Importance des fluctuations spatio-temporelles et des non linéarités pour le transport dans les verres isolants

François Ladieu

▶ **To cite this version:**

François Ladieu. Importance des fluctuations spatio-temporelles et des non linéarités pour le transport dans les verres isolants. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 2003. tel-00003424

HAL Id: tel-00003424
https://theses.hal.science/tel-00003424

Submitted on 26 Sep 2003

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Paris XI-Orsay

Habilitation à diriger les Recherches

Importance des fluctuations spatio-temporelles et des non linéarités pour le transport dans les verres isolants.

par François LADIEU

Mémoire soutenu le 09 Juillet 2003

devant le Jury composé de :

Pf O. Martin : Président

Pf O. H. Rousseau : Rapporteur

Pf A. Würger : Rapporteur

Pf R. Jalabert : Rapporteur

Dr J. Y. Prieur

Pf J. Joffrin : Membre invité par le Président

Table des matières

Remerciements **V**

Introduction générale **1**

1 Fluctuations temporelles et μthermométrie... **3**
Introduction . . . 3
1.1 Mesures de l'échauffement *moyen* à l'échelle du μm. . . . 4
1.1.1 Micro thermocouples et cadre expérimental. . . . 4
1.1.2 Mesures (et théorie) de l'échauffement moyen. . . . 6
1.2 Echauffement de Bruit . . . 11
1.2.1 Découverte des fluctuations d'échauffement . . . 11
1.2.2 Calcul de la température de Bruit . . . 13
1.2.3 Mesures des échauffements de bruit à la microsonde nucléaire. . . . 18
1.3 Effets thermiques induits par le faisceau. . . . 21
1.3.1 Calcul *a priori* : domination des fluctuations géantes. . . . 21
1.3.2 Les effets liés à l'échauffement "effectif". . . . 24
1.3.3 Mesures des impulsions d'échauffement sous laser femto seconde. . . . 26
Conclusion . . . 30

2 Fluctuations spatiales et isolants d'Anderson... **31**
Introduction . . . 31
2.1 Transport en régime "extrême" : F "nul" ou "infini" . . . 33
2.1.1 Saut à portée variable et cadre expérimental. . . . 33
2.1.2 Analogie formelle entre les deux régimes extrêmes. . . . 35
2.1.3 Différence des types de chemin de conduction pour $F \to 0$ et $F \to \infty$ 39
2.2 Détermination de l'importance des retours. . . . 42
2.2.1 Relation la plus simple pour les champs intermédiaires. . . . 42
2.2.2 Théories du transport en champ intermédiaire. . . . 43
2.2.3 Détermination de l'importance des "retours" . . . 44
2.3 Chauffage des phonons ou des électrons. . . . 49
2.3.1 Mesure de l'impédance thermique $a - YSi$-thermostat . . . 49
2.3.2 Les électrons d'$a - YSi$ ne sont pas chauds. . . . 50
2.3.3 Les électrons chauds nécessitent-ils une "mutation conceptuelle" ? . . . 51
Conclusion . . . 52

3 Fluctuations spatio-temporelles et verres structuraux **53**
Introduction . . . 53
3.1 Pertinence du modèle standard (sans interactions) . . . 54
3.1.1 Elaboration des échantillons et "thermométrie capacitive". . . . 54
3.1.2 Preuve de l'existence d'un effet de champ magnétique. . . . 59
3.1.3 Modélisation dans le cadre des double-puits quasi-indépendants . . . 64
3.2 Non-linéarités et faillite du modèle standard . . . 68
3.2.1 Argument intuitif : la "saturation quantique". . . . 68
3.2.2 Equations de Bloch pour les double-puits quasi-indépendants. . . . 70
3.2.3 Résultats numériques : prééminence de la saturation quantique des niveaux. . . . 75

3.3 Effets des interactions 81
3.3.1 La délocalisation dynamique des excitations entre double-puits semblables. 82
3.3.2 "Retournement" des effets non linéaires 83
3.3.3 Effets d'épaisseur. 87
Conclusion 91

Conclusion générale. **93**

Remerciements

Je tiens à remercier chaleureusement les diverses personnes sans lesquelles ce travail n'aurait jamais été possible. En premier lieu, bien sûr, Mr. Pierre Bergé qui a pris la responsabilité de m'embaucher au CEA au sortir de ma thèse. Sans cette chance originelle, il est fort probable que j'aurais finalement quitté l'étude de la Physique, faute de poste permanent accessible.

En second lieu, je remercie MM Gilles Revel, Jean Paul Duraud et Stéphane Lequien, directeurs du Laboratoire Pierre Süe, pour la confiance indéfectible qu'ils ont bien voulu accorder à mes travaux, y compris lorsque ceux ci souffraient d'un déficit de communication en plus haut lieu. Un remerciement particulier supplémentaire pour Mr Stéphane Lequien pour son aide soutenue et bienveillante, en particulier lors de la période, toujours délicate, de mon changement de Laboratoire.

Venons en aux collaborateurs "du quotidien" et en premier lieu à Mr. Pascal Berger qui, en encadrant le groupe "matériaux" du Laboratoire Pierre Süe, a amicalement défendu et soutenu mon action, y compris lorsque celle ci faisait appel aux "étranges concepts quantiques", que je maîtrisait souvent mal, en tous cas dans les premiers stades de la réflexion. Merci à lui de m'avoir ouvert aux multiples subtilités de l'analyse en matériaux, discipline étonnante faite de rigueur analytique et d'opportunité tactique pour le choix de la méthode. Je remercie aussi Mme Dominique Boutard de m'avoir appris les principes de la synthèse assitée par plasma. Enfin, le soutien de Mr. Pierre Ailloud a été essentiel, tout au long de ces huit ans passés au Laboratoire Pierre Süe. Son action a d'abord permis que certaines expériences aient tout simplement lieu, comme la mise sous vide de l'ensemble de PRALINE, ou bien les mesures de microthermométrie qui nécessitaient un porte échantillon élaboré. Mais plus généralement, son expertise "expérimentale générale" a permis d'éviter de se fourvoyer dans des impasses. Enfin, son esprit critique et philosophique a permis des discussions passionnées entre nous, sur bien des sujets, ce qui a maintenu mon esprit en éveil en même temps que cela colorait ma vision du monde.

