deux, on voit le passage graduel de l'un à l'autre. On note que dans tous les cas, le lissage des données donne une concavité vers le haut, sauf dans le cas S-I-S. Expérimentalement, la présence d'une concavité vers le haut sera associée à la présence d'effet de proximité.

La théorie de de Gennes a été revue depuis et des formules plus précises ont été dérivées à partir de considérations microscopiques [112, 113]. Par contre, malgré son apparente simplicité, elle prédit correctement la décroissance exponentielle du courant critique en fonction de la température et de l'épaisseur de la barrière, des caractéristiques qui permettent de confirmer expérimentalement la présence d'une jonction S-N-S.

Elle est également applicable si la barrière est elle-même un composé supraconducteur se trouvant dans son état normal.

En terminant, notons que la dépendance exponentielle du courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière et de la température est la signature la plus distincte de l'effet de proximité dans les jonctions de type S-N-S où la barrière est très épaisse.

2.6 Effet de proximité dans les SHTC

Comme première approximation de ce qui se passe dans les SHTC, on peut supposer que cela est analogue, du moins conceptuellement, à ce qui se passe dans les supraconducteurs conventionnels [113]. Comme ξ_n est dépendant et limité par l_n , on s'attend à ce qu'il soit très faible dans les jonctions Josephson à base de SHTC, étant donné que l_n est court dans ces composés. Il est donc impossible, *a priori*, d'obtenir un couplage Josephson (et donc un super-courant) à travers une épaisse barrière, ou encore si l'orientation des cristaux l'un par rapport à l'autre sollicite un couplage dans la direction c (où l_n sera encore plus faible, comme nous l'avons mentionné à la fin de la section 1.1.1).

Voyons maintenant numériquement comment cela se traduit. Pour évaluer numériquement la valeur de la longueur de cohérence normale, il faut d'abord trouver la valeur du libre parcours moyen. Cette dernière peut être évaluée en supposant que la surface de Fermi est cylindrique, ce qui permet d'écrire [35] :

$$k_F l_n = \frac{\hbar c_0}{\rho_{ab} e^2} \quad (2.25)$$

où k_F est le vecteur d'onde de Fermi (que l'on peut obtenir avec les mesures d'ARPES), c_0 est la distance entre deux plans d'oxyde de cuivre ($c/2$) et ρ_{ab} est la résistivité dans les plans ab à basse température. Le tableau 2.1 présente les paramètres permettant d'évaluer le libre parcours moyen de différents cuprates. Ensuite, les formules 2.20, 2.21 et 2.22 nous permettent d'obtenir les valeurs de longueurs de cohérence normales. Par exemple, pour $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$, en prenant la valeur de la vitesse de Fermi moyenne pour $x = 0,15$, évaluée avec les mesures d'ARPES [117]⁶, et la valeur du libre parcours moyen trouvée

⁶Une telle évaluation de la vitesse de Fermi pour les pochettes d'électrons pour $x = 0,05$ n'a pas été effectuée.

Matériau	ρ_{ab} ($\mu\Omega\text{-cm}$)	$k_F l_n$	k_F (\AA^{-1})	l_n (\AA)
$\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$	120 [114]	13	$0,7\pi$ [115]	25
$\text{Pr}_{1,84}\text{Ce}_{0,16}\text{CuO}_4$	60 [35]	25	$0,7\pi$ [38]	45
$\text{Pr}_{1,80}\text{Ce}_{0,20}\text{CuO}_4$	32 [35]	50	$0,7\pi$ [38]	87
$\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_4$	7000 [116]	0,22	$0,3\pi$ [38]	1

TABLEAU 2.1 – Paramètres permettant d'évaluer le libre parcours moyen dans différents cuprates.

dans le tableau 2.1, on obtient⁷ : $\xi_{np} = 98$ nm, $\xi_{ns} = 2,1$ nm et donc $\xi_n \approx 2,1$ nm.

Du côté expérimental, les conclusions sont beaucoup moins claires. Plusieurs groupes ont mené des études sur des jonctions S-N-S à base de cuprates, dont les résultats semblent indiquer une dépendance linéaire du courant critique avec la température près de T_c , qui n'est pas compatible avec la théorie et les résultats obtenus sur les supraconducteurs conventionnels [1]. Certains groupes [113] ont alors conclu, après des mesures directes et indirectes, que ces résultats indiquaient un problème commun à pratiquement tous les échantillons étudiés : la présence de canaux supraconducteurs qui court-circuitent la barrière. Dans la prochaine section, nous présenterons certains de ces résultats pour tenter de dresser un portrait de ce qui est fait sur les jonctions Josephson à base de supraconducteurs à haute température.

2.7 Jonctions Josephson de cuprates

L'effet Josephson a été démontré sur les cuprates peu de temps après leur découverte. Malgré le grand laps de temps écoulé, il n'est toujours pas évident de fabriquer des dispositifs avec ces matériaux. La maille conventionnelle est complexe, les propriétés sont très anisotropes, ce qui rend les choses un peu compliquées. D'une part, la croissance des couches minces n'a pas atteint la qualité épitaxiale que l'on peut rencontrer dans les semiconducteurs : les matériaux ne sont pas homogènes à de très petites échelles. D'autre part, pour pouvoir fabriquer des jonctions Josephson, il faut être en mesure de les graver, physiquement (gravure par faisceau d'ions) et/ou chimiquement. Aussi, pour ajouter au niveau de difficulté, certains de ces matériaux ne possèdent pas de méthode de gravure

⁷Nous reviendrons sur ces calculs au chapitre 5, mais en utilisant les valeurs de résistivité présentées au chapitre 4.

chimique éprouvée. C'est notamment le cas des cuprates dopés aux électrons, qui sont l'objet de cette thèse. Malgré tout, il est quand même possible de trouver des données expérimentales dans la littérature.

Une chose qu'il faut impérativement garder à l'esprit lorsqu'on compare quantitativement les jonctions les unes avec les autres est que la température critique de ces composés varie grandement d'une sous-famille à l'autre. Par exemple, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$ (YBCO) possède une température critique d'environ 90 K, alors que la température critique du $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ (LSCO) est au moins deux fois plus faible. Les dopés aux électrons, quant à eux, possèdent des températures critiques optimales entre 20 et 24 K. De même, il est tout à fait normal que la densité de courant critique à basse température soit très différente dans les jonctions fabriquées à l'aide de chacun de ces matériaux, puisque le courant critique varie comme le gap supraconducteur, qui lui même varie *grosso modo* comme la température critique. L'autre point de comparaison que nous avons déjà évoqué est le fameux produit $I_c R_n$, qui lui aussi est proportionnel au gap supraconducteur. Ainsi, les deux valeurs qui serviront comme points de comparaison des données expérimentales sont directement proportionnelles au gap supraconducteur, qui varie grandement d'un composé à l'autre. Pour avoir une meilleure vue d'ensemble, il faudrait ainsi diviser ces quantités par le gap des électrodes utilisées et prendre cette valeur comme point de comparaison. C'est ce que nous ferons à la fin de chaque sous-section, dans un tableau récapitulatif de l'ensemble des données présentées.

Cette section se veut une présentation de quelques uns des essais faits avec les SHTC et aussi une discussion rapide sur la validité des résultats et interprétations. Le but ici n'est pas de faire une revue complète, mais bien de donner un échantillon assez représentatif de ce qui se fait sur le sujet. Pour une revue complète des mesures effectuées sur ces jonctions, le lecteur est invité à consulter les références [113, 118], qui sont assez exhaustives.

2.7.1 Jonctions de type bi-cristaux

Nous avons choisi de commencer cette revue avec le type de jonction sur bi-cristaux car *a priori*, c'est le plus facile à réaliser. Dans sa plus simple expression, ce type de jonction Josephson est réalisée sur un substrat qui lui-même est un bi-cristal. Les deux électrodes, des couches épitaxiales sur les deux cristaux joints, sont ainsi déposées en même temps de sorte que le travail de fabrication consiste uniquement à définir un rétrécissement (un pont) à l'endroit où la barrière se trouve, soit à la jonction de grains entre

les deux électrodes. Le seul point un peu particulier des jonctions de type bi-cristaux est que le courant critique, donc la densité de courant critique, va dépendre grandement de l'orientation relative des deux électrodes supraconductrices. Il n'est donc pas aisé de comparer quantitativement les résultats les uns avec les autres.

Cuprates dopés aux trous

En 1995, Elly *et al.* [119] obtiennent des jonctions sur un bi-cristal de YBCO dont les axes cristallins a et b des électrodes sont tournées de $38,6^\circ$ l'un par rapport à l'autre. Leur jonctions d'une largeur de $12\ \mu\text{m}$ possèdent une densité de courant critique d'environ $12,2\ \text{kA}/\text{cm}^2$ à 20 K. Quelques années plus tard, Tafuri *et al.* [120] réussissent à fabriquer des jonctions par bi-épitaxie, encore une fois avec YBCO. Dans ce cas, les plans ab d'une des électrodes sont tournés de 45° autour de l'axe c tandis que ceux de l'autre électrode sont inclinés par rapport à la surface de l'échantillon par un angle de 45° (voir Fig. 2.1 (c)). La densité de courant critique typique obtenue dans cette configuration est similaire à celle obtenue par Elly *et al.*, soit $9\ \text{kA}/\text{cm}^2$ à 4,2 K. Finalement, l'an dernier, Stornaiuolo *et al.* [121] fabriquaient des jonctions dont la largeur est inférieure à $1\ \mu\text{m}$, toujours avec YBCO et dans le même genre de configuration que Tafuri *et al.*. Les axes cristallins des électrodes de ces jonctions sont à 15° l'un de l'autre et la densité de courant est du même ordre quoiqu'un peu plus faible, $J_c = 3\ \text{kA}/\text{cm}^2$ à 4,2 K. Dans leur article, ils mentionnent que la densité de courant critique de leurs jonctions Josephson dépend de l'épaisseur des électrodes : si ces dernières sont épaisses, il peut plus facilement y avoir réparation des défauts d'oxygène causés par la gravure du pont par réorganisation des oxygènes présents, ce qui augmenterait la densité de courant critique. Il est très possible que les dommages sur les jonctions très étroites soient plus grands (en proportion de la largeur du pont) et ainsi, moins facilement réparables, ce qui expliquerait pourquoi les jonctions les plus étroites ont aussi une densité de courant critique plus faible. D'autres études sur les dopés aux trous ont montré le couplage Josephson pour des jonctions avec LSCO dont les axes cristallins des électrodes sont tournés de 24° l'un par rapport à l'autre [122]. Pour ces jonctions, la densité de courant critique à 4,2 K est assez élevée (compte tenu de la température critique), soit de $6\ \text{kA}/\text{cm}^2$.

Dopés aux électrons

Malgré le fait que les dopés aux électrons soient plus difficiles à utiliser pour fabriquer des dispositifs que les dopés aux trous, il existe tout de même plusieurs exemples de réalisations de jonctions Josephson avec ces matériaux. Dans les exemples de cette section, le couplage Josephson est toujours dans les plans ab et l'angle donné correspond toujours à l'angle entre les axes cristallins a de part et d'autre de la jonction. En 1999, Woods *et al.* [62] ont réalisé des jonctions Josephson avec des bi-cristaux de $\text{Nd}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ (NCCO), dans le but d'effectuer une expérience de phase, afin de déduire la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur. Ils concluent alors que le paramètre d'ordre est de type s . L'année suivante Tsuei et Kirtley [70] réalisent une seconde expérience de phase, cette fois sur des tri-cristaux de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ (PCCO) et concluent que le paramètre d'ordre est de type d . Le but ici n'est pas de commenter sur la symétrie réelle du paramètre d'ordre mais bien d'illustrer la difficulté à établir des conclusions claires avec ces matériaux. Aussi en 1999, Schoop *et al.* [123] réalisent des jonctions Josephson avec NCCO. Pour un angle entre les axes cristallins des électrodes de 24° , ils obtiennent une densité de courant critique entre 5 et 50 kA/cm^2 . Lorsque l'angle est plus faible, i. e. 7° , ils obtiennent une densité de courant critique entre 50 et 80 kA/cm^2 . Ce résultat n'est pas particulièrement étonnant étant donné que plus l'angle est petit, plus la structure à la jonction de grains du bi-cristal ressemblera à la structure du matériau tel quel et plus la densité de courant critique sera élevée⁸. Finalement, en 2005, Chesca *et al.* [124] réussissent à fabriquer des jonctions avec $\text{La}_{1,895}\text{Ce}_{0,105}\text{CuO}_{4-\delta}$. Pour un angle de 30° , ils obtiennent une densité de courant critique entre 2 et 12 A/cm^2 à 4,2 K. Cette valeur de densité de courant critique semble assez faible par rapport à toutes les autres données déjà présentées, mais cela vient probablement du fait que ce matériau est beaucoup plus difficile à synthétiser que PCCO ou NCCO.

Le tableau 2.2 présente un résumé des données disponibles sur les bi-cristaux. Ici, il n'y a pas vraiment de jonctions qui sortent du lot, toutes ont plus ou moins les mêmes valeurs de J_c/T_c et $I_c R_n/T_c$, sauf peut être les jonctions avec $\text{Nd}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ qui semblent donner un plus haut J_c/T_c . Cette anomalie est probablement due au fait que l'angle entre les deux électrodes est très faible dans ces jonctions.

Dans les prochaines sous-sections, nous allons donner plusieurs exemples de jonctions extrinsèques où la barrière est en général ce que l'on souhaite étudier en fabriquant ce type

⁸La réalité est un peu plus subtile étant donné que le paramètre d'ordre de ces matériaux possède vraisemblablement une symétrie d .

Électrodes	T_c (K)	J_c A/(cm ²)	J_c/T_c (A/Kcm ²)	$I_c R_n$ (mV)	$I_c R_n/T_c$ (mV/K)
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [119]	86	12,2 k (20 K)	142	-	-
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [120]	82	9 k (4,2 K)	110	1,3	0,016
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [121]	89	3 k (4,2 K)	34	1	0,011
La _{1,85} Sr _{0,15} CuO ₄ [122]	24	6 k (4,2 K)	250	0,3	0,013
Nd _{1,85} Ce _{0,15} CuO _{4-δ} [123]	22	50 k (4,2 K)	2270	1	0,045
La _{1,895} Ce _{0,105} CuO _{4-δ} [124]	29	12 (4,2 K)	0,4	-	-

TABLEAU 2.2 – Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions de type bicristaux.

de jonction. Dans pratiquement tous les exemples rencontrés, la barrière est constituée d'un matériau perovskite⁹. Ce choix s'explique simplement par le fait que les paramètres de maille de pratiquement tous les matériaux de cette famille sont similaires, ce qui rend la reconstruction aux interfaces plus facile et permet de vraiment mesurer les propriétés de la jonction et non uniquement celles de l'interface.

2.7.2 Jonctions de type FIB

Ce type de jonction, présenté en début de chapitre est une des manières les plus simples de fabriquer des jonctions extrinsèques. Il y a trois méthodes pour fabriquer des jonctions Josephson avec cette technique : abîmer une partie du matériau, ce qui crée une barrière entre deux électrodes, faire une tranchée dans un matériau et déposer la barrière dans cette tranchée ou encore déposer deux couches de matériaux, la barrière en dessous et l'électrode supraconductrice sur le dessus et faire une tranchée dans l'électrode pour forcer le courant à passer dans la couche du dessous. Cette technique permet d'étudier le couplage dans la direction c . Elle a été utilisée dès le début des années 1990 pour fabriquer des jonctions avec le dopé aux trous HoBa₂Cu₃O_{7-x} (HBCO) [125, 126]. Dans ces deux articles, le même groupe présente des données sur des jonctions HBCO - La_{1,5}Ba_{1,5}Cu₃O_{7-y} - HBCO, où la barrière possède normalement des propriétés semi-conductrices. De leurs résultats, ils déduisent une densité de courant critique anormalement élevée, soit environ 18 000 kA/cm² et concluent à la présence d'effet de proximité non-conventionnel, avec $\xi_n \sim 65$ nm : la valeur attendue est $\xi_n = 2,5$ nm, soit 25 fois plus faible. La dépendance en température du courant critique de leurs jonctions est en $(1-T/T_c)^2$ près de la tempé-

⁹Les cuprates sont une sous-famille de cette grande famille.

rature critique, tel que prévu pour l'effet de proximité [113]. Cependant, ils ne voient pas d'effet de la température sur ξ_n et ils mentionnent dans leurs deux articles qu'ils n'ont pas été en mesure de mesurer les marches de Shapiro, ce qui soulève un questionnement quant à la nature réelle des jonctions [113].

En 1997, Meltzow *et al.* [127] utilisent la même technique pour fabriquer des jonctions BiSCCO - $\text{Bi}_2\text{Sr}_2(\text{Ca}_{1-z}, \text{Gd}_z)\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ - BiSCCO, où BiSCCO est l'abréviation de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$. Le matériau utilisé comme barrière, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2(\text{Ca}_{1-z}, \text{Gd}_z)\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ est *a priori* très résistif. Ils ont réalisé des jonctions avec différents dopages en gadolinium (40%, 50%, 60% et 80%). Les résultats présentés dans l'article ne permettent pas de déterminer la densité de courant critique, mais leur valeur de $I_c R_c \sim 12$ mV sont tout de même assez élevées. Leurs données permettent de conclure à la présence d'effet de proximité non-conventionnel, avec ξ_n égal à plusieurs centaines de nanomètres. La dépendance en température du courant critique de leurs jonctions n'est pas lissée, mais ressemble à $(1-T/T_c)$, ce qui pourrait indiquer une condition rigide aux interfaces, comme nous avons vu précédemment. Ils mesurent aussi des marches de Shapiro et observent un effet de la température sur leur valeur de ξ_n .

Une des lacunes des protocoles expérimentaux de ces deux groupes est l'absence de données pour de faibles épaisseurs de barrière. Dans le premier cas, ils calculent une valeur attendue de $\xi_n = 2,5$ nm, mais ne prennent aucune donnée sous une épaisseur de 100 nm. Bien que les formules de l'effet de proximité aient été obtenues pour $d \gg \xi_n$, il semble exagéré de faire des expériences avec d uniquement entre $40 \xi_n$ et $400 \xi_n$.

L'ensemble des données recueillies pour les jonctions fabriquées avec le FIB est présenté au tableau 2.3. On voit aisément que les jonctions HBCO - $\text{La}_{1,5}\text{Ba}_{1,5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ - HBCO possèdent une densité de courant critique anormalement grande, même une fois normalisée, ce qui confirme la présence d'un problème avec ces jonctions [113].

2.7.3 Jonctions en rampe

Dopés aux trous

Ce type de jonction est l'un des plus étudiés et nous nous y attardons un peu plus que les autres types puisque c'est ce type de jonction que nous avons étudié dans le projet. Avec une difficulté de fabrication modérée, il est possible d'étudier le couplage entre deux électrodes supraconductrices en les juxtaposant latéralement sur un substrat.

Électrodes	Barrière	T_c (K)	J_c A/(cm ²)	J_c/T_c (A/Kcm ²)
HBCO [125, 126]	La _{1,5} Ba _{1,5} Cu ₃ O _{7-y}	75	18 M (4,2 K)	240 k
Électrodes	Barrière	T_c (K)	$I_c R_n$ (mV)	$I_c R_n/T_c$ (mV/K)
BiSCCO [127]	Bi ₂ Sr ₂ (Ca _{1-z} ,Gd _z)Cu ₂ O _{8+δ}	90	12	0,133

TABLEAU 2.3 – Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions fabriquées avec du FIB. Les abréviations utilisées sont les suivantes : HBCO = HoBa₂Cu₃O_{7-x} et BiSCCO = Bi₂Sr₂Ca₁Cu₂O_{8+δ}.

Aussi, comme la croissance sous forme de couche mince de la plupart des cuprates favorise une orientation (001) avec les substrats appropriés, la plupart des résultats présentés (à quelques exceptions près) permettent d'étudier le couplage dans les plans d'oxyde de cuivre.

Comme les jonctions de type bi-cristaux, ce type de jonction a été utilisé entre autres pour déduire le paramètre d'ordre supraconducteur. Ainsi, en 2006, des mesures sur des jonctions YBCO - Au - Nb [128], où le niobium est un supraconducteur conventionnel avec un paramètre d'ordre de type s , ont permis de conclure que le paramètre d'ordre est bel et bien de type d pour YBCO. Quelques années avant, cette technique de fabrication de jonctions Josephson avait aussi été mise à profit pour faire des jonctions de grains dans des structures de type YBCO - Interface - YBCO [129] et LSCO - Interface - LSCO [130]. Dans les deux cas, les densités de courant critiques étaient $J_c = 450$ et 400 kA/cm² respectivement, soit des valeurs assez élevées.

L'intérêt réel de ce type de jonction est sans conteste de pouvoir changer le matériau qui compose la barrière pour pouvoir en étudier les propriétés. Dès 1991, Chin et Van Duzer [131] réussissent à fabriquer des jonctions YBCO - (Nb-STO) - YBCO, où Nb-STO est l'abréviation pour du SrTiO₃ (STO) dopé au niobium. Contrairement au STO non dopé, ce dernier est métallique. Ils arrivent à mesurer du couplage à travers des jonctions pour des couches minces orientées (001) et aussi (110). Dans tous les cas, ils mesurent la présence des marches de Shapiro, ce qui confirme le couplage Josephson. Leurs résultats sur les jonctions (001) permettent d'obtenir une densité de courant critique appréciable, 150 kA/cm² pour une barrière de 10 nm à $4,2$ K et obtiennent $\xi_n = 5$ nm. Aussi, leurs résultats leur permettent de conclure, étant donné que ξ_n théorique est 12 nm, à la présence d'effet de proximité conventionnel. Ils attribuent le facteur $2,5$ entre les

deux valeurs à une mauvaise évaluation du libre parcours moyen dans leurs calculs : ils prennent la valeur pour les monocristaux de Nb-STO alors que la valeur pour les couches minces pourrait être inférieure. Le faible nombre de points permettant de déterminer ξ_n (seulement trois pour lisser une fonction exponentielle, c. f. équation 2.19) est peut être aussi à l'origine de cette différence. Quant à elle, la dépendance en température du courant critique n'est pas extrêmement claire. Les données semblent indiquer une dépendance en $(1-T/T_c)$, mais il n'est pas évident d'en conclure quoi que ce soit car le nombre de points est relativement faible.

La même année, Hunt *et al.* [132] fabriquent des jonctions qui possèdent également des électrodes de YBCO. Cette fois, la barrière est le même matériau que les électrodes, mais il est déposé à plus basse température, ce qui le rend semi-conducteur. Bien que leur barrières soient très minces (entre 2,5 nm et 10 nm), ils réussissent quand même à montrer la présence du couplage Josephson avec les marches de Shapiro et obtiennent des valeurs de densité de courant critique assez élevées : $J_c = 110 \text{ kA/cm}^2$ pour une barrière de 5 nm à 4,2 K. Ils obtiennent aussi $\xi_n = 2 \text{ nm}$ en utilisant la dépendance exponentielle du courant critique en fonction de l'épaisseur. Cette approche est problématique pour de si petites épaisseurs de barrière car le rapport d/ξ_n dans le préfacteur de l'exponentielle (c. f. équation 2.19) devient non négligeable lorsque sa valeur est égale à moins que 10, c'est à dire si l'épaisseur de la barrière est inférieure à $10\xi_n$, ce qui est définitivement le cas ici. Ainsi, la valeur de ξ_n qu'ils obtiennent est 1,4 fois plus élevée que la valeur réelle. Finalement, la dépendance en température du courant critique de leurs jonctions ne se comporte pas de manière conventionnelle.

Des jonctions ont aussi été fabriquées avec YBCO comme électrodes en utilisant $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$ (PBCO) comme barrière [133, 134]. Encore une fois, le couplage Josephson a pu être vérifié par la présence des marches de Shapiro. Ces jonctions possèdent des densités de courant critique assez élevées, $J_c \sim 80 \text{ kA/cm}^2$ à 10 K pour une barrière de 10 nm. En suivant l'évolution de la valeur de la densité de courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière utilisée, tel que présenté à la Figure 2.11, il leur a été possible d'obtenir $\xi_n \sim 5 \text{ nm}$. Par contre, leur analyse ne tient pas compte du fait que leurs jonctions possèdent des barrières d'épaisseur variant entre 5 et 25 nm, ce qui peut affecter l'évaluation de ξ_n (voir paragraphe précédent). Aussi, la dépendance en température de la densité de courant critique se comporte en accord avec l'effet de proximité conventionnel, soit en $(1-T/T_c)^2$. Le problème qui semble surgir avec leurs données est que les résistances de barrière qu'ils déduisent de leur données sont très élevées : entre 4000 et

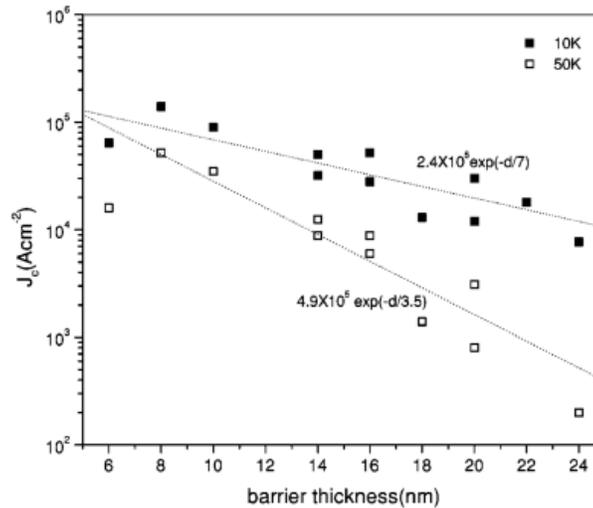


FIGURE 2.11 – Données expérimentales qui montrent l'évolution de la densité de courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière dans les jonctions de type YBCO - PBCO - YBCO. L'inverse de la pente donne la longueur de cohérence ξ_n . La figure est extraite de la référence [134].

8000 $\Omega\text{-}\mu\text{m}$. Les barrières sont donc non-métalliques, ce qui devrait entraîner une augmentation de la résistance normale en diminuant la température. La résistance normale de leurs jonctions est plutôt insensible à la température, ce qui indique probablement la présence de court-circuits entre les deux électrodes [113]. Cela expliquerait aussi pourquoi les densités de courant critique sont si élevées. Il peut sembler surprenant de pouvoir mesurer des marches de Shapiro sur un échantillon qui possède des court-circuits entre les électrodes supraconductrices. Ce phénomène pourrait venir du fait que même si les deux électrodes se rejoignent en un point, il est tout à fait possible qu'il y ait une brisure entre les deux cristaux, créant une jonction de type bi-cristaux. De manière alternative, on peut imaginer que les court-circuits se produisent en certains points et non sur toute la section de la barrière. Dans ce cas, le fait que les dimensions soient très réduites crée une jonction Josephson. Dans les deux cas, il sera possible d'observer la présence des marches de Shapiro, même si le courant ne passe pas par la barrière extrinsèque [113].

Comme mentionné précédemment, la théorie de de Gennes devrait aussi s'appliquer si la barrière est un supraconducteur au-dessus de sa température critique. On retrouve également ce type de jonction dans la littérature avec par exemple des jonctions YBCO - $\text{Y}_{0,6}\text{Pr}_{0,4}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_7$ - YBCO [135] et YBCO - $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2,79}\text{Co}_{0,21}\text{O}_{7-x}$ - YBCO [136], dont les barrières ont des températures critiques respectivement à 40 K et 50 K. Dans

les deux cas, la dépendance en température du courant critique reproduit assez bien la dépendance attendue avec l'effet de proximité conventionnel avec une divergence exponentielle à basse température [113]. Aussi, l'analyse de ces deux séries de données permet d'obtenir pratiquement la même valeur de $\xi_n = 7$ nm, assez près de la valeur théorique attendue, $\xi_n = 5,5$ nm. Ces données présentent une preuve très convaincante qu'il existe bel et bien un effet de proximité conventionnel dans les cuprates [113].

D'autres auteurs ont tenté de montrer la présence d'effet de proximité à travers des barrières non-conventionnelles, par exemple avec du CaRuO_3 [137] ou du SrRuO_3 [138], des matériaux ferromagnétiques à basse température. Dans le premier cas, les auteurs mentionnent avoir observé des marches de Shapiro, alors que dans le deuxième, ils disent n'en avoir vu aucune sur leurs jonctions. Dans les deux cas, la dépendance en température est linéaire sur toute la gamme de température sous T_c , ce qui n'est pas en accord avec les prédictions théoriques pour des jonctions de types S-N-S. Aussi, la densité de courant critique est, dans les deux cas, identique, doit $J_c = 100$ kA/cm² pour une barrière de 10 nm à 4,2 K. En suivant l'évolution de la densité de courant critique, il leur est aussi possible, d'évaluer la longueur de cohérence dans l'état normal. Ils obtiennent ainsi $\xi_n = 4$ nm et 6,2 nm, respectivement. Un exemple de graphique servant à déterminer cette longueur de cohérence est présenté à la Figure 2.12. Par contre, il existe deux problèmes majeurs avec leurs données. Premièrement, comme le montre la Fig. 2.12, les valeurs de courant critique pour une même épaisseur sont extrêmement étalées : pour une même épaisseur, la densité de courant critique varie au minimum de presque une décade, allant jusqu'à plus que deux décades d'étalement pour $d = 30$ nm. Ainsi, deux jonctions dont les épaisseurs supposées sont le double l'une de l'autre peuvent posséder des densités de courant critique identiques, ce qui pourrait vouloir dire qu'aucune des barrières étudiées n'est réellement continue sur toute sa largeur [113]. Deuxièmement, ils mesurent du couplage Josephson pour des jonctions possédant des barrières excessivement épaisses, $d^{max} = 33\xi_n$. Étant donné que le courant critique dépend de manière exponentielle du rapport d/ξ_n , il est pratiquement impossible qu'il soit mesurable pour des barrières aussi, signifiant clairement un problème dans les mesures, probablement des court-circuits à travers la barrière [113].

Pour finir cette revue des jonctions Josephson en rampe dans les dopés aux trous, nous donnerons un exemple dont la barrière est un dopé aux électrons : YBCO - (NCCO non supraconducteur) - YBCO [139]. Dans ce cas, la barrière n'est pas supraconductrice mais bien semi-conductrice car la croissance s'est faite sous oxygène. La densité de courant

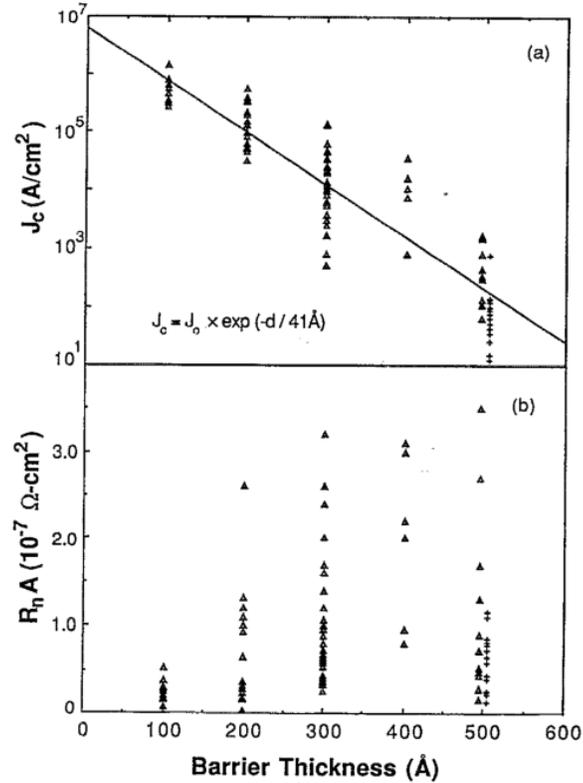


FIGURE 2.12 – Données expérimentales qui montrent l'évolution de la densité de courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière dans les jonctions de type YBCO - CaRuO₃ - YBCO. L'inverse de la pente donne la longueur de cohérence ξ_n . La figure est extraite de la référence [137].

critique de ces jonctions est assez élevée avec $J_c = 40 \text{ kA/cm}^2$ pour une barrière de 10 nm à basse température. Bien que la dépendance en température de la densité de courant critique ne soit pas conforme à la théorie conventionnelle, les auteurs concluent tout de même qu'il y a effet de proximité avec $\xi_n = 5 \text{ nm}$. Cependant, le fait que cette valeur demeure constante en fonction de la température fait qu'il est bon de se demander si on peut réellement parler d'effet de proximité [113].

Dopés aux électrons

Comme pour les dopés aux trous, les jonctions en rampe ont été utilisées pour tenter de déterminer la symétrie du paramètre d'ordre des dopés aux électrons. En utilisant des jonctions de type NCCO - Au - Nb [71], il a été ainsi possible de démontrer que le paramètre d'ordre est de type d . Cependant, ce n'est pas aussi simple puisque d'autres

Électrodes	Barrière	T_c (K)	J_c A/(cm ²)	J_c/T_c (A/Kcm ²)	$I_c R_n$ (mV)	$I_c R_n/T$ (mV/K)
YBCO [129]	Interface	89	450 k (4,2 K)	5050	1	0,011
LSCO [130]	Interface	18,6	400 k (4,2 K)	250 k	-	-
YBCO [131]	Nb-STO (10 nm)	83	150 k (4,2 K)	1810	3	0,036
YBCO [132]	YBCO-NSC (5 nm)	89	110 k (4,2 K)	1235	0,66	0,007
YBCO [133]	PBCO (10 nm)	89	80 k (10 K)	900	1,3	0,015
YBCO [137]	CRO (10 nm)	89	100 k (4,2 K)	1125	0,01	0,0001
YBCO [138]	SRO (10 nm)	89	100 k (4,2 K)	1125	0,02	0,0002
YBCO [139]	NCCO-NSC (10 nm)	89	40 k (10 K)	450	8	0,09

TABLEAU 2.4 – Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions en rampe. Les abréviations utilisées sont les suivantes : CRO = CaRuO₃, LSCO = La_{1,85}Sr_{0,15}CuO₄, NCCO-NSC = Nd_{1,85}Ce_{0,15}CuO_{4-δ} non supraconducteur, Nb-STO = SrTiO₃ dopé avec du niobium, PBCO = PrBa₂Cu₃CuO_{7-δ}, SRO = SrRuO₃, YBCO = YBa₂Cu₃CuO_{7-δ}, YBCO-NSC = YBa₂Cu₃CuO_{7-δ} non supraconducteur.

mesures similaires, sur des jonctions de Pr_{1,85}Ce_{0,15}CuO_{4-δ} - Pb semblent démontrer au contraire que le paramètre est de type *s* [62]. La grande difficulté de croissance de ces matériaux est probablement à l'origine de ce désaccord. Un survol exhaustif de la littérature nous permet de réaliser qu'il n'existe pas d'étude sur des jonctions Josephson en rampe où les électrodes et la barrière sont à base de dopés aux électrons. Dans cette thèse, nous explorerons les propriétés de telles jonctions.

Les données expérimentales pour les jonctions en rampe sont rassemblées au tableau 2.4. On remarque aisément que la jonction LSCO - Interface - LSCO possède une densité de courant critique normalisée anormalement grande, ce qui indique possiblement la présence de court-circuits entre les électrodes. Aussi, dans l'ensemble, le produit $I_c R_n$ est assez faible, ce qui peut sûrement s'expliquer par le fait que la barrière est un métal ce qui entraîne de petites valeurs de R_n et aussi une forte suppression du gap à l'interface.

