



Comprendre le diagramme de phase complexe de l'uranium: le rôle du couplage électron-phonon

Dans l'uranium, il existe des anomalies de phonons remarquables dans la direction $[100]$. À basse température, ces anomalies sont responsables d'une transition de phase vers une structure plus complexe. Cette transition est décrite comme une onde de densité de charge (ODC). L'uranium est le seul élément découvert à ce jour qui présente une telle transition de phase à pression ambiante. En fonction de la pression l'ODC disparaît, et, à la même pression, la température supraconductrice atteint un maximum de 2 K, puis diminue avec la pression. Pour expliquer cette interaction entre ODC et supraconductivité, nous avons effectué des calculs couplés à des expériences de diffusion inélastique des rayons X à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF). Nous avons notamment mis en évidence l'importance du couplage électron-phonon pour expliquer ce phénomène.

J. Bouchet CEA – DAM Île-de-France

S. Raymond CEA – DSM, Institut nanosciences et cryogénie (INAC), Grenoble

G. H. Lander Institute for Transuranium Elements, Karlsruhe, Allemagne

La compétition entre plusieurs états fondamentaux est une question centrale en physique de la matière condensée comme, par exemple, la compétition entre supraconductivité et magnétisme dans les cuprates, les pnictides de fer ou les fermions lourds. Tout aussi importante est celle entre onde de densité de charge (ODC) et supraconductivité. Nous avons employé la diffusion inélastique des rayons X (IXS) et les calculs *ab initio* pour étudier les mécanismes qui régissent une telle interaction dans l'uranium.

L'uranium cristallise à température ambiante dans une structure orthorhombique (phase α -U), unique pour un élément à pression ambiante. Une transition de phase vers un état ODC se produit en dessous de 43 K, et ce comportement a été attribué à un emboîtement (*nesting*) de certaines parties de la surface de Fermi. L'état ODC (appelé α_1 -U) peut être considéré, en première approximation, comme un doublement de l'axe a de la maille. Sous pression, l'ODC disparaît à environ 1,5 GPa tandis que la supraconductivité présente une température de transition maximale (T_c) d'environ 2 K [1].

L'aspect clé qui stabilise la faible symétrie de la structure α -U, est l'étroite bande contenant environ trois électrons 5f au niveau de Fermi. Grâce à un traitement adéquat de ces électrons, le spectre de phonons de α -U n'a été reproduit qu'en 2008 par des calculs *ab initio* [2], près de 30 ans après sa détermination expérimentale. Une prédiction de ce calcul est que, sous pression, l'énergie du mode mou Σ_4 dans la direction $[100]$ augmente brutalement jusqu'à ce que l'anomalie disparaisse vers 20 GPa.

Figure 1.

Mesure (symboles) et calcul (lignes) du mode de phonon mou Σ_4 dans α -U pour différentes pressions. h indique la direction $[100]$ de propagation du phonon.

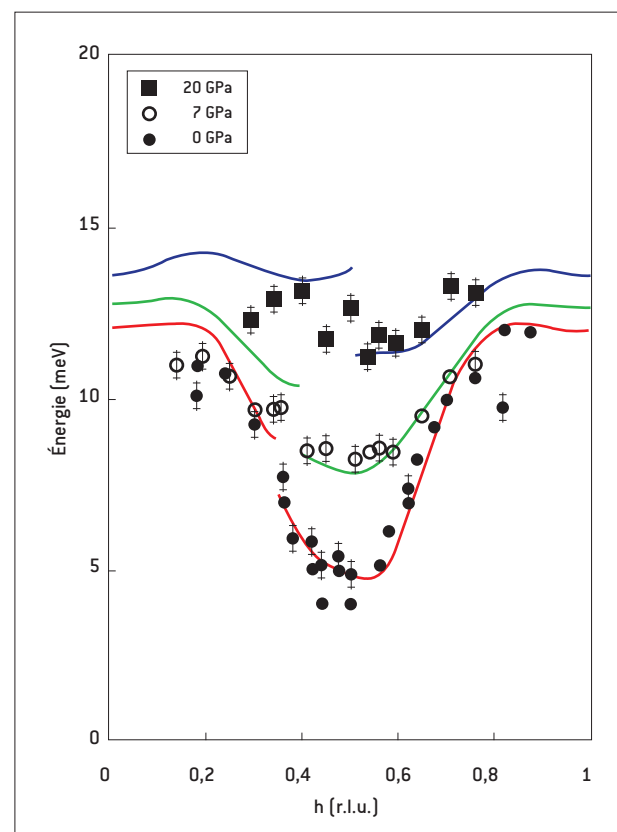
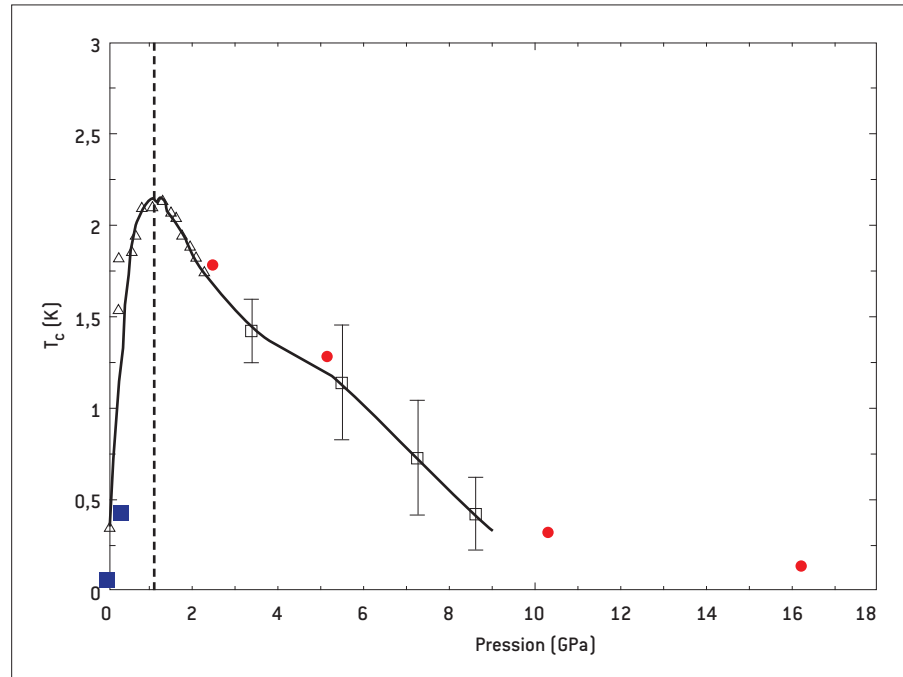