Nous en arrivons à ce qu'il est convenu d'appeller "les étudiants", et dont certains se sont tellements impliqués dans l'équipe qu'ils ont une grande part dans les résultats obtenus. Ainsi Mr Gilles Plumereau a t il, dans son travail de thèse, apporté une contribution majeure à la compréhension des effets thermiques sous microfaisceau. Mr Alexandre Juillard, bien que faisant sa thèse dans l'équipe de Louis Dumoulin, n'a jamais perdu de vue l'intérêt que la bolométrie alpha haute résolution avait pour le Laboratoire Pierre Süe. Pour la constante diélectrique des verres, je soulignerai le courage quasi héroïque de Mr Patrice Limelette qui a abordé le problème alors qu'il n'était pas maîtrisé par l'équipe de Laboratoire Pierre Süe [1]. C'est Patrice qui nous a poussés (Mr. Lecochec et moi même), avec son sens de la rigueur théorique, a dépasser le cadre de l'approximation adiabatique pour les non linéarités de la constante diélectrique. Quant à Mlle Nadège Branland, elle a courageusement attaqué le volet expérimental de la synthèse et de la cryogémie, alors que ces activités étaient balbutiantes dans l'équipe. Mr Julien Granier, en formation IUT alternance, a aidé très positivement à l'intégration de Praline "sans remise à l'air". Enfin, les deux ans de travail post-doctoral de Mr Joran Lecochec ont permis de faire déboucher tout ce travail patient de mise en route de l'étude de la constante diélectrique des verres : son génie expérimental nous a poussé à augmenter le champ F suffisamment pour observer les effets du champ magnétique H, son génie informatique lié à sa profonde compréhension

[1] De même mentionnons le travail de Mr. Yves Lempérière, actuellement en thèse de Cosmologie, qui a, durant tout un été, débroussaillé certains travaux obscurs "d'avant les équations de Bloch".

de la Physique Quantique, nous ont permis de résoudre le problème des non linéarités de la constante diélectrique des verres. Je le remercie profondément de son attitude amicale et constante, et de son acharnement à chercher la vérité même quand la théorie semble être contredite par l'expérience.

Il reste à saluer les nombreux collaborateurs des laboratoires avec lesquels mes travaux ont été effectués. Aucun résultat n'aurait été obtenu sans le concours de ces collègues, avec lesquels j'entretiens des relations au minimum cordiales, voire amicales dans certains cas :

- Microthermométrie : La microstructure a été réalisée en partie à l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF) d'Orsay, et en partie au Service de Physique de L'Etat Condensé (SPEC) du CEA Saclay. A l'IEF, Mr. Bernard Abbeccassis et Melle Gwenaëlle Julié ont réalisé le réseau de pistes d'Or et le masque pour le semiconducteur ; au SPEC, Mr Roland Tourbot a déposé le semiconducteur. Un grand merci à ces personnes. De même, l'expertise en XPS de Mme Marie Josée Guittet a t elle permis de confirmer les effets thermiques du microfaisceau sur la couche de Zinc. Quant à Mr Philippe Martin (avec Mr Stéphane Guizard et Mr Guillaume Petite) c'est lui qui a eu l'idée de mesurer les échauffements sous impact laser avec nos microthermocouples.
- Isolants d'Anderson : Tout est venu de Mr Denis L'Hôte qui, non seulement a mobilisé son cryostat pendant plusieurs semaines pour les expériences, mais en plus a déniché dans le dédale de la littérature les travaux cruciaux de Böttger et Bryksin sur la disparition progressive des "retours" quand F augmente. Un grand merci à lui, ainsi qu'à Mr. Roland Tourbot qui a fortement aidé aux expériences.
- PRALINE : On a déjà mentionné le rôle des membres de l'équipe matériaux (étudiants compris) dans ce travail. Il nous faut mentionner Mr. Philippe Trouslard qui nous a ouvert son Laboratoire de l'INSTN pour y installer l'expérience et qui a réalisé toute l'analyse par faisceaux d'ions (sans oublier de nous dépanner en cas de problème sur une pompe, etc...). Par ailleurs, la collaboration avec Mr Patrick Pari, assisté de Mr Philippe Forget, a été tout a fait cruciale puisque c'est lui qui nous a "fourni" les basses températures (avec toute son expertise cryogénique indispensable pour réaliser de bonnes mesures). Soulignons que c'est à l'hospitalité "gratuite" offerte par MM Eric Vincent, Miguel Ocio et à l'aide de Mr Léon Le Pape, que je dois d'avoir pu effectuer les meures sur l'effet d'épaisseur : je les remercie chaleureusement car cette expérience vient couronner les efforts théoriques que nous avions fait sur les non linéarités. Enfin, je remercie MM Jacques Joffrin et Jean-Yves Prieur du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay pour les discussions où ils m'ont fait profiter de leur connaissance extrêmement approfondie des verres, ainsi que Mr Jean-Philippe Bouchaud qui m'a lui aussi consacré plusieurs heures de discussion.

Enfin, il me reste à remercier ma famille, dont le soutien profond et indéfectible me permet de poursuivre dans cette voie passionnante qui consiste à chercher les lois de la nature.

Introduction générale

La notion d'onde plane est omniprésente dans la physique de l'état cristallin. Que l'on pense au théorème de Bloch, lequel assure que les fonctions d'onde électroniques ont la périodicité du réseau (à une phase près) ; ou bien que l'on pense aux degrés de liberté atomiques appelés "phonons", on retrouve toujours la notion d'onde plane. Il est assez intuitif que cette notion va faciliter énormément la compréhension de tous les problèmes liés à la *physique du transport*. Par exemple, en ce qui concerne le transport de la chaleur, la plupart des cristaux, à température ambiante, ont à peu près les mêmes propriétés puisque la conductivité thermique de *tous* les cristaux est toujours de l'ordre de 0.3W/K/cm, à un facteur 3 près dans un sens ou dans l'autre. Pour ce qui concerne le transport électrique, la question se complique à peine du fait de la statistique de Fermi Dirac, qui traduit le principe d'exclusion de Pauli : ainsi, la conductivité électrique sera soit très bonne s'il existe des états accessibles libres à une distance en énergie inférieure à la température T, et très mauvaise si au contraire il faut franchir une grande bande interdite pour exciter les électrons.