2.7.4 Jonctions de type mesa

Finalement, le dernier type de jonction Josephson que nous allons aborder est le type mesa. Ce type de jonction est techniquement le plus difficile à fabriquer : il faut d'abord faire croître une hétérostructure (en général constituée de trois couches), puis la graver pour qu'elle ait une petite taille, sans détériorer les propriétés de la jonction, puis il faut arriver à mettre deux contacts sur l'électrode du dessus, ce qui ne peut se faire

directement vu la petitesse des jonctions. Malgré tout, on retrouve quelques exemples de ce type dans la littérature, mais exclusivement avec les dopés aux trous.

Des jonctions YBCO - Ferromagnétique - YBCO ont été réalisées en utilisant comme barrière ferromagnétique $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [140], $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ et $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ [141], avec $x \in [0;0,5]$ et un couplage dans la direction c . La conclusion importante de ces deux articles est la présence de couplage entre les deux électrodes, malgré que la barrière soit ferromagnétique. Cependant, il n'est pas du tout évident qu'il s'agisse bel et bien d'effet Josephson étant donné que les données ne semblent pas présenter de marches de Shapiro.

Comme pour les jonctions en rampe, le matériau $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ a aussi été utilisé comme barrière dans des jonctions de type méso à plus d'une reprise [142, 143]. Dans les deux exemples cités, les marches de Shapiro ont été mesurées attestant ainsi du couplage Josephson. Dans le premier exemple, la croissance cristalline s'est faite dans la direction conventionnelle, (001), le couplage est donc selon l'axe c et ainsi assez faible avec $J_c = 300 \text{ A/cm}^2$ à basse température. Dans le deuxième exemple, la croissance des couches minces a été optimisée dans le but de stabiliser l'orientation (100), ce qui permet ainsi d'étudier le couplage dans les plans ab . La densité de courant critique obtenue pour une barrière de 10 nm à 10 K, $J_c \sim 2 \text{ kA/cm}^2$ est significativement plus faible que celle obtenue pour des jonctions en rampe possédant les mêmes électrodes et barrières ($J_c \sim 80 \text{ kA/cm}^2$) dans une configuration où le couplage est dans la même direction cristallographique. Cela s'explique probablement par le fait que la croissance dans cette direction est beaucoup plus difficile à obtenir et les propriétés supraconductrices possiblement pas d'aussi bonne qualité, tout particulièrement aux interfaces. La longueur de cohérence obtenue avec ce type de jonction, $\xi_n = 10 \text{ nm}$ est deux fois supérieure à celle obtenue pour des jonctions en rampe, quoique du même ordre de grandeur. Toutefois, il n'est pas aisé de conclure que l'effet de proximité soit conventionnel ou non car aucune donnée en fonction de la température n'est présentée.

Le groupe de Bozovic [1, 15] a décidé, au début de années 2000, de perfectionner une technique de croissance permettant d'étudier les jonctions à base de SHTC. Les jonctions étudiées par ce groupe sont fabriquées par la technique d'épitaxie par jets moléculaires (MBE : *Molecular Beam Epitaxy*). Elles consistent en un empilement de trois couches (deux électrodes de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ encadrant une barrière de $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$). La barrière choisie est du La_2CuO_4 rendu supraconducteur par un traitement sous ozone. Leurs résultats démontrent qu'il existe un couplage Josephson (confirmé par la présence de marches de Shapiro) important entre les deux supraconducteurs [1], avec $J_c = 1 \text{ kA/cm}^2$ à 25 K. La

dépendance en température du courant critique respecte les prédictions conventionnelles, du moins, près du T_c des électrodes. Cependant, la valeur trouvée expérimentalement pour ξ_n est deux ordres de grandeur plus grande que la valeur attendue, ce qui indique que la théorie conventionnelle n'est pas appropriée [1]. Cela semble indiquer la présence d'un effet de proximité géant pour les matériaux choisis. Leurs résultats sont encore plus surprenants compte tenu du fait que le couplage est dans la direction c . Dans cette direction la longueur de cohérence des paires de Cooper est très faible : plus petite que la distance entre deux plans d'oxyde de cuivre consécutifs. En fait, la théorie conventionnelle ne devrait possiblement pas être utilisée dans cette géométrie étant donné que les électrons n'ont *a priori* pas de relation de dispersion dans la direction c , ce qui rend impossible (ou hautement risquée) la définition des paramètres qui permettent de calculer la valeur théorique de ξ_n (la vitesse de Fermi par exemple), impossible. Le seul problème avec leur conclusion est que la méthode utilisée pour calculer ξ_n n'est pas claire, ce qui pourrait mettre en doute la valeur obtenue expérimentalement. Par contre, le fait qu'ils mesurent du couplage Josephson selon l'axe c et ce, même si la barrière est très épaisse indique tout de même un couplage anormal.

L'explication mise de l'avant par Bozovic *et al.* [1] concernant leurs résultats est que la barrière est elle-même non conventionnelle, car elle se trouve dans le régime de pseudo-gap. Elle pourrait contenir des paires préformées, des fluctuations ou domaines supraconducteurs au delà de sa température critique [144–148], tel qu'envisagé dans plusieurs théories tentant d'expliquer le pseudo-gap. Les données obtenues par ce groupe ne peuvent probablement pas être expliquées par des court-circuits entre les deux électrodes, comme c'est peut être le cas pour d'autres données présentées précédemment.

Cette conclusion est avancée car en 2003, le même groupe a publié un article [15] où il démontre un grand contrôle sur la croissance de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. En effet, utilisant la même configuration que celle présentée en début de paragraphe, ce groupe a pu montrer l'absence de couplage Josephson lorsque la barrière n'est pas supraconductrice (La_2CuO_4 sans excès d'oxygène). Leurs résultats vont jusqu'à montrer que cela est vrai, même si la barrière ne fait qu'une seule cellule unité d'épaisseur, attestant d'un contrôle total de la croissance, ce qui permet de conclure que la présence de court-circuits n'est pas à l'origine de l'effet de proximité géant mesuré l'année suivante.

Un autre groupe a aussi réalisé des jonctions Josephson de type méssa avec une couche intermédiaire AF isolante [16, 17]. Dans leurs articles, ils étudient le couplage Josephson dans des structures de type S-N-S, où l'une des électrodes est un supraconducteur de type

Électrodes	Barrière	T_c (K)	J_c A/(cm ²)	J_c/T_c (A/Kcm ²)	$I_c R_n$ (mV)	$I_c R_n/T$ (mV/K)
YBCO (001) [142]	PBCO	85	300 (4,2 K)	3,5	3,5	0,039
YBCO (100) [143]	PBCO	85	2 k (4,2 K)	23,5	2,5	0,029
LSCO (001) [1]	LCO* ($T_c = 25$ K)	45	1 k (25 K)	22,2	-	-

TABLEAU 2.5 – Récapitulatif des données expérimentales pour les jonctions de type méso. Les abréviations utilisées sont les suivantes : LCO* = $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$, LSCO = $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, PBCO = $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$, YBCO = $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$.

s conventionnel (Nb) et l'autre est un cuprate dopé aux trous (YBCO) : Nb - Au - YBCO. En ajoutant une couche isolante AF ($\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_2$) entre l'électrode supraconductrice de YBCO et la barrière d'or, ils remarquent une augmentation des valeurs de densité de courant critique ainsi que des valeurs du produit $I_c R_n$. Ils attribuent ce résultat à la présence de la couche intermédiaire AF, qui amplifierait l'effet Josephson dans leurs structures.

Les résultats des deux études expérimentales présentées précédemment sur des jonctions Josephson où l'une de couches de la jonction est AF ne permettent pas de comprendre l'impact de la présence d'une couche AF sur le couplage Josephson, puisque dans l'une des études, l'AF semble empêcher le couplage Josephson alors que dans l'autre, la présence d'un matériau AF semble au contraire le favoriser. C'est pourquoi il pourrait être intéressant d'étudier cet impact dans d'autres types de structure, ce que nous ferons dans le chapitre 4 avec des jonctions Josephson entièrement fabriquées à partir d'un cuprate dopé aux électrons.

Les données présentées pour les jonctions Josephson de type mesa sont résumées au tableau 2.5. Pour les jonctions avec YBCO, la densité de courant critique est plus faible pour la configuration où le couplage est selon l'axe c , ce qui était attendu. Par contre, la valeur pour les jonctions avec LSCO est clairement anormalement élevée, comme mentionné précédemment.

Dans les dernières sous-sections, nous avons non seulement rapporté des données qui permettaient d'attester de la qualité des jonctions Josephson fabriquées mais nous avons aussi présenté des données concernant l'effet de proximité. Dans le tableau 2.6, on répertorie les différentes longueurs de cohérence normale en fonction de la jonction utilisée. On remarque aisément que sauf pour quelques exceptions, les longueurs de cohérence normales sont à peu près toutes comprises entre 2 nm et 7 nm.

Électrodes	Barrière	ξ_n (nm)
HoBa ₂ Cu ₃ O _{7-x} [125, 126]	La _{1,5} Ba _{1,5} Cu ₃ O _{7-y}	65
Bi ₂ Sr ₂ Ca ₁ Cu ₂ O _{8+δ} [127]	Bi ₂ Sr ₂ (Ca _{1-z} ,Gd _z)Cu ₂ O _{8+δ}	quelques centaines
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [131]	Nb-SrTiO ₃	5
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [132]	YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} Non Supra	2
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [133]	PrBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ}	5
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [135]	Y _{0,6} Pr _{0,4} Ba ₂ Cu ₃ CuO ₇ ($T_c = 40$ K)	7
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [136]	YBa ₂ Cu _{2,79} Co _{0,21} O _{7-x} ($T_c = 50$ K)	7
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [137]	CaRuO ₃	4
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [138]	SrRuO ₃	6,2
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} [139]	Nd _{1,85} Ce _{0,15} CuO _{4-δ} Non supra	5
YBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ} (100) [143]	PrBa ₂ Cu ₃ CuO _{7-δ}	10 nm
La _{1,85} Sr _{0,15} CuO ₄ (001) [1]	La ₂ CuO _{4+δ} ($T_c = 25$ K)	quelques centaines

TABLEAU 2.6 – Récapitulatif des données expérimentales pour l'effet de proximité.

Nous avons vu qu'il existait plusieurs démonstrations expérimentales de l'effet Josephson et de l'effet de proximité. Malgré cela, s'il est relativement aisé de prouver qu'il existe un couplage Josephson entre deux électrodes, il est aussi clair qu'il n'est pas toujours évident de montrer hors de tout doute la présence d'effet de proximité. Le fait que la croissance de ces matériaux ne soit pas aisée et qu'il soit difficile de les utiliser pour la fabrication n'arrange en rien les choses et malheureusement, il est possible que la grande majorité des données disponibles soient altérées par la présence de court-circuits à travers la barrière. Certains résultats sont quand même particulièrement convaincants, puisqu'ils correspondent bien aux prédictions théoriques [135, 136] ou encore grâce à la grande qualité des matériaux [1, 15]. On note aussi que très peu de données sont disponibles pour des jonctions à base de cuprates dopés aux électrons. Dans cette thèse, nous nous sommes attelés à ce problème en utilisant une configuration en rampe et le supraconducteur Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-δ}.

Chapitre 3

Méthode expérimentale

Dans ce chapitre, nous présenterons les différentes techniques expérimentales nécessaires à la complétion du projet. Nous présenterons d'abord la technique de croissance utilisée, l'ablation laser. Puis, nous présenterons des techniques de caractérisation de la surface et du transport. Ensuite, nous exposerons les différentes étapes nécessaires à la fabrication des jonctions Josephson. Finalement, nous passerons en revue les différentes techniques de mesure utilisées pour caractériser les jonctions.

3.1 Ablation laser

La croissance des couches minces étudiées a été faite à l'aide d'un système de dépôt par ablation laser (PLD). Cette technique présente de nombreux avantages par rapport aux autres techniques de croissance. En particulier elle permet une grande flexibilité pour étudier les propriétés physiques des différents composés en fonction de la composition et c'est une technique moins lourde que l'épitaxie par jet moléculaire. En effet, pendant la croissance, plusieurs paramètres sont contrôlés avec pour objectif d'obtenir les propriétés physiques désirées (dans notre cas, ce sera presque exclusivement la meilleure température de transition). En terme de temps, cette technique est très avantageuse car elle permet d'obtenir des échantillons en moins d'une demi-journée (moyennant que la cible dont on se sert soit déjà produite). Dans les paragraphes qui suivent, nous allons voir dans un premier temps comment fonctionne la technique. Ensuite, nous donnerons une description plus détaillée de certaines parties du montage et nous finirons avec une section qui explique les particularités de la croissance de notre matériau, le $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$.

3.1.1 Le système

Le système de PLD, illustré à la Figure 3.1, est composé d'un laser que l'on focalise sur une cible polycristalline qui se trouve à l'intérieur d'une chambre à atmosphère contrôlée. Le faisceau laser est si énergétique qu'il pulvérise la cible, éjectant les ions de la cible dans la chambre. Ces derniers sont projetés vers l'avant, créant un plasma et se déposent sur un substrat. Le substrat est chauffé, ce qui assure aux ions la mobilité nécessaire pour que la croissance soit épitaxiale. Le nombre d'impulsions détermine directement l'épaisseur de la couche déposée avec ce système. Typiquement, le taux de dépôt est de $0,15 \text{ \AA}$ par impulsion.

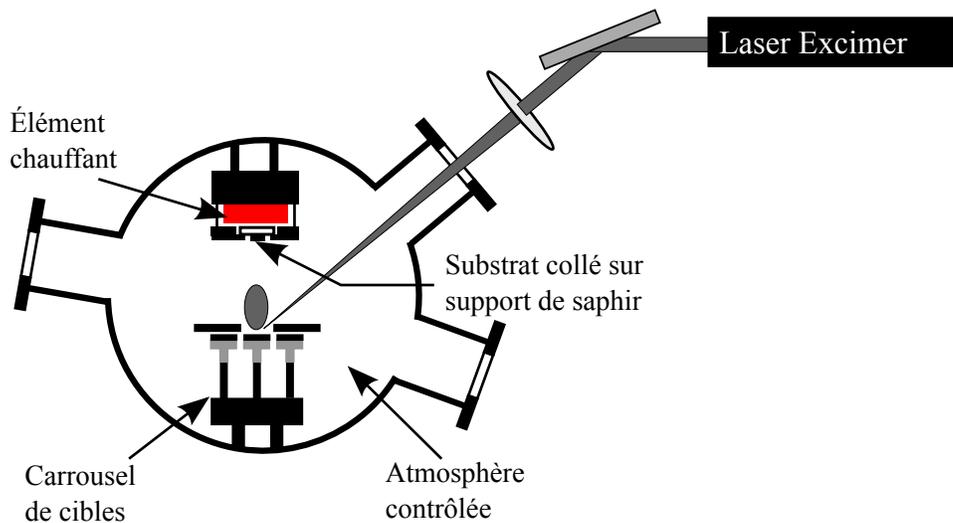


FIGURE 3.1 – Schéma montrant le système de croissance par ablation laser. Le faisceau qui sort du laser passe à travers un trajet optique avant d'être focalisé par une lentille à l'entrée de la chambre d'ablation laser. À l'intérieur de la chambre, il frappe une cible du matériau qu'on désire déposer sur le substrat qui se trouve à une distance d'environ 8 cm du carrousel de cibles. Le substrat est chauffé par transfert radiatif (sans contact direct) avec l'élément chauffant.

Le laser utilisé est un laser excimer à impulsions de longueur d'onde de 248 nm. Son taux de répétition peut être varié de 1 à 50 Hz (dans notre cas, nous fixerons le taux à 10 Hz), la durée d'une impulsion est d'environ 20 ns et la densité d'énergie par impulsion est de plus ou moins $1,7 \text{ J/cm}^2$. Les cibles sont montées sur un carrousel sur lequel on peut en installer six. Pendant l'ablation, on masque cinq de ces six cibles et on expose celle avec laquelle on désire faire le dépôt. Pour empêcher le faisceau laser de frapper toujours au même endroit (ce qui ferait un trou dans la cible), les cibles tournent sur

elles mêmes. Aussi, le carrousel tourne sur lui-même dans un mouvement oscillant d'une vingtaine de degrés d'amplitude et le faisceau est balayé sur la cible (dans la direction perpendiculaire au mouvement du carrousel) ce qui augmente la surface de la cible utilisée. Le système d'ablation laser utilisé dans le cadre de cette thèse est très bien adapté aux dépôts de multicouches, d'une part parce qu'il est possible de mettre plusieurs cibles simultanément dans la chambre d'ablation et d'autre part parce que les mouvements du carrousel sont contrôlés précisément par ordinateur, augmentant ainsi la reproductibilité des résultats. Habituellement, les différentes cibles utilisées sont stœchiométriques. Elles sont fabriquées à partir d'une poudre constituée des divers éléments nécessaires, mesurés dans les proportions permettant d'obtenir la stœchiométrie recherchée.

Les couches minces sont déposées sur un substrat monocristallin, généralement un oxyde, dont les paramètres de maille correspondent assez bien à ceux des matériaux que nous étudions. Ainsi, la croissance est dite épitaxiale, c'est-à-dire que la structure du substrat dans le plan est reproduite par les atomes de la couche. Pour la majorité des matériaux étudiés dans notre laboratoire, on utilise du SrTiO_3 ($a = b = c = 3,91 \text{ \AA}$), LaAlO_3 ($a = b = c = 3,82 \text{ \AA}$) et $(\text{LaAlO}_3)_{0,3}\text{-(Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0,7}$ ($a = b = c = 3,87 \text{ \AA}$), taillés dans différentes orientations pour déposer nos couches. Le LaAlO_3 (LAO) a le désavantage d'être pseudo-cubique, ce qui entraîne la présence de macles (*twins*) dans le cristal : pour une coupe dans la direction (001), les axes a et b ne sont pas dans la même direction sur toute la surface du substrat. Pour corriger ce problème, une solution solide est générée avec ce même cristal, ce qui donne du $(\text{LaAlO}_3)_{0,3}\text{-(Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0,7}$ (LSAT). Pendant l'ablation, le substrat sur lequel on désire faire la croissance est collé sur un substrat de saphir. Pour assurer un bon contact thermique, ce collage est constitué d'une mince couche de laque d'argent, qui doit être séchée à environ $100 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 15 minutes. Une fois cette laque séchée, le substrat de saphir est retourné et inséré dans le porte-échantillon, qui est ensuite placé dans la chambre d'ablation, tout juste sous l'élément chauffant (voir Fig. 3.1). La chambre est mise sous vide à l'aide d'une pompe turbo moléculaire pour enlever toute trace de contaminant, puis la température de l'échantillon est élevée à $830 \text{ }^\circ\text{C}$. Étant donné que le substrat de saphir n'est pas chauffé par contact direct avec l'élément chauffant, il est très difficile de connaître la température réelle de la surface où les ions viennent se déposer. Par contre, il nous a été possible d'établir une correspondance assez précise en suivant l'évolution des propriétés de transport avec la température de croissance de couches minces déposées avec notre système. Pour établir cette correspondance, nous avons comparé les résultats obtenus sur nos couches à ceux

obtenus sur des couches minces déposées dans l'autre chambre d'ablation du laboratoire, où le substrat est directement collé sur l'élément chauffant. La chambre d'ablation permet de faire la croissance de matériaux dans une atmosphère d'oxygène (O_2), d'oxyde nitreux (N_2O) ou d'argon (Ar). La présence de ce gaz permet d'une part de décélérer les ions avant qu'ils n'atteignent la cible (sans gaz dans la chambre d'ablation, la taille du plasma dépasse la taille de la chambre d'ablation) et d'autre part de contrôler le contenu en oxygène des couches minces déposées. Une fois la température de croissance atteinte, la pompe turbo est ralentie et la pression de gaz est contrôlée manuellement. Une fois que la température et la pression sont aux valeurs désirées, le laser est mis en fonction pour la pré-ablation. Cette étape, d'une dizaine de minutes permet de préparer la surface de la cible à l'ablation et se fait ainsi dans les mêmes conditions que l'ablation elle-même. Pendant ce temps, l'échantillon est masqué à l'aide d'un écran, qui est par la suite enlevé pour permettre au matériau de se déposer sur le substrat. Après l'ablation, l'échantillon est refroidit dans une atmosphère contrôlée.

3.1.2 Croissance du $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$

Maintenant que la technique d'ablation laser est présentée, nous allons nous attarder aux particularités de la croissance de PCCO. Maîtriser la croissance des matériaux est un élément primordial du travail que nous présentons. En particulier, l'étude quantitative des propriétés de transport nécessite des couches minces exemptes de défauts. Les défauts dont on souhaite se débarrasser sont des plans isolants intercalés avec le PCCO, découverts suite à des mesures de microscopie électronique à transmission haute résolution (HRTEM). L'excellente qualité des couches minces produites dans le présent travail est le résultat de plusieurs mois d'efforts et a fait l'objet d'une étude à part [30], effectuée par différents membres du groupe. Ainsi, nous avons dû utiliser des cibles enrichies en cuivre pour combler des lacunes de cet atome dans les couches produites avec la méthode standard. Pour faire la croissance de $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$, nous avons donc utilisé une cible de $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ avec un excès de 5% de CuO (en pourcentage de masse). Toutes les couches minces ont été déposées dans une atmosphère de N_2O à une pression de 150 à 200 mTorr sur des substrats de $SrTiO_3$ (STO) et LSAT orientés (001). Quelques couches ont aussi été déposées sur du LAO orienté (001). Nous avons choisi ces substrats car les couches minces qui y sont déposées sont de très grande qualité et leurs paramètres de maille permettent un bon accord avec ceux du PCCO, dont la couche s'oriente dans la

direction (001). Par contre, la présence des macles dans le cristal de LAO fait en sorte qu'il n'est pas souhaitable de l'utiliser pour faire les jonctions Josephson. Une fois la croissance du PCCO terminée, il faut réduire la couche mince pour la rendre supraconductrice. Bien que cette étape soit nécessaire pour rendre les matériaux supraconducteurs, il n'est toujours pas clair quel est le rôle cette réduction [25, 26, 28–30, 149]. Un recuit trop court entraîne une température critique plus faible, alors que, si le recuit est trop long, la couche se décompose. Cette réduction, d'une durée allant de 3 à 10 minutes (en fonction de l'épaisseur de la couche) se fait sous vide à haute température (au moins la température de croissance), ce qui permet à l'oxygène de diffuser à l'extérieur de la couche mince. Finalement, la couche mince est refroidie rapidement jusqu'à la température de la pièce.

Dans la première moitié de cette thèse, nous allons étudier les propriétés de transport (résistivité et effet Hall) sur des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ à différents dopages. En particulier, nous étudierons les dopages : 0,05, 0,075, 0,10, 0,11, 0,12, 0,125, 0,13, 0,135, 0,14, 0,15, 0,16, 0,17 et 0,20. Pour tous les dopages où la mesure de résistivité a montré la présence de supraconductivité, $x \in [0,12; 0,20]$, les conditions de croissance ont été choisies pour optimiser les propriétés supraconductrices. En particulier, nous avons opté pour la température de croissance ainsi que la pression de N_2O qui maximise la température critique et minimise la largeur de la transition supraconductrice.

3.2 Techniques de caractérisation des couches minces

Plusieurs techniques sont utilisées pour caractériser les couches minces. En particulier, celles utilisées pour cette thèse permettent de caractériser les propriétés de surface, structurales et de transport. Dans les prochaines sous-sections, nous présenterons les différentes techniques utilisées.

3.2.1 Propriétés de surface

La topographie de la surface d'un échantillon est caractérisée à l'aide de la microscopie à force atomique (AFM). Cette technique fonctionne à l'aide d'un micro-levier terminé par une pointe qui balaie la surface de l'échantillon. Le micro-levier est très flexible ce qui permet d'utiliser son degré de flexion pour mesurer la force entre la pointe et l'échantillon : lorsque la pointe rencontre une élévation, elle remonte et le micro-levier

se déplie. À l'inverse, si la pointe rencontre un trou, elle descendra et le micro-levier effectuera une flexion. La hauteur de la pointe ainsi que sa variation sont enregistrées par un ordinateur pour rendre une image de la surface de l'échantillon. Cette technique est très sensible et permet de voir les défauts à la surface de l'échantillon ou, dans notre cas, de mesurer un profil sur une rampe étroite. Les images typiques font de quelques centaines de nanomètres à quelques dizaines de microns en largeur et l'appareil utilisé (de Digital Instrument) permet d'obtenir une résolution verticale de l'ordre du nanomètre.

3.2.2 Propriétés structurales

La qualité cristalline des couches minces étudiées est confirmée par la technique de diffraction des rayons-X. Cette technique permet d'obtenir certains paramètres de maille de la couche mince, le type de structure cristalline et l'orientation relative au substrat. La technique des rayons-X repose sur le fait que les faisceaux diffusés par les différentes couches atomiques vont interférer de manière constructive à certains angles bien précis, qui vont dépendre de la structure du matériau et de son paramètre de maille hors plan, suivant la relation :

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (3.1)$$

où d est la distance interplan, θ est l'angle d'incidence et de réflexion, λ est la longueur d'onde du rayonnement rayons-X et n est l'ordre d'interférence. Dans notre cas, cette relation permet d'une part de prédire approximativement à quels angles les pics du PCCO se trouveront et d'autre part de déterminer son paramètre de maille c (voir Figure 3.2). L'absence de pics supplémentaires permet ultimement de vérifier l'absence de phases parasites à l'intérieur de la couche mince.

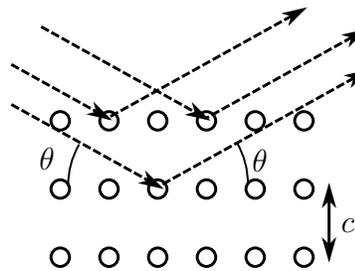


FIGURE 3.2 – Configuration pour la mesure de diffraction des rayons-X. Le schéma est une vue de côté d'une couche dont l'orientation est (001).

3.2.3 Propriétés magnétiques et de transport

Les propriétés de transport sont mesurées dans le système de mesure des propriétés physiques (Physical Properties Measurement System : PPMS), un système polyvalent qui permet d'exécuter une grande variété de mesures (dont seule une partie est présentée ici). Il permet un contrôle thermique précis et peut balayer des températures de 0,35 à 350 K avec une précision de 5 mK. Le système est aussi doté d'un aimant supraconducteur, qui permet de faire des mesures en champ magnétique jusqu'à 9 T. Dans ce travail, nous avons utilisé ce système pour mesurer la susceptibilité magnétique, la résistivité et l'effet Hall des échantillons.

Susceptibilité magnétique

La susceptibilité magnétique permet de caractériser l'état supraconducteur. En particulier, elle permet d'évaluer quantitativement les qualités supraconductrices d'un matériau. Contrairement à la résistivité, la susceptibilité magnétique est une mesure bi-dimensionnelle, car elle repose sur l'induction de boucles de courant et est donc un critère beaucoup plus contraignant pour la caractérisation de la transition supraconductrice (nous y reviendrons dans la section suivante). Pour voir la transition, il doit y avoir au moins un plan dans le matériau qui devient supraconducteur et non uniquement un filament, comme c'est le cas avec la résistivité. Elle se mesure à l'aide du principe d'inductance mutuelle entre deux bobines. Elle ne nécessite pas de contacts, ce qui la rend facile à utiliser, en particulier sur de petits échantillons. Le montage est constitué de deux ensembles de deux bobines. Dans chacun des ensembles, une première bobine sert à l'excitation, l'autre à la détection. Dans le premier ensemble, on place l'échantillon dans l'axe de la bobine de détection (avec le champ magnétique dans la direction de l'épaisseur de la couche mince) ; la susceptibilité magnétique de l'échantillon modifiera l'inductance mutuelle entre les deux bobines. Le deuxième ensemble de bobines permet de soustraire la réponse du système en lui-même, ce qui permet d'obtenir uniquement la réponse de l'échantillon. Les bobines d'excitation sont alimentées par une source de courant alternatif de fréquence variant de 1 à 10 kHz qui génère un champ magnétique de 0,01 G à 13 G.

L'état supraconducteur étant caractérisé par un diamagnétisme parfait, il possède une signature très claire dans la courbe de susceptibilité magnétique. La partie réelle du signal indique le degré d'écrantage de l'échantillon, ce qui explique que sa valeur est zéro

pour $T > T_c$ et négative pour $T < T_c$ ¹. La partie imaginaire représente la dissipation dans l'échantillon, ce qui explique pourquoi elle est non nulle autour de la transition supraconductrice, ces pertes étant dominantes lorsque l'échantillon comporte à la fois des zones supraconductrices et normales. Ainsi, la largeur du pic de la partie imaginaire nous donne des indications sur la qualité des échantillons : plus le pic est large, moins la transition supraconductrice est abrupte et moins l'échantillon est homogène. Pour les bons échantillons, la largeur à mi-hauteur est inférieure à environ 0,5 K. Pour faire la mesure sur des couches minces, il faut utiliser un faible champ magnétique, parce que pour cette géométrie, le facteur de désaimantation est très important. Ainsi, dans l'état supraconducteur, le champ magnétique ressenti à l'intérieur de l'échantillon est beaucoup plus important que le champ magnétique appliqué [150] et s'il est trop intense, cela élargira artificiellement la transition supraconductrice. Pour cette raison, des champs magnétiques alternatifs de l'ordre de 0,05 G sont utilisés pour explorer la qualité des couches minces.

Résistivité et effet Hall

La résistivité électrique est une deuxième méthode qui permet de caractériser les propriétés supraconductrices d'un matériau. Cependant, la résistivité est une mesure unidimensionnelle, c'est-à-dire qu'aussitôt qu'un filament supraconducteur reliera les deux contacts de mesure de voltage, la résistance chutera à zéro par percolation. Elle est tout de même utilisée comme technique de caractérisation car elle est très simple et la valeur absolue de la résistivité peut être utilisée aussi pour évaluer la qualité des couches. Pour mesurer la résistivité électrique, on utilise une technique à quatre contacts (voir Figure 3.3). L'avantage de cette technique est que nous n'avons pas à nous soucier des résistances des contacts (qui peuvent être très importantes) puisque le courant ne passe pas par les contacts de mesure.

Les contacts sont faits d'un alliage d'indium et d'argent chauffé au fer à souder. Typiquement, la résistance des contacts varie de 1 Ω à 100 Ω , soit entre 10 et 10000 fois plus élevée que les meilleurs contacts sur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$ [151]. Cette difficulté à poser de bons contacts sur PCCO est bien documentée [152, 153]. L'injection du courant se fait via deux contacts, situés aux extrémités de l'échantillon, alors que la mesure de la différence de potentiel se fait avec deux contacts soudés vers le centre de l'échantillon, ce qui nous permet de mesurer uniquement la résistance de l'échantillon. Le courant

¹La susceptibilité de Pauli est beaucoup plus faible que le seuil de détection et peut être négligée.

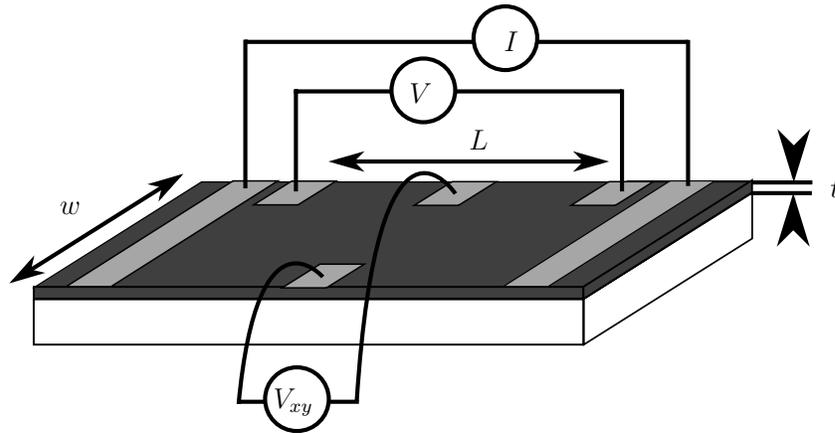


FIGURE 3.3 – Configuration des contacts pour la mesure de résistivité et d’effet Hall. Pour mesurer la résistivité, on injecte le courant I dans les contacts situés sur les bouts de l’échantillon et on mesure la différence de potentiel V entre des contacts placés vers le centre de l’échantillon. Pour la mesure de l’effet Hall, on utilise les mêmes contacts d’injection de courant, mais la différence de potentiel V_{xy} est mesurée perpendiculairement à la direction du courant.

utilisé peut varier de $1 \mu\text{A}$ à 1mA . La résistance R de l’échantillon est obtenue en utilisant simplement la loi d’Ohm. Par contre la donnée qui nous intéresse en général est la résistivité ρ de l’échantillon, puisqu’elle est indépendante de la géométrie du matériau. Cette dernière est calculée avec l’équation

$$\rho = \frac{R \times A}{L}, \quad (3.2)$$

où A est la section de l’échantillon (l’épaisseur t multipliée par la largeur w) et L est la longueur de l’échantillon. La largeur et la longueur sont mesurées avec un microscope optique avec une précision plus grande que la rugosité des contacts ($\sim 10 \mu\text{m}$). Pour évaluer l’épaisseur, on se sert du taux de dépôt et du nombre d’impulsions envoyées. Le taux de dépôt pour chacun des dopage est lui-même évalué en mesurant précisément l’épaisseur d’une série de couches à différents dopages par microscopie électronique à balayage à angle rasant. Cette technique permet d’observer la tranche d’un échantillon sur un côté fraîchement clivé. Le système envoie un faisceau d’électrons et détecte les électrons réfléchis. Sur les images, le contraste est obtenu grâce à la différence de conductivité des différentes couches. Étant donné que nous utilisons des substrats isolants, ils ont tendance à emmagasiner des charges, ce qui perturbe la mesure à l’interface entre la couche et le substrat. La couche mince est donc mise à la terre par une couche de laque d’argent avec

le support en métal, ce qui permet de se débarrasser de cet effet indésirable. On trouve ainsi l'épaisseur des couches minces avec une précision meilleure que 5 nm.