Figure 2.
Diagramme de phase T-P de l'uranium dans la région supraconductrice. La ligne verticale en pointillé indique la transition théorique entre les phases α_1 -U et α -U. Les symboles ouverts (pleins) sont les données expérimentales (théoriques).



Afin de valider cette prédiction théorique nous avons effectué une expérience IXS sur la ligne ID28 de l'ESRF sur un échantillon monocristallin, placé dans une cellule à enclume de diamant [3]. La figure 1 montre une comparaison entre les résultats IXS expérimentaux et théoriques. Ces résultats établissent clairement la disparition du mode mou avec la pression.

Cet excellent accord entre théorie et expérience nous a amenés à étudier plus avant le diagramme de phase. Nos études théoriques montrent que la surface de Fermi, et par conséquent les conditions du *nesting*, n'évolue que très peu avec la pression. En revanche, nous avons constaté que le couplage électron-phonon (e-ph) est très sensible au vecteur d'onde, et qu'il atteint un maximum au niveau du mode mou. Ce maximum est cependant rapidement supprimé lorsque la pression augmente. Ainsi, le couplage e-ph est l'ingrédient essentiel pour la formation et la disparition de l'état ODC et la structure α -U. Le *nesting* est bien présent, mais, bien que nécessaire, ce n'est pas l'ingrédient unique.

Ce jeu fascinant entre ODC et supraconductivité sous pression a également été étudié théoriquement. Pour une supraconductivité due aux phonons, la connaissance du couplage e-ph permet la détermination de T_c . Nos calculs montrent que le couplage e-ph augmente dans la phase ODC jusqu'à ce que la structure devienne instable, soit juste au-dessus de 1 GPa (voir ligne en pointillé de la figure 2). En revanche, à des pressions plus élevées le couplage

e-ph diminue dans la phase α . Ainsi, la forme du « dôme » de la région supraconductrice est expliquée par la dépendance en pression du couplage e-ph, en parallèle avec la stabilité respective des phases α_1 -U et α -U. La figure 2 montre le bon accord entre les températures mesurées et calculées en fonction de la pression.

Notre mesure de phonons dans l'uranium nous a permis de confirmer la prédiction théorique sur la disparition du mode mou en pression. Une étude approfondie des mécanismes en jeu met l'accent sur le rôle central du couplage e-ph dans la détermination du diagramme de phase complexe de l'uranium, y compris l'OCF et la supraconductivité, tandis que le *nesting* de la surface de Fermi est indépendant de la pression.

RÉFÉRENCES

- [1] G. H. LANDER, E. S. FISHER, S. D. BADER, « The solid-state properties of uranium : A historical perspective and review », *Adv. Phys.*, **43**, p. 1-111 [1994].
- [2] J. BOUCHET, « Lattice dynamics of α uranium », *Phys. Rev. B*, **77**, 024113 [2008].
- [3] S. RAYMOND, J. BOUCHET, G. H. LANDER, M. LE TACON, G. GABARINO, M. HOESCH, J.-P. RUEFF, M. KRISCH, J. C. LASHLEY, R. K. SCHULZE, R. C. ALBERS, « Understanding the complex phase diagram of Uranium: the role of the electron-phonon coupling », *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 136401 [2011].