Ce travail se situe dans le vaste ensemble des recherches visant à appréhender la physique du transport dans les matériaux qui sont très loin de présenter la perfection de la périodicité cristalline. Nous allons en effet traiter de quelques questions relatives au transport dans les "verres". Pour tous ces matériaux (parfois appelés "amorphes"), on ne peut plus faire appel aussi naturellement à la notion d'onde plane, ce qui, immédiatement, complique beaucoup la compréhension des phénomènes de transport. En effet, tant que l'écart à la périodicité reste faible (comme dans le cas des cristaux comportant des défauts), la notion d'onde "moyenne naturellement" l'effet de ces écarts à la périodicité idéale. Qu'en est il lorsque la notion d'onde n'est plus aussi naturelle ? Intuitivement, il semble que le transport sera toujours [2] plus difficile que dans le cas cristallin équivalent. Nous déclinerons cette intuition au travers de deux idées que nous retrouverons dans chacun des trois chapitres de ce document :

- Le transport est si difficile dans les "verres" qu'il est fortement "inhomogène", autrement dit il est dominé par une petite portion de l'ensemble "contrainte extérieure/système vitreux".
- L'étude du régime non linéaire, où les effets produits sur le système cessent d'être proportionnels à la contrainte appliquée, est un très bon révélateur de la nature de cette "petite portion" qui domine le problème du transport.

Ainsi, dans le chapitre 1, consacré à l'étude des échauffements produits dans des verres isolants soumis à des micro faisceaux de particules, nous verrons que le problème du transport (de la chaleur) est dominé par les fluctuations *temporelles* de l'intensité du faisceau incident : la somme des effets thermiques induits sera dominée par ce qu'il se passe durant les brefs instants où le faisceau est d'intensité "exceptionnellement" élevée. Toute cette physique provient de la très faible conductivité thermique du verre, 10 à 100 fois plus faible que celle des cristaux, à Température ambiante.

Le chapitre 2 est consacré à l'étude de la conduction par sauts entre états électroniques localisés par le désordre. Dans ce cas, contrairement au chapitre 1, l'intensité de

[2] Cette idée souffre quelques exceptions, comme par exemple le fait que, pour $T \leq 7$K le Bismuth transporte infiniment mieux le courant lorsqu'il est amorphe (il est alors supraconducteur) que lorsqu'il est cristallin (il est alors normalement métallique). Mais il est bien connu, depuis les développements de la Théorie de Landau des Liquides de Fermi, que l'instabilité supraconductrice joue un rôle tout à fait exceptionnel pour les systèmes électroniques.

la contrainte appliquée (celle du champ électrique F) peut être maintenue parfaitement stable dans le temps. Cependant, nous verrons que ce sont alors les "fluctuations *spatiales*" qu'il faut prendre en compte pour comprendre le transport. Nous montrerons, en effet, que, suivant la valeur du champ électrique F, le chemin qui porte l'essentiel du courant électrique, dans le verre, n'est pas du tout le même : pour $F \to 0$, il s'agira d'un chemin de type "percolation isotrope", alors que dans la limite $F \to \infty$ ce sera un chemin de type "percolation dirigée". Nous montrerons que le comportement non linéaire courant tension permet justement de "voir" cette transformation d'un type de chemin en l'autre, et d'obtenir certains renseignements nouveaux sur la topologie de ces chemins de percolation.

Enfin, le chapitre 3 traite de la constante diélectrique basse fréquence dans les verres isolants. Cette étude s'inscrit dans le cadre qu'on appelle "le modèle des doubles puits" élaboré par Anderson, Halperin et Varma (et indépendamment par Philipps) au début des années 70. Nous rappellerons que ce modèle, en dépit de sa simplicité extrême, permet de rendre compte du comportement si particulier des verres, surtout aux plus basses températures. Cependant, nous montrerons qu'en y regardant de plus près, le comportement non linéaire de la constante diélectrique ne peut *pas* être expliqué dans ce modèle. Nous proposerons alors, suivant un travail récent de Burin *et al.*, que le problème du transport dans ces systèmes est dominé par "des fluctuations *spatio-temporelles*" tout à fait particulières : les doubles puits n'interagissent efficacement que s'ils sont quasi semblables (donc *a priori* assez éloignés les uns des autres), et, de plus, l'interaction ne joue un rôle qu'à certains instants bien précis de la période électrique, qui dépend des caractéristiques fines des deux doubles puits considérés.

Nous nous permettons une remarque de forme : la longueur de ce document atteint la limite supérieure autorisée à cause des efforts qui ont été faits pour le rendre "lisible". En particulier, chaque sous-chapitre comporte une introduction exposant le problème traité et une conclusion synthétisant les résultats principaux. On peut donc sauter des sous chapitres entiers, sans pour autant perdre le fil de la lecture. Une autre façon de lire ce document est de ne considérer que les Figures et leurs légendes, qui constituent un sous ensemble suffisant pour comprendre l'essentiel de ce qui est dit. Enfin, bien sûr, on peut, si on le désire, lire ce travail en entier. Dans ce cas, l'exposition des problèmes a été conçue pour qu'aucune consultation de la bibliographie ne soit nécessaire, même pour une compréhension détaillée des résultats obtenus.

Chapitre 1

Fluctuations temporelles et thermométrie sous micro faisceau.

Introduction

L'étude des échauffements durant l'irradiation d' échantillons solides a déjà fait l'objet de nombreux travaux [1], [2], [3], [4]. Cependant, les résultats que nous présentons ici à ce sujet sont originaux [5], puisqu'ils répondent au besoin de prévoir les perturbations que subit un échantillon étudié par un *nouveau* type de faisceau : celui d'une "Microsonde Nucléaire" [6], c'est à dire un faisceau d'ions légers (protons ou alphas de quelque MeV d'énergie) de taille transverse *micronique* [6]. En effet, le Laboratoire Pierre Süe met à la disposition de la communauté scientifique un tel outil à des fins *d'analyse* pour des thèmes scientifiques aussi variés que les sciences de la Terre, la microbiologie ou l'environnement. Disons en un mot que l'analyse dont il s'agit est celle de la composition élémentaire de l'échantillon que l'on peut déduire à l'échelle du micron à partir du spectre en énergie des diverses particules secondaires générées par l'interaction faisceau/matière (tels que les photons X, les électrons émis, les ions rétro diffusés, etc ...). Il s'agissait donc de savoir si avec des faisceaux aussi concentrés (et donc des densités accrues d'énergie dissipée), les faisceaux d'ions légers conservaient, ou pas, leur caractère peu perturbatif.

Les verres étant parmi les solides qui conduisent le plus mal la chaleur, c'est *a priori* dans ce genre de matériau que les échauffements sont les plus élevés. C'est pourquoi nous avons mis au point un réseau de micro thermocouples lithographiés sur un substrat de verre, permettant d'avoir accès en temps réel aux échauffements produits dans ce verre lors de son irradiation à la Microsonde Nucléaire. Nous verrons dans un premier temps le principe de ce dispositif, ainsi que le fait que l'on peut rendre compte, par une résolution élémentaire de l'équation de la chaleur, des échauffements mesurés en tout point à condition que ces derniers soient préalablement moyennés sur le temps.