La Figure 3.4 montre un exemple d'une image et permet de voir comment l'épaisseur est évaluée. La courbe de résistivité d'un supraconducteur (voir Figure 3.5) donne de

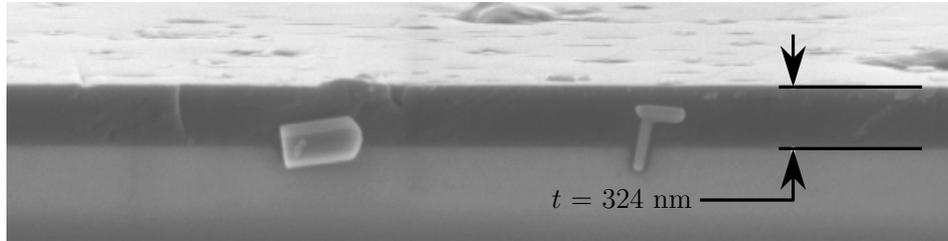


FIGURE 3.4 – Exemple de données obtenues en microscopie électronique à balayage. Le bord du substrat est gris, le bord de la couche mince est gris foncé et le dessus de la couche est gris pâle. L'épaisseur est évaluée en faisant la moyenne de l'épaisseur mesurée en plusieurs points sur la tranche de la couche.

l'information sur la qualité de la transition supraconductrice de la couche mince. En par-

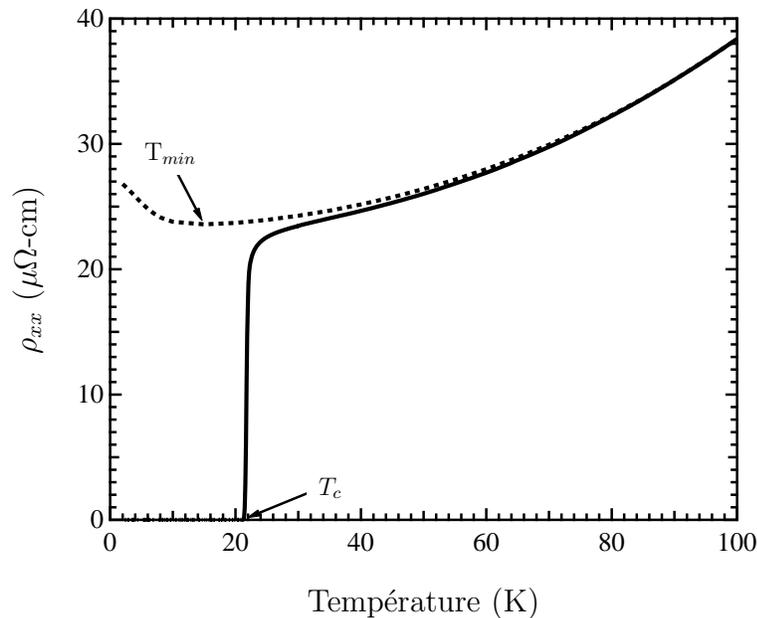


FIGURE 3.5 – Courbe de résistivité d'une couche de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ en fonction de la température. Les données des courbes continue et pointillée ont été prises en champ magnétique nul et à 9 T, respectivement.

ticulier, elle nous donne la valeur de la température de transition T_c ainsi que la largeur de

cette transition. En appliquant un champ magnétique assez intense parallèlement à l'axe c , on retrouve l'état normal de la couche supraconductrice. Dans notre cas, un champ de 9 T suffit à la tâche (sauf pour certains dopages, nous reviendrons sur ce point) et révèle un minimum dans la courbe de résistivité, à une température T_{min} en dessous de T_c . La valeur de T_{min} peut être utilisée comme une autre information sur la qualité de la couche [35]. Un recuit trop court ou non uniforme viendrait diminuer T_c , élargir la transition et augmenter T_{min} . Finalement, la valeur absolue de la résistivité à une température juste au dessus de T_c donne aussi des indications sur la pureté de la couche étudiée, les couches les plus pures ayant une petite valeur de résistivité. Pour nos couches minces, cette valeur ($\rho_0 \sim 23 \mu\Omega\text{-cm}$) est comparable à celle des meilleures couches minces de la littérature [30], entre autre celles obtenues par épitaxie par jet moléculaire [154, 155], ce qui en confirme la qualité.

Pour mesurer l'effet Hall, on utilise le même genre de contacts que pour la mesure de résistance, mais on mesure la différence de potentiel V_{xy} dans la direction transverse au courant (voir la Fig. 3.3). Le courant utilisé est du même ordre de grandeur que celui utilisé pour mesurer la résistance ou un peu plus faible. La quantité qui nous intéresse est la constante de Hall, R_H , calculée à partir de l'équation

$$R_H = \frac{tV_H}{IB}. \quad (3.3)$$

Où t l'épaisseur de la couche, I et B représentent le courant et le champ magnétique appliqué (ici 9 T), respectivement et V_H est la tension de Hall. Cette dernière s'obtient à partir d'une mesure de V_{xy} en champ magnétique positif et négatif. Si les contacts ne sont pas parfaitement alignés (perpendiculairement à la direction du courant), il y aura, dans la mesure de V_{xy} , une composante V_{MR} venant de la magnéto-résistance, qui viendra s'ajouter à la tension de Hall. Pour s'en débarrasser, on se sert du fait que cette composante supplémentaire est paire en fonction du champ magnétique, alors que la tension de Hall est impaire. Ainsi, on a

$$V_H(B) = \frac{V_{xy}(B) - V_{xy}(-B)}{2}. \quad (3.4)$$

Où $V_{xy}(B)$ et $V_{xy}(-B)$ sont les différences de potentiel mesurées sur les contacts de Hall en champs magnétiques positif et négatif, respectivement. Les données d'effet Hall ne donnent pas d'information directe sur les propriétés supraconductrices, mais la forme de la courbe dépend grandement de l'oxygénation de la couche. En mesurant les propriétés

d'une série de couches de même épaisseur, mais avec des recuits différents, on arrive à déduire le degré de réduction d'une couche en particulier. L'effet Hall est aussi très sensible au signe et à la mobilité des porteurs de charge. Nous pourrions donc utiliser cet outil pour suivre les modifications importantes de la surface de Fermi à travers leur impact sur l'effet Hall.

3.3 Fabrication des jonctions Josephson

Dans la section 3.1, nous avons vu comment nous utilisons l'ablation laser pour faire la croissance de couches minces de PCCO. Dans la présente section, nous allons utiliser ces connaissances pour expliquer comment nous fabriquons les jonctions Josephson en rampe. Une jonction Josephson en rampe est formée entre la tranche d'une première électrode supraconductrice et une seconde électrode supraconductrice, séparées par une barrière, comme illustré à la Figure 3.6. Ce type de jonction Josephson est relativement simple à fabriquer et permet d'étudier les propriétés de la barrière. En particulier, elle est tout à fait adaptée pour l'étude d'hétérostructures dont les constituants sont des matériaux possédant des paramètres de maille semblables, ce qui est notre cas ici. De plus, cela nous permet d'étudier le couplage Josephson dans les plans d'oxyde de cuivre (plans ab), étant donné que les couches minces de PCCO croissent naturellement dans la direction (001). La raison qui nous incite à étudier le transport dans cette direction est que la longueur de cohérence est beaucoup plus importante dans cette direction que dans la direction perpendiculaire aux plans ab . Pour mesurer le couplage dans la direction c , il faudrait techniquement diminuer l'épaisseur de la barrière et s'assurer aussi que la rugosité des électrodes soit minimale (à l'échelle atomique), sans pour autant qu'il y ait de court-circuit entre les électrodes, ce qui est excessivement difficile à réaliser expérimentalement. Cependant, le désavantage de cette méthode est que l'interface entre la première électrode et la barrière est exposée à l'air après la gravure de la rampe, ce qui rend la reproductibilité plus difficile à obtenir. Dans les prochaines sous-sections, nous verrons les différentes étapes nécessaires à la fabrication de ces jonctions. Toutes les étapes de fabrication sont illustrées à la Fig. 3.7.

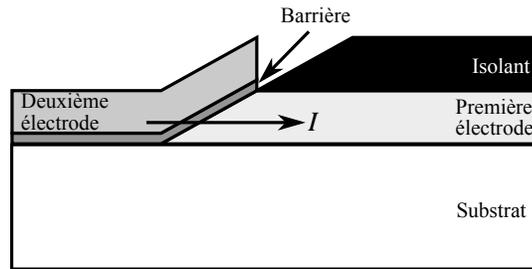


FIGURE 3.6 – Vue schématique d’une jonction Josephson en rampe, montrant les différentes couches. La direction du courant, I , est aussi indiquée. Les dimensions ne sont pas à l’échelle.

3.3.1 Première électrode

Les jonctions sont fabriquées sur un substrat, LSAT ou STO, de $5 \times 5 \text{ mm}^2$. Dans un premier temps, une couche de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ (dopage optimal) est déposée, en utilisant les mêmes conditions de dépôt que celles présentées à la section 3.1 pour les mono-couches. Plus spécifiquement, la première électrode est déposée à une température de $830 \text{ }^\circ\text{C}$, dans une atmosphère de 200 mTorr de N_2O et possède une épaisseur d’environ 250 nm. Tout de suite après la fin du dépôt, l’échantillon est recuit sous vide (réduction) pour 5 minutes, puis refroidi rapidement. Après une trentaine de minutes, quand l’échantillon atteint une température d’environ $230 \text{ }^\circ\text{C}$, la pompe turbo est de nouveau ralentie et la pression ajustée à 100 mTorr de N_2O pour le dépôt d’une couche isolante de STO. Cette couche permet d’isoler le dessus de la première électrode et d’assurer que le courant circule bien à travers les jonctions. Pendant que l’échantillon continue de refroidir, on fait une préablation de 3 minutes suivie par un dépôt de 5 minutes. À cette température, le STO déposé est amorphe et croît rapidement, si bien que l’épaisseur obtenue est de plus ou moins 300 nm. Cette couche est *très* fragile et peut facilement être arrachée de l’électrode de PCCO sur laquelle elle se trouve.

3.3.2 Gravure de la rampe

L’étape suivante est de graver une partie de la couche en angle pour obtenir une rampe, sur laquelle sera déposée par la suite la barrière et la seconde électrode. Pour simplifier au maximum le procédé de fabrication et minimiser le nombre d’étapes requises et leur impact sur les propriétés (voir plus bas), nous avons choisi de masquer simplement la moitié de la couche. Pour ce faire, l’échantillon est amené en salle blanche puis séché

dans des fours à étuve à 125 °C pendant 30 minutes pour retirer toute trace d'humidité de la surface. Cette étape préalable permet à la résine de bien adhérer. L'échantillon est recouvert de 1 μm de résine photo sensible Shipley 1813 à l'aide d'une étaleuse, puis recuit sur une plaque chauffante pendant une minute pour solidifier la photo-résine. Une moitié de l'échantillon est par la suite recouverte d'un masque de chrome, l'autre est exposée aux rayons ultra-violet pour une dizaine de secondes. La partie exposée de la résine est enlevée en immergeant l'échantillon dans le développeur MF-319 pour 30 secondes, puis, l'échantillon est rincé à l'eau pendant 30 secondes et asséché au jet d'azote gazeux.

Ensuite, l'échantillon est transféré dans le système de gravure par faisceau d'ions (Ar), où l'échantillon sera gravé jusqu'au substrat avec des ions ayant une énergie de 500 eV et une densité de courant d'environ 0,5 mA/cm² pendant approximativement 140 minutes, ce qui correspond à un taux de gravure d'environ 4 nm par minute. La gravure par faisceau d'ions permet d'obtenir des structures à haute résolution. Ses principaux désavantages sont qu'elle est non sélective et qu'une longue gravure finit par chauffer l'échantillon. Ainsi, pendant la gravure, il est important de faire des pauses, car l'échantillon chauffe et le système de refroidissement n'est pas assez efficace. Ainsi, ces pauses permettent à l'échantillon de ne pas surchauffer et donc éviter que la résine se liquéfie sur la rampe. L'échantillon est gravé pour 15 minutes, puis masqué pour 5 minutes, puis gravé pour 15 minutes et ainsi de suite. Le faisceau d'ions fait un angle de 74-75° avec la surface de l'échantillon. Quant à elle, la rampe est à 30-35° par rapport à la surface de l'échantillon. Cet angle est mesuré à l'aide de l'AFM (voir section 3.2.1). Il est important que ce dernier ne soit pas trop faible ou trop élevé, faute de quoi les propriétés des jonctions sont affectés. Le support d'échantillon tourne sur lui-même, ce qui uniformise l'angle de la gravure. Après la gravure, la résine est enlevée à l'aide d'un bain à ultrasons, en immergeant l'échantillon dans un bécher d'acétone, puis d'isopropanol (deux fois chacun).

3.3.3 Barrière et deuxième électrode

Après la gravure, l'échantillon est rapidement transféré dans la chambre d'ablation laser, où la barrière et la deuxième électrode y seront déposées. Les conditions de croissance de ces deux couches sont pratiquement identiques à celles utilisées pour la première électrode, à l'exception près que la montée en température est effectuée sous une pression de 10 mTorr d'oxygène. Cette étape empêche la décomposition de la rampe, qui rendrait sa surface isolante et ruinerait la jonction Josephson. En effet, pour obtenir un couplage

Josephson, il est crucial d'assurer un bon contact électrique entre les différentes couches de la jonction. Pour les jonctions en rampe, qui sont étudiées dans cette thèse, le contact entre la première électrode et la barrière peut aisément devenir problématique. Lorsque la barrière est déposée sur la rampe, la croissance doit être épitaxiale : la barrière ne doit pas uniquement « flotter » sur la première électrode. Lors de la croissance de la barrière, une reconstruction à l'interface (similaire à celle utilisée avec $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$ [156]) minimise davantage sa résistance et assure que le courant va bel et bien pouvoir circuler dans la jonction. La deuxième électrode possède toujours une épaisseur de 150 nm, alors que l'épaisseur (verticale) de la barrière varie de 5 à 30 nm. Dans toutes les jonctions étudiées, la barrière consiste en du $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, mais à différentes concentrations, ce qui permet l'étude de ce paramètre sur le couplage Josephson. Ainsi, nous avons fabriqué des jonctions avec des barrières de $\text{Pr}_2\text{CuO}_{4-\delta}$, $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$, $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ et $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$. Pour toutes ces concentrations, excepté $x = 0,22$, les paramètres de croissance sont les mêmes que ceux utilisés pour l'électrode du bas. Pour le dopage $x = 0,22$, il a fallu diminuer la pression de N_2O à 100 mT et diminuer la densité d'énergie de 25% pour obtenir de bons résultats. Après la croissance de la barrière et de la deuxième électrode, l'échantillon est de nouveau recuit pour 5 minutes à haute température, puis refroidi rapidement.

3.3.4 Définition des jonctions Josephson

Pour terminer la fabrication des jonctions Josephson, il faut définir des canaux étroits, par lesquels le courant devra passer pour traverser la jonction. Cette étape est primordiale pour pouvoir observer les oscillations en champ magnétique décrites à la section 2.3. En effet, puisque leur période est inversement proportionnelle à l'aire de la jonction Josephson, la période de ces dernières ne doit pas être trop courte pour pouvoir être observée. Idéalement, la jonction devrait être la plus étroite possible. Alors, le champ magnétique pénétrerait uniformément dans la jonction, qui serait dans le « régime étroit » (voir section 2.3). Malheureusement, il n'est pas possible de définir les jonctions par les techniques de lithographie conventionnelles utilisées par exemple avec $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{CuO}_{7-\delta}$. En effet, d'une part, les gravures chimiques ne sont pas efficaces sur nos matériaux et d'autre part, il n'est pas non plus possible de faire une deuxième gravure par faisceau d'ions car ce faisant, l'échantillon chauffe ce qui entraîne de l'interdiffusion entre la barrière et les électrodes et détruit le couplage Josephson. Ainsi, les jonctions sont définies

à la main, en utilisant une pointe de diamant très fine, ce qui nous permet d'obtenir des largeurs de pont (jonction) entre 50 et 150 μm . Sur un échantillon, on retrouve quatre barreaux, qui possèdent un rétrécissement à l'emplacement de la rampe/jonction. Sur chacun des barreaux, on soude deux contacts sur la première électrode et deux contacts sur la deuxième électrode, pour obtenir la configuration de mesure présentée à la section 3.2.3. Afin d'avoir des mesures avec un bruit minimal, il faut minimiser la résistance de contact, et donc retirer le STO amorphe de la première électrode pour y souder les contacts. Étant donné les problèmes rencontrés pour la gravure, cette étape est aussi faite à la main. Comme le STO amorphe n'est que faiblement collé sur la première électrode, il est possible de retirer pratiquement toute la couche isolante en grattant doucement avec une lame de rasoir bien aiguisée. Nous avons déjà mentionné la difficulté à souder des contacts directement sur PCCO (voir section 3.2.3). Ainsi, malgré l'attention portée pour minimiser la résistance des contacts du côté où il y a eu du STO amorphe, ces derniers sont encore plus résistifs que les contacts soudés directement sur une couche de PCCO.

3.4 Caractérisation des jonctions Josephson

3.4.1 Montage expérimental

Les jonctions Josephson sont caractérisées dans un cryostat écrané, qui permet d'isoler les jonctions du champ magnétique ambiant (terrestre ou autre). Cette caractéristique est très importante puisque l'on s'attend à ce que le courant critique en fonction du champ magnétique oscille avec une période de quelques dizaines de mG, alors que le champ terrestre est de 500 mG. Aussi, en refroidissant l'échantillon, il est important que le champ magnétique soit le plus faible possible car, lorsque la température descendra sous T_c , tout champ magnétique présent sera piégé dans les électrodes supraconductrices ce qui change grandement les valeurs de courant critique mesurées et peut même *l'annuler complètement*. Au fond du cryostat se trouve une bobine de cuivre permettant d'appliquer des champs magnétiques entre 0 et 13 G. L'échantillon est installé sur un porte échantillon, que l'on connecte au bout de la canne de mesure. Cette partie de la canne est ensuite pompée et éventuellement insérée à l'intérieur du cryostat. Le bout de la canne est directement plongé dans le bain d'hélium liquide. L'intérieur de la partie inférieure de la canne de mesure est muni d'un pot à hélium qui permet d'atteindre facilement 4,2 K en laissant simplement circuler l'hélium entre le bain et le pot. En le pompant, la température

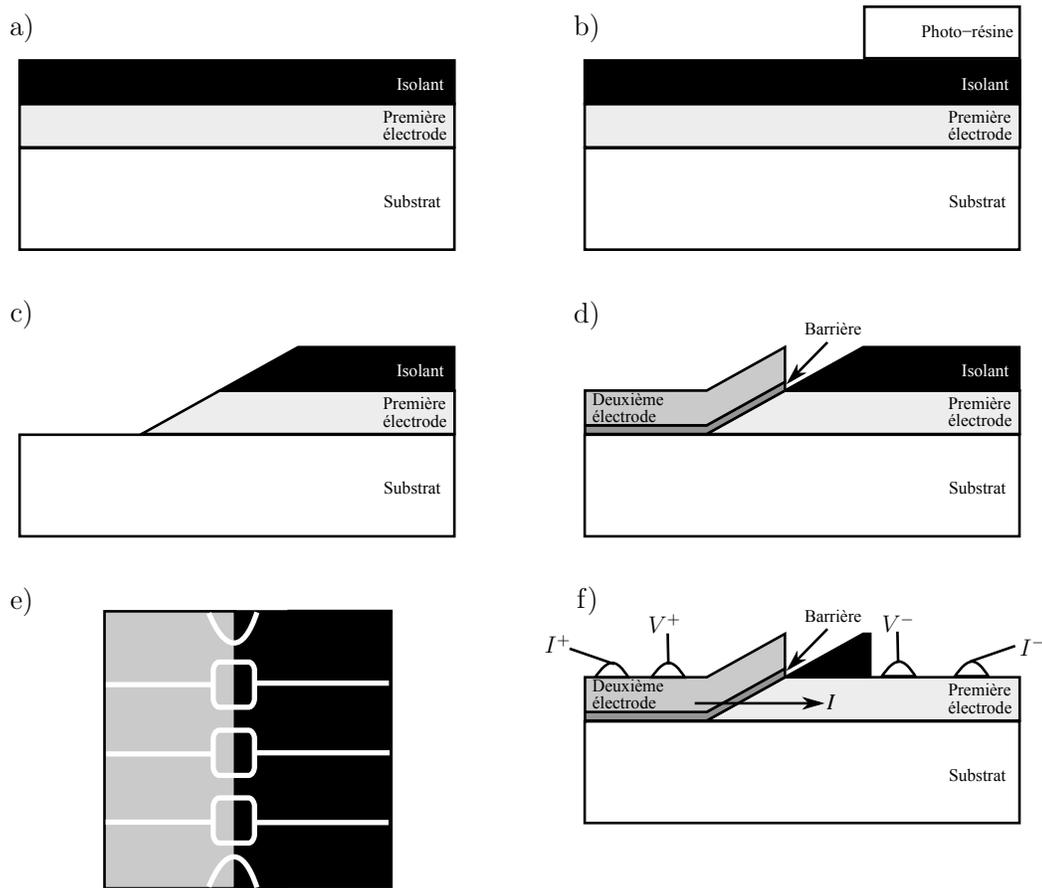


FIGURE 3.7 – Vue schématique des différentes étapes de fabrication des jonctions Josephson en rampe. a) Dépôt de la première électrode et de l’isolant. b) Un masque de résine est étalé. c) La gravure de la rampe. d) la barrière et la deuxième électrode sont déposées. e) Vue de haut de l’échantillon (code de couleur identique). Les traits blancs montrent les gravures faites avec la pointe de diamant pour définir les jonctions. f) L’isolant est enlevé et les contacts sont posés. La figure illustre aussi la direction du courant, I , et n’est pas à l’échelle.

descend jusqu’à 2 K, rendant les mesures possibles entre 2 K et 40 K. Le porte échantillon est muni de 44 connecteurs en or sur lesquels les fils de l’échantillon sont soudés. Ces connecteurs, ainsi que les quatre fils servant à mesurer et contrôler la température sont eux-mêmes soudés à 22 paires de fils torsadés qui parcourent toute la longueur de la canne. La partie supérieure de la canne de mesure est munie d’un connecteur LEMO

qui permet de relier les différents appareils aux contacts appropriés. Pour la majorité des mesures effectuées, nous avons ajouté, entre les connecteurs et les appareils, des filtres π (voir Figure 3.8), qui permettent de filtrer le bruit à des fréquences supérieures à environ 50 Hz. L'utilisation de ces filtres améliore grandement la qualité des mesures effectuées sur les jonctions. Cependant, leur utilisation implique que la résistance des contacts ne soit pas trop élevée : c'est pourquoi nous nous sommes attardés à la minimiser dans les étapes de fabrication². Le courant circulant dans l'échantillon est appliqué avec une source de courant 6221 de Keithley et la différence de potentiel est mesurée avec un nano-voltmètre 2182A, lui aussi de marque Keithley.

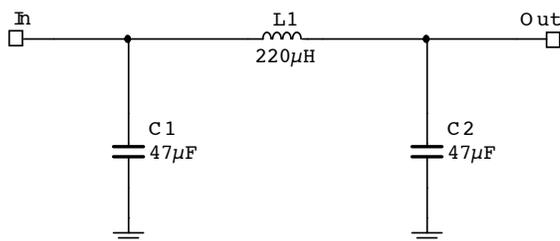


FIGURE 3.8 – Schéma d'un filtre π , utilisé pour filtrer le signal sortant du cryostat écrané qui a été utilisé pour les mesures sur les jonctions Josephson. La borne de gauche (in) est connectée au fil sortant du cryostat, la borne de droite (out) est connectée à l'appareil concerné.

3.4.2 Courbes IV

Le courant critique d'une jonction Josephson est l'indicateur par excellence des propriétés et de la qualité de la jonction. Cette valeur est obtenue à l'aide de courbes IV , qui sont obtenues en modifiant le courant appliqué à travers la jonction et en mesurant la différence de potentiel, de la même manière que l'on mesurait la résistance à la section 3.2.3. Pour des courants inférieurs au courant critique, la différence de potentiel est nulle, alors que pour des courants élevés, la différence de potentiel est proportionnelle au courant : elle respecte la loi d'Ohm, où la résistance est la résistance normale de la jonction.

²À chaque fois que l'on applique un courant, le système doit relaxer avec une constante de temps $\tau = RC$, où R est la résistance des contacts et C la capacité du filtre π , avant qu'une mesure puisse être faite. Si la résistance est trop élevée, ce temps devient de l'ordre de la seconde (voir de 10 ou 20 secondes), ce qui rend la prise de mesure interminable, voir impossible.

En champ magnétique

Comme nous avons vu précédemment, le courant critique oscille en fonction du champ magnétique. Malheureusement, comme nos jonctions sont dans le « régime large », l'allure de la courbe ne sera pas celle présentée à la Fig. 2.5. Cependant, il est tout de même primordial de mesurer la variation du courant critique en fonction du champ magnétique d'une part comme preuve que nous avons bel et bien fabriqué des jonctions Josephson et d'autre part parce que, malgré tous nos efforts pour écranter le champ magnétique, ce dernier ne sera pas nul, si bien que le maximum de courant critique en fonction du champ magnétique ne sera pas à champ nul. Il faut donc mesurer une série de courbes IV en fonction du champ magnétique pour pouvoir identifier le courant critique maximal de la jonction. Cette valeur reviendra constamment dans les résultats et est sans conteste *la* donnée importante.

3.4.3 Résistance dynamique

Pour pouvoir tirer le maximum des mesures en champ magnétique, il est préférable de connaître à l'avance le champ magnétique piégé dans la jonction et la valeur approximative du courant critique maximal. Cela permet de concentrer la prise de données sur la zone où les changements en champ magnétique sont les plus importants. Pour ce faire, nous faisons un balayage de la résistance dynamique. Ce balayage consiste à fixer la valeur du courant traversant la jonction et de mesurer la différence de potentiel lorsqu'on balaie le champ magnétique. Idéalement, le courant appliqué est égal au courant critique maximal de la jonction. Ainsi, lorsque le champ magnétique appliqué annule le champ magnétique piégé, la différence de potentiel mesurée est nulle. De même, lorsque le champ appliqué diminue le courant critique, la différence de potentiel augmente. En balayant le champ magnétique, la différence de potentiel va ainsi osciller et éventuellement converger à la valeur dictée par la loi d'Ohm (où la résistance est la résistance de la jonction). Expérimentalement, on trouve le courant critique maximal en augmentant progressivement la valeur du courant appliqué entre chacun des balayages en champ magnétique. Le courant critique correspond au courant pour lequel la différence de potentiel est nulle pour au moins un point du balayage.

En champ électromagnétique

Pour démontrer que nous avons fabriqué des jonctions Josephson, il n'est pas suffisant de montrer que le courant critique oscille en fonction du champ magnétique. Il faut aussi montrer que les courbes IV sont influencées par l'application d'un champ électromagnétique rf dans la cavité où se trouve l'échantillon. Pour ce faire, la partie inférieure de la canne de mesure est équipée d'une antenne que l'on branche, avec un connecteur situé sur la partie supérieure de la canne de mesure, à un synthétiseur de fréquence à balayage. Celui-ci permet d'exposer les jonctions à des champs hyperfréquences entre des fréquences de 2 GHz et 20,5 GHz avec une puissance pouvant atteindre 16,6 dbm. Par la suite, il suffit de mesurer une courbe IV sans et avec différents champs électromagnétiques ambiants (fréquence et amplitude). Pour pouvoir faire ce type de mesure, la seule contrainte est que la constante diélectrique du substrat ne doit pas être trop élevée. Ainsi, il ne sera pas possible de mesurer l'effet de l'application d'un champ électromagnétique rf sur les jonctions fabriquées sur un substrat de STO, dont la constante diélectrique est très élevée à basse température. L'acquisition de toutes les données se fait grâce à un programme Labview, qui contrôle et fait la lecture sur tous les appareils nécessaires.

Chapitre 4

Transport dans les couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$

Dans ce chapitre, nous présenterons les résultats de mesures de résistivité et d'effet Hall sur des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (PCCO) sur toute la gamme de dopage accessible. Ces travaux s'inscrivent dans les efforts expérimentaux pour faire émerger une image claire de l'allure du diagramme de phase du côté des dopés aux électrons. À la section 3.1.2, nous avons déjà parlé d'une phase parasite, présente dans les couches minces de PCCO et du fait que nous avons réussi à nous en débarrasser en ajoutant un excès de cuivre dans les cibles. La présence de cette phase a pour effet de diminuer l'épaisseur effective de la couche mince; le courant passe par une couche d'épaisseur $t_{eff} < t$. Ainsi les valeurs absolues de toutes les quantités qui dépendent de l'épaisseur du matériau sont directement influencées par l'absence de cette phase parasite. Par exemple, la valeur absolue de l'effet Hall et de la résistivité diminue d'un facteur deux lorsque les couches sont exemptes de phase isolante [30]. Nous avons aussi vu, à la section 1.2.4, que l'emplacement du point critique quantique antiferromagnétique (AF) était directement lié à un changement de la valeur de la constante de Hall à température nulle. Il apparaît donc primordial de recommencer cette analyse en utilisant les couches minces de la nouvelle génération pour confirmer que les conclusions de Dagan *et al.* [9] sont toujours valides. De plus, nous montrerons comment la dépendance en température de ce coefficient de Hall peut être utilisé pour identifier les lignes de transition et leur réelle convergence vers les points critiques observés précédemment.

4.1 Résultats de résistivité

Les résultats de résistivité en fonction de la température pour toutes les concentrations mesurées sont présentés à la Figure 4.1. Les données pour $x = 0,11$ ont été retirées car la valeur de la résistivité indiquait un problème avec l'échantillon : une fissure dans la direction perpendiculaire au courant qui augmente artificiellement la valeur de la résistivité pour toutes les températures. La qualité cristalline globale de tous les échantillons a été confirmée par rayons-X. Sur le graphique, on remarque premièrement que la résistivité diminue en même temps que le contenu en cérium augmente. À basse température et faibles dopages, la variation est assez abrupte; la résistivité diminue d'un facteur 20 entre $x = 0,05$ et $x = 0,13$. Cependant la variation est assez faible autour du dopage optimal; un facteur 3 entre $x = 0,135$ et $x = 0,20$. Le médaillon de la Fig. 4.1 montre la

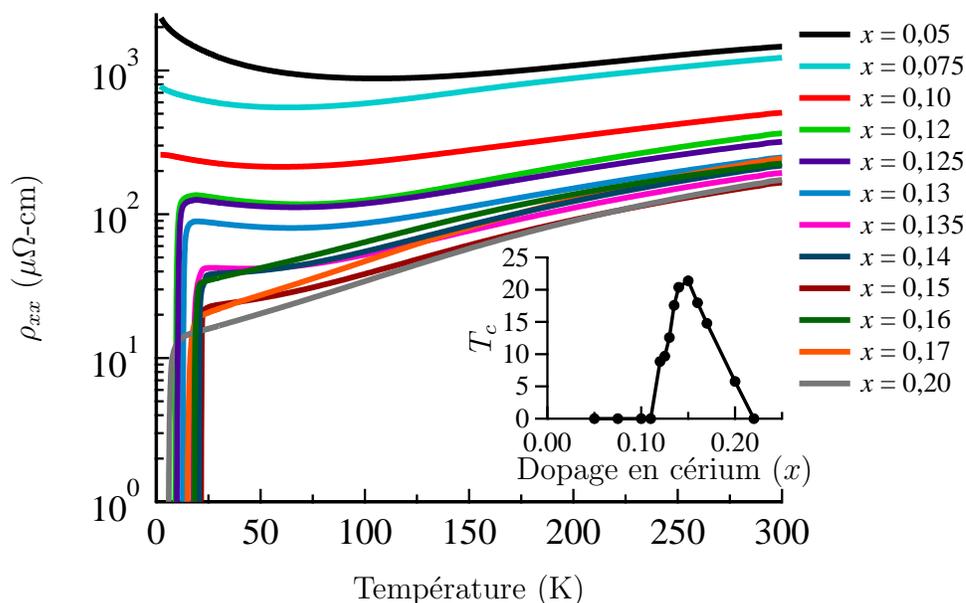


FIGURE 4.1 – Résistivité en fonction de la température à différents dopages pour les couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Le médaillon présente la température de transition supraconductrice en fonction du dopage en cérium. La ligne sert uniquement de guide visuel.

température de transition supraconductrice, définie comme la température en dessous de laquelle la résistance est plus faible que $1 \text{ m}\Omega$, en fonction du dopage, qui reproduit aussi le comportement attendu [9, 24]. La largeur de la transition supraconductrice, évaluée avec la largeur à mi-hauteur de $d\rho/dT$ est comprise entre $0,2 \text{ K}$ et $0,7 \text{ K}$, la transition

la plus étroite étant celle pour $x = 0,15$. En ce basant sur ce critère, nous pouvons affirmer que la qualité des couches obtenues dans la cadre de ce travail est comparable aux meilleures couches minces déposées par PLD [9]. Finalement, on note que la valeur absolue de la résistivité des couches minces à tous les dopages étudiés est environ 2 fois plus faible que les valeurs obtenues auparavant sur des couches minces déposées par PLD. Tel que mentionné dans l'introduction du chapitre, cela s'explique simplement par le fait que nos couches minces sont exemptes de la phase parasite qui diminue artificiellement l'épaisseur des couches [30].

La Figure 4.2 montre les résultats de résistivité en fonction de la température pour certaines des concentrations mesurées avec et sans champ magnétique de 9 T. On remarque d'abord que pour $x = 0,135$ et $x = 0,14$, le champ magnétique n'est pas suffisant pour détruire complètement la supraconductivité sous 5 K. On confirme aussi que la résistivité à basse température de l'échantillon à la concentration $x = 0,17$ est linéaire jusqu'à 340 mK [9] (présenté en médaillon de la Fig. 4.2), une indication claire que le matériau est à proximité d'un point critique quantique, très certainement celui identifié par Dagan *et al.* à $x = 0,165$. Pour de faibles dopages, on remarque une remontée de la résistivité sous une température caractéristique appelée T_{min} . Ce minimum a déjà été utilisé pour révéler l'emplacement de la transition métal-isolant dans ce système, dont la température de transition devient nulle à $x \sim 0,16$ [35]. Aussi, la remontée de la résistance sous T_{min} viendrait de la faible localisation des porteurs dans un système bidimensionnel (2D) à basse température [157], qui ajoute une composante logarithmique à la résistivité. Pour PCCO, les données expérimentales précédentes [116], ainsi que les données expérimentales présentées ici montrent que la dépendance n'est pas tout à fait logarithmique à basse température et présente plutôt une saturation, qui viendrait de la saturation de la longueur de cohérence de phase électronique.

Le graphique de T_{min} en fonction de la concentration en cérium (Figure 4.3(a)), a la même tendance générale que les données précédentes [9, 35]; de manière générale, cette valeur diminue lorsque le dopage augmente et devient nulle pour $x \sim 0,16$. Cependant, on remarque aussi une anomalie pour des dopages proches de $x = 0,125$, où elle rencontre un maximum local. Cette anomalie n'avait pas été remarquée auparavant car il n'y avait pas un échantillonnage en dopage assez fin dans cette région du diagramme de phase. Elle est probablement causée par une augmentation de la diffusion des porteurs à des dopages près de $x = 0,125$ (nous y reviendrons). Cette hypothèse est renforcée par les

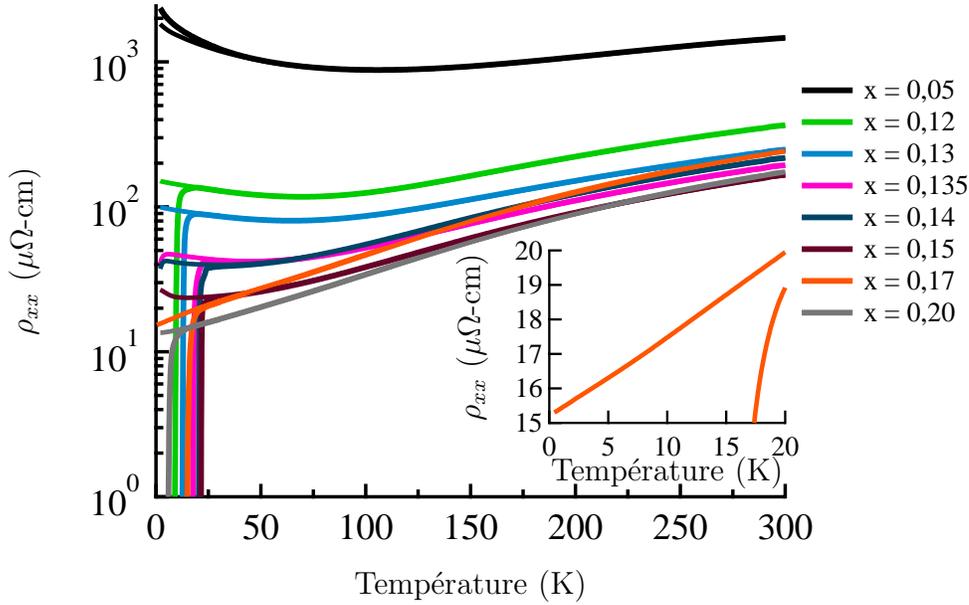


FIGURE 4.2 – Résistivité en fonction de la température à différents dopages pour les couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, mesurée avec et sans champ magnétique de 9T. Le médaillon montre un agrandissement de la résistivité basse température avec champ pour l'échantillon $\text{Pr}_{1,83}\text{Ce}_{0,17}\text{CuO}_{4-\delta}$. Le changement de pente apparent autour de 5 K est un artéfact de mesure qui vient du fait que les données à sous 5 K ont été prises séparément de celles au-dessus de 5 K. En installant l'échantillon pour cette seconde mesure, les contacts ont pu être déplacés légèrement, ce qui a changé la valeur de la résistivité.

résultats de résistivité à 2 K en fonction du dopage, présenté à droite de la Fig. 4.3. En augmentant le dopage, on voit un premier changement de comportement à $x = 0,135$, ainsi qu'un second, moins prononcé, à $x = 0,165$. La diminution abrupte de la résistivité à 2 K, pour des dopages autour de $x = 0,125$ semble en effet indiquer une diminution marquée de la diffusion des porteurs.

Cette modification de la diffusion des porteurs concorde, dans les deux cas, avec un changement de la topologie de la surface de Fermi (révélé par ARPES [38, 39]). À fort dopage, les porteurs de charge sont des trous très mobiles, alors qu'à faible dopage, ce sont des électrons beaucoup moins mobiles (voir la structure de bande présentée à la Fig. 1.6). Pour les dopages intermédiaires, les deux sont présents mais les trous dominent les propriétés de transport. Ainsi, en partant de $x = 0,20$ et en diminuant le dopage, il y a une première anomalie : la grande surface de Fermi cylindrique centrée autour de (π, π) se scinde en des arcs de trous et d'électrons, mais comme les trous sont toujours présents,

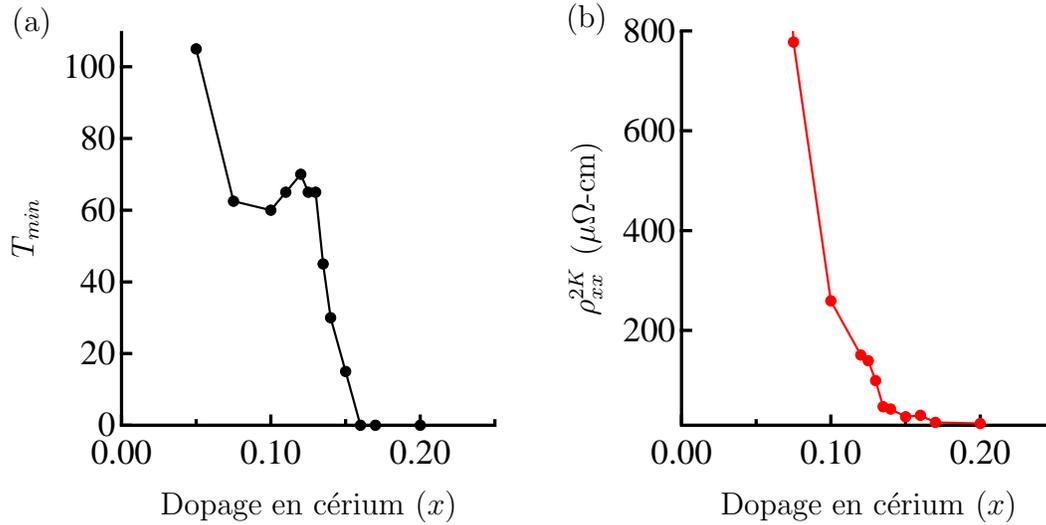


FIGURE 4.3 – (a) T_{min} en fonction du dopage. L'erreur sur la position du point est verticale uniquement est de l'ordre de quelques kelvin. (b) Résistivité sous champ à 2 K en fonction du dopage. Pour les deux dopages pour lesquels le champ magnétique appliqué n'est pas suffisant pour éliminer la supraconductivité, on a pris la valeur de la résistivité juste avant le début de la transition (à $T \sim 5$ K). L'erreur est encore une fois uniquement verticale et égale à quelques pour cent de la valeur en y. Dans les deux graphiques, la ligne sert uniquement de guide visuel.

la transition n'a pas beaucoup d'impact du point de vue de la résistivité. En diminuant encore le dopage, une deuxième anomalie, plus prononcée, est rencontrée en résistivité lorsque les trous cessent de contribuer au transport, à $x \sim 0,125$. À ce point, comme il a été vu en ARPES, l'arc de trous près de $(\pi/2, \pi/2)$ disparaît, ne laissant que des électrons pas très mobiles. Pour ces dopages, le changement de résistivité est grandement affecté par le changement de dopage ($n \sim x$, $\rho \sim 1/x$ si on tient compte simplement du modèle de Drude).

4.2 Résultats d'effet Hall

La Figure 4.4 montre la valeur du coefficient de Hall en fonction de la température pour tous les dopages étudiés. Pour bien montrer que l'effet d'avoir amélioré la qualité de couches minces est simplement la renormalisation de la valeur du coefficient de Hall, nous présentons, à la Figure 4.5 les données publiées par Dagan *et al.*.

De nos données, on extrait la valeur de R_H à basse température en fonction du dopage,

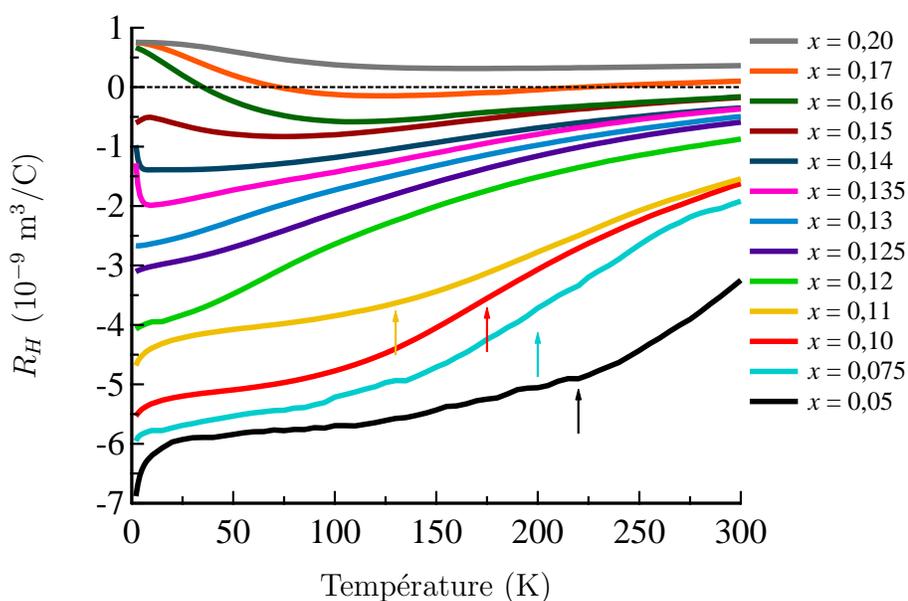


FIGURE 4.4 – Coefficient de Hall en fonction de la température pour tous les dopages étudiés. La remontée de la constante de Hall pour $x = 0,135$ et $x = 0,14$ est due au fait que le champ magnétique est insuffisant pour éliminer la supraconductivité. Les flèches indiquent les températures de Néel pour les dopages $x = 0,05$, $x = 0,075$, $x = 0,10$ et $x = 0,11$, tel que mesurées par diffusion des neutrons [13, 158].

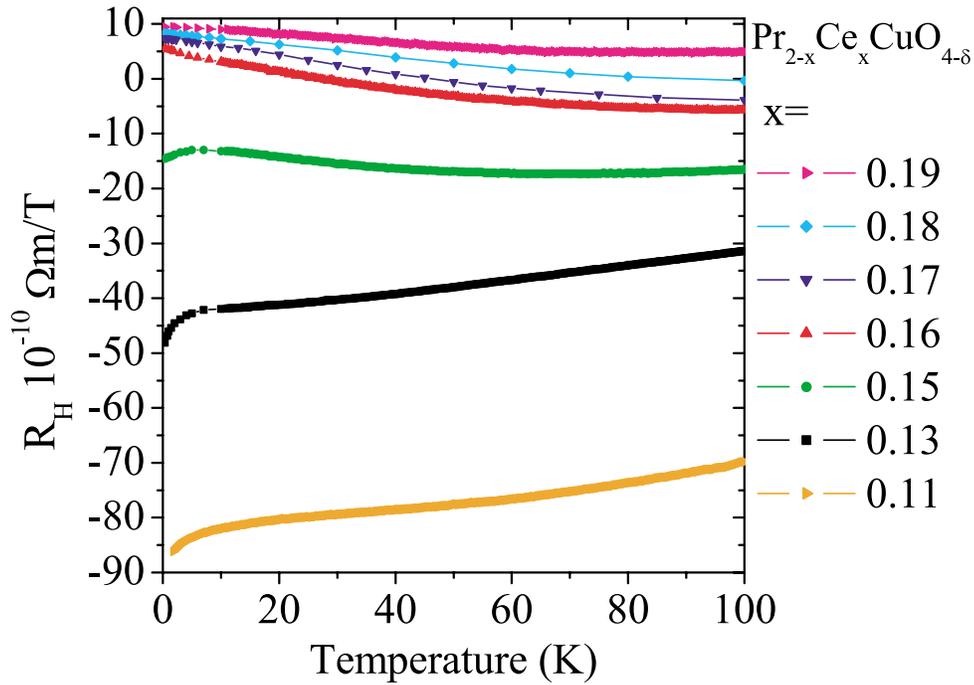


FIGURE 4.5 – Coefficient de Hall en fonction de la température pour l’ancienne génération de couches minces. La figure est extraite de la référence [9].

dont le graphique est présenté à la Figure 4.6. Sur ce graphique, on compare aussi nos résultats aux valeurs obtenues précédemment sur des couches minces semblables [9, 25], ainsi que les prédictions théoriques [37] pour un système à deux types de porteurs résultant de la présence d’une onde de densité de spin, ainsi que les valeurs obtenues pour un seul type de porteurs (électrons et trous). On remarque, tel qu’observé par Dagan *et al.* [9], une cassure évidente dans le comportement de $R_H(x)$ à $T \sim 0$ à $x \sim 0,165$. On note aussi une seconde anomalie à $x \sim 0,11$.

Pour des dopages supérieurs à $x = 0,10$, le coefficient de Hall mesuré expérimentalement correspond presque parfaitement à la valeur prédite théoriquement par Lin et Millis [37]. Aussi, contrairement aux résultats précédents [9, 25] illustrés à la Fig. 4.6 par des triangles gris, la valeur absolue de la constante de Hall reste comprise entre les valeurs limites calculées pour une pochette d’électrons à bas dopages (ligne bleue) et une pochette de trous à hauts dopages (ligne verte) et ce, quelle que soit la température. Ceci vient du fait que, comme pour la valeur de la résistivité, la valeur absolue de la constante de Hall mesurée dans notre étude est diminuée de près de la moitié par rap-

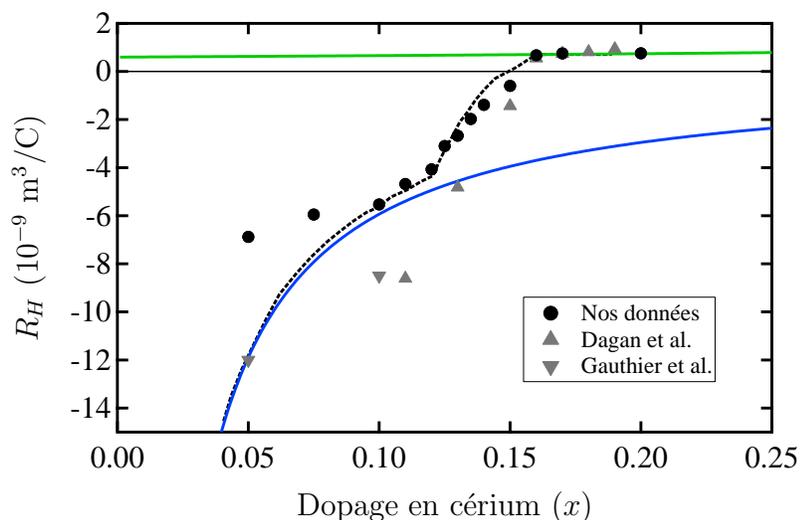


FIGURE 4.6 – Coefficient de Hall à basse température en fonction du dopage. Les points noirs sont les données expérimentales à 2 K, sauf pour $x = 0,135$ et $x = 0,14$ où on a pris la valeur à 5 K. La courbe en pointillés est la prédiction théorique de Lin et Millis [37]. La courbe en bleu est la valeur du coefficient de Hall pour une poche d'électrons : $R_H^{Electrons} = V_{UC}(x)/2xe$ [37] et celle en vert est la valeur pour une poche de trous : $R_H^{Trous} = V_{UC}(x)/2(1-x)e$ [37]. Les triangles gris sont les données expérimentales de Dagan *et al.* [9] et de Gauthier *et al.* [25] prises sur l'ancienne génération de couches minces.

port aux résultats précédents, ce qui s'explique par l'absence de la phase parasite dans la nouvelle génération de couches minces. Dans le cas du changement de comportement à $x \sim 0,11$, la forte brisure est probablement le résultat de la réduction dont on ne tient pas compte dans le diagramme de phases $T - x$. En effet, le processus de réduction est reconnu pour modifier de manière plus importante le contenu en oxygène des échantillons à faible dopage : pour un même temps de recuit, l'oxygène sortirait plus aisément des échantillons faiblement dopés [159]. Pour les dopages inférieures à 0,12, nous avons repris les conditions de croissance utilisées pour $x = 0,12$. Il est tout à fait possible que la valeur absolue du coefficient de Hall soit plus faible que la prédiction simplement parce que la concentration d'électrons est plus importante suite à une réduction excessive.

Revenons maintenant à la dépendance en température de la constante de Hall, présentée à la Fig. 4.4. Pour un métal simple, le signe du coefficient de Hall est directement relié au signe des porteurs de charge et sa valeur est donnée par :

$$R_H = \frac{1}{ne} \quad (4.1)$$

où n est la densité de porteurs et e la charge d'un électron (ici n est positif pour des trous et négatif pour des électrons). Pour un système à deux types de porteurs, le signe du coefficient de Hall va dépendre du rapport des mobilités suivant la relation :

$$R_H = \frac{p - n\left(\frac{\mu_n}{\mu_p}\right)^2}{e\left(n\left(\frac{\mu_n}{\mu_p}\right) + p\right)^2} \quad (4.2)$$

où p (n) est la concentration de trous (électrons) (en valeur absolue) et μ_p (μ_n) la mobilité des trous (électrons). Par exemple, si les deux densités sont identiques, le coefficient de Hall sera positif si la mobilité des trous est plus grande que celle des électrons et négatif dans le cas inverse. Si ce rapport des mobilités évolue avec la température à dopage fixe ou avec le dopage à température fixe, il est possible d'observer des changements de signe dans le coefficient de Hall. Souvent, ceci peut mener à des dépendances en température complexes. Ainsi, dans les cuprates dopés aux électrons, le coefficient de Hall n'est clairement pas une constante, comme il est observé dans les métaux les plus simples, à l'instar des cuprates dopés aux trous [160, 161]. Ici, il apparaît clairement aussi, en accord avec les mesures de transport précédentes [35, 154, 162, 163], que le système étudié comporte deux types de porteurs. Ce résultat n'est en fait pas très surprenant, vu les résultats d'ARPES qui montrent la présence de deux pochettes de porteurs différentes [38, 41].

Pour les dopages inférieurs à $x = 0,15$, le coefficient de Hall diminue de manière monotone avec la température et sa valeur est négative sur toute la gamme de température. Pour $x \in [0,15; 0,20]$, il présente un minimum pour une certaine température, qui augmente de pair avec le dopage. Pour $x = 0,16$, le coefficient est négatif à haute température et positif à basse température. Pour $x = 0,17$, il est positif à haute et à basse températures, mais négatif pour des températures intermédiaires, alors que pour $x = 0,20$, il est positif sur toute la gamme de température. Ces observations ne peuvent être expliquées par la présence d'un seul type de porteurs. En particulier la remontée du coefficient de Hall pour $x \in [0,15; 0,20]$ est une signature claire de la présence de trous dont la mobilité croît substantiellement à basse température dans un système à priori dopé aux électrons avec une mobilité modérée. Aussi, le dopage auquel cette remontée de l'effet Hall apparaît coïncide assez bien avec l'apparition de la supraconductivité [163], ce qui semble suggérer que la présence de porteurs de type trous est essentielle pour que le composé devienne supraconducteur. Cette remontée serait potentiellement présente pour les dopages $x \in [0,12; 0,14]$, mais à une température plus basse que la température minimale atteinte dans nos mesures. Des mesures d'ARPES sur des monocristaux de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ publiées par Richard *et al.* [164] vont dans le même sens ; cet article montrent essentiellement que la pochette (l'arc) de trous, à proximité du point $(\pi/2, \pi/2)$ de la zone de Brillouin et présente pour les cristaux réduits et supraconducteurs, disparaît lorsque les cristaux sont non-réduits et non-supraconducteurs.

Il est par contre difficile d'expliquer la dépendance en température du coefficient de Hall. Étant donné que les résultats d'ARPES n'indiquent pas la présence des points chauds [41] pour $x = 0,20$, on s'attend à ce que, au moins pour ce dopage, il soit possible d'expliquer cette dépendance en température. Cependant, cela s'avère impossible avec un modèle de liquide de Fermi à une seule bande et un taux de diffusion élastique isotrope, soit une constante. Pour mieux comprendre cette dépendance, il faudrait ainsi obtenir la dépendance angulaire du coefficient de diffusion élastique. Cette dernière pourrait être obtenue à l'aide d'une analyse exhaustive de l'anisotropie du coefficient de diffusion à l'aide des oscillations de magnétorésistance angulaire, comme cela a été fait avec les dopés aux trous [165]. De récentes mesures de l'angle de Hall AC sur les mêmes couches minces de PCCO [166, 167] semblent indiquer que l'approximation du temps de relaxation (RTA) est effectivement insuffisante pour expliquer la dépendance en température de l'effet Hall. Ces résultats montrent que l'aspect des courbes d'effet Hall DC et AC

peut être expliqué en tenant compte de corrections de courant de vortex (CVC), tel que proposées théoriquement par Kontani [168]. Ces approches permettraient probablement de gagner une meilleure compréhension de ce qui se passe à bas dopage, où la dépendance en température de l'effet Hall n'est pas triviale, malgré qu'*a priori*, il y ait également un seul type de porteur contribuant au transport.

Pour tous les dopages sous $x = 0,12$, le coefficient de Hall demeure relativement constant sur une grande plage de température. Pour $x = 0,05$, ce plateau commence à $T \sim 225\text{K}$, pour $x = 0,075$, à $T \sim 125\text{K}$, pour $x = 0,10$, à $T \sim 110\text{K}$, pour $x = 0,11$, à $T \sim 100\text{K}$. À $x = 0,12$, on remarque une légère inflexion, mais pas tout à fait un plateau. Pour les dopages où il est observé, le plateau se poursuit jusqu'à $T \sim 20\text{K}$, où la valeur du coefficient de Hall augmente (négativement). À basse température, deux phénomènes donnent lieu à des corrections aux quantités de transport mesurées : d'une part, on a la faible localisation (voir section 4.1) et d'autre part, les interactions électron-électron. Le premier ne donne que des corrections à la résistivité, alors que le second entraîne aussi une correction à la constante de Hall [169] : en proportion, la modification à la valeur du coefficient de Hall est deux fois plus importante que celle à la résistivité (causée par les interactions) [169], ce qui expliquerait cette augmentation du coefficient de Hall à basse température.

On remarque que la température sous laquelle se trouve le plateau correspond pratiquement à la température de Néel obtenue avec les mesures de neutrons [13,158] (elle aussi indiquée sur le graphique 4.4), ce qui suggère que l'origine du plateau dans le coefficient de Hall est relié à la présence de l'ordre AF à longue portée. Ainsi, sous la température de Néel, la densité de charges déduite des données d'effet Hall est constante en fonction de la température, comme pour un métal ordinaire. Ce lien entre T_N et R_H devrait pouvoir être confirmé par des mesures d'ARPES : nos résultats suggèrent que le poids spectral aux points chauds devrait évoluer pour des températures $T \in [T_N; T^*]$ et demeurer stable sous T_N . La spectroscopie optique devrait être en mesure aussi d'observer le même genre de comportement. Finalement, cet intervalle de température, $T \in [T_N; T^*]$, correspond également à la région où de fortes fluctuations AF sont observées [13].

Les changements de comportement du coefficient de Hall se traduisent par des modifications plus ou moins importantes dans sa pente (dR_H/dT), ce qui suggère d'analyser

l'évolution de sa dérivée en fonction de la température pour différents dopages. La Figure 4.7 présente cette dérivée en fonction de la température, pour certains dopages étudiés. Sur ce graphique, nous avons multiplié la valeur de la dérivée, dR_H/dT par la valeur du

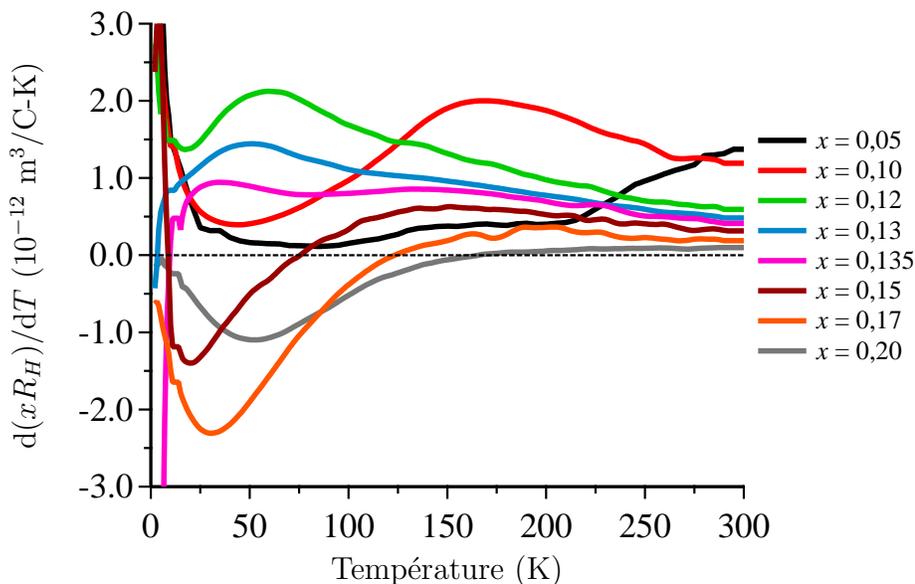


FIGURE 4.7 – Dérivée première du coefficient de Hall en fonction de la température, à certains dopages. La valeur de la dérivée a été multipliée par le dopage pour que toutes les courbes puissent être mises sur la même échelle verticale.

dopage, x , pour être en mesure de voir toutes les courbes sur la même échelle verticale étant donné que les variations du coefficient de Hall sont moins importantes en valeur absolue pour de forts dopages. Pour les températures tout juste au-dessus du début du plateau mentionné précédemment, on observe aisément un maximum de la dérivée, qui correspond au point d'inflexion de R_H en fonction de la température. Ce maximum se présente *toujours* à une température légèrement supérieure à la température de Néel (voir graphique 4.4). La température correspondant à ce maximum diminue en augmentant le dopage et devient nulle pour $x \sim 0,13$. Pour pouvoir tirer le maximum d'information de la dérivée et dans le but d'avoir une image plus claire de son évolution en fonction de la température et du dopage, nous avons voulu faire une carte de courbes de niveau (*contour map*), représentant la valeur de dR_H/dT en fonction de la température et du dopage. Pour ce faire, nous avons pris les courbes du coefficient de Hall en fonction de la température et avons interpolé linéairement les données entre les différentes températures de mesure. Ensuite, nous avons fait une dérivée numérique en considérant les cinq points

à gauche et cinq à droite de chacun des points. Finalement, nous avons utilisé la fonction « Gridding Methods for Randomly Spaced Data » de Origin. Cette fonction prend une matrice de données dont l'espacement n'est pas régulier, interpole entre les données en utilisant la méthode de Renka-Cline pour créer un quadrillage régulier. Dans notre cas, la première interpolation a rendu l'espacement en température régulier, cette méthode est donc utilisée pour interpoler dans l'autre dimension du diagramme de phase, car les dopages utilisés ne sont pas régulièrement espacés. Ensuite, nous avons associé une échelle de couleurs aux valeurs de dR_H/dT et nous les avons représentées dans un diagramme de phase de la température en fonction du dopage. La Figure 4.8 montre le résultat obtenu. Les endroits correspondant à une forte dérivée positive sont en rouge, ceux où la dérivée

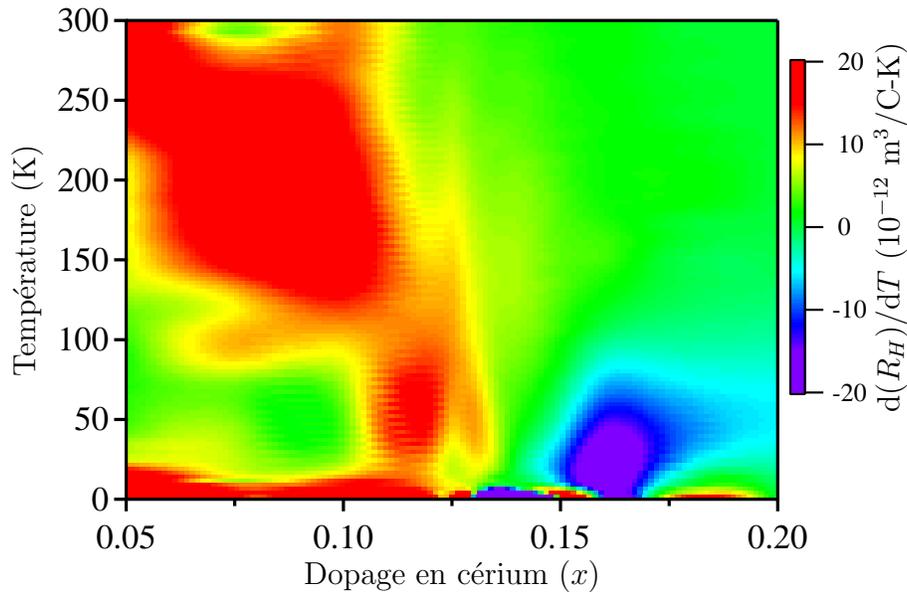


FIGURE 4.8 – Cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage. L'échelle de couleur a été choisie pour mettre en valeur les modifications de comportements observés sur le graphique 4.4 et explicités à la Fig. 4.7.

est fortement négative sont en violet. La région violette autour de $x = 0,135$ est due à la présence de supraconductivité résiduelle même à 9 T. Il y a également une autre région violette, centrée à $x = 0,17$, où les trous contribuent au transport de manière importante. Cette région, en forme de V, est centrée au même dopage que celui où les mesures précédentes avaient identifié la présence d'un point critique quantique. Nos mesures semblent ainsi confirmer la présence d'un point critique quantique à $x \sim 0,165$, qui vient influencer les propriétés de transport dans cette région du diagramme de phase, comme nous en

avons parlé à la section 1.2.2.

On voit également que la dérivée est maximale autour d'une ligne qui commence à $T = 250$ K pour $x = 0,05$ et décrit un arc pour se terminer à $T = 0$ K pour $x = 0,12$. Cette région correspond à la limite supérieure du plateau observé auparavant dans le graphique 4.4 et se trouve toujours à des températures supérieures à la température de Néel, du moins, nous l'avons confirmé pour $x = 0,05$, $x = 0,075$, $x = 0,10$ et $x = 0,11$. En admettant que c'est le cas pour tous les dopages, notre analyse de l'effet Hall en fonction de la température et du dopage suggère que la dérivée de l'effet Hall est maximale lorsque les fluctuations AF sont les plus importantes, c'est-à-dire pour $T \geq T_N$, comme l'indique la divergence de la longueur de corrélation, observée par neutrons [13]. Finalement, la présence de ces fluctuations augmente probablement la mobilité des porteurs, ce qui explique la présence d'un pic dans la Fig. 4.3(a), qui présente la valeur de T_{min} en fonction de la concentration en cérium.

La petite différence entre le fait que le dopage où l'AF disparaît déterminé par les mesures de neutrons ($x = 0,134$) et par nos mesures de transport ($x \sim 0,125$) s'explique certainement par le fait que les deux séries de mesures sont prises sur deux composés possédant des ions de terre rare différentes : $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ pour les mesures de diffusion inélastique de neutrons, alors que nos mesures sont effectuées sur $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. En effet, cette légère différence pourrait être reliée au couplage entre le moment magnétique de néodyme et celui du cuivre [170] qui renforce légèrement la rigidité de l'antiferromagnétisme du $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ par rapport à celui du $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Pour en avoir le cœur net, il faudrait refaire cette analyse de l'effet Hall sur une série de couches minces $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Quoiqu'il en soit, notre analyse nous permet de conclure que le point critique quantique AF pourrait bien se situer du côté sous-dopé du diagramme de phase, à $x \sim 0,125$.

Soulignons le fait que nos résultats, qui indiquent la fin de la zone AF à $x \sim 0,125$, sont incompatibles avec le modèle théorique de Lin et Millis [37], qui prédit un ordre AF à longue portée jusqu'à $x \sim 0,165$. Pour des dopages compris entre $x \sim 0,125$ et $x \sim 0,165$, il y aurait ainsi une reconstruction de la surface de Fermi, malgré l'absence d'ordre AF à longue portée. Pour expliquer ce phénomène, il faudrait sans doute recourir à des ordres à courte portée fluctuant fortement (dont les dimensions sont courtes selon les mesures de neutrons inélastiques [13]) et agissant quand même en scindant la surface de Fermi pour cette gamme de dopages. Également, compte tenu du fait que le dôme supracon-

ducteur débute à $x \sim 0,12$, nos données permettent pratiquement d'exclure la présence d'une région où les phases supraconductrice et AF coexistent. Ainsi, le diagramme de phase de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ serait assez similaire au diagramme de phase des cuprates dopés aux trous, avec une zone AF et un dôme supraconducteur séparés. Nos résultats semblent également aller à l'encontre du diagramme de phase proposé par Sachdev [171], qui suggère que le point critique quantique présent à $x = 0,135$ est déplacé à $x = 0,165$ par l'application d'un champ magnétique permettant de supprimer la supraconductivité. Nous avons analysé nos données en fonction du dopage et de la température, ce qui nous a permis de déterminer l'emplacement de la ligne de transition et pas uniquement celui du point critique quantique. Ainsi, nous pouvons conclure que le point critique quantique, qui se trouve au bout de cette ligne de transition, se trouve bien à $x \sim 0,125$.

Il est aussi important de mentionner que le lien entre une anomalie présente dans l'effet Hall et la température de Néel a déjà été observé dans le chrome [172], un système relativement simple en comparaison des cuprates. Dans ce système, la densité de porteurs chute abruptement (un facteur 2) à la température de Néel, et présente un plateau pour des températures inférieures, de manière assez similaire à ce que l'on mesure dans PCCO. Théoriquement, ce comportement a été interprété comme une signature de l'emboîtement des surfaces de Fermi et de l'antiferromagnétisme à proximité d'un point critique quantique [173]. Dans ce cas particulier, l'emboîtement entraîne la disparition d'une partie de la surface de Fermi lorsque le système entre dans la phase magnétique. Ainsi, ce changement de la surface de Fermi se produit pour une température très proche de T_N et provoque une modification de la densité de porteurs, qui est ensuite mesurée par effet Hall.

4.3 Résumé

Dans ce chapitre, nous avons présenté des résultats de résistivité et d'effet Hall en fonction de la température et du dopage, pour des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Nos résultats ont permis de confirmer la présence d'une anomalie autour du dopage $x = 0,165$, comme mesurée précédemment [9]. Cette anomalie est présente dans les mesures de la résistivité à basse température, de T_{min} et aussi dans l'effet Hall à basse température. Cette anomalie est liée à la présence d'un point critique quantique. La cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage présente une région où la dérivée

est fortement négative autour de $x = 0,165$. La présence de cette région, en forme de V, vient renforcer l'idée de la présence d'un point critique quantique à cet endroit, qui viendrait influencer les propriétés de transport dans cette région du diagramme de phase. On note également que c'est la première fois que la dérivé du coefficient de Hall est utilisé pour tracer un diagramme de phase.

Autour de $x = 0,125$, nous avons remarqué une deuxième anomalie, plus importante, encore une fois, présente dans toutes les propriétés. La cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage montre une région où la dérivée de l'effet Hall est très importante. Nous avons vu que cette région pouvait être associée à la présence de fluctuations antiferromagnétiques importantes, elles-mêmes associées à la ligne de transition $T_N(x)$. Nous avons vu que cette ligne se termine autour de $x = 0,125$, qui est donc l'emplacement du point critique quantique AF. C'est la signature de ce point critique quantique que l'on voit dans les autres propriétés : résistivité à basse température, T_{min} et l'effet Hall. À notre connaissance, aucune autre mesure n'est venu confirmer la présence des deux points critiques quantiques : les mesures sont sensible à l'un ou à l'autre uniquement.

Ici, insistons sur le fait que nos mesures indiquent la présence de deux points critiques quantiques dans le diagramme de phases des dopés aux électrons, contrairement aux mesures de transport précédentes [9]. Le point critique quantique identifié par Dagan *et al.* comme étant le point critique quantique AF est plutôt le point critique quantique associé au pseudo-gap, soit l'endroit où T^* devient nulle. Nos mesures viennent ainsi confirmer les résultats de neutrons inélastiques [13], qui montrent que le point critique quantique AF se trouve dans le régime sous-dopé, ce qui exclut essentiellement la présence d'une région où il y aurait coexistence des phases supraconductrices et AF sur un grand intervalle de dopage.

Chapitre 5

Effet de proximité dans les jonctions Josephson à base de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$

Ce chapitre présente les différents résultats avec les jonctions Josephson fabriquées avec des électrodes supraconductrices de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ et des barrières de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ (PCCO) à différents dopages. D'abord, nous caractériserons les propriétés des électrodes supraconductrices et celles de la rampe. Par la suite, nous montrerons des données qui prouvent la présence de jonctions Josephson lorsque la barrière possède un dopage $x = 0,05$: courbes IV , oscillations en champ magnétique du courant critique en fonction du champ magnétique et courbes IV pour des jonctions soumises à un rayonnement électromagnétique. Nous ferons aussi une analyse de l'évolution de la densité de courant critique en fonction de la température et des effets de la température sur les oscillations en champ magnétique du courant critique. Finalement, une analyse du couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière des jonctions nous permettra de quantifier l'effet de proximité. Nous présenterons ensuite une analyse similaire, quoi que moins détaillée, pour des barrières à d'autres dopages : $x = 0,11$, $x = 0$ et $x = 0,22$.

5.1 Préliminaires

Dans cette section, nous allons nous attarder à caractériser les propriétés des électrodes, de la rampe et de la barrière. Pour commencer, rappelons rapidement le procédé

de fabrication des jonctions Josephson en rampe. Pour commencer, on fait la croissance de la première électrode puis on la recouvre d'une couche de SrTiO_3 amorphe (STO A). Une résine est appliquée sur la moitié de la surface de l'échantillon. La gravure par faisceau d'ions est utilisée pour graver la rampe ; la partie non masquée de l'échantillon est gravée jusqu'au substrat. L'échantillon est remis dans la chambre de dépôt pour la croissance de la barrière et de la seconde électrode. Finalement, les jonctions sont obtenues après la définition des ponts, qui se fait à la main à l'aide d'une fine pointe de diamant.