En second lieu, nous montrerons que les fortes fluctuations de l'échauffement, mesurées aux courtes échelles de temps, sont imputables aux fluctuations de l'intensité du faisceau incident. Ceci a posé un problème nouveau qui est la résolution de l'équation de la chaleur lorsque le terme source est *bruité*, c'est à dire aléatoire. Dans le cas d'un bruit blanc, nous donnerons la solution *exacte* de ce problème et montrerons que *les fluctuations de l'échauffement ont toujours tendance à dominer sur sa valeur moyenne pourvu que l'on s'approche suffisamment près de la zone irradiée*. C'est cette découverte de la prééminence des fluctuations temporelles pour le transport de la chaleur dans les verres qui a donné naissance au titre de ce chapitre, et que l'on retrouve dans le titre de ce mémoire.

Enfin, le troisième point s'attache aux effets thermiques induits par les échauffements dans deux cas bien distincts : le claquage optique d'un échantillon de Quartz irradié par un laser femto seconde et la vaporisation d'une fine couche de Zn irradiée à la Microsonde Nucléaire. Comme dans les prochains Chapîtres, nous retrouverons alors l'importance des non linéarités, importance soulignée dans le titre de ce mémoire.

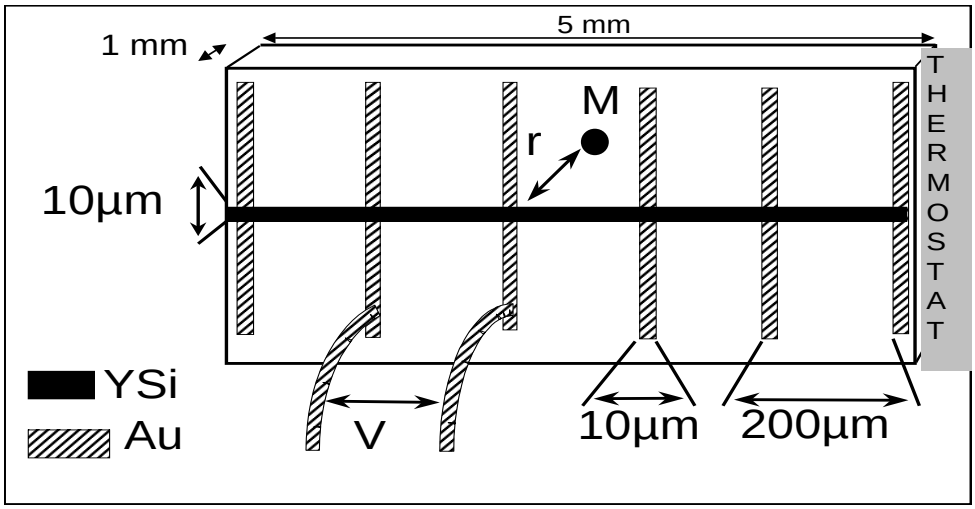

FIG. 1.1 – Micro thermocouples Au/$a-$YSi lithographiés sur substrat de verre ($a-SiO_2$). Le pouvoir thermoélectrique des semi-conducteurs, ici $-a$YSi, étant très supérieur à celui des métaux tels que l'Or, l'échauffement, produit en tout point de la surface du verre lors d'une irradiation au point M, génère entre deux barrettes d'Or une tension électrique V proportionnelle à la différence de température existant entre les deux points où ces barrettes interceptent l'$a-$YSi.

1.1 Mesures de l'échauffement *moyen* à l'échelle du μm.

Nous présentons ici le principe de fonctionnement de nos micro thermocouples, en insistant sur les premiers résultats que ces dispositifs ont fourni, à savoir les mesures de l'échauffement moyenné sur le temps. En effet, même si ces résultats sont conformes aux prédictions élémentaires de l'équation de la chaleur, cette conformité même nous permettra d'établir la validité des mesures d'échauffements sous micro faisceau dont nous nous servirons dans tout ce premier chapitre.

1.1.1 Micro thermocouples et cadre expérimental.

Comme le montre la Figure 1.1 page 4, nos micro thermocouples sont constitués d'une microstructure déposée sur un substrat de verre par des techniques de lithographie standard. Vu de dessus, il s'agit d'un fin ruban (10μm de large) de semi-conducteur amorphe ($a-$YSi que nous retrouverons au Chapître 2) intercepté sur 5mm par des rubans d'Or de dimensions analogues, ces rubans d'Or étant espacés de 200μm. Du fait du pouvoir thermoélectrique bien plus faible pour les métaux ($\simeq 1\mu$V/K) que pour les semi-conducteurs, l'échauffement produit, en tout point de la surface du verre, par une irradiation au point M, ne génèrera de tension thermoélectrique notable que le long du ruban d'$a-$YSi. Cette tension sera interceptée par les rubans d'Or, et la tension entre deux rubans d'Or sera proportionnelle à la différence de température entre les deux jonctions Au/$a-$YSi correspondantes.

La Figure 1.2 page 5 montre l'étalonnage de ce dispositif, réalisé indépendamment de toute irradiation, permettant de déterminer le pouvoir thermoélectrique $S(T)$, c'est à dire le coefficient de proportionnalité entre une tension thermoélectrique δV résultant d'un échauffement infinitésimal $\delta\theta$ autour d'une température moyenne T. Ce coefficient est presque 10 fois moins élevé que celui de semi-conducteurs dopés usuels, mais en revanche il dépend négligeablement de la température du substrat T, ce qui facilitera grandement le dépouillement des mesures puisque l'on pourra écrire $V = S\theta$ même si ces grandeurs ne sont pas des infiniment petits.