5.1.1 Propriétés des électrodes

Il y a deux propriétés importantes pour caractériser la qualité des électrodes supraconductrices d'une jonction Josephson. Premièrement, il faut mesurer la rugosité de la surface des différentes électrodes et en particulier, celle de la rampe. Cette dernière influencera la qualité de toute la jonction : si elle est trop élevée, cela peut même empêcher l'effet Josephson ou créer des canaux directs à travers la barrière étant donné que cette dernière est assez mince. La deuxième propriété importante est la température de transition, mesurée par la résistance de l'électrode. Dans cette sous-section, nous présenterons des résultats qui permettent de caractériser ces deux propriétés.

La Figure 5.1 montre l'évolution de la rugosité pendant le procédé, évaluée avec le microscope à force atomique (AFM) sur les différentes régions d'un même échantillon. À gauche, on montre la rugosité de la surface du STO A qui se trouve sur le dessus de la première électrode. Au milieu, on retrouve la rugosité de la surface du substrat après la gravure par faisceau d'ions. Finalement, à droite, on présente celle de la surface de la seconde électrode une fois qu'elle est déposée sur la partie gravée de l'échantillon. À titre de comparaison, la rugosité typique d'une mono-couche de PCCO est environ de 5 nm. On remarque premièrement que la rugosité est très importante sur le dessus du

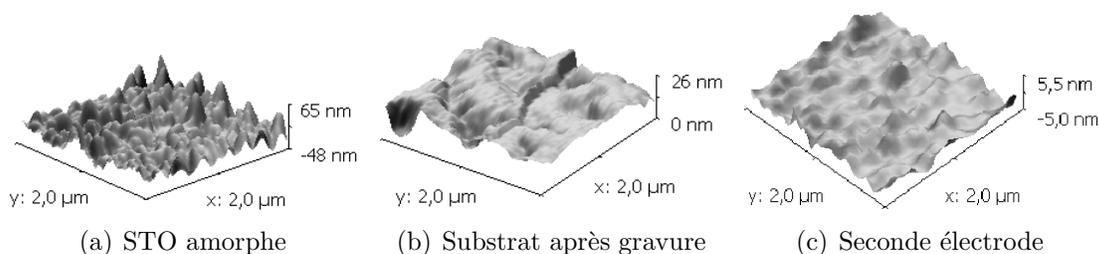


FIGURE 5.1 – Images AFM a) du STO A qui recouvre la première électrode, b) du substrat et c) de la seconde électrode avant le dépôt de la seconde électrode.

STO A, soit plusieurs dizaines de nanomètres. La rugosité du substrat après la gravure est, quant à elle, assez importante comparée à celle du substrat obtenu du fournisseur (Crystec GbmH) avant le premier dépôt. Cette rugosité vient du fait que la gravure par faisceau d'ions aura tendance à conserver la rugosité de la surface initiale (avec le STO A) en enlevant des couches de matériau. Comme la couche de départ (le STO A) est assez rugueuse, il est tout à fait normal que la surface après la gravure le soit aussi. Bien sûr, les bosses les plus hautes sont aplanies pendant la gravure, car elles sont plus facilement attaquées par les ions qui frappent la surface, ce qui explique pourquoi la rugosité du substrat après la gravure est beaucoup moins importante que celle du STO A. Malgré le fait que le substrat sur lequel la seconde électrode est déposée soit assez rugueux, la rugosité de cette électrode est du même ordre de grandeur que celle d'une mono-couche, soit une dizaine de nanomètres (dans un sens, on semble donc combler les trous pendant le dépôt de la seconde électrode).

Concentrons-nous maintenant sur les propriétés supraconductrices des électrodes. La donnée qui nous intéresse réellement est la température critique. Nous avons vu au chapitre précédent que la température critique maximale pour $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ est environ 23 K. Cependant, cette température critique est très sensible au contenu en oxygène présent dans les couches. Ainsi, la température critique des électrodes de nos jonctions Josephson est inférieure à cette valeur à cause des différentes étapes de croissance et de fabrication. Pour la première électrode, c'est le processus de fabrication qui vient influencer cette valeur : l'échantillon est gravé et bien qu'une attention toute particulière soit portée pour que l'échantillon ne surchauffe pas, il est tout à fait probable qu'il chauffe tout de même assez pour influencer la température critique. Aussi, les conditions de recuit qui ont été utilisées pour cette électrode sont celles que nous avons utilisées pour une couche mince de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ de même épaisseur, mais non recouverte d'une couche de STO A. La température critique de la couche au moment où elle sort de l'ablation laser est fort probablement inférieure à 23 K, car le recuit n'est pas aussi efficace lorsque la couche isolante est en place. Il faut aussi mentionner que la montée en température sous oxygène avant le dépôt de la barrière et de la deuxième électrode supraconductrice, pour éviter la décomposition de la rampe, pourrait aussi contribuer à changer le T_c de la première électrode supraconductrice. Pour la deuxième électrode, le facteur qui influence réellement est la rugosité du substrat une fois la gravure terminée. La qualité cristalline globale de cette électrode a été confirmée par rayons-X. Par contre, la rugosité du substrat avant le dépôt viendra certainement influencer les propriétés de la

couche, comme sa température critique. La Figure 5.2 présente les données de résistance en fonction de la température pour chacune des électrodes supraconductrices, ainsi que la résistance d'une jonction Josephson, mesurée sur une même jonction Josephson. Ces

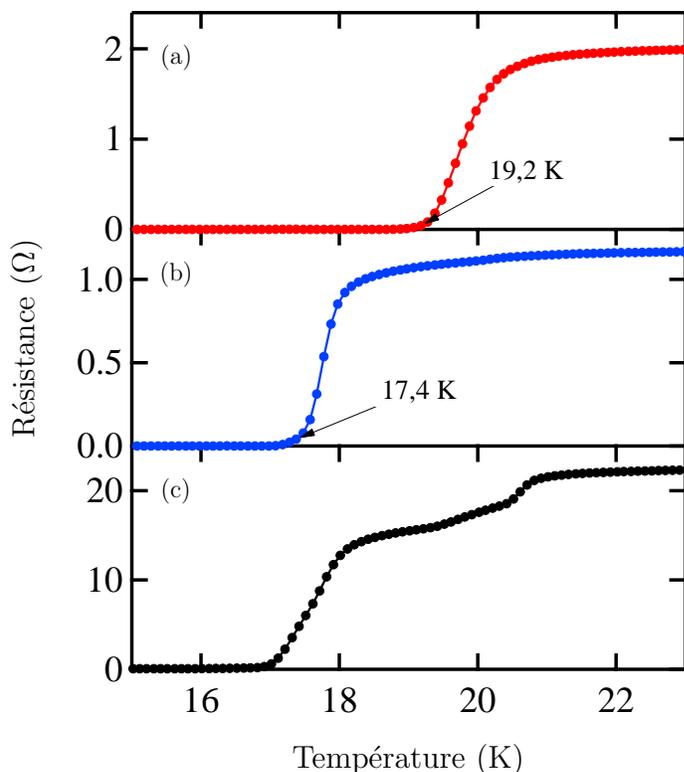


FIGURE 5.2 – (a) Résistance en fonction de la température de la première électrode. (b) Résistance en fonction de la température de la deuxième électrode. (c) Résistance en fonction de la température de la jonction Josephson et d'une partie de chaque électrode, montrant les transitions supraconductrices des deux électrodes.

données nous apprennent que la température critique de la première électrode est 19,2 K alors que la deuxième possède un T_c de 17,4 K. Les propriétés de la jonction Josephson sont présentées dans la troisième partie du graphique. On note que, d'un échantillon à l'autre, ces deux températures doivent être assez constantes pour permettre de comparer quantitativement les résultats, la température la plus faible étant celle qui aura le plus d'influence. Cependant, cela ne semblait pas du tout être un obstacle à la réalisation du projet étant donné que des échantillons fabriqués à un an d'intervalle possédait pratiquement les mêmes températures critiques.

5.1.2 Propriétés de la rampe

Dans le chapitre sur la méthode expérimentale, nous avons mentionné que l'angle de la rampe devait être environ de 30 à 35° par rapport à la surface du substrat pour qu'il soit possible d'obtenir des jonctions Josephson. Cet angle a été caractérisé avec l'AFM, sur un échantillon fraîchement gravé (qui ne possède ainsi qu'une seule électrode, recouverte de STO-A). La Figure 5.3 montre un exemple de données obtenues. On voit aisément que

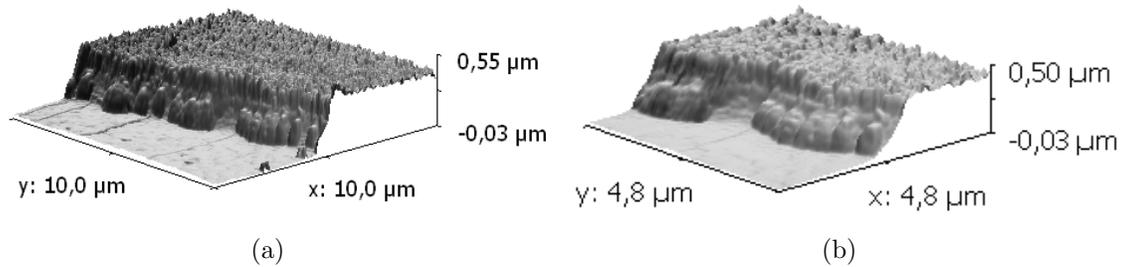


FIGURE 5.3 – Images AFM de la rampe, juste après qu'elle ait été gravée. Les données présentées en (b) sont un agrandissement d'une portion de celles présentées en (a).

la rampe n'est pas en ligne droite mais présente une sorte d'ondulation, dont l'amplitude est de quelques centaines de nanomètres et la période environ $2 \mu\text{m}$. Ces oscillations peuvent sembler problématiques, mais la largeur de la jonction est typiquement $100 \mu\text{m}$, soit plusieurs dizaines de fois plus large que chacune de ces oscillations, l'effet sera donc moyenné. Les détails des oscillation du courant critique en fonction du champ magnétique seront tout de même influencés par cette rugosité étant donné qu'elle changera localement la densité de courant critique. Aussi, l'amplitude des oscillations dans la microstructure de la rampe est beaucoup plus faible que la période : elles sont donc assez douces pour ne pas empêcher la reconstruction à l'interface¹. Pour évaluer l'impact réel de ces défauts sur la dynamique de la jonction, il convient tout de même de comparer leur largeur avec la longueur de pénétration de Josephson. Pour les jonctions Josephson étudiées pour ce projet, λ_J est typiquement compris entre 5 et $20 \mu\text{m}$, ce qui est plus grand que la taille caractéristique de ces défauts. Le vortex Josephson d'un diamètre de $2\lambda_J$ qui entrera dans la jonction n'aura ainsi pas tendance à rester piégé dans un recoin de l'ondulation de la rampe. Par contre, pour certaines jonctions, λ_J est un peu plus faible et devient de la taille des gros défauts de la rampe. Dans ce cas, les vortex qui entrent dans la jonction pourraient rester piégés sur un défaut. Ainsi, il devrait en résulter que le courant critique

¹Il faut se méfier des échelles de la Fig. 5.3 : il y a un facteur dix entre les échelles horizontale et verticale.

en fonction du champ magnétique sera irréversible. Cependant, dans toutes les jonctions étudiées pour cette thèse cet effet n'est pas ou à peu près pas observable.

On voit aussi une sorte de ligne qui semble couper l'épaisseur du matériau en deux. Sous cette ligne, le matériau est du $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$, au dessus, du STO A. Étant donné que le taux de gravure de ces deux matériaux n'est pas le même, il est tout à fait normal que l'angle de la rampe ne soit pas tout à fait le même pour le STO A et le PCCO. Finalement, on voit que la couche qui se trouve en bas, le PCCO, grave dans une forme de dôme, de quelques centaines de nanomètres de large. Cette forme correspond à la forme des grains du matériau : lorsqu'on grave, les atomes ne sont pas arrachés de manière uniforme.

En analysant les données de la Fig. 5.3, il est possible d'obtenir l'angle de la rampe à différents endroits. La Figure 5.4 montre quatre exemples de tranches, ainsi que les profils associés. L'angle de la rampe varie passablement sur une largeur de $10 \mu\text{m}$, avec

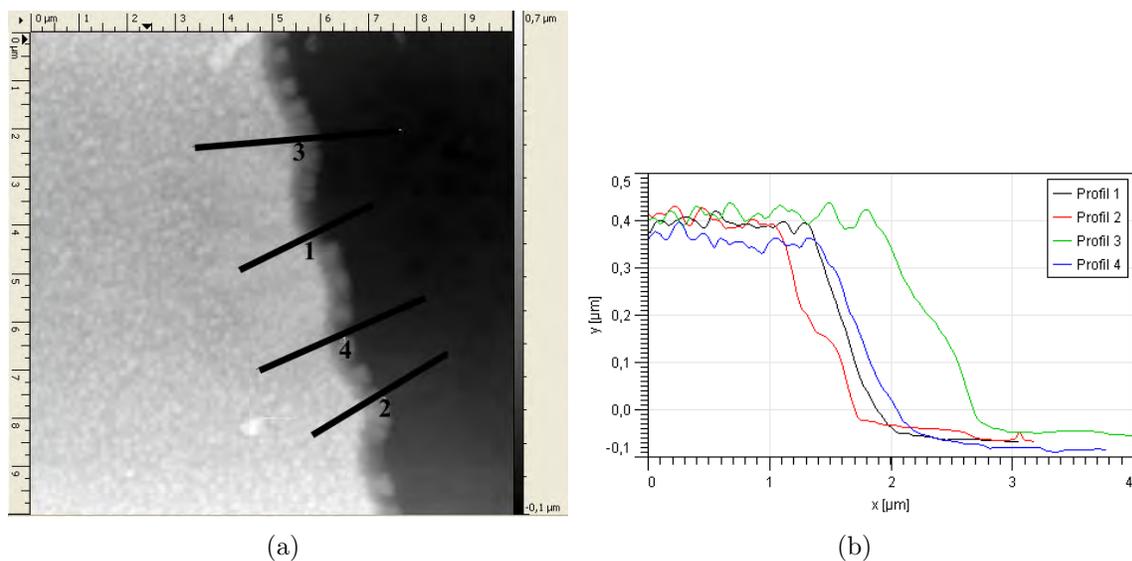


FIGURE 5.4 – (a) Image AFM de la rampe montrant les différentes tranches analysées. (b) Profils correspondants aux tranches montrées en (a). L'analyse des profils permet de déterminer que les angles de la rampe pour le $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ sont 25° , 35° , 29° et 21° , pour les tranches 1, 2, 3 et 4, respectivement.

des valeurs comprises entre 20° et 35° . Étant donné que la jonction aura une largeur d'environ $100 \mu\text{m}$, l'angle effectif sera une moyenne pondérée de tous ces angles, ce qui entraîne une erreur importante sur l'épaisseur de la barrière (voir prochaine sous-section) et qui cause une variabilité d'un échantillon à l'autre. Par conséquent deux jonctions

qui devraient être identiques ne le sont peut être pas car leurs angles effectifs diffèrent. Ce qui complique les choses est aussi que cet angle est excessivement sensible à l'angle d'incidence du faisceau d'ions utilisé pour la gravure. Si cet angle se rapproche un peu trop de la normale (on parle ici de quelques degrés à peine), l'angle de la rampe peut devenir 45-50° et il sera impossible d'avoir une reconstruction d'assez bonne qualité lors du dépôt de la barrière pour permettre le couplage Josephson².

5.1.3 Propriétés de la barrière

Lorsque nous avons présenté la technique de dépôt par ablation laser, nous avons mentionné que de manière générale, l'épaisseur d'une couche était déduite à partir du taux de dépôt, lui même calibré avec une série d'échantillons tests. Cette calibration doit être effectuée pour chacun des dopages car le taux de dépôt obtenu peut varier grandement selon la valeur de x et même d'une cible à une autre pour la même valeur de x . Par exemple, le taux de dépôt pour la cible avec $x = 0,15$ utilisée pour ce projet est de 1,6 Å/s, alors que pour celle avec $x = 0,05$ il est de 1,1 Å/s. Par contre, une fois calibré, le taux de dépôt est assez stable : en utilisant la même cible, deux couches déposées à intervalle de 1 an sont de même épaisseur. Le taux de dépôt détermine l'épaisseur verticale de la barrière (t). Cependant, dans les calculs relatifs à l'effet de proximité, c'est l'épaisseur horizontale (d) de la barrière dont nous avons besoin puisque nous supposons que le couplage Josephson dans cette géométrie s'effectue uniquement suivant les plans de CuO₂. Cette approximation est justifiée par le fait que la résistivité dans les plans de CuO₂ est beaucoup plus faible (plusieurs ordres de grandeur) que la résistivité hors plan. Ainsi, le courant circule horizontalement et on a :

$$d = \frac{t}{\tan \theta} \quad (5.1)$$

où θ est l'angle entre la rampe et le substrat. Cette fonction diverge à $\theta = 0$ et diminue assez rapidement lorsque l'angle augmente. Autour de 30°, elle est plus ou moins constante : le facteur multiplicatif change de 2,25 lorsque $\theta = 25^\circ$ à 1,25 lorsque $\theta = 35^\circ$. Cela renforce l'idée qu'il est important de bien contrôler l'angle de la rampe si l'on souhaite diminuer l'éparpillement des points car une petite modification de l'angle peut entraîner une modification importante de l'épaisseur de la barrière et, par extension, peut affecter la densité

²Nous avons en fait observé ce comportement sur quelques tentatives de jonctions après avoir constaté des problèmes d'alignement du porte échantillon dans la chambre de gravure par faisceau d'ions.

de courant critique qui dépend exponentiellement de l'épaisseur.

Nous avons aussi caractérisé les propriétés électriques des différents matériaux qui ont été utilisés comme barrière en faisant une mono-couche du matériau en question. Pour $x = 0,05$ et $x = 0,11$, la résistivité présentait un minimum en fonction de la température et augmentait rapidement à basse température (voir chapitre 4, Fig. 4.1). La Figure 5.5 montre les données de résistivité pour $x = 0$ et $x = 0,22$. Pour $x = 0$ (Fig. 5.5(a)), le Pr_2CuO_4 est isolant avec une résistivité qui augmente rapidement sur toute la gamme de température. Pour $x = 0,22$ (Fig. 5.5(b)), le comportement est métallique et ne présente pas de supraconductivité. La qualité cristalline de toutes les couches a aussi été confirmée avec des mesures de diffraction des rayons-X. Avant d'aller plus loin, rappelons l'import-

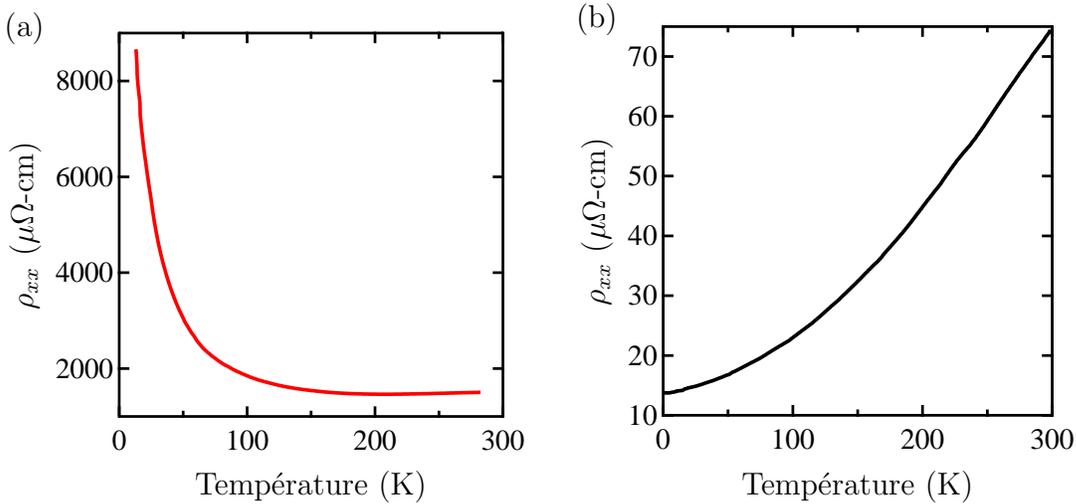


FIGURE 5.5 – Résistivité en fonction de la température pour (a) Pr_2CuO_4 et (b) $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$

tance du travail d'optimisation des propriétés cristallines des couches minces de PCCO, qui a permis d'obtenir des couches minces exemptes de la phase parasite [30]. Sans ce travail préliminaire, il aurait été pratiquement impossible de fabriquer des jonctions Josephson : la présence des intercalations aurait certainement modifié la morphologie de la rampe et empêché le courant de circuler sur l'épaisseur totale des électrodes supraconductrices et de la barrière. La présence de cette phase parasite dans l'ancienne génération de couches minces est fort probablement une des raisons pour laquelle il n'y a pas beaucoup de résultats sur des jonctions Josephson fabriquées avec des cuprates dopés aux électrons dans la littérature.

5.2 Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$

Maintenant que nous avons présenté les caractéristiques des différents constituants des jonctions Josephson que nous avons fabriqués pour le projet, nous allons présenter les résultats obtenus pour les différentes barrières utilisées. Il convient de commencer par la barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ car c'est avec ces jonctions que l'analyse a été la plus exhaustive. Rappelons d'abord quelques propriétés générales de la barrière. Les mesures d'ARPES présentées au chapitre 1 [38] montrent clairement la présence d'une densité d'états au niveau de Fermi, ce qui indique qu'elle est métallique. De plus, les résultats du chapitre précédent indiquent que la zone antiferromagnétique (AF) prend fin à $x \sim 0,125$. Ainsi, la barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ est un métal AF.

5.2.1 Courbes IV en champ magnétique

La première donnée qui nous intéresse, pour caractériser des jonctions Josephson, est l'évolution des courbes IV , donc du courant critique, en fonction du champ magnétique. La Figure 5.6 montre deux exemples de courbes IV , prises à différents champs magnétiques, pour deux épaisseurs de barrière et des largeurs de jonction différentes. On reconnaît aisément la forme de la courbe pour une jonction Josephson, présentée à la Fig. 2.2 du chapitre 2 : la différence de potentiel qui est nulle pour $I < I_c$ et le régime linéaire à forts courants. On remarque également la présence de vagues dans la courbe, en particulier pour la partie (a) de la Figure. Ces ondulations sont probablement causées par la présence de vortex piégés dans la jonction. Cet effet est probablement accentué car les balayages en courant et en champ magnétique ne sont pas symétriques par rapport à zéro : par exemple, on balaie uniquement les courants positifs³.

Si on fait un lissage de la partie linéaire et que l'on extrapole pour de plus faibles courants, on voit que la courbe ne croisera pas l'origine comme on s'attendrait dans un vrai régime ohmique ($V = R_n I$), mais viendra croiser l'axe des abscisses à une valeur finie et positive de courant. Cette valeur de courant est appelée courant en excès et on la rencontre dans pratiquement toutes les mesures sur des jonctions à base de cuprates [99, 118, 174, 175]. L'origine de ce courant en excès est encore sujet à débat. L'une des explications possible est la présence de réflexions d'Andreev à chacune des interfaces S-N, mais qui se couplent à travers la barrière de manière cohérente. Dans ce modèle, le

³Nous avons fait quelques balayages symétriques en champ et en courant et les caractéristiques IV étaient elles aussi symétriques.

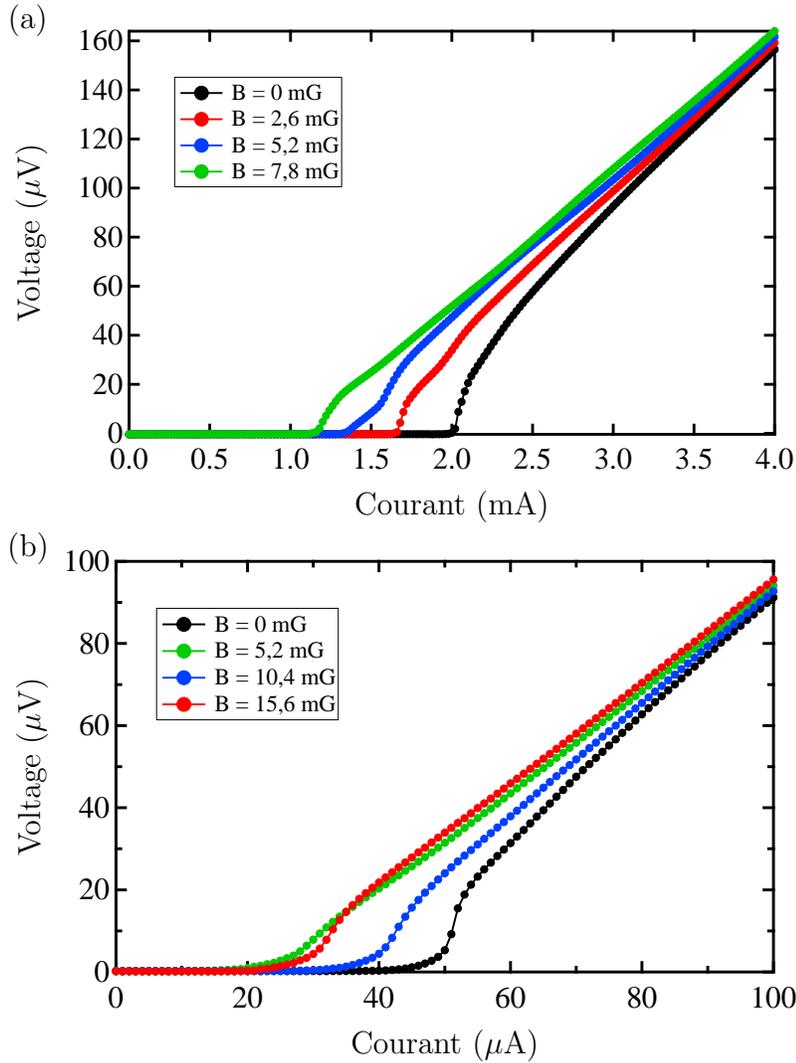


FIGURE 5.6 – Courbes IV à différents champs magnétiques pour des jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ mesurées à $4,2 \text{ K}$. (a) Pour une jonction de $130 \mu\text{m}$ de large qui possède une barrière de 15 nm . b) Pour une jonction de $125 \mu\text{m}$ de large qui possède une barrière de 35 nm .

courant en excès est typiquement égal à deux ou trois fois le courant critique et il diminue lorsque la résistance normale, la température ou l'épaisseur de la barrière augmente [174]. Nos données sont en accord avec ces prédictions, ce qui semble confirmer que les réflexions d'Andreev sont bien à l'origine du courant en excès.

Pour les deux exemples présentés, le produit $I_c R_n$ donne $100 \mu\text{V}$ et $65 \mu\text{V}$, pour les barrières de 15 nm et 35 nm , respectivement. Ces valeurs sont assez éloignées de la valeur

théorique maximale (le gap supraconducteur), ~ 5 mV. Cependant, vu la complexité de la croissance et de la fabrication de ces matériaux, il est tout à fait normal que cette valeur soit plus faible que la valeur attendue. Ce produit atteint même 0,2 mV pour les meilleures jonctions étudiées dans ce projet. Si on normalise cette valeur par la valeur de la température critique des électrodes (comme nous l'avons fait au chapitre 2), on obtient 0,012 mV/K, une valeur semblable à celles présentées pour les jonctions en rampe à base de cuprates dopés aux trous (voir dernière colonne du tableau 2.4). Quant à elle, la densité de courant critique varie entre 1 kA/cm² et 10 kA/cm² pour des épaisseurs de barrières entre 6 et 15 nm. Une fois normalisée, la valeur maximale donne 590 A/Kcm². Cette valeur ressemble encore une fois aux valeurs répertoriées dans le tableau 2.4. La plupart des jonctions qui sont présentées dans ce tableau possèdent tout de même une densité de courant normalisée environ 2-3 fois plus élevée, ce qui s'explique d'une part par le fait que les techniques de fabrication sur $YBa_2Cu_3CuO_{7-\delta}$ sont mieux contrôlées, ce qui permet d'atteindre de meilleures qualités de jonctions. D'autre part, le rapport $2\Delta/k_B T_c$ est en général plus grand pour les cuprates dopés aux trous (entre 6 et 9) que pour les cuprates dopés aux électrons (typiquement 4). De ce fait, pour un gap supraconducteur égal, notre valeur de comparaison, $I_c R_n / T_c$, est plus faible pour les dopés aux électrons.

Toujours sur le même graphique à la Fig. 5.6, on remarque qu'une petite valeur du champ magnétique entraîne une modification substantielle du courant critique. Le courant critique en fonction du champ magnétique ($I_c(B)$) est obtenu en déterminant le courant critique sur chacune des courbes IV à des champs magnétiques différents. Un exemple de résultat est présenté à la Figure 5.7. Tel qu'attendu, la valeur du courant critique est modifiée par le champ magnétique. Nous avons vu en début de chapitre que la barrière n'était pas parfaitement droite, mais possédait des oscillations sur une période plus étroite que la largeur typique d'une de nos jonctions. Cela provoque sans doute une densité de courant non-uniforme, qui résulte en une fonction enveloppe complexe et qui peut éventuellement varier d'un échantillon à l'autre (voir Fig. 2.6). Le fait que les oscillations ne soient pas complètes peut s'expliquer simplement car les jonctions sont dans le régime large (section 2.3.2). En effet, en utilisant l'équation 2.13, on obtient $\lambda_J = 2,4 \mu\text{m}$ et $15 \mu\text{m}$. Ainsi, pour la jonction dont les données sont présentées à la Fig. 5.7, le rapport de la largeur sur λ_J de l'ordre de 50 : la jonction est clairement dans le régime large à 4,2 K. C'est également le cas de toutes les jonctions mesurées dans ce projet. Nous reviendrons sur ce point dans une sous-section subséquente. On note finalement que la valeur de courant qui nous sera utile dans les différentes analyses qui suivront est la valeur

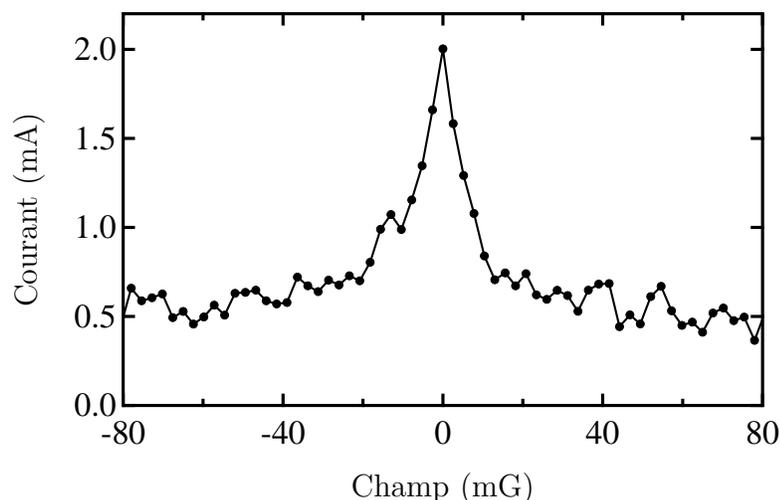


FIGURE 5.7 – Courant critique à 4,2 K en fonction du champ magnétique pour une jonction de $130\ \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 15 nm d'épaisseur.

maximale en fonction du champ magnétique. Dans ce qui suit, lorsque nous parlons du courant critique, entre autres lorsqu'on étudiera sa dépendance en température ou en épaisseur il s'agira de la valeur maximale du courant critique, à moins d'avis contraire.

5.2.2 Courbes IV en champ électromagnétique

Il est très important d'observer la présence des marches de Shapiro lorsque les jonctions sont soumises à un rayonnement électromagnétique. La présence de ces marches est généralement acceptée comme la preuve de la présence de l'effet Josephson. Nous avons été en mesure de confirmer la présence des marches de Shapiro dans plusieurs de nos jonctions. La Figure 5.8 montre un exemple de courbes IV sans et avec présence de champ électromagnétique à trois fréquences différentes. On voit clairement la présence des marches, à tous les $21\ \mu\text{V}$, $31\ \mu\text{V}$ et $42\ \mu\text{V}$ pour les fréquences 10 GHz, 15 GHz et 20 GHz respectivement. Ces valeurs sont pratiquement identiques aux valeurs attendues (équation 2.18), soit $20,5\ \mu\text{V}$, $31\ \mu\text{V}$ et $41\ \mu\text{V}$. Ces résultats permettent de conclure que l'on a bien des jonctions Josephson où la phase de chacune des électrodes supraconductrices est très bien définie de part et d'autre de la jonction.

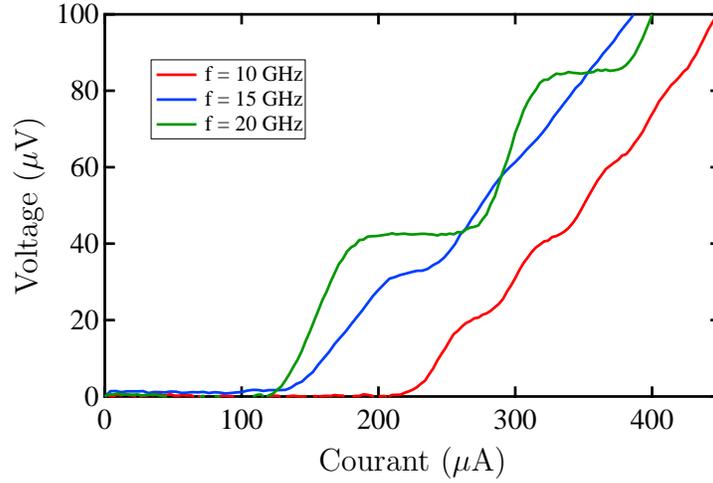


FIGURE 5.8 – Courbes IV d'une jonction de $55 \mu\text{m}$ de large qui possède une barrière de $Pr_{1,95}Ce_{0,05}CuO_{4-\delta}$ de 15 nm d'épaisseur. Les trois courbes ont été obtenues avec une puissance de 14 dbm pour des fréquences de 10 GHz , 15 GHz et 20 GHz .

5.2.3 Effet de la température

Comme mentionné au chapitre 2, la dépendance en température du courant critique donne des informations importantes sur le type de jonctions, S-I-N-S ou S-N-S (section 2.5). La Figure 5.9 montre l'évolution en température du courant critique normalisé pour deux échantillons qui possèdent une barrière de 15 nm mais sur deux substrats différents, LSAT et STO. On remarque tout de suite que, quel que soit le substrat, la forme de la courbe est la même. Les deux séries peuvent également être lissées avec la fonction :

$$\frac{I}{I_c} = 1,42 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2 \quad (5.2)$$

pour $T/T_c \in [0,4; 1]$. Ce comportement parabolique est attendu pour une jonction avec une barrière métallique dans la limite $d > \xi_n$, ce qui nous permet de conclure que l'on a bien une jonction de type S-N-S.

Examinons maintenant comment évolue la forme de la fonction $I_c(B)$ lorsque la température augmente. On a vu dans le chapitre 2 que, pour des jonctions larges, lorsque la température augmente, l'espacement entre les minima consécutifs diminue, le pic central du patron de diffraction devient plus symétrique et le minimum des oscillations est plus près de zéro. La Figure 5.10 montre des courbes $I_c(B)$ pour deux jonctions différentes, à

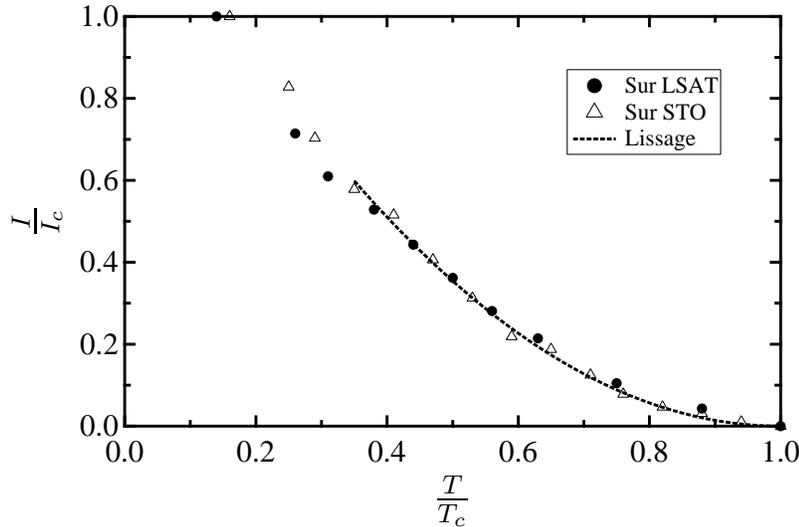


FIGURE 5.9 – Dépendance en température du courant critique pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. La température est normalisée par rapport à la température de transition. Le courant critique, quant à lui, est normalisé par rapport à sa valeur à basse température. La fonction utilisée pour le lissage est une fonction quadratique. L'échantillon sur STO fait $130 \mu\text{m}$ de large, alors que la largeur de celui sur LSAT est $145 \mu\text{m}$. Les deux jonctions possèdent une barrière de 15 nm d'épaisseur.

deux températures différentes. Sur le premier graphique, on voit aisément que la largeur du pic diminue en augmentant la température. Aussi, le pic est légèrement plus symétrique à 10 K qu'à $4,2 \text{ K}$: la cime du pic dévie légèrement vers la gauche pour $4,2 \text{ K}$ alors qu'elle est parfaitement alignée pour 10 K . Sur le second graphique on voit également que la largeur des pics diminue lorsque la température augmente. De plus, les oscillations sont plus complètes : le minimum de courant critique est vraiment plus faible lorsque la température augmente. Il n'est pas surprenant que les oscillations dans $I_c(B)$ soient plus marquées pour la seconde jonction puisque cette dernière était plus près de la transition de jonction large vers étroite déjà à $4,2 \text{ K}$ avec, pour la jonction de la Fig. 5.10(b), un rapport de la largeur sur λ_J égal à 11 versus un rapport de 27 pour la jonction à la Fig. 5.10(a).

Revenons maintenant à la largeur des oscillations de la fonction $I_c(B)$. Normalement, cette largeur devrait être donnée par l'équation 2.15 pour $\Phi = \Phi_0$. Dans notre étude, les jonctions font typiquement $100 \mu\text{m}$ de largeur et 150 nm d'épaisseur. Ainsi les oscillations de $I_c(B)$ devraient avoir une largeur en champ d'environ $B = 516 \text{ mG}$. Les valeurs obtenues expérimentalement varient grandement d'un échantillon à l'autre (la Fig. 5.10

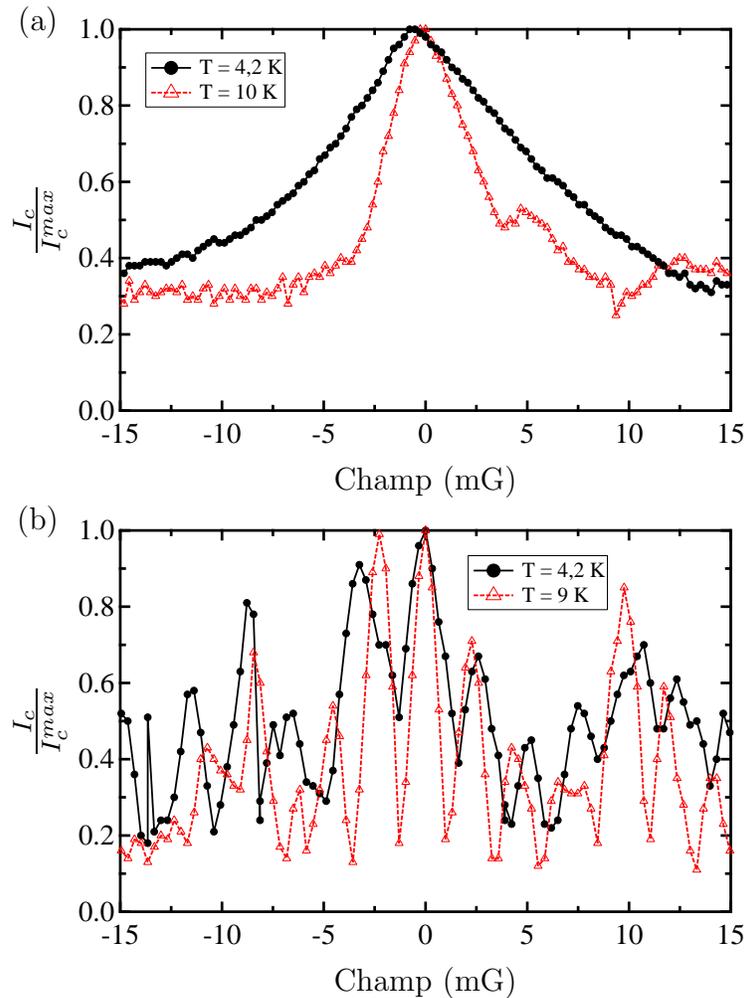


FIGURE 5.10 – (a) Courant critique en fonction du champ magnétique d’une jonction de $77 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 11 nm d’épaisseur, à $4,2 \text{ K}$ et 9 K . (b) Courant critique en fonction du champ magnétique pour une jonction de $120 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 26 nm d’épaisseur, à $4,2 \text{ K}$ et 9 K .

à elle seule l’illustre assez bien). On constate tout de même que les valeurs typiques sont comprises entre quelques milligauss à une dizaine de milligauss et qu’il existe ainsi un désaccord entre les valeurs attendues et mesurées. Ce désaccord vient en fait de la géométrie de la jonction : le champ magnétique est perpendiculaire au plan de la couche, qui est très mince. Ainsi, le champ magnétique « ressenti » pour le supraconducteur est multiplié par un facteur qui peut être important, c’est le facteur de désaimantation dont nous avons déjà parlé à la section 3.2.3. Rosenthal *et al.* [176] ont montré expérimenten-

talement que pour des jonctions de grains rectangulaires, le facteur de desaimantation est $A \sim w/l$ où w et l sont la largeur de la jonction et l'épaisseur de ses électrodes respectivement. Pour une jonction de $100 \mu\text{m}$ en largeur et d'une épaisseur de 150 nm , on obtient ainsi un facteur de 800. En divisant la valeur théorique obtenue précédemment par ce facteur, on obtient ainsi une largeur théorique des oscillations de l'ordre de $0,7 \text{ mG}$. Bien que cette valeur soit plus proche des valeurs expérimentales, elles ne concordent pas parfaitement. Cela peut s'expliquer d'une part par la largeur réelle de la jonction qui est probablement différente de la largeur que l'on mesure après avoir défini le pont là où la rampe se trouve. D'autre part, nous avons utilisé une formule obtenue sur des jonctions dont la géométrie est passablement différente de la nôtre. En particulier dans le cas d'une jonction en rampe, si le champ est appliqué perpendiculairement au plan de la couche, la barrière se présentera à angle et il n'est pas du tout évident de prédire comment le champ magnétique va y pénétrer. Les résultats observés sont quand même assez proches des valeurs attendues, compte tenu des incertitudes expérimentales et théoriques.

5.2.4 Effet de proximité

Dans les dernières sous-sections, nous nous sommes attardés à caractériser les jonctions Josephson, avec une barrière d'épaisseur quelconque. Dans cette sous-section, nous étudierons le couplage Josephson en fonction de l'épaisseur de la barrière. Comme nous l'avons vu à la section 2.5, le courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière est donné par

$$I_c \approx \frac{\pi}{2eR_n} \frac{|\Delta_i(T)|^2}{kT_c} \frac{d}{\xi_n(T)} e^{-d/\xi_n(T)}. \quad (5.3)$$

Nous avons donc mesuré la force du couplage Josephson, soit le produit $I_c R_n$, en fonction de l'épaisseur de la barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. Nous avons mesuré des dizaines d'échantillons, avec des épaisseurs de barrières comprises entre 6 nm et 35 nm . Pour chaque jonction, nous avons mesuré la fonction $I_c(B)$ et avons évalué la valeur maximale du courant critique. Ensuite, pour extraire la valeur de ξ_n de nos données expérimentales, nous récrivons l'équation précédente et sous la forme :

$$\ln \left(\frac{I_c R_n}{d} \right) = \ln \left(\frac{\pi}{2e} \frac{|\Delta_i|^2}{k_B T_c} \frac{1}{\xi_n} \right) - \frac{1}{\xi_n} d, \quad (5.4)$$

Le premier terme du côté droit de l'équation est une constante indépendante de l'épaisseur de la barrière d . Ainsi, en traçant $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière⁴, on devrait obtenir le graphique d'une droite de pente négative et dont l'inverse de la valeur absolue de la pente donne ξ_n . En effet, les données suivent une droite de pente négative, tel que présenté à Figure 5.11. La dispersion des données autour de la meilleure droite,

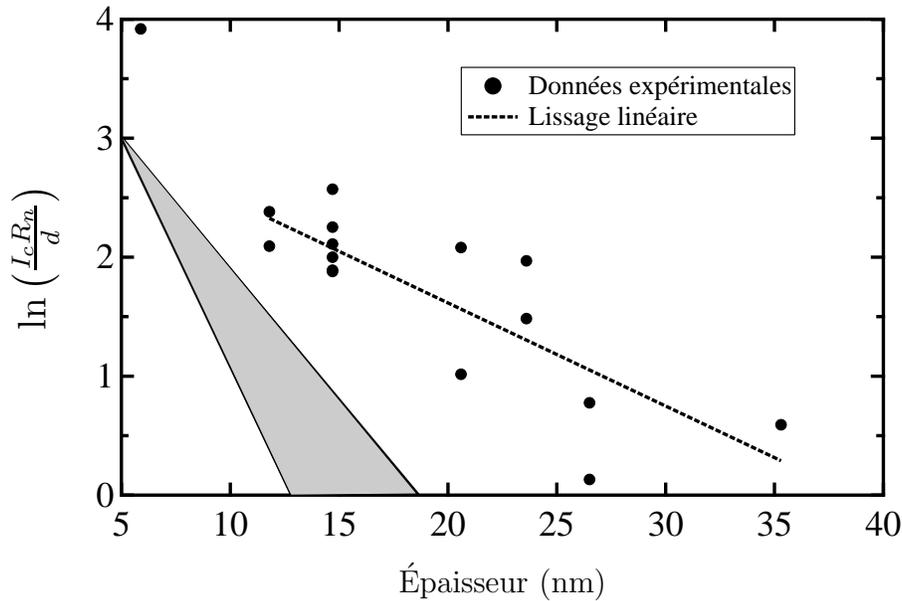


FIGURE 5.11 – $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour l'ensemble des jonctions Josephson dont la barrière est composée de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. Les données ont toutes été prises à 4,2 K. La région en gris correspond à l'intervalle de pentes prédites par la théorie conventionnelle (voir texte).

similaire à ce qui est observé avec les jonctions à base de cuprates dopés aux trous (Fig. 2.11 et Fig. 2.12 du chapitre 2), peut être causée par plusieurs facteurs. Nous avons déjà mentionné que l'angle de la rampe n'est pas constant en fonction de la position, ce qui peut changer l'épaisseur effective de la barrière d'une jonction à l'autre, malgré que le temps de dépôt du matériau constituant la barrière soit le même partout sur la rampe. Aussi, dans l'équation 5.4 la constante indépendante de l'épaisseur détermine le positionnement vertical de la droite et dépend directement de la valeur du gap des électrodes à l'interface avec la barrière. Cette valeur est probablement variable d'une

⁴Pour obtenir ces valeurs d'ordonnée, nous avons pris le courant en mA, la résistance en mΩ et l'épaisseur de la barrière en nm. La valeur absolue de la valeur en ordonnée n'a pas d'importance et nous aurions pu la normaliser d'une autre manière et obtenir la même pente.

jonction à l'autre et dépend grandement de la rugosité de la rampe ainsi que de la qualité de la reconstruction à l'interface. Comme nous l'avons mentionné précédemment (section 3.3.3 page 75) il est important que cette dernière soit de bonne qualité pour que le courant puisse pénétrer dans la jonction. Malheureusement, beaucoup de facteurs difficiles à contrôler entrent en jeu pour déterminer à quel point la reconstruction est réussie, comme le degré de chauffage pendant la gravure, le degré d'humidité pendant le transport de la chambre de gravure à la chambre d'ablation, le temps laissé à l'air libre, etc.

Malgré la dispersion des données, il est tout de même possible d'obtenir la valeur de la meilleure pente, qui permet d'extraire une valeur de $\xi_n = 12 \pm 3$ nm. Le point en haut à gauche du graphique n'a pas été considéré pour le lissage car il correspond à une épaisseur de barrière inférieure à ξ_n . L'erreur sur cette valeur prend en compte l'erreur sur chacun des points (qui vient en gros de l'erreur sur l'angle) ainsi que la dispersion des points autour de la meilleure droite. Cette valeur est légèrement plus grande quoique du même ordre de grandeur que les valeurs de la littérature pour l'effet de proximité, telles que présentées dans le tableau 2.6 du chapitre 2 (p. 59). Les résultats obtenus ici sont à comparer en particulier avec les résultats obtenus pour des jonctions Josephson dont la barrière est un cuprate non supraconducteur, comme c'est le cas des jonctions YBCO - PBCO - YBCO [134] et des jonctions YBCO - (NCCO non supraconducteur) - YBCO [139]. Les densités de courant critique maximales pour ces deux configurations, $J_c \sim 10^5$ A/cm², sont du même ordre de grandeur que celles obtenues ici. Les valeurs de $\xi_n \sim 5$ nm obtenues pour ces deux exemples sont également assez similaires à celle mesurée dans le cadre de ce projet.

Au chapitre 2, nous avons déjà calculé la valeur théorique de ξ_n (voir p. 44). Cependant, la valeur que nous avons obtenue, $\xi_n = 2,1$ nm, a été calculée avec la valeur de la résistivité de l'ancienne génération de couches minces, dans laquelle on retrouve une phase parasite isolante (voir section 3.1.2), comme présenté dans le tableau 2.1. Dans le chapitre 4, nous avons montré que les valeurs absolues de la résistivité sont diminuées d'un facteur qui varie entre deux et trois lorsque les couches minces ne présentent pas cette phase parasite. Ainsi, en utilisant la nouvelle valeur de la résistivité, trouvée à l'aide du graphique 4.1, on obtient $\xi_n = 4,2$ nm. Cette valeur est bien sûr approximative : la vitesse de Fermi utilisée correspond à la vitesse moyenne donnée pour Pr_{1,85}Ce_{0,15}CuO_{4- δ} [117], le lien entre k_F et l_n est fait en supposant des surfaces de Fermi parfaitement cylindriques d'électrons centrées en $(\pi, 0)$ et les points de l'espace réciproque correspondants. L'éva-

luation du vecteur de Fermi avec les données d'ARPES [38] est aussi approximative et même incertaine si le matériau n'est pas un liquide de Fermi. En jouant un peu avec les paramètres on voit que $\xi_n^{theorique} \in [2,6; 4,5]$ nm. Le triangle gris de la Fig. 5.11 représente cet intervalle de valeur de $\xi_n^{theorique}$. Il est aisé de voir que les données expérimentales ne tombent pas du tout dans cette zone, mais suivent plutôt une droite dont la pente est beaucoup plus douce. Ainsi, il est possible de conclure que la valeur expérimentale pour ξ_n est définitivement plus grande que la valeur attendue et ce, malgré que la barrière soit antiferromagnétique aux températures où on observe un couplage Josephson.

Ces résultats sont très différents de ceux obtenus par le groupe de Bozovic [15], qui semblaient indiquer que l'antiferromagnétisme empêche le couplage Josephson tel que mentionné en fin de chapitre 2 (p.58). Cette différence vient très certainement du fait que dans notre cas, il y a du poids spectral (des quasiparticules) au niveau de Fermi (tel que confirmé par ARPES [38]), alors que la barrière utilisée par le groupe de Bozovic est isolante.

Avec cette seule valeur de ξ_n , il n'est pas possible de confirmer que la présence de l'AF de la barrière est bien ce qui amplifie le couplage Josephson, tel qu'observé précédemment [16, 17]. Pour confirmer l'impact de l'AF il faudrait comparer cette valeur à la valeur obtenue pour une barrière $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ non AF. Par contre, nous ne pouvons affirmer que cet effet est « géant », étant donné que notre valeur expérimentale n'est même pas un ordre de grandeur plus élevée que la valeur théorique. Nous sommes définitivement très loin des conclusions obtenues par Bozovic *et al.* sur les structures de type S-N-S, avec une barrière dans le régime de pseudo-gap [1].

On note que la valeur du courant critique utilisée pour évaluer la valeur de ξ_n est la valeur mesurée directement à partir des courbes IV , qui comprend également la valeur du courant en excès, dont nous avons parlé précédemment. Si nous refaisons l'analyse qui permet de déterminer ξ_n , mais en soustrayant la valeur du courant en excès, on obtient $\xi_n \sim 18$ nm. Bien que cette valeur soit légèrement plus élevée que la valeur obtenue sans soustraire le courant en excès, elle est du même ordre de grandeur. Conséquemment, les conclusions ne sont pas affectées par cet effet.

5.3 Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$

Nous allons maintenant présenter des mesures sur des jonctions possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. Sans refaire toute l'analyse que nous avons faite pour les jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$, nous allons tout de même présenter les résultats importants. Dans les deux sections suivantes, nous referons le même exercice, mais avec des barrières possédant deux autres dopages. Rappelons encore une fois les propriétés générales de la barrière. Comme pour $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$, les mesures d'ARPES [38] montrent la présence de poids spectral au niveau de Fermi, indiquant un caractère métallique pour $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ avec une résistance plus faible que pour $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. Finalement, l'analyse présentée au chapitre précédent nous dit que ce dopage se trouve dans la zone AF, mais très près du dôme supraconducteur.

5.3.1 Courbes IV en champ magnétique

Comme auparavant, nous avons suivi l'évolution des courbes IV , donc du courant critique, en fonction du champ magnétique. Cette étape nous a permis d'obtenir les différentes valeurs de courant critique en fonction de l'épaisseur de la barrière et de la température, nécessaires pour la suite de l'analyse. La Figure 5.12 montre un exemple de courbes IV , prises à différents champs magnétiques pour une jonction de $45 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de 19 nm d'épaisseur. Comme auparavant, on reconnaît aisément la forme de la courbe pour une jonction Josephson : la différence de potentiel qui est nulle pour $I < I_c$ et on voit le régime linéaire à hauts courants. Pour l'exemple présenté, le produit $I_c R_n$ donne $195 \mu\text{V}$. Pour l'ensemble des jonctions dont la barrière est faite de ce matériau, cette valeur se situe entre $20 \mu\text{V}$ et $200 \mu\text{V}$, des valeurs comparables à celles obtenues pour une barrière de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. La courbe $I_c(B)$ de la même jonction est présentée à la Figure 5.13. Tel qu'attendu, la valeur du courant critique oscille avec le champ magnétique. Encore une fois, le fait que les oscillations ne soient pas complètes peut être facilement expliqué par la faible longueur de pénétration Josephson et la largeur de la jonction : $\lambda_J = 1,95 \mu\text{m}$ et donc le rapport de la largeur sur λ_J est de l'ordre de 41. Ainsi, la jonction est bel et bien dans le régime large à $4,2 \text{ K}$.

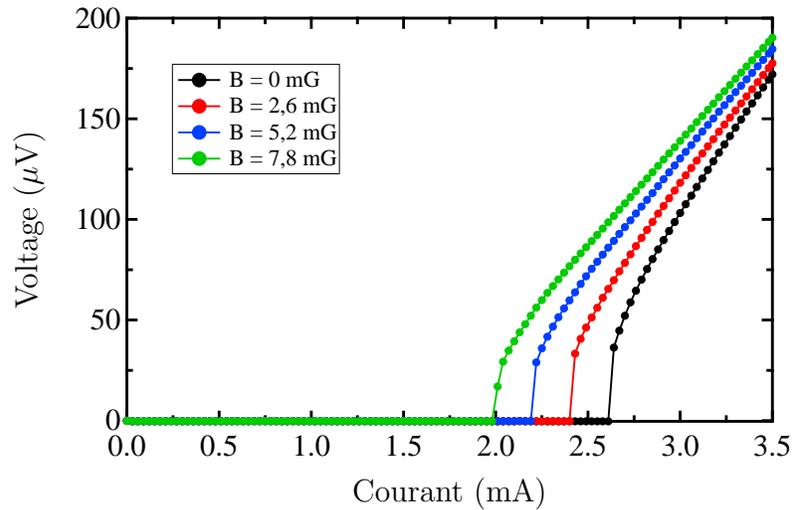


FIGURE 5.12 – Courbes IV à 4,2 K pour différents champs magnétiques pour une jonction de $45 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 19 nm d'épaisseur.

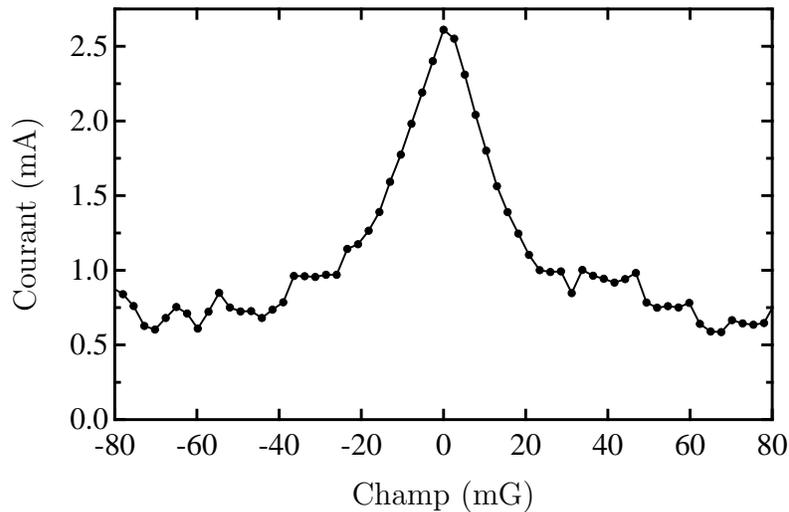


FIGURE 5.13 – Courant critique à 4,2 K en fonction du champ magnétique pour une jonction de $45 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 19 nm d'épaisseur.

5.3.2 Effet de la température

La Figure 5.14 présente la dépendance en température du courant critique pour la même jonction Josephson. Comme lorsque la barrière est $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$, on obtient une dépendance quadratique du courant critique. Les données expérimentales sont lissées

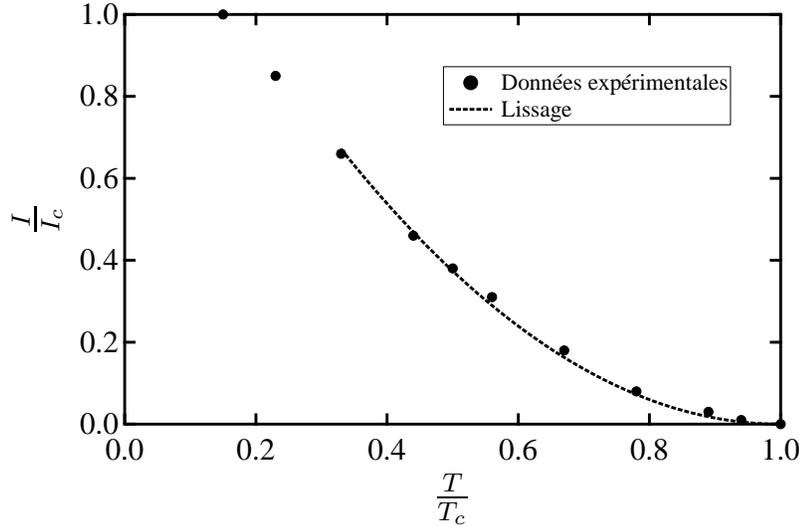


FIGURE 5.14 – Dépendance en température du courant critique pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. La température est normalisée par rapport à la température de transition. Le courant critique, quant à lui, est normalisé par rapport à sa valeur à basse température. Le fonction utilisée pour le lissage est une fonction quadratique. La jonction fait $45 \mu\text{m}$ de largeur et possède une barrière de 19 nm d'épaisseur.

avec pratiquement la même fonction :

$$\frac{I}{I_c} = 1,92 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2. \quad (5.5)$$

Ce comportement correspond bien à ce qui est attendu pour une jonction avec une barrière métallique dans la limite $d > \xi_n$.

5.3.3 Effet de proximité

La Figure 5.15 montre que les données de $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière suivent encore une fois une droite de pente négative. À titre de comparaison, nous avons aussi mis les données pour les jonctions où la barrière est composée de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. On voit que les données sont du même ordre de grandeur et que la pente n'est pas tellement différente. D'ailleurs, la valeur obtenue pour la longueur de cohérence, $\xi_n = 10 \pm 2 \text{ nm}$, n'est pas significativement différente. La valeur théorique est obtenue en faisant les mêmes suppositions qu'auparavant : la vitesse de Fermi utilisée correspond à la vitesse minimale donnée pour $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ [117], le lien entre k_F et l_n

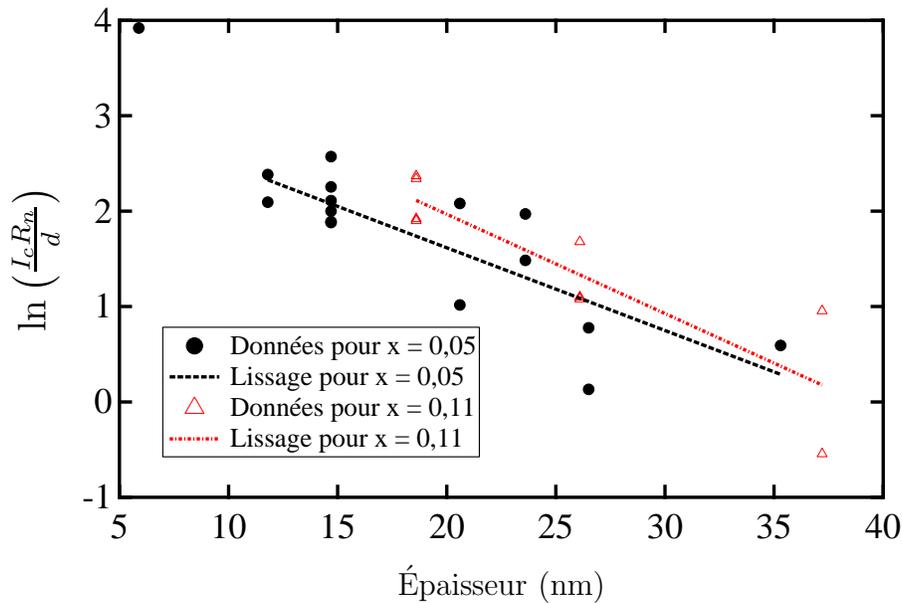


FIGURE 5.15 – $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour l'ensemble des jonctions Josephson dont la barrière est composée de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ (triangles rouges). Les données ont toutes été prises à 4,2 K et sont comparées aux données précédentes pour $x = 0,05$ (cercles noirs).

est fait en supposant des surfaces de Fermi parfaitement cylindriques d'électrons centrées en $(\pi, 0)$ et l'évaluation du vecteur de Fermi est obtenu avec les données d'ARPES [38]. On obtient donc $\xi_{np} = 112$ nm, $\xi_{ns} = 13,4$ nm, donc $\xi_n = 13,3$ nm, qui correspond pratiquement à la valeur obtenue expérimentalement. Ainsi, on peut conclure que la valeur expérimentale pour ξ_n est presque égale à la valeur attendue et ce, malgré que la barrière soit encore antiferromagnétique. Pour la barrière de $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$, l'antiferromagnétisme est moins robuste pour $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. De plus, le $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ est un meilleur métal que $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$. Ceci explique probablement pourquoi la valeur de ξ_n obtenue expérimentalement pour $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ est plus proche de la valeur théorique.

5.4 Jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$

Le $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ est un métal paramagnétique. Les mesures d'ARPES présentées au chapitre 1 pour $\text{Pr}_{1,80}\text{Ce}_{0,20}\text{CuO}_{4-\delta}$ montrent une surface de Fermi (de type trou) non tronquée. Dans le diagramme de phase, $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ se trouve, comme

$\text{Pr}_{1,80}\text{Ce}_{0,20}\text{CuO}_{4-\delta}$, clairement en dehors de la zone AF et bien au delà du point critique quantique du pseudo-gap. Sa surface de Fermi sera donc très similaire que celle obtenue expérimentalement pour $\text{Pr}_{1,80}\text{Ce}_{0,20}\text{CuO}_{4-\delta}$. De toutes les barrières étudiées, c'est celle qui s'approche le plus d'un métal « normal » et on s'attend ainsi à ce que les résultats obtenus dans cette section soient ceux qui correspondent le mieux aux prédictions théoriques.

5.4.1 Courbes IV en champ magnétique

La Figure 5.16 montre des exemples de courbes IV , prises à différents champs magnétiques pour une jonction de $80\ \mu\text{m}$ de large qui possède une barrière de $15\ \text{nm}$ d'épaisseur. La forme de la courbe est pratiquement identique aux courbes présentées pour les deux

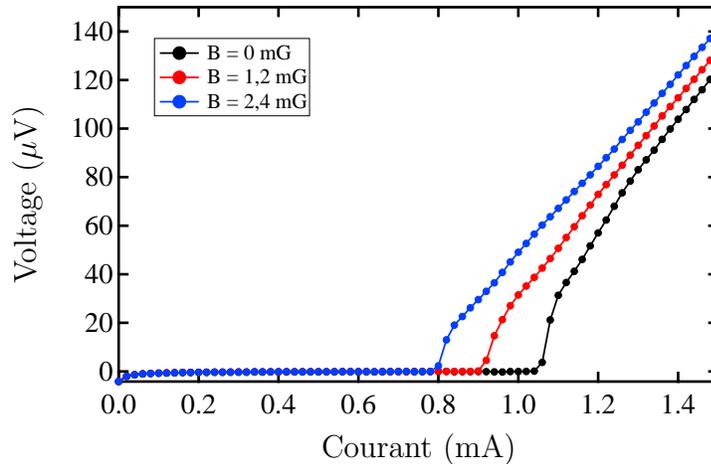


FIGURE 5.16 – Courbes IV à $4,2\ \text{K}$ pour différents champs magnétiques pour une jonction de $80\ \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ de $15\ \text{nm}$ d'épaisseur.

autres types de barrière : pour $I < I_c$, la différence de potentiel est nulle alors que, pour de hauts courants, le régime est linéaire. Pour la jonction montrée, le produit $I_c R_n$ donne $155\ \mu\text{V}$. Pour l'ensemble des jonctions qui possèdent une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$, la valeur de ce produit se situe entre $30\ \mu\text{V}$ et $345\ \mu\text{V}$, ce qui correspond *grosso modo* aux valeurs obtenues pour les autres barrières. La courbe $I_c(B)$ de cette jonction est présentée à la Figure 5.17. Tel qu'attendu, la valeur du courant critique oscille avec le champ magnétique. Encore une fois, les oscillations incomplètes nous indiquent que la jonction est dans le régime large, ce qui est confirmé en calculant la longueur de péné-

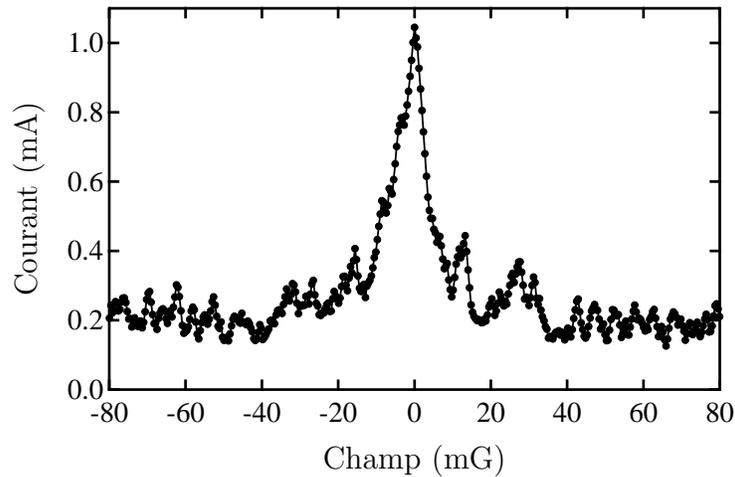


FIGURE 5.17 – Courant critique à 4,2 K en fonction du champ magnétique pour une jonction de $80 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ de 15 nm d'épaisseur.

tration Josephson : $\lambda_J = 2,75 \mu\text{m}$ et donc le rapport de la largeur sur λ_J est de l'ordre de 30.

5.4.2 Effet de la température

La dépendance en température du courant critique de la même jonction est présentée à la Figure 5.18. Contrairement à ce que nous avons obtenu auparavant, le courant critique n'a pas une dépendance quadratique en fonction de la température : il n'est pas possible d'obtenir un lissage satisfaisant avant une équation du type :

$$\frac{I}{I_c} = A \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2 \quad (5.6)$$

où A est une constante. Pour obtenir un bon résultat, il faut plutôt utiliser la fonction

$$\frac{I}{I_c} = 0,66 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) + 0,66 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2. \quad (5.7)$$

Cette fonction représente le comportement d'une jonction de type S-I-N-S et non S-N-S, comme mentionné précédemment à la section 2.5 (p. 41). Ce résultat est très surprenant compte tenu du fait que le matériau $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ est *a priori* un métal normal, beaucoup plus « normal » en fait que $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ ou $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. En effet,

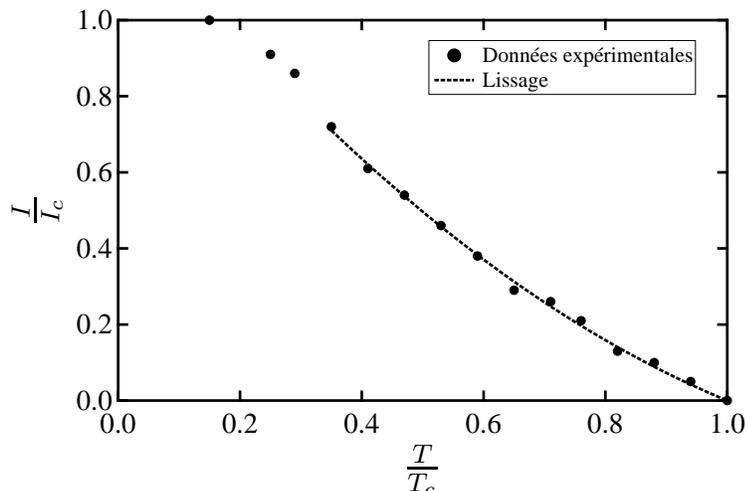


FIGURE 5.18 – Dépendance en température du courant critique pour une jonction possédant une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$. La température est normalisée par rapport à la température de transition. Le courant critique, quant à lui, est normalisé par rapport à sa valeur à basse température. Le fonction utilisée pour le lissage est une fonction polynomiale de degré 2. La jonction fait $80 \mu\text{m}$ de large et possède une barrière de 15 nm d'épais.

dans le chapitre 4, nous avons montré avec le transport que ce dopage se trouve très loin des points critiques quantiques à $x = 0,125$ et $x = 0,165$ et donc très loin des phases magnétiques pouvant perturber le comportement de la jonction. Conséquemment, il est assez difficile de croire que ce résultat soit intrinsèque. Ce résultat est probablement une signature d'un problème avec l'une des étapes de fabrication. La reconstruction entre la première électrode et la barrière ne s'est pas bien faite et que cela a entraîné un caractère isolant à cette interface. Une autre explication possible de ce résultat est que $x = 0,22$ se trouve très près de la limite de solubilité du cérium dans la matrice de Pr_2CuO_4 , qui se situe à $x = 0,23$ pour les couches minces [24]. Ainsi, la croissance de ce matériau est plus difficile, ce qui explique qu'il ait fallu ajuster de manière importante les conditions de croissance pour arriver à faire croître ce matériau, tel que nous l'avons mentionné à la section 3.3.3 du chapitre sur la méthode expérimentale. Pour en avoir le cœur net, il faudrait refaire un nouvel échantillon et reprendre des mesures.