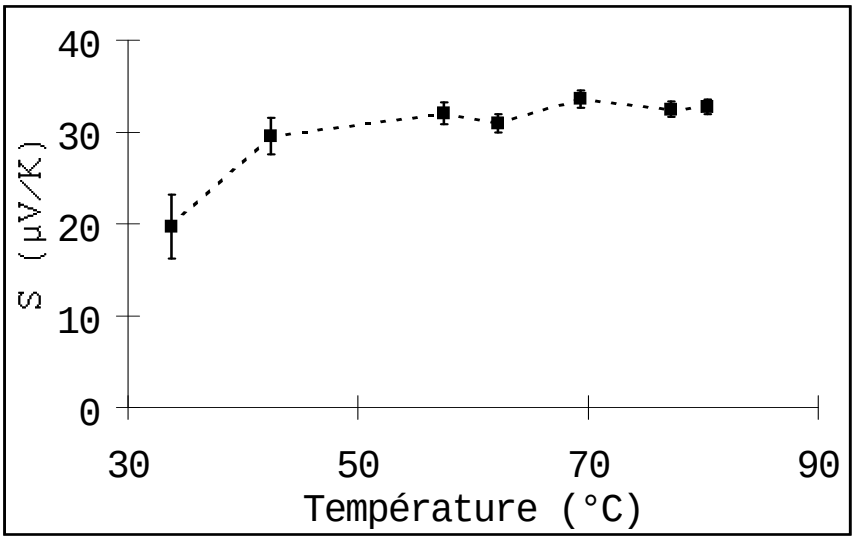

FIG. 1.2 – Pouvoir thermoélectrique S de l'$a-YSi$, mesuré indépendamment de toute irradiation. Pour traduire les tensions thermoélectriques mesurées en échauffement, on prendra $S = 30\mu$V/K à toute température.

Le dispositif de la Figure 1.1 est ensuite enserré par une de ses extrémités sur un porte échantillon en Cuivre massif servant de réservoir thermique (symbolisé par "Thermostat"). Des pistes de cuivre (500μm de large) indépendantes déposées sur du capton collé sur le porte échantillon permettent recevoir des fils d'Or, soudés par ultra sons, qui font le lien entre chaque ruban d'Or et chaque piste : ainsi on peut ressouder sur chaque piste un fil "macroscopique" (d'une fraction de mm de diamètre) que l'on pourra amener à l'entrée des amplificateurs de tension mesurant les signaux thermoélectriques. Les seules parties en plastique sont les gainages des câbles coaxiaux protégeant les fils "macroscopiques" : ceci limite la pollution du vide par dégazage et permet à l'ensemble du dispositif de fonctionner dans la chambre d'irradiation où le vide doit être impérativement meilleur que 10^{-5} mbar.

Le caractère in situ de ces mesures d'échauffement impose des contraintes supplémentaires : afin de pouvoir mesurer correctement l'intensité du faisceau incident, il faut polariser le dispositif de la Figure 1.1 à 100V pour forcer les électrons "secondaires" (émis par la surface de l'échantillon du fait de l'impact du faisceau) à retomber sur l'échantillon. Cette polarisation statique exige en retour que les amplificateurs de tension soient parfaitement découplés de la masse, ce qui n'est pas le cas pour les amplificateurs standards pour lesquels la polarisation statique génère des courants de fuite de plusieurs μA, mille fois supérieurs au courant de faisceau que l'on souhaite mesurer avec l'ampèremètre A de la Figure 1.3. Il a donc fallu trouver des amplificateurs où l'isolation entre la tension d'entrée et la masse est quasi parfaite (réalisée par isolation galvanique), amplificateurs dont la résolution en tension est de 1 à quelques μV (suivant les conditions d'utilisation) soit typiquement $0.01 - 0.1$K pour nous.

En plus de cette résolution finie sur la valeur absolue de l'échauffement, le dispositif de la Figure 1.1 a une résolution spatiale de l'ordre de la largeur des jonctions Au/$a-$YSi (voir Figure 1.3) et une résolution temporelle liée au temps de thermalisation τ du thermocouple sur le substrat. Un raisonnement simple montre que $\tau = \mathcal{R}ce$ où c est la chaleur spécifique volumique, $e = 0.8\mu$m est l'épaisseur de la microstructure (Au $+a-YSi$) et $\mathcal{R}$ est la résistance thermique de contact (par unité de surface) entre la microstructure et le substrat. La valeur de $\mathcal{R}$ peut varier sur deux ordres de grandeur [7], [8], suivant les détails (trop fins pour être maîtrisés par nous) de la technique de dépôt : on arrive ainsi à estimer *a priori* que 30μs$\leq \tau \leq 3$ms. Nous verrons dans la dernière partie de ce chapitre que les impulsions thermiques sous faisceau laser permettent de mesurer $\tau \simeq 0.4$ms.

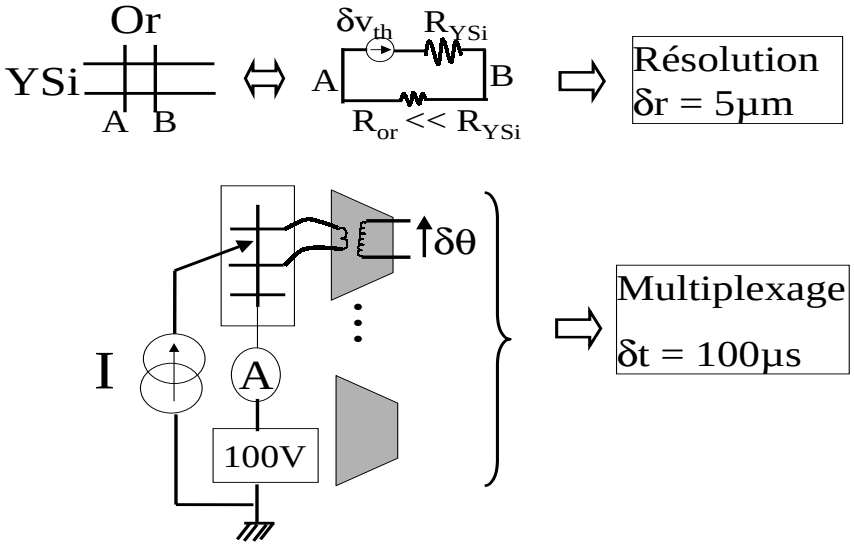

FIG. 1.3 – *En haut* : la très faible résistance du carré d'Or dans une jonction Au/$a-$YSi annule toute tension électrique entre les deux bords A et B, ce qui limite la résolution spatiale sur le profil d'échauffement à la demi-largeur des barrettes d'Or (soit ici 5μm) dans le cas d'un faisceau parfaitement centré sur la jonction. *En bas* : Dispositif de mesure autour de la chambre d'irradiation de la Microsonde, assimilée ici à une source de courant parfaite : une série d'amplificateurs de tension multiplexés permet de mesurer chaque tension thermoélectrique toutes les 100μs. L'ensemble du dispositif étant porté à une tension continue de 100V (par rapport à la chambre d'irradiation constituant la masse électrique) afin de re-piéger sur l'échantillon les électrons émis par la zone irradiée : ceci permet une mesure fiable du courant de faisceau via l'ampèremètre A.