5.4.3 Effet de proximité

La Figure 5.19 montre les données de $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour les quelques jonctions Josephson que nous avons fabriquées avec une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$. Malgré le peu de données, on voit tout de même que la tendance est la bonne ; la valeur de $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ diminue lorsque l'épaisseur augmente. Pour pouvoir compa-

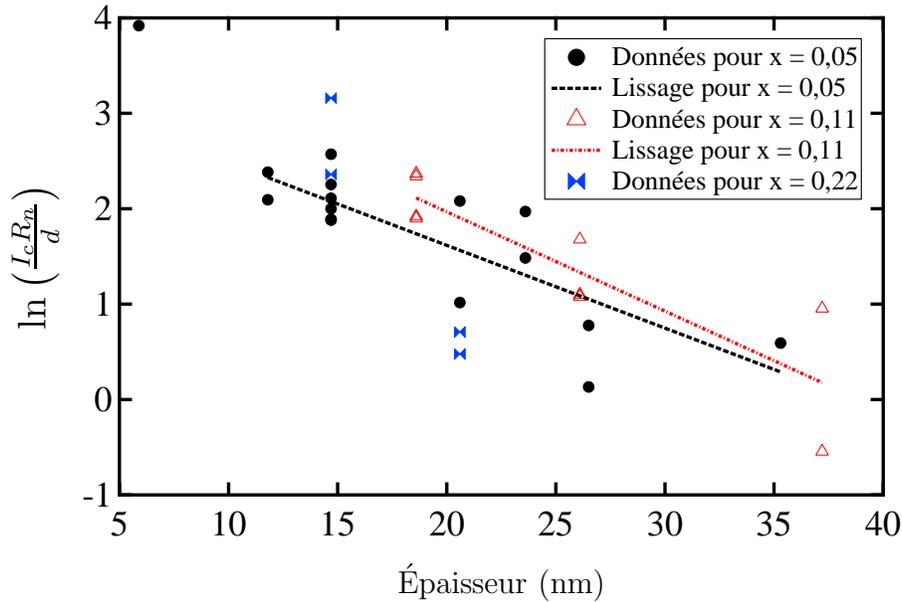


FIGURE 5.19 – $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour l'ensemble des jonctions Josephson dont la barrière est composée de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$ (doubles-triangles bleus). Les données pour $x = 0,05$ (cercles noirs) et $x = 0,11$ (triangles rouges) sont aussi présentées à titre de comparaison. Les données ont toutes été prises à 4,2 K.

rer les valeurs absolues plus aisément, nous avons également représenté les données pour les jonctions où la barrière est composée de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ et $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. On voit que les données sont du même ordre de grandeur. Malheureusement, il n'est pas possible d'obtenir de valeur fiable pour ξ_n , étant donné le peu de données disponibles. La valeur théorique, quant à elle, peut être obtenue en utilisant la vitesse de Fermi moyenne pour $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ [117] et en supposant des surfaces de Fermi parfaitement cylindriques de trous centrées en (π, π) , ce qui permet de relier k_F et l_n et le vecteur d'onde de Fermi obtenu avec les données d'ARPES [38]. On obtient ainsi $\xi_{np} = 112$ nm, $\xi_{ns} = 34,5$ nm, donc $\xi_n = 33$ nm. Bien qu'il ne soit pas possible de comparer cet estimé à une valeur expérimentale, le message à retenir ici est qu'il est possible d'avoir du couplage

Josephson lorsque la barrière est du $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$.

5.5 Jonctions avec une barrière de Pr_2CuO_4

Le Pr_2CuO_4 est un isolant de Mott AF. En effet, les données de résistivité présentées en début de chapitre sont venues montrer le caractère isolant. De plus, dans le diagramme de phases, c'est pour ce dopage que l'antiferromagnétisme est le plus robuste. Comme Pr_2CuO_4 est isolant, on ne s'attendait pas à mesurer un effet de proximité dans les jonctions Josephson avec cette barrière. Dans les prochaines sous-sections, nous verrons non seulement que c'est possible, mais que la force du couplage, n'est pas très différente que celle obtenue pour les autres barrières étudiées (pour des épaisseurs de barrière comparables).

5.5.1 Courbes IV en champ magnétique

Des exemples de courbes IV pour différents champs magnétiques appliqués sont présentés à la Figure 5.20. Comme auparavant, les courbes IV ont la forme attendue, avec

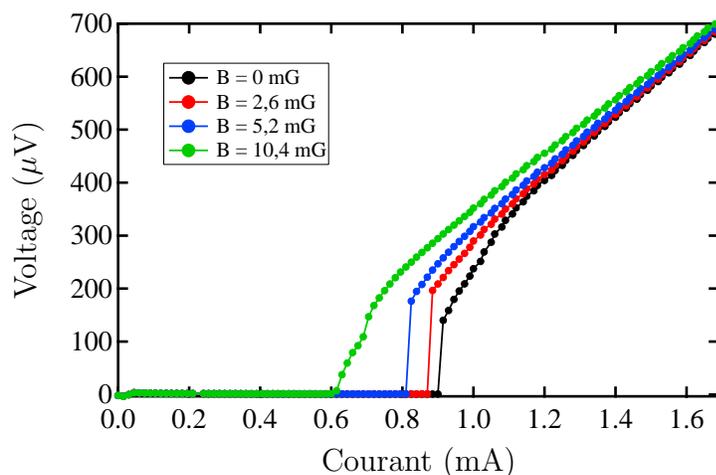


FIGURE 5.20 – Courbes IV à 4,2 K pour différents champ magnétiques pour une jonction de $50 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de Pr_2CuO_4 de 21 nm d'épaisseur.

un régime linéaire à hauts courants et une différence de potentiel nulle lorsque le courant appliqué est inférieur au courant critique. Aussi, les ondulations sont encore une fois causé par des vortex piégés. Le produit $I_c R_n$ de la jonction dont les données sont présentées

est $415 \mu\text{V}$ et pour l'ensemble des jonctions qui possèdent une barrière de Pr_2CuO_4 , la valeur de ce produit varie de $215 \mu\text{V}$ et $525 \mu\text{V}$, ce qui est légèrement plus élevé que les valeurs obtenues pour les autres types de barrière, mais tout de même du même ordre de grandeur. En prenant le courant critique en fonction du champ magnétique, on obtient la Figure 5.21. Comme pour toutes les autres courbes de $I_c(B)$ présentées précédemment, la

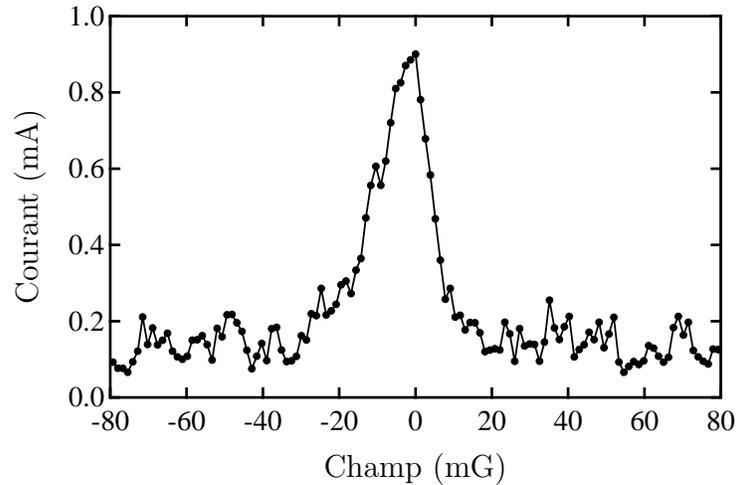


FIGURE 5.21 – Courant critique à 4,2 K en fonction du champ magnétique pour une jonction de $50 \mu\text{m}$ de largeur qui possède une barrière de Pr_2CuO_4 de 21 nm d'épaisseur.

valeur du courant critique oscille avec le champ magnétique, tel qu'attendu. La longueur de pénétration Josephson est égale à $2,3 \mu\text{m}$, ce qui correspond à un rapport de la largeur sur λ_J de l'ordre de 22 et explique le fait que les oscillations ne soient pas complètes.

5.5.2 Effet de la température

La Figure 5.22 montre la dépendance en température pour deux jonctions qui possèdent une barrière de Pr_2CuO_4 de deux épaisseurs différentes. De manière assez semblable à ce que nous avons vu pour la barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$, on remarque que le courant critique n'a pas une dépendance quadratique en fonction de la température. En fait, la fonction qui permet de représenter les données est légèrement différentes dans les deux cas, avec

$$\frac{I}{I_c} = 0,54 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) + \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2 \quad (5.8)$$

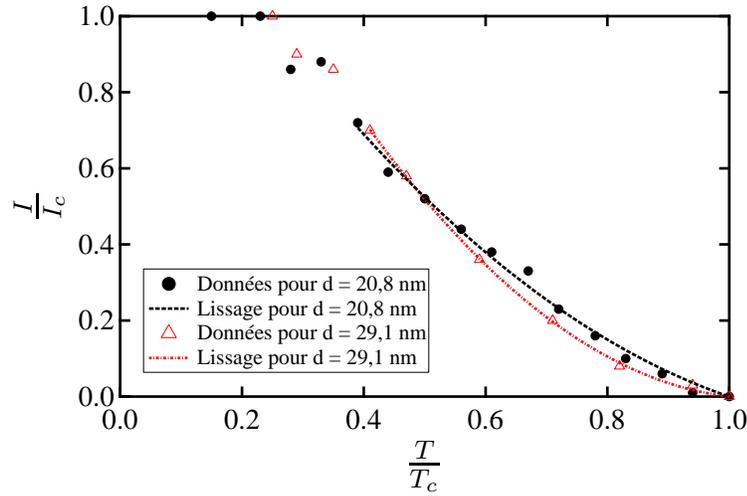


FIGURE 5.22 – Dépendance en température du courant critique pour deux jonctions possédant une barrière de Pr_2CuO_4 . La température est normalisée par rapport à la température de transition. Le courant critique, quant à lui, est normalisé par rapport à sa valeur à basse température. La fonction utilisée pour le lissage est une fonction polynomiale de degré 2. Les données en cercles noirs correspondent à une jonction de $135 \mu\text{m}$ de largeur et dont la barrière a une épaisseur de 21 nm , alors que celles en triangles rouges sont pour une jonction qui fait $45 \mu\text{m}$ de largeur et possède une barrière de 30 nm d'épaisseur.

pour la jonction dont les données sont en cercles noirs et

$$\frac{I}{I_c} = 0,19 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) + 1,7 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^2 \quad (5.9)$$

pour celle dont les données sont en triangles rouges. Comme dans le cas de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$, ces fonctions représentent le comportement d'une jonction de type S-I-N-S. En fait, compte tenu que la barrière, Pr_2CuO_4 , est isolante, on se serait plutôt attendu à ce que la dépendance en température près de T_c soit celle d'une jonction de type S-I-S, soit

$$\frac{I}{I_c} = A \left(1 - \frac{T}{T_c}\right) \quad (5.10)$$

où A est une constante. Cela peut peut-être s'expliquer par le fait que le Pr_2CuO_4 est bel et bien isolant lorsqu'il est assez épais (nos mesures préliminaires ont été faites sur des mono-couches d'environ 200 nm d'épais), mais pas lorsqu'il est très mince. Aussi, bien que les deux lissages semblent différents, il est difficile de conclure que c'est bien le cas

car la fonction utilisée pour lisser les données pour la jonction de 21 nm d'épais pourrait aussi bien faire l'affaire pour lisser les données pour l'autre jonction. Il y a tout de même deux choses importantes qu'on remarque sur ce graphique. Premièrement, les données possèdent la même concavité que toutes les autres présentées jusqu'à maintenant, c'est ce qui fait qu'elles peuvent être représentées par l'équation 5.9. Deuxièmement, le courant semble saturer à basse température, ce que nous n'avons jusqu'à maintenant pas du tout observé dans le cas des autres barrières. Ceci est une autre indication que l'on tend vers une jonctions de type S-I-N-S.

5.5.3 Effet de proximité

Les données de $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour les jonctions Josephson qui possèdent une barrière de Pr_2CuO_4 sont présentées à la Figure 5.23. Comme pour les jonctions avec une barrière de $\text{Pr}_{1,78}\text{Ce}_{0,22}\text{CuO}_{4-\delta}$, nous avons peu de données, mais il est tout de même possible de remarquer que la valeur de $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ diminue lorsque l'épaisseur augmente, tel qu'attendu. Comme précédemment, nous avons aussi mis les

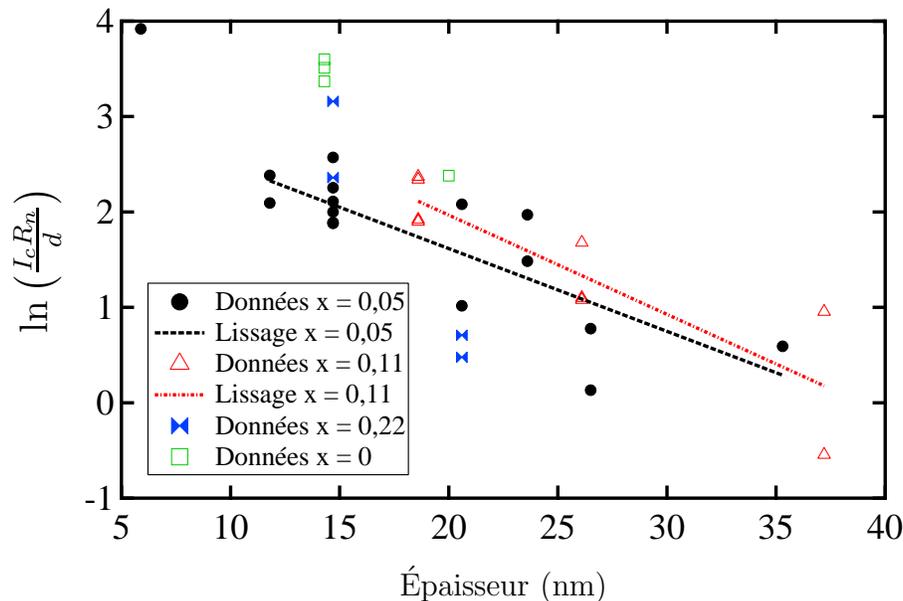


FIGURE 5.23 – $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ en fonction de l'épaisseur de la barrière pour l'ensemble des jonctions Josephson dont la barrière est composée de Pr_2CuO_4 (carrés verts). Les données pour $x = 0,05$ (cercles noirs), $x = 0,11$ (triangles rouges) et $x = 0,22$ (double triangles bleus) sont aussi présentées à titre de comparaison. Les données ont toutes été prises à 4,2 K.

valeurs obtenues pour toutes les jonctions dont nous avons déjà discutées. Dans le cas présent, il n'est pas possible d'obtenir une valeur théorique pour ξ_n puisque les formules utilisées précédemment ne sont valides que lorsque la barrière est métallique (possède une surface de Fermi), ce qui n'est évidemment pas le cas pour Pr_2CuO_4 . Finalement, malgré qu'il soit impossible de conclure quoi que ce soit quantitativement, on peut tout de même encore constater un couplage Josephson pour toutes les jonctions fabriquées avec une barrière de Pr_2CuO_4 et ce, malgré que la barrière soit *a priori* isolante et anti-ferromagnétique.

Ces résultats indiquent que le mécanisme qui entraîne l'effet de proximité n'a apparemment rien à voir avec le magnétisme. En fait, peut-être que cela n'a rien à voir avec la nature de la barrière mais bel et bien avec la nature des électrodes. Avec les résultats que nous avons amassés au chapitre précédent, il a été possible d'établir que le point critique quantique associé au régime de pseudo-gap se trouvait à $x = 0,165$. Ainsi, il est possible que les électrodes, qui sont faites de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ soient influencées par la présence de cette phase et favorisent l'effet de proximité. Pour répondre à cette question, il faudrait refaire des jonctions Josephson avec les mêmes barrières, mais en utilisant des électrodes dont le dopage est supérieur à $x = 0,165$.

5.6 Résumé

Dans ce chapitre, nous avons présenté des résultats sur des jonctions Josephson faites à base du cuprate dopé aux électrons $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Dans un premier temps, nous avons démontré que nous avons bel et bien fabriqué des jonctions Josephson avec des comportements physiques conformes aux attentes. Il a été possible de conclure que nous avons fabriqué des jonctions Josephson en montrant que le courant critique des jonctions est modifié par la présence d'un champ magnétique ou par la présence d'un champ électromagnétique (marches de Shapiro). Nous avons pu confirmer la qualité de nos jonctions Josephson étant donné que les valeurs de densité de courant critique et du produit $I_c R_n$ correspondent assez bien, une fois normalisés par la température de transition supraconductrice, aux valeurs de la littérature, ces dernières étant obtenues sur des matériaux pour lesquels la fabrication de dispositifs a atteint un degré de maturité bien supérieur aux cuprates dopés aux électrons.

Dans un second temps, nous avons caractérisé la dépendance en température de la

densité de courant critique et exploré l'effet de proximité pour quatre barrières différentes, soit $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ avec $x = 0,05$, $x = 0,11$, $x = 0,22$ et $x = 0$. Pour $x = 0,05$ et $x = 0,11$, la dépendance en température de la densité de courant critique nous a permis de confirmer la présence d'une barrière métallique. Pour $x = 0,22$, la dépendance en température correspond plus à celle d'une jonction S-I-N-S, comme c'est aussi le cas pour $x = 0$. Dans le cas $x = 0,22$, nous avons conclu qu'il devait s'agir d'un artéfact causé par un problème avec la barrière. Pour $x = 0$, ce résultat est également surprenant compte tenu du fait que la barrière est *a priori* isolante. Par contre, dans tous les cas, la concavité de la courbe est vers le haut, ce qui semble clairement indiquer la présence d'effet de proximité.

La présence de cet effet a été reconfirmée en suivant l'évolution de la fonction $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ par rapport à l'épaisseur de la barrière, d . Selon la théorie de de Gennes, le graphique de cette fonction devrait suivre une droite de pente négative pour des épaisseurs supérieures à ξ_n . L'inverse de la pente de ce graphique donne directement ξ_n . Pour $x = 0,05$ et $x = 0,11$, nous avons fabriqué assez de jonctions pour pouvoir obtenir $\xi_n^{0,05} = 12 \pm 3$ nm et $\xi_n^{0,11} = 10 \pm 2$ nm. Dans le cas de $x = 0,05$, cette valeur est certainement supérieure à la valeur théorique, $\xi_n^{theo.} \sim 4$ nm, alors que pour $x = 0,11$, elle correspond à la valeur attendue $\xi_n^{theo.} \sim 13,3$ nm. La différence entre les prévisions théoriques pour $x = 0,05$ et $x = 0,11$ réside essentiellement dans la valeur de la résistivité qui chute par presque un ordre de grandeur entre les deux dopages. Malheureusement, le nombre de points est insuffisant pour pouvoir quantifier l'effet de proximité pour les barrières de $x = 0,22$ et $x = 0$. Ainsi, il n'est pas possible d'évaluer l'impact réel de l'AF de la barrière sur la force du couplage Josephson.

Finalement, insistons sur le fait que nous avons détecté la présence de l'effet de proximité pour toutes les barrières utilisées. Ainsi, nos mesures permettent de conclure que le couplage Josephson est possible, quelle que soit la nature de la barrière : antiferromagnétique métallique, antiferromagnétique isolante ou encore paramagnétique métallique. Ces résultats indiquent que le mécanisme qui entraîne l'effet de proximité n'a apparemment rien à voir avec le magnétisme et pourrait en fait venir des propriétés des électrodes supraconductrices. Finalement, soulignons que notre difficulté à expliquer l'effet de proximité au travers de cuprates illustre vraisemblablement que la compréhension théorique de ces systèmes est inadéquate d'une part pour expliquer la présence de supraconductivité dans ces composés. D'autre part les outils théoriques sont également insuffisants pour expliquer comment les paires de Cooper d'une électrode supraconductrice peuvent se propager sur

de si grande distances et ce, même pour des matériaux comme le Pr_2CuO_4 où de toute évidence la théorie conventionnelle de l'effet de proximité ne peut pas être valide.

Conclusion

Dans ce projet de thèse, nous nous sommes attaqués à l'étude du diagramme de phase des cuprates dopés aux électrons. Pour ce faire, nous avons d'une part effectué des mesures de résistivité et d'effet Hall sur des couches minces de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ à différentes concentrations de cérium en fonction de la température. D'autre part, nous avons étudié l'effet de proximité sur des jonctions Josephson fabriquées entièrement avec ce même matériau (électrodes et barrière). Ces deux facettes du projet permettent de sonder différemment les propriétés à travers le diagramme de phase et les informations recueillies sont complémentaires.

D'abord, les résultats de résistivité et d'effet Hall en fonction de la température et du dopage sont venus montrer la présence de deux points critiques quantiques dans le diagramme de phases de ce composé. Le premier, qui se trouve à $x = 0,165$, avait déjà été identifié par des mesures optiques et de transport. Sa présence est principalement détectée par une anomalie dans la résistivité et l'effet Hall à basse température. Aussi, la cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage présente une région en forme de V où la dérivée est fortement négative autour de ce point, ce qui renforce l'idée de la présence d'un point critique quantique à $x = 0,165$. Ce point critique quantique est attribué à la fin de la région pseudo-gap.

Des travaux pour améliorer la qualité des couches minces déposées par ablation laser nous ont permis de mettre à jour un deuxième point critique quantique à $x = 0,125$. L'anomalie présente dans la résistivité et l'effet Hall est, dans ce cas, beaucoup plus prononcée : la résistivité à basse température augmente brusquement ce qui, par conséquent, déplace l'emplacement du minimum de résistivité, qui atteint une température maximale pour $x = 0,125$. La démonstration la plus convaincante de la présence de ce point critique quantique est sans nul doute la cartographie de $d(R_H)/dT$ en fonction de la température et du dopage, qui montre une région où la dérivée de l'effet Hall est très importante au-

tour de la ligne de transition $T_N(x)$. Cette ligne de transition vient se terminer autour de $x = 0,125$, qui est donc l'emplacement du point critique quantique antiferromagnétique. Soulignons ici que la qualité des couches minces produites a été un facteur clé de l'étude. L'absence de défauts dans les échantillons nous a permis de conclure que la valeur absolue du coefficient de Hall correspond assez bien aux prévisions théoriques [37], contrairement à ce qui avait été mesuré précédemment [9].

Cependant, malgré cet accord apparent avec les prédictions de Lin et Millis [37], ces dernières prédisent la fin de la zone antiferromagnétique au même point critique quantique que celui de la région pseudo-gap (à $x = 0,165$) et non à $x = 0,125$. Nos résultats indiquent au contraire la présence de deux points critiques quantiques dans le diagramme de phases des dopés aux électrons une situation très similaire aux cuprates dopés aux trous. Le désaccord vient probablement du fait que le modèle théorique n'autorise que les situations où il y a un ordre à longue portée ou celle où il n'y en a pas. Nos résultats, comme ceux des neutrons inélastiques [13], semblent clairement indiquer la présence d'une zone où les fluctuations antiferromagnétiques sont assez intenses pour entraîner un repliement des bandes par rapport à la zone de Brillouin antiferromagnétique, mais sans toutefois être stable à longue portée. Aussi, en montrant que le point critique quantique antiferromagnétique se trouve dans le régime sous-dopé, nos résultats nous permettent essentiellement d'exclure la présence d'une région où il y aurait coexistence des phases supraconductrice et antiferromagnétique sur un grand intervalle de dopage. Ce travail sur les mesures de transport a conduit à la publication d'un article dans la revue *Physical Review B*, présenté à l'annexe 1. Cet ensemble de données est le seul de la littérature à montrer la signature des deux points critiques quantiques. En réconciliant les mesures de transport et de magnétisme (diffusion de neutrons et muons), nos données montrent que le diagramme de phase des dopés aux électrons est très similaire à celui des dopés aux trous, indiquant l'importance d'embrasser le problème de la supraconductivité dans son entier.

Ensuite, nous avons présenté une étude de l'effet de proximité en fonction du dopage de la barrière dans des jonctions Josephson faites à base du cuprate dopé aux électrons $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$. Une revue de la littérature nous permet d'affirmer qu'il n'existe aucune autre étude sur des jonctions Josephson en rampe où les électrodes et la barrière sont à base de dopés aux électrons. En utilisant $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ comme électrode, il a été possible d'obtenir des jonctions en utilisant des barrières de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ avec

$x = 0,05$, $x = 0,11$, $x = 0,22$ et $x = 0$. Nous avons utilisé notre connaissance des limites des différentes régions du diagramme de phase, tel que déterminées dans la première partie du travail, pour bien sélectionner ces dopages et ainsi couvrir toute la gamme de propriétés observées dans le diagramme de phase. Cette étude est la première qui utilise l'effet de proximité comme outil de caractérisation du diagramme de phase.

Nous avons premièrement démontré que nous avons bien fabriqué des jonctions Josephson en mesurant la modulation du courant critique en fonction du champ magnétique appliqué et la présence de marches de Shapiro lorsque la jonction est plongée dans un champ électromagnétique. De plus les jonctions fabriquées sont de bonne qualité, comme en témoignent les valeurs de densité de courant critique et du produit $I_c R_n$ qui, une fois normalisées par la température de transition supraconductrice, correspondent assez bien aux valeurs de la littérature pour les cuprates dopés aux trous, et ceci malgré que les procédés de fabrication soient beaucoup moins bien développés pour les cuprates dopés aux électrons. Deuxièmement, la dépendance en température du courant critique nous a permis de confirmer que nous avons bien fabriqué des jonctions de type S-N-S où la barrière métallique est soit $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ ou $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. Aussi, la dépendance en température des jonctions dont la barrière est Pr_2CuO_4 ou $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$ semble indiquer la présence d'effet de proximité dans une jonction de type S-I-N-S. Dans le cas du dopage nul, la présence de ce couplage est très difficilement explicable avec une théorie conventionnelle de l'effet de proximité.

L'effet de proximité dans ces jonctions a aussi été quantifié en suivant l'évolution de la fonction $\ln\left(\frac{I_c R_n}{d}\right)$ par rapport à l'épaisseur de la barrière, d , pour les barrières de $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ et $\text{Pr}_{1,89}\text{Ce}_{0,11}\text{CuO}_{4-\delta}$. Les valeurs de ξ_n obtenues sont $\xi_n^{0,05} = 12 \pm 3$ nm et $\xi_n^{0,11} = 10 \pm 2$ nm. Pour $x = 0,05$, cette valeur est définitivement supérieure à la valeur théorique, $\xi_n^{theo.} \sim 4$ nm, alors que pour $x = 0,11$, elle correspond assez bien à la valeur attendue $\xi_n^{theo.} \sim 13,3$ nm. Malheureusement, les données sont insuffisantes pour pouvoir quantifier l'effet de proximité pour les barrières de $x = 0,22$ et $x = 0$.

Ainsi, nous avons confirmé la présence de l'effet de proximité pour toutes les barrières utilisées : antiferromagnétique métallique, antiferromagnétique isolante, ou encore paramagnétique métallique. Ces résultats indiquent que le mécanisme qui entraîne l'effet de proximité n'a apparemment rien à voir avec le magnétisme, bien que ce dernier puisse en principe le favoriser ou au contraire le freiner. En fait, peut-être que cela n'a rien à voir avec la nature de la barrière mais bel et bien avec la nature des électrodes. Avec les résultats que nous avons amassés dans la première moitié du travail, il a été possible d'établir

que le point critique quantique associé au régime de pseudo-gap se trouve à $x = 0,165$. Ainsi, il est possible que les électrodes, qui sont faites de $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$ soient influencées par la présence de cette phase et favorisent l'effet de proximité. En continuation de ce travail, il faudrait étudier l'effet du dopage des électrodes supraconductrices. D'autres travaux effectués par notre groupe de recherche ont déjà démontré la présence d'effet Josephson pour des électrodes de $\text{Pr}_{1,87}\text{Ce}_{0,13}\text{CuO}_{4-\delta}$ et $\text{Pr}_{1,83}\text{Ce}_{0,17}\text{CuO}_{4-\delta}$ [177]. Pour mesurer l'impact réel de la présence du point critique à $x = 0,165$ il faudrait éventuellement refaire une analyse similaire à celle effectuée dans ce projet, mais pour des électrodes de $\text{Pr}_{1,80}\text{Ce}_{0,20}\text{CuO}_{4-\delta}$ par exemple. De plus, pour pouvoir conclure de manière définitive que l'effet de proximité rencontré est anormal ou non lorsque la barrière est $\text{Pr}_{1,95}\text{Ce}_{0,05}\text{CuO}_{4-\delta}$ alors que les électrodes sont $\text{Pr}_{1,85}\text{Ce}_{0,15}\text{CuO}_{4-\delta}$, il faudrait également suivre l'évolution en température de la longueur de corrélation ξ_n pour vérifier si oui ou non, elle se comporte de manière conventionnelle, soit $\xi_n \sim 1/\sqrt{T}$, une réponse que les données présentées dans ce projet ne peuvent apporter.

Les résultats de la première moitié du projet ont démontré qu'il est possible d'utiliser la résistivité et l'effet Hall pour étudier les différentes phases du diagramme de phases des cuprates dopés aux électrons, en particulier les frontières de phase. Malheureusement, les résultats de la deuxième moitié du projet n'ont pas pu apporter d'informations complémentaires, qui auraient permis de mieux comprendre le lien entre les différentes régions, en particulier entre la zone antiferromagnétique et le régime de pseudo-gap. Quoiqu'il en soit, les données disponibles montrent clairement que le magnétisme, même à longue portée dans un isolant, n'empêche pas la présence de l'effet de proximité. Les résultats obtenus dans l'ensemble de la thèse ouvrent la voie à des études plus poussées, tant au niveau théorique qu'expérimental.

Annexe A

Article publié

A.1 Résumé

Une analyse du coefficient de Hall (R_H) et de sa dérivée ($d(R_H)/dT$) en fonction de la température et du dopage montre que les changements les plus importants du coefficient de Hall se produisent lorsque l'ordre antiferromagnétique à longue portée se stabilise. Ces données suggèrent que le point critique quantique antiferromagnétique se trouve dans la région sous-dopée du diagramme de phase. L'analyse complète des données indique la présence de deux points critiques quantiques dans le diagramme de phase des dopés aux électrons, contrairement à ce que d'autres mesures semblent indiquer. Leur diagramme de phase serait ainsi très similaire à celui des dopés aux trous.

Bibliographie

- [1] I. Bozovic, G. Logvenov, M. A. J. Verhoeven, P. Caputo, Goldobin W. et M. R. Beasley. Giant proximity effect in cuprates superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 157002 (2004).
- [2] G. Bednorz et K. A. Müller. Possible high- t_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O systems. *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [3] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev. B* **108**, 1175 (1957).
- [4] R. J. Cava. Oxide superconductors. *J. Am. Ceram. Soc.* **83**, 5 (2000).
- [5] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang et C. W. Chu. Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 908 (1987).
- [6] H. Takagi, S. Uchida et Y. Tokura. Superconductivity produced by electron doping in CuO_2 -layered compounds. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1197 (1989).
- [7] Y. Tokura, H. Takagi et S. Uchida. A superconducting copper oxide compound with electrons as the charge carriers. *Nature* **337**, 345 (1989).
- [8] N. P. Armitage, P. Fournier et R. L. Greene. Progress and perspectives on electron-doped cuprates. *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2421 (2010).
- [9] Y. Dagan, M. M. Qazilbash, C. P. Hill, V. N. Kulkarni et R. L. Greene. Evidence for a quantum phase transition in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ from transport measurements. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 167001 (2004).
- [10] P. K. Mang, O. P. Vajk, A. Arvanitaki, J. W. Lynn et M. Greven. Spin correlations and magnetic order in nonsuperconducting $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 027002 (2004).
- [11] H. J. Kang, P. Dai, H. A. Mook, D. N. Argyriou, V. Sikolenko, J. W. Lynn, Y. Kurita, S. Komiya et Y. Ando. Electronically competing phases and their magnetic field dependence in electron-doped nonsuperconducting and superconducting $\text{Pr}_{0.88}\text{LaCe}_{0.12}\text{CuO}_{4\pm\delta}$. *Phys. Rev. B* **71**, 214512 (2005).
- [12] G. M. Luke, L. P. Le, B. J. Sternlieb, Y. J. Uemura, J. H. Brewer, R. Kadono, R. F. Kiefl, S. R. Kreitzman, T. M. Riseman, C. E. Stronach, M. R. Davis, S. Uchida,

- H. Takagi, Y. Tokura, Y. Hidaka, T. Murakami, J. Gopalakrishnan, A. W. Sleight, M. A. Subramanian, E. A. Early, J. T. Markert, M. B. Maple et C. L. Seaman. Magnetic order and electronic phase diagrams of electron-doped copper oxide materials. *Phys. Rev. B* **42**, 7981 (1990).
- [13] E. M. Motoyama, G. Yu, I. M. Vishik, O. P. Vajk, P. K. Mang et M. Greven. Spin correlations in the electron-doped high-transition-temperature superconductor $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$. *Nature* **445**, 186 (2007).
- [14] S. Charpentier, G. Roberge, S. Godin-Proulx, X. Béchamp-Laganière, K. D. Truong, P. Fournier et P. Rauwel. Antiferromagnetic fluctuations and the Hall effect of electron-doped cuprates : Possibility of a quantum phase transition at underdoping. *Phys. Rev. B* **81**, 104509 (2010).
- [15] I. Bozovic, G. Logvenov, M. A. J. Vorhoeven, P. Caputo, E. Goldobin et T. H. Geballe. No mixing of superconductivity and antiferromagnetism in a high-temperature superconductor. *Nature* **422**, 873 (2003).
- [16] G. A. Ovsyannikov, P. Komissinskiy, I. V. Borisenko, Yu. V. Kislinskii, A. V. Zaitsev, K. Y. Constantinian et D. Winkler. Anomalous superconducting proximity effect in hybrid oxide heterostructure with antiferromagnetic layer. arXiv :cond-mat/0610140v1 (2006).
- [17] G. A. Ovsyannikov, K. Y. Constantinian, Yu. V. Kislinskii, A. V. Shadrin, A. V. Zaitsev, V. V. Demidov, I. V. Borisenko, A. V. Kalabukhov et D. Winkler. Proximity effect and electron transport in the oxide hybrid heterostructures with superconducting/magnetic interfaces. arXiv :1001.0963v1 (2010).
- [18] L. F. Mattheiss. Electronic band properties and superconductivity in $\text{La}_{2-y}\text{X}_y\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1028 (1987).
- [19] S. Massidda, N. Hamada, Jaejun Yu et A. J. Freeman. Electron structure of Nd-Ce-Cu-O, a Fermi liquid superconductor. *Physica C* **157**, 571 (1989).
- [20] P. W. Anderson. The resonating valence bond state in La_2CuO_4 and superconductivity. *Science* **235**, 1196 (1986).
- [21] L. Comanac, A. de' Medici, M. Capone et A. J. Millis. Optical conductivity and the correlation strength of high-temperature copper-oxide superconductors. *Nature Physics* **4**, 287 (2008).
- [22] C. Weber, K. Haule et G. Kotliar. Strength of correlations in electron- and hole-doped cuprates. *Nature Physics* **6**, 574 (2010).
- [23] I. Bozovic, B. Logvenov, I. Belca, B. Narimbetov et I. Sveklo. Epitaxial strain and superconductivity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 107001 (2002).
- [24] E. Maiser, P. Fournier, J.-L. Peng, F. M. Araujo-Moreira, T. Venkatesan, R. L. Greene et G. Czjzek. Pulsed-laser deposition of $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ thin films and the effect of high-temperature post-annealing. *Physica C* **297**, 15 (1998).

- [25] J. Gauthier, S. Gagné, M.-È. Gosselin, P. Fournier et P. Richard. Different roles of cerium substitution and oxygen reduction in transport in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ thin films. *Phys. Rev. B* **75**, 024424 (2007).
- [26] P. Richard, G. Riou, I. Hetel, S. Jandl, M. Poirier et P. Fournier. Role of oxygen nonstoichiometry and the reduction process on the local structure of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$. *Phys. Rev. B* **70**, 064513 (2004).
- [27] G. Riou, S. Jandl, M. Poirier, V. Nekvasil, M. Diviš, P. Fournier, R. Greene, Zhi-gunov et S. Barilo. Infrared transmission study of Pr_2CuO_4 crystal-field excitations. *Eur. Phys. J. B* **23**, 179 (2001).
- [28] G. Riou, P. Richard, S. Jandl, M. Poirier, P. Fournier, V. Nekvasil, S. N. Barilo et L. A. Kurnevich. Pr^{3+} crystal-field excitation study of apical oxygen and reduction processes in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$. *Phys. Rev. B* **69**, 024511 (2004).
- [29] H. J. Kang, P. Dai, B. J. Campbell, P. J. Chupas, S. Rosenkranz, P. L. Lee, Q. Huang, S. Li, Komiya S. et Y. Ando. Microscopic annealing process and its impact on superconductivity in T'-structure electron-doped copper oxides. *Nature Materials* **6**, 224 (2007).
- [30] G. Roberge, S. Charpentier, S. Godin-Proulx, P. Rauwel, K. D. Truong et P. Fournier. Improving the growth of electron-doped $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ thin films made by pulsed-laser deposition using excess CuO. *J. Cryst. Growth* **311**, 1340 (2009).
- [31] K. Sekizawa, Y. Takano, H. Takigami, S. Tasaki et T. Inaba. Superconductivity in the La-Cu-O systems. *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, L840 (1987).
- [32] P. M. Grant, S. S. P. Parkin, V. Y. Lee, E. M. Engler, M. L. Ramirez, J. E. Vazquez, G. Lim, R. D. Jacowitz et R. L. Greene. Evidence for superconductivity in La_2CuO_4 . *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2482 (1987).
- [33] Y. Hidaka et M. Suzuki. Growth and anisotropic superconducting properties of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ single crystals. *Nature* **338**, 635 (1989).
- [34] Y. Onose, Y. Taguchi, K. Ishizaka et Y. Tokura. Charge dynamics in underdoped $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$: Pseudogap and related phenomena. *Phys. Rev. B* **69**, 024504 (2004).
- [35] P. Fournier, P. Mohanty, E. Maiser, S. Darzens, T. Venkatesan, C. J. Lobb, G. Czjzek, R. A. Webb et R. L. Greene. Insulator-metal crossover near optimal doping in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ anomalous normal-state low temperature resistivity. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4720 (1998).
- [36] R. S. Kusko, C. Markiewicz, M. Lindross et A. Bansil. Fermi surface evolution and collapse of the Mott pseudogap in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$. *Phys. Rev. B* **66**, 140513 (2002).
- [37] Jie Lin et A. J. Millis. Theory of low-temperature Hall effect in electron-doped cuprates. *Phys. Rev. B* **72**, 214506 (2005).

- [38] N. P. Armitage, F. Ronning, D. H. Lu, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, D. L. Feng, H. Eisaki, Z.-X. Shen, P. K. Mang, N. Kaneko, M. Greven, Y. Onose, Y. Taguchi et Y. Tokura. Doping dependence of an n -type cuprate superconductor investigated by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 257001 (2002).
- [39] H. Matsui, K. Terashima, T. Sato, T. Takahashi, M. Fujita et K. Yamada. Direct observation of a nonmonotonic $d_{x^2-y^2}$ -wave superconducting gap in the electron-doped high- T_c superconductor $\text{Pr}_{0.89}\text{LaCe}_{0.11}\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 017003 (2005).
- [40] T. Helm, M. V. Kartsovnik, M. Bartkowiak, N. Bittner, M. Lambacher, A. Erb, J. Wosnitza et R. Gross. Evolution of the fermi surface of the electron-doped high-temperature superconductor $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ revealed by shubnikov-de haas oscillations. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 157002 (2009).
- [41] H. Matsui, T. Takahashi, T. Sato, K. Terashima, H. Ding, T. Uefuji et K. Yamada. Evolution of the pseudogap across the magnet-superconductor phase boundary of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **75**, 224514 (2007).
- [42] John A. Hertz. Quantum critical phenomena. *Phys. Rev. B* **14**(3), 1165 (1976).
- [43] P. C. Hohenberg et B. I. Halperin. Theory of dynamic critical phenomena. *Rev. Mod. Phys.* **49**(3), 435 (1977).
- [44] S. Sachdev. *Quantum Phase Transitions*. Cambridge University Press, (1999).
- [45] J. Custers, P. Gegenwart, K. Neumaier, H. Wilhelm, N. Oeschler, K. Ishida, Y. Kitaoka, C. Geibel et F. Steglich. Quantum criticality in YbRh_2Si_2 . *J. Phys. : Condens. Matter* **15**, S2047 (2003).
- [46] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman et Q. Si. Hall-effect evolution across a heavy-fermion quantum critical point. *Nature* **432**, 881 (2004).
- [47] Z.-X. Shen, D. S. Dessau, B. O. Wells, D. M. King, W. E. Spicer, A. J. Arko, D. Marshall, L. W. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, S. Doniach, J. DiCarlo, T. Loeser et C. H. Park. Anomalously large gap anisotropy in the a-b plane of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1553 (1993).
- [48] H. Ding, M. R. Norman, J. C. Campuzano, M. Randeria, A. F. Bellman, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Mochiku et K. Kadowaki. Angle-resolved photoemission spectroscopy study of the superconducting gap anisotropy in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$. *Phys. Rev. B* **54**, R9678 (1996).
- [49] A. Damascelli, Z. Hussain et Z. X. Shen. Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **75**, 473 (2003).
- [50] R. Gross et B. Mayer. Transport processes and noise in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physica C* **180**, 235 (1991).
- [51] G. Deutscher. Andreev-Saint-James reflections : A probe of cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 109 (2005).

- [52] C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, Z. F. Ren, Wang. J. H., H. Raffy et Z. Z. Li. Pure $d_{x^2-y^2}$ order-parameter symmetry in the tetragonal superconductor $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$. *Nature* **387**, 481 (1997).
- [53] C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, C. C. Chi, Lock See Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J. Z. Sun et M. B. Ketchen. Pairing symmetry and flux quantization in a tricrystal superconducting ring of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 593 (1994).
- [54] D. J. Van Harlingen. Phase-sensitive tests of the symmetry of the pairing state in the high-temperature superconductors – evidence for $d_{x^2-y^2}$ symmetry. *Rev. Mod. Phys.* **67**, 515 (1995).
- [55] C. C. Tsuei et J. R. Kirtley. Pairing symmetry in cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **72**, 969 (2000).
- [56] Dong Ho Wu, Jian Mao, S. N. Mao, J. L. Peng, X. X. Xi, T. Venkatesan, R. L. Greene et Steven M. Anlage. Temperature dependence of penetration depth and surface resistance of $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 85 (1993).
- [57] A. Andreone, A. Cassinese, A. Di Chiara, R. Vaglio, A. Gupta et E. Sarnelli. Temperature dependence of the penetration depth in $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$ superconducting thin films. *Phys. Rev. B* **49**, 6392 (1994).
- [58] Mun-Seog Kim, John A. Skinta, Thomas R. Lemberger, A. Tsukada et M. Naito. Magnetic penetration depth measurements of $Pr_{2-x}Ce_xCuO_{4-\delta}$ films on buffered substrates : Evidence for a nodeless gap. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 087001 (2003).
- [59] B. Stadlober, G. Krug, R. Nemetschek, R. Hackl, J. L. Cobb et J. T. Markert. Is $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ a high-temperature superconductor? *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4911 (1995).
- [60] S. Kashiwaya, T. Ito, K. Oka, S. Ueno, H. Takashima, M. Koyanagi, Y. Tanaka et K. Kajimura. Tunneling spectroscopy of superconducting $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$. *Phys. Rev. B* **57**, 8680 (1998).
- [61] L. Alff, S. Meyer, S. Kleefisch, U. Schoop, A. Marx, H. Sato, M. Naito et R. Gross. Anomalous low temperature behavior of superconducting $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2644 (1999).
- [62] S. I. Woods, A. S. Katz, T. L. Kirk, M. C. de Andrade, M. B. Maple et R. C. Dynes. Investigation of Nd-Ce-Cu-O planar tunnel junctions and bicrystal grain boundary junctions. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **9**, 3917 (1999).
- [63] J. David Kokales, Patrick Fournier, Lucia V. Mercaldo, Vladimir V. Talanov, Richard L. Greene et Steven M. Anlage. Microwave electrodynamics of electron-doped cuprate superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3696 (2000).
- [64] R. Prozorov, R. W. Giannetta, P. Fournier et R. L. Greene. Evidence for nodal quasiparticles in electron-doped cuprates from penetration depth measurements. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3700 (2000).

- [65] G. Blumberg, A. Koitzsch, A. Gozar, B. S. Dennis, C. A. Kendziora, P. Fournier et R. L. Greene. Nonmonotonic $d_{x^2-y^2}$ superconducting order parameter in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 107002 (2002).
- [66] A. Snezhko, R. Prozorov, D. D. Lawrie, R. W. Giannetta, J. Gauthier, J. Renaud et P. Fournier. Nodal order parameter in electron-doped $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ superconducting films. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 157005 (2004).
- [67] G. Côté, M. Poirier et Fournier P. Complex microwave conductivity of $\text{Pr}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-\delta}$ thin films using a cavity perturbation method. *J. Appl. Phys.* **104**, 123914 (2008).
- [68] T. Sato, T. Kamiyama, T. Takahashi, K. Kurahashi et K. Yamada. Observation of $d_{x^2-y^2}$ -like superconducting gap in an electron-doped high-temperature superconductors. *Science* **291**, 1517 (2001).
- [69] N. P. Armitage, D. H. Lu, D. L. Feng, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, F. Ronning, Z.-X. Shen, Y. Onose, Y. Taguchi et Y. Tokura. Superconducting gap anisotropy in $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$: Results from photoemission. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1126 (2001).
- [70] C. C. Tsuei et J. R. Kirtley. Phase-sensitive evidence for d -wave pairing symmetry in electron-doped cuprate superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 182 (2000).
- [71] Ariando, D. Darminto, H. J. H. Smilde, V. Leca, D. H. A. Blank, H. Rogalla et H. Hilgenkamp. Phase-sensitive order parameter symmetry test experiments utilizing $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}/\text{Nb}$ zigzag junctions. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 167001 (2005).
- [72] N. P. Armitage, D. H. Lu, C. Kim, Damascelli A., K. M. Shen, F. Ronning, D. L. Feng, P. Bogdanov, Z.-X. Shen, Y. Onose, Y. Taguchi, Y. Tokura, P. K. Mang, N. Kaneko et M. Greven. Anomalous electronic structure and pseudogap effects in $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 147003 (2001).
- [73] Amlan Biswas, P. Fournier, M. M. Qazilbash, V. N. Smolyaninova, Hamza Balci et R. L. Greene. Evidence of a d - to s -wave pairing symmetry transition in the electron-doped cuprate superconductor $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 207004 (2002).
- [74] John A. Skinta, Mun-Seog Kim, Thomas R. Lemberger, T. Greibe et M. Naito. Evidence for a transition in the pairing symmetry of the electron-doped cuprates $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ and $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 207005 (2002).
- [75] Hamza Balci et R. L. Greene. Anomalous change in the field dependence of the electronic specific heat of an electron-doped cuprate superconductor. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 067001 (2004).
- [76] M. F. Hundley, Thompson J. D., S.-W. Cheong et Z. Fisk. Specific heat and anisotropic magnetic susceptibility of Pr_2CuO_4 , Nd_2CuO_4 and Sm_2CuO_4 crystals. *Physica C* **158**, 102 (1989).
- [77] Pengcheng Dai, H. J. Kang, H. A. Mook, M. Matsuura, J. W. Lynn, Y. Kurita, Seiki Komiya et Yoichi Ando. Electronic inhomogeneity and competing phases in

- electron-doped superconducting $\text{Pr}_{0.88}\text{LaCe}_{0.12}\text{CuO}_{4-\delta}$. *Phys. Rev. B* **71**, 100502 (2005).
- [78] A. Zimmers, J. M. Tomczak, R. P. S. M. Lobo, N. Bontemps, C. P. Hill, M. C. Barr, Y. Dagan, R. L. Greene, A. J. Millis et C. C. Homes. Infrared properties of electron-doped cuprates : Tracking normal-state gaps and quantum critical behavior in $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Europhys. Lett.* **70**, 225 (2005).
- [79] David Sénéchal, P.-L. Lavertu, M.-A. Marois et A.-M. S. Tremblay. Competition between antiferromagnetism and superconductivity in high- T_c cuprates. *Phys. Rev. Lett.* **94**(15), 156404 (2005).
- [80] S. S. Kancharla, B. Kyung, D. Sénéchal, M. Civelli, M. Capone, G. Kotliar et A.-M. S. Tremblay. Anomalous superconductivity and its competition with antiferromagnetism in doped mott insulators. *Phys. Rev. B* **77**(18), 184516 (2008).
- [81] W. W. Warren, R. E. Walstedt, G. F. Brennert, R. J. Cava, R. Tycko, R. F. Bell et G. Dabbagh. Cu spin dynamics and superconducting precursor effects in planes above T_c in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1193 (1989).
- [82] H. Ding, T. Yokoya, J. C. Campuzano, T. Takahashi, M. Randeria, M. R. Norman, T. Mochiku, K. Kadowaki et J. Giapintzakis. Spectroscopic evidence for a pseudogap in the normal state of underdoped high- T_c superconductors. *Nature* **382**, 51 (1996).
- [83] J. M. Harris, Z. X. Shen, P. J. White, D. S. Marshall, M. C. Schabel, J. N. Eckstein et I. Bozovic. Anomalous superconducting state gap size versus T_c behavior in underdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Phys. Rev. B* **54**, R15665 (1996).
- [84] A. G. Loeser, Z.-X. Shen, D. S. Dessau, D. S. Marshall, C. H. Park, P. Fournier et A. Kapitulnik. Excitation gap in the normal state of underdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Science* **273**, 325 (1996).
- [85] Ch. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki et Ø. Fischer. Pseudogap precursor of the superconducting gap in under- and overdoped $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 149 (1998).
- [86] H. Takagi, B. Batlogg, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski et W. F. Peck. Systematic evolution of temperature-dependent resistivity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2975 (1992).
- [87] T. Ito, K. Takenaka et S. Uchida. Systematic deviation from t-linear behavior in the in-plane resistivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$: Evidence for dominant spin scattering. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3995 (1993).
- [88] A. V. Puchkov, D. N. Basov et T. Timusk. The pseudogap state in high- T_c superconductors : an infrared study. *J. Phys. : Condens. Matter* **8**, 10049 (1996).
- [89] Mike Sutherland, D. G. Hawthorn, R. W. Hill, F. Ronning, S. Wakimoto, H. Zhang, C. Proust, Etienne Boaknin, C. Lupien, Louis Taillefer, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, Robert Gagnon, N. E. Hussey, T. Kimura, M. Nohara et H. Takagi.

- Thermal conductivity across the phase diagram of cuprates : Low-energy quasiparticles and doping dependence of the superconducting gap. *Phys. Rev. B* **67**, 174520 (2003).
- [90] T. Timusk et B. Statt. The pseudogap in high-temperature superconductors : an experimental survey. *Rep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
- [91] E. J. Singley, D. N. Basov, K. Kurahashi, T. Uefuji et K. Yamada. Electron dynamics in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$: Evidence for the pseudogap state in unconventional *c*-axis response. *Phys. Rev. B* **64**, 224503 (2001).
- [92] Y. Onose, Y. Taguchi, K. Ishizaka et Y. Tokura. Doping dependence of pseudogap and related charge dynamics in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 217001 (2001).
- [93] A. Koitzsch, G. Blumberg, A. Gozar, B. S. Dennis, P. Fournier et R. L. Greene. Low-energy excitations around $(\pi/2, \pi/2)$ points in the pseudogap phase of $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **67**, 184522 (2003).
- [94] L. Alff, Y. Krockenberger, B. Welter, M. Schonecke, R. Gross, D. Manske et M. Naito. A hidden pseudogap under the ‘dome’ of superconductivity in electron-doped high-temperature superconductors. *Nature* **422**, 698 (2003).
- [95] B. D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunneling. *Phys. Lett.* **1**, 251 (1962).
- [96] P. W. Anderson et J. M. Rowell. Probable observation of the Josephson superconducting tunneling effects. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 230 (1963).
- [97] C. W. Schneider, W. K. Neils, H. Bielefeldt, G. Hammerl, A. Schmehl, H. Raffy, Z. Z. Li, S. Oh, J. N. Eckstein, D. J. Van Harlingen et J. Mannhart. Pairing symmetry in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+x}$. *Europhys. Lett.* **64**, 489 (2003).
- [98] Thilo Bauch, T. Lindström, F. Tafuri, G. Rotoli, Per Delsing, Tord Cleason et Floriana Lombardi. Quantum dynamics of a *d*-wave Josephson junctions. *Science* **311**, 57 (2006).
- [99] M. Sjöstrand. *Ramp Josephson junctions based on $\text{NdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ barriers*. Thèse de Doctorat, Chalmers University of Technology - Göteborg University, (2006).
- [100] C.-H. Chen, Z. Trajanovic, Z. W. Dong, C. J. Lobb, T. Venkatesan, K. Edinger, J. Orloff et J. Melngailis. Fabrication of high-temperature superconductor Josephson junctions by focused ion beam milling. *J. Vac. Sci. Technol. B* **15**, 2379 (1997).
- [101] K. Fossheim et A. Sudbø. *Superconductivity : Physics and Applications*. John Wiley and Sons, Inc., New York, (2004).
- [102] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity*. Dover, (2004).
- [103] J. Claudon. *Oscillations cohérentes dans un circuit quantique supraconducteur : le SQUID dc*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, (2005).
- [104] Vinay Ambegaokar et Alexis Baratoff. Tunneling between superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **11**, 104 (1963).

- [105] Vinay Ambegaokar et Alexis Baratoff. Tunneling between superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 486 (1963).
- [106] A. Barone et G. Paternò. *Physics and Application of the Josephson Effect*. John Wiley and Sons, Inc., New York, (1982).
- [107] James F Annett. *Superconductivity, superfluids, and condensates*. Oxford University Press, (2004).
- [108] H. Meissner. Superconductivity of contacts with interposed barriers. *Phys. Rev.* **117**, 672 (1960).
- [109] P. G. De Gennes. Boundary effects in superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **36**, 225 (1964).
- [110] J. Clarke. Supercurrents in lead-copper-lead sandwiches. *Proc. R. Soc. A* **308**, 447 (1969).
- [111] J. Sauvageau, R. Ono, A. Jain, K. Li et J. Lukens. Length dependent properties of sns microbridges. *IEEE Trans. Magn.* **21**, 854 (1985).
- [112] K. K. Likharev. *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*. Gordon and Breach, New York, (1986).
- [113] K. A. Delin et A. W. Kleinsasser. Stationary properties of high-critical-temperature proximity effect Josephson junctions. *Supercond. Sci. Technol.* **9**, 227 (1996).
- [114] G. S. Boebinger, Yoichi Ando, A. Passner, T. Kimura, M. Okuya, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Tamasaku, N. Ichikawa et S. Uchida. Insulator-to-metal crossover in the normal state of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ near optimum doping. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5417 (1996).
- [115] T. Yoshida, X. J. Zhou, K. Tanaka, W. L. Yang, Z. Hussain, Z.-X. Shen, A. Fujimori, S. Sahrakorpi, M. Lindroos, R. S. Markiewicz, A. Bansil, Seiki Komiya, Yoichi Ando, H. Eisaki, T. Kakeshita et S. Uchida. Systematic doping evolution of the underlying Fermi surface of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **74**, 224510 (2006).
- [116] P. Fournier, J. Higgins, H. Balci, E. Maiser, C. J. Lobb et R. L. Greene. Anomalous saturation of the phase coherence length in underdoped $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ thin films. *Phys. Rev. B* **62**, R11993 (2000).
- [117] N. P. Armitage, D. H. Lu, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, F. Ronning, D. L. Feng, P. Bogdanov, X. J. Zhou, W. L. Yang, Z. Hussain, P. K. Mang, N. Kaneko, M. Greven, Y. Onose, Y. Taguchi, Y. Tokura et Z.-X. Shen. Angle-resolved photoemission spectral function analysis of the electron-doped cuprate $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **68**, 064517 (2003).
- [118] F. Tafuri et J. R. Kirtley. Weak links in high critical temperature superconductors. *Rep. Prog. Phys.* **68**, 2573 (2005).
- [119] J. Elly, Gilabert A. Medici, M. G. and, F. Schmidl, T. Schmauder, E. Heinz et P. Seidel. Magnetic field dependence of Josephson critical current in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ bicrystal grain boundary junctions. *Physica C* **251**, 171 (1995).

- [120] F. Tafuri, F. Carillo, F. Lombardi, F. Milieto Granozio, F. Ricci, F. Scotti di Uccio, A. Barone, G. Testa, E. Sarnelli et J. R. Kirtley. Feasibility of biepitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ Josephson junctions for fundamental studies and potential circuit implementation. *Phys. Rev. B* **62**, 14431 (2000).
- [121] D. Stornaiuolo, K. Cedergren, D. Born, T. Bauch, A. Barone, F. Lombardi et F. Tafuri. Sub-micron $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ biepitaxial junctions. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **19**, 174 (2009).
- [122] A. Beck, M. Froehlich, D. Koelle, R. Gross, H. Sato et M. Naito. $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_{4-\delta}$ bicrystal grain boundary Josephson junctions. *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3341 (1996).
- [123] U. Schoop, S. Kleefisch, S. Meyer, A. Marx, L. Alff et R. Gross. $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ bicrystal grain boundary Josephson junctions. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **9**, 3409 (1999).
- [124] B. Chesca, M. Seifried, T. Dahm, N. Schopohl, D. Koelle, R. Kleiner et A. Tsukada. Observation of Andreev bound states in bicrystal grain-boundary Josephson junctions of the electron-doped superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$. *Phys. Rev. B* **71**, 104504 (2005).
- [125] Uki Kabasawa, Yoshinobu Tarutani, Tokuumi Fukazawa, Akira Tsukamoto, Masahiko Hiratani et Kazumasa Takagi. Electrical characteristics of $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ - $\text{La}_{1.5}\text{Ba}_{1.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ - $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ junctions with planar-type structures. *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, 1670 (1991).
- [126] Yoshinobu Tarutani, Tokuumi Fukazawa, Uki Kabasawa, Akira Tsukamoto, Masahiko Hiratani et Kazumasa Takagi. Superconducting characteristics of a planar-type $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ - $\text{La}_{1.5}\text{Ba}_{1.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ - $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ junctions. *Appl. Phys. Lett.* **58**, 2707 (1991).
- [127] A.C. Meltzow, S. Hu, J. Hollkott, J. Auge, B. Spangenberg, H. Kurz, N.D. Zakharov et D. Hesse. Doped-type coplanar junctions in the $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_1\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ systems. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **7**, 2832 (1997).
- [128] B. Chesca, D. Doenitz, T. Dahm, R. P. Huebener, D. Koelle, R. Kleiner, Ariando, H. J. H. Smilde et H. Hilgenkamp. Observation of Andreev bound states in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{Au}/\text{Nb}$ ramp-type Josephson junctions. *Phys. Rev. B* **73**, 014529 (2006).
- [129] J Yoshida, H. Karsuno, K. Nakayama et T. Nagano. Current transport and the fluctuation of critical current in high-temperature superconductor interface-engineered Josephson junctions. *Phys. Rev. B* **70**, 054511 (2004).
- [130] H. Haibara et I. Iguchi. Josephson effect in high- T_c $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4/\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ramp-edge Josephson junctions. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4752 (2003).
- [131] D. K. Chin et T. Van Duzer. Novel all-high T_c epitaxial Josephson junctions. *Appl. Phys. Lett.* **58**, 753 (1991).
- [132] B. D. Hunt, M. C. Foote et L. J. Bajuk. All high T_c edge-geometry weak links utilizing Y-Ba-Cu-O barrier layers. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 982 (1991).

- [133] J. Gao, Yu M. Boguslavskij, B. B. G Klopmann, D. Terpstra, R. Wijbrans, G. J. Gerritsma et H. Rogalla. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ Josephson ramp junctions. *J. Appl. Phys.* **72**, 575 (1992).
- [134] J. L. Sun et J. Gao. Transport characteristics of ramp-type $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Josephson junctions. *Phys. Rev. B* **62**, 1457 (2000).
- [135] E. Polturak, G. Koren, D. Cohen, E. Aharoni et G. Deutscher. Proximity effect in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{Y}_{0.6}\text{Pr}_{0.4}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ junctions. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3038 (1991).
- [136] K. Char, L. Antognazza et T. H. Geballe. Properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}/\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.79}\text{Co}_{0.21}\text{O}_{7-x}/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ edge junctions. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 904 (1994).
- [137] K. Char, M. S. Colclough, T. H. Geballe et K. E. Myers. High T_c superconductor-normal-superconductor Josephson junctions using CaRuO_3 as the metallic barriers. *Appl. Phys. Lett.* **62**, 196 (1993).
- [138] L. Antognazza, K. Char, T. H. Geballe, L. L. H. King et A. W. Sleight. Josephson coupling of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ through a ferromagnetic barrier SrRuO_3 . *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1005 (1993).
- [139] L. Alff, U. Schoop, R. Gross, R. Gerber et A. Beck. Ramp-edge Josephson junctions with $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ barriers. *Physica C* **271**, 339 (1996).
- [140] M. Kasai, T. Ohno, Y. Kanke, Y. Kozono, M. Hanazono et Y. Sugita. Current-voltage characteristics of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y/\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_z/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ trilayered-type junctions. *Jpn. J. Appl. Phys.* **29**, L2219 (1990).
- [141] M. Kasai, Y. Kanke, T. Ohno et Y. Kozono. Possible mechanism of proximity effect coupled to spin fluctuation in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y/\text{magnetic manganese oxide}/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ junctions. *J. Appl. Phys.* **72**, 5344 (1992).
- [142] C. T. Rogers, A. Inam, M. S. Hegde, B. Dutta, X. D. Wu et T. Venkatesan. Fabrication of heteroepitaxial $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{-PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}\text{-YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ Josephson devices grown by laser deposition. *Appl. Phys. Lett.* **55**, 2032 (1989).
- [143] J. B. Barner, C. T. Rogers, A. Inam, R. Ramesh et S. Bersey. All a-axis oriented $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}\text{-PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}\text{-YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ Josephson devices operating at 80 K. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 742 (1991).
- [144] V. Kresin, Yu. Ovchinnikov et S. Wolf. "Giant" Josephson proximity effects. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 722 (2003).
- [145] G. Alvarez, M. Mayr et E. Dagotto. Superconducting puddles and "colossal" effects in underdoped cuprates. arXiv :cond-mat/0401474v2 (2004).
- [146] S. Doniach et M. Inui. Long-range coulomb interactions and the onset of superconductivity in the high- T_c materials. *Phys. Rev. B* **41**, 6668 (1990).

- [147] E. W. Carlson, V. J. Emery, S. A. Kivelson et D. Orgad. *The Physics of Conventional and Unconventional Superconductors*, chapitre Concepts in High Temperature Superconductivity. Springer-Verlag, Berlin (2002).
- [148] Z. A. Xu, N. P. Ong, Y. Wang, T. Kakeshita et S. Uchida. Vortex-like excitations and the onset of superconducting phase fluctuation in underdoped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Nature* **406**, 486 (2000).
- [149] P. Richard, M. Poirier, S. Jandl et P. Fournier. Impact of the reduction process on the long-range antiferromagnetism in $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **72**, 184514 (2005).
- [150] R. B. Goldfarb, M. Lelental et C. A. Thompson. *Magnetic Susceptibility of Superconductors and Other Spin Systems*, chapitre Alternating-Field Susceptometry and Magnetic Susceptibility of Superconductors, 1. Plenum Press, New York (1992).
- [151] Jacques Renaud. *Les fluctuations supraconductrices dans le composé $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$* . Thèse de Doctorat, Université de Sherbrooke, (2006).
- [152] R. W. Hill, Cyril Proust, Louis Taillefer, P. Fournier et R. L. Greene. Breakdown of Fermi-liquid theory in a copper-oxide superconductors. *Nature* **414**, 711 (2001).
- [153] M. F. Smith, Johnpierre Paglione, M. B. Walker et Louis Taillefer. Origin of anomalous low-temperature downturns in the thermal conductivity of cuprates. *Phys. Rev. B* **71**, 014506 (2005).
- [154] F. Gollnik et M. Naito. Doping dependance of normal- and superconducting-state transport properties of $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm y}$ thin films. *Phys. Rev. B* **58**, 11734 (1998).
- [155] M. Naito, S. Karimoto et A. Tsukada. Epitaxy-stabilized *n*-type superconducting cuprates. *Supercond. Sci. Technol.* **15**, 1663 (2002).
- [156] H. J. H. Smilde, H. Hilgenkamp, G. J. Gerritsma, D. H. A. Blank et H. Rogalla. Y-Ba-Cu-O / au / nb ramp-type josephson junctions. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **11**, 501 (1991).
- [157] S. J. Hagen, X. Q. Xu, W. Jiang, J. L. Peng, Z. Y. Li et R. L. Greene. Transport and localization in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ crystals at low doping. *Phys. Rev. B* **45**, 515 (1992).
- [158] P. K. Mang, S. Laroche, A. Mehta, O. P. Vajk, A. S. Erickson, L. Lu, W. J. L. Buyers, A. F. Marshall, K. Prokes et M. Greven. Phase decomposition and chemical inhomogeneity in $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$. *Phys. Rev. B* **70**, 094507 (2004).
- [159] K. Suzuki, K. Kishio, T. Hasegawa et K. Kitazawa. Oxygen nonstoichiometry of the $(\text{Nd, Ce})_2\text{CuO}_{4-\delta}$ system. *Physica C* **166**, 357 (1990).
- [160] Yoichi Ando, Y. Kurita, Seiki Komiya, S. Ono et Kouji Segawa. Evolution of the hall coefficient and the peculiar electronic structure of the cuprate superconductors. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 197001 (2004).

- [161] S. Ono, Seiki Komiya et Yoichi Ando. Strong charge fluctuations manifested in the high-temperature Hall coefficient of high- T_c cuprates. *Phys. Rev. B* **75**, 024515 (2007).
- [162] P. Fournier, X. Jiang, W. Jiang, S. N. Mao, T. Venkatesan, C. J. Lobb et R. L. Greene. Thermomagnetic transport properties of $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4+d}$ films : Evidence for two types of charge carriers. *Phys. Rev. B* **56**, 14149 (1997).
- [163] Y. Dagan et R. L. Greene. Hole superconductivity in the electron-doped superconductor $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **76**(2), 024506 (2007).
- [164] P. Richard, M. Neupane, Y.-M. Xu, P. Fournier, S. Li, P. Dai, Z. Wang et H. Ding. Competition between antiferromagnetism and superconductivity in the electron-doped cuprates triggered by oxygen reduction. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 157002 (2007).
- [165] N. E. Hussey. Phenomenology of the normal state in-plane transport properties of high- T_c cuprates. *J. Phys. : Condens. Matter* **20**, 123201 (2008).
- [166] G. S. Jenkins, D. C. Schmadel, P. L. Bach, R. L. Greene, X. Béchamp-Laganière, G. Roberge, P. Fournier et H. D. Drew. Terahertz magnetotransport measurements in underdoped $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ and comparison with angle-resolved photoemission. *Phys. Rev. B* **79**, 224525 (2009).
- [167] G. S. Jenkins, D. C. Schmadel, P. L. Bach, R. L. Greene, X. Béchamp-Laganière, G. Roberge, P. Fournier, Hiroshi Kontani et H. D. Drew. Origin of the anomalous Hall effect in the overdoped n -type superconductor $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$: Current-vertex corrections due to antiferromagnetic fluctuations. *Phys. Rev. B* **81**, 024508 (2010).
- [168] H. Kontani. Anomalous transport phenomena in Fermi liquids with strong magnetic fluctuations. *Rep. Prog. Phys.* **71**, 026501 (2008).
- [169] P. A. Lee et T. V. Ramakrishnan. Disordered electronic systems. *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287 (1985).
- [170] P. Richard, M. Poirier et P. Fournier. Low-temperature magnetism of Nd_2CuO_4 : An ultrasonic investigation. *Phys. Rev. B* **71**, 144425 (2005).
- [171] S. Sachdev. Quantum criticality and the phase diagram of the cuprates. *Physica C* **470**, S4 (2009).
- [172] A. Yeh, S. Yeong-Ah, J. Brooke, G. Aeppli, T. F. Rosenbaum et S. M. Hayden. Quantum phase transition in a common metal-superconductor. *Nature* **419**, 459 (2002).
- [173] M. R. Norman, Si Gimiao, Ya. B. Bazaliy et R. Ramazashvili. Hall effect in nested antiferromagnets near the quantum critical point. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 116601 (2003).
- [174] J. L. Sun et J. Gao. Excess current in high- T_c Josephson junction with thin $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$. *Solid State Commun.* **116**, 465 (2000).
- [175] Bin Ming. *Fabrication of sapphire-based high performance step-edge HTS Josephson junctions and SQUIDs and their application to scanning SQUID microscopy*. Thèse de Doctorat, University of Maryland, (2003).

- [176] P. A. Rosenthal, M. R. Beasley, K. Char, M. S. Colclough et G. Zaharchuk. Flux focusing effects in planar thin-film grain boundary Josephson junctions. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 3482 (1991).
- [177] G. Roberge. Jonctions Josephson en rampe à base de $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$. Mémoire de Maîtrise, Université de Sherbrooke, (2010).