Signalons les nombreuses embûches qui auraient pu rendre la mesure infaisable ou presque : les jonctions Au-$a-$YSi auraient pu ne pas être ohmiques (se comporter comme des "diodes"), les charges implantées dans l'échantillon auraient pu perturber par effet électrostatique les mesures de tension [1], S aurait pu violemment dépendre de T. Nous avons vérifié que rien de tout cela ne se produisait, ce que vont confirmer les résultats sur l'échauffement moyen et les prédictions de l'équation de la chaleur que nous abordons maintenant.

1.1.2 Mesures (et théorie) de l'échauffement moyen.

Nous présentons ici les prédictions de l'équation de la chaleur pour l'échauffement dans le cas d'une source de chaleur indépendante du temps. Ces prédictions sont ensuite comparées avec les profils spatiaux mesurés pour l'échauffement moyenné sur le temps afin de tester la fiabilité de notre dispositif des Figures 1.1-1.3.

1.1.2.1 Prédictions de l'équation de la chaleur.

Un micro faisceau d'ions légers perd son énergie par interactions avec les électrons de l'échantillon d'une part et avec les noyaux des atomes de l'échantillon d'autre part. Le premier de ces deux mécanismes (dit "élastique", par convention) domine typiquement tant que les ions légers ont une énergie supérieure à 100keV, tandis que le second, appelé "inélastique", domine en fin de parcours des ions, lorsque leur énergie n'est plus que de

[1] On pourrait penser que les charges implantées par le faisceau rayonnent un champ introduisant une différence de potentiel entre deux rubans d'Or donnés, un peu comme dans un condensateur dont les électrodes (ici l'Or) feraient face à un diélectrique chargé. Ceci ne se produit pas grâce au court-circuit constitué par le ruban d'YSi qui relie tous les rubans d'Or entre eux, rendant l'ensemble de la structure équipotentielle.

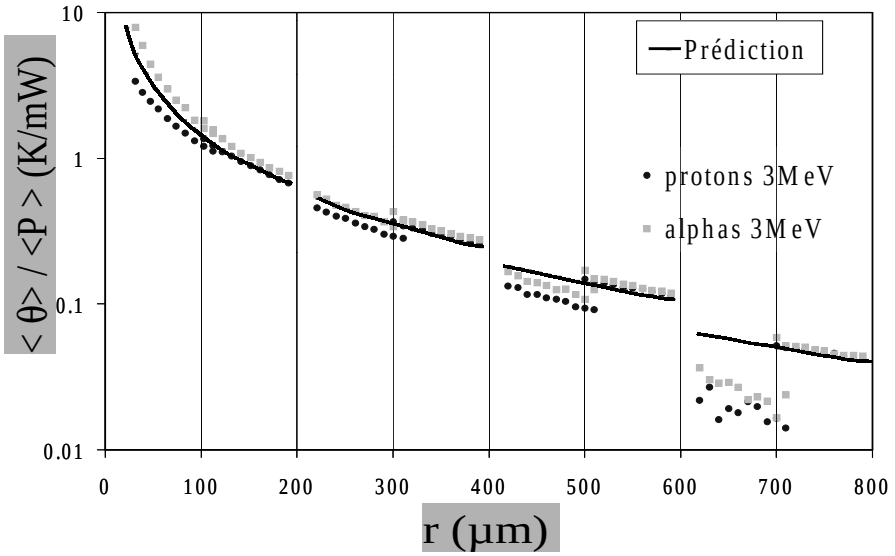

FIG. 1.4 – Echauffement moyen $< \theta >$ en fonction de la distance r entre le faisceau et le point le plus proche du couple de barrettes d'Or considéré. On a normalisé par la puissance moyenne incidente $< P >=< I\mathcal{V} >$ où $\mathcal{V} = 3MeV$ est l'énergie du faisceau. L'échauffement produit par les protons (en foncé) et les alphas (en clair) est identique à grande distance, ce qui est un point important pour assurer que les signaux mesurés sont bien d'origine thermique. La prédiction de l'équation de la chaleur est reportée en trait continu. L'origine des petites discontinuités $\simeq 0.1$K visibles tous les 100μm est donnée dans le texte.

l'ordre de quelques dizaines de keV. Il est important de noter que ces deux mécanismes conduisent à dissiper entièrement dans l'échantillon la presque totalité de la puissance du faisceau incident $< \mathcal{P} >=< I\mathcal{V} >$ [2] . En effet, les autres mécanismes, qui aboutissent à la perte d'énergie par l'échantillon du fait de l'émission de particules secondaires produites par l'interaction faisceau matière, représentent moins de 1% de $\mathcal{P}$ et sont donc négligeables d'un point de vue bilan thermique, même si ce sont eux qui contiennent toute l'information exploitable en termes d'analyse de l'échantillon.

La dissipation d'énergie d'un faisceau d'ions légers de l'ordre du MeV s'effectue sur une distance R_p comprise entre 10 et 100μm typiquement, R_p étant d'autant plus petite que le numéro atomique de la cible est élevé et/ou que la masse de l'ion incident augmente. Notant que cette échelle R_p n'est pas très différente du diamètre transverse $2r_s$ du micro faisceau, nous considérerons que la dissipation de l'énergie du faisceau se fait dans une demi-boule de rayon r_s de matériau. Cette modélisation nous permet, en notant c la chaleur spécifique volumique et κ la conductivité thermique, de pouvoir résoudre très simplement l'équation de la chaleur donnant l'échauffement θ :

$$c\frac{\partial\theta(\overrightarrow{r},t)}{\partial t} = \kappa\Delta\theta(\overrightarrow{r},t) + \rho(\overrightarrow{r},t) \tag{1.1}$$

puisque la densité volumique de puissance incidente $\rho(\overrightarrow{r},t)$ est alors à symétrie (hémi)-sphérique :

$$\rho(\overrightarrow{r}) = \begin{cases} \frac{<I\mathcal{V}>}{(2/3)\pi r_s^3} & \text{si } r \leq r_s \\ 0 & \text{si } r \geq r_s \end{cases} \tag{1.2}$$

le facteur $2/3$ ci-dessus traduisant que la source de puissance n'occupe qu'une demi-sphère de matériau. Grâce à la symétrie hémisphérique la solution de l'équation 1.1 est très simple :

[2] Les crochets servant ici à indiquer une moyenne sur le temps rappelant que jusqu'à nouvel ordre, nous ne considérons pas les fluctuations temporelles de $\mathcal{P}$.

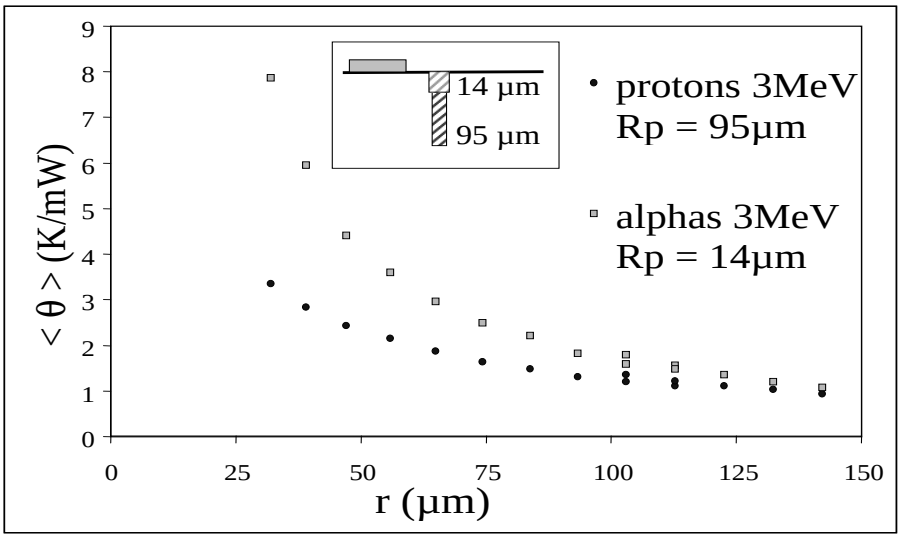

FIG. 1.5 – Détail de la Fig. 1.4 pour les courtes distances. Du fait de leur interaction plus forte avec l'échantillon, le faisceau d'alphas s'arrête au bout d'une distance $R_p \simeq 14\mu$m, bien inférieure à la valeur correspondante pour les protons de même énergie $R_p \simeq 95\mu$m. C'est pourquoi l'échauffement mesuré en surface du verre par le micro thermocouple est supérieur dans le cas des alphas que dans celui des protons.

$$< \theta > (r) = \begin{cases} \left(\frac{<I\mathcal{V}>}{2\pi\kappa r_s}\right)\left(\frac{3}{2} - \frac{r^2}{2r_s^2}\right) & \text{if } r \leq r_s \\ \frac{<I\mathcal{V}>}{2\pi\kappa r} & \text{if } r \geq r_s \end{cases} \tag{1.3}$$

les crochets rappelant que nous sommes face à un problème indépendant du temps [3].

Avant de comparer cette prédiction avec nos mesures, signalons que l'équation 1.1 dont elle découle est une version simplifiée de l'équation de la chaleur. On a en effet négligé les termes de convection car les expériences sont réalisées sous vide, ainsi que les termes de rayonnement car les échauffements sont localisés sur des surfaces tellement petites (on est en micro faisceau) que l'on peut montrer que ces termes sont toujours négligeables.

1.1.2.2 Prédictions de l'équation de la chaleur.

Les mesures de $\theta(r)$ présentées ici ont été réalisées en mesurant cycliquement les tensions thermoélectriques apparaissant entre les 8 paires de rubans d'Or situées de part et d'autre du faisceau focalisé en un point M proche du ruban d'$a-$YSi. Pour une position M donnée on a donc 8 signaux, que l'on reporte sur la Figure 1.4 page 7, correspondant à $< \theta(r_{pp}) - \theta(r_{pp} + 200\mu\text{m}) >$, où r_{pp} désigne la distance entre M et la jonction Au/YSi la plus proche pour le couple de jonctions considéré. On recommence l'opération pour une nouvelle position M, décalée de 10μm le long d'$a-$YSi par rapport à la précédente et ainsi, au bout de 10 opérations de ce type, on obtient l'ensemble de la Figure 1.4 page 7. Signalons que pour obtenir $< \theta >$ à partir de $\theta(t)$, on moyenne les mesures sur une dizaine de secondes d'irradiation, en excluant de la moyenne, bien sûr, les points correspondants au régime d' échauffement transitoire, régime qui s'étend, selon les valeurs de r_{pp} de 1ms à 1s [4]. Enfin, on s'est affranchi de la valeur précise de l'intensité de faisceau $< I >$ en normalisant θ par $\mathcal{P}$, utilisant en cela la linéarité de l'équation de la chaleur 1.1 ainsi que de la prédiction 1.3.

[3] L'analogie de l'équation 1.3 avec le potentiel électrostatique rayonné (dans un demi-espace) par une (demi)-sphère uniformément chargée est à signaler.

[4] On obtient cette échelle de temps par la relation, bien connue pour les phénomènes diffusifs "standards" tels ceux de propagation de la chaleur : $r_{pp}^2 = Dt$ où $D \simeq 10^{-6}\text{m}^2\text{s}-1$ est la diffusivité thermique.

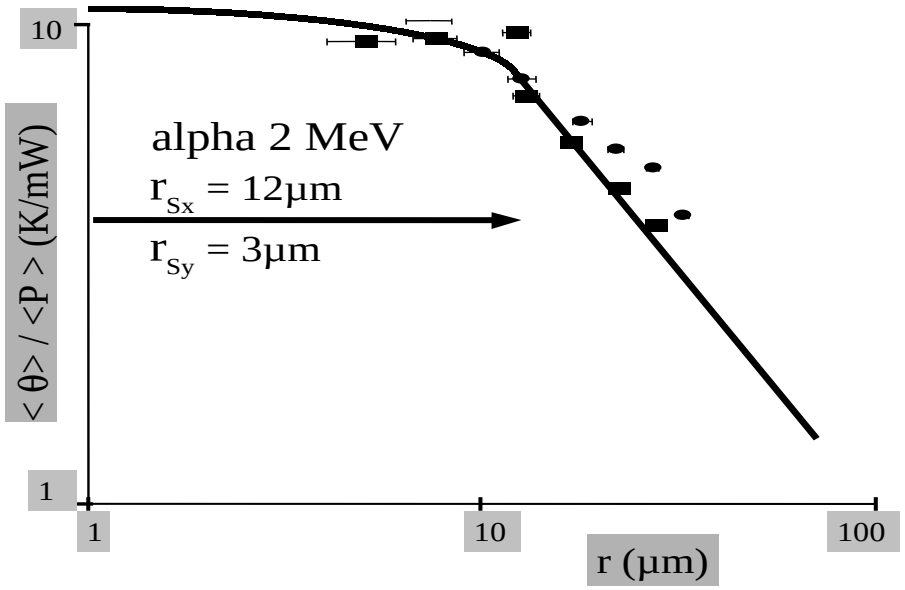

FIG. 1.6 – La faible épaisseur des micro thermocouples permet de mesurer l'échauffement à *l'intérieur* de la zone irradiée de taille $2r_{Sx} \times 2r_{Sy}$ puisque le faisceau peut passer à travers la microstructure sans quasiment perdre d'énergie. Pour cela, une jonction Au/$a-$YSi de dimensions inférieures est positionnée dans la zone irradiée, puis déplacée parallèlement à la grande dimension du faisceau. Hors du faisceau, $< \theta > \propto 1/r$ mais à l'intérieur du faisceau $< \theta >$ converge vers une valeur à peine supérieure à $\theta(r_{Sx})$ comme prédit par l'équation de la chaleur (trait plein) : cf. éq.1.3.

Sur la Figure 1.4, des discontinuités d'environ 0.1K, apparaissent tous les 100μm. Nous avons établi que cela provient de ce que l'échantillon de verre est thermalisé seulement à l'une de ses extrémités, ceci produisant une légère dissymétrie entre les couples de rubans d'Or situés du côté de la thermalisation et les autres (ces derniers étant légèrement plus chauds, toutes choses égales par ailleurs). Soulignons que l'échauffement moyen produit à grande distance $r \geq 400\mu$m par les protons ne diffère de celui produit par les alphas que de quelques centièmes de K alors que cette différence augmente systématiquement quand r diminue. Ceci se comprend bien car les alphas, qui s'arrêtent au bout de $R_p = 14\mu$m dans le verre, produisent une plus forte concentration volumique de puissance que les protons ($R_p = 95\mu$m) : on s'attend donc à ce que l'échauffement de surface (que nous mesurons) soit plus fort pour les alphas que pour les protons, comme cela est schématisé en encart de la Figure 1.5 page 8. Ceci se produit d'autant plus nettement que r devient de l'ordre de R_p, comme cela est montré sur la partie principale de la Figure correspondante.

Ayant établi que les signaux reportés sur les figures 1.4-1.5 sont qualitativement compatibles avec des signaux thermiques, passons à un point de vue purement quantitatif. Pour cela, nous considérons la prédiction 1.3 page 8 et, sans oublier que nous ne mesurons pas $< \theta(r_{pp}) >$ directement mais en fait $< \theta(r_{pp}) - \theta(r_{pp} + 200\mu\text{m}) >$, nous obtenons avec $\kappa = 1.5$W/(Km) le profil reporté en trait plein sur les Figures 1.4 page 7 et 1.6 page 9. L'accord est globalement satisfaisant. Signalons que sur la Figure 1.6 nous avons reporté les données correspondant aux alphas de $\mathcal{V} = 2$MeV car alors $R_p \simeq 9\mu\text{m} \simeq r_S$ ce qui signifie que c'est ce cas qui satisfait le mieux notre hypothèse simplificatrice de géométrie hémisphérique utilisée pour établir la prédiction 1.3. Rappelons que c'est l'épaisseur submicronique $e \simeq 0.8\mu$m de notre microstructure qui permet au micro faisceau de passer *a travers* les micro thermocouples, en y dissipant fort peu d'énergie. C'est ainsi que l'on a pu obtenir le profil thermique *à l'intérieur de la zone irradiée* en positionnant nos micro thermocouples les plus fins (jonctions Au/$a-$YSi de $5 \times 2\mu\text{m}^2$) au sein même de la zone irradiée : on constate alors que l'échauffement n'augmente plus que très lentement lorsque r diminue, comme prévu par la prédiction 1.3.

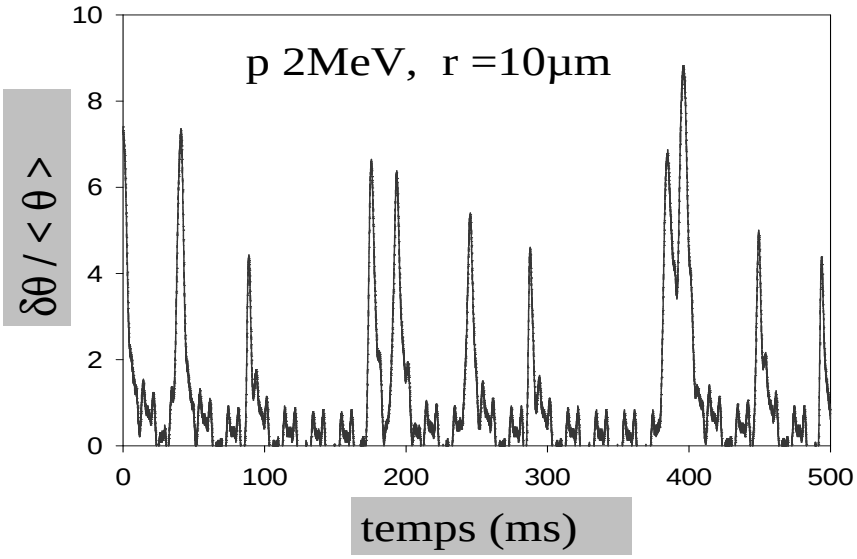

FIG. 1.7 – Fluctuations temporelles d'échauffement $\delta\theta$, normalisées par la valeur de l'échauffement moyenné sur le temps, pour un faisceau de protons de 2MeV. Les mesures ont été réalisées très près du faisceau (à une distance $r = 10\mu$m). Etant donné que l'échauffement dépend seulement de $\mathcal{P}$ et de r, les fluctuations enregistrées proviennent soit d'un mauvais montage expérimental permettant des fluctuations de la position r de la microstructure par rapport au faisceau, soit de fluctuations de $\mathcal{P}$. La comparaison de cette Figure avec la Figure 1.8 permet d'exclure les fluctuations de r et d'incriminer les fluctuations de $\mathcal{P}$, plus précisément les fluctuations de l'intensité de faisceau I, voir Figure 1.9.

Pour résumer, nous avons ici confronté l'équation de la chaleur et nos mesures d'échauffement résolues à l'échelle du micron. Vu le caractère extrêmement bien établi de l'équation de la chaleur (depuis Joseph Fourier vers 1820 !), il s'agissait non pas de tester cette équation mais bel et bien de savoir si notre dispositif inédit de mesures était fiable. Nous avons constaté un accord raisonnable des mesures effectuées grâce à nos micro thermocouples avec les prédictions de l'équation de la chaleur. Pour aussi importante que soit cette constatation, elle ne suffit pas à elle seule à totalement établir la fiabilité dont il est question. En effet, un certain nombre de *questions de droit* se posent : qu'en est-il de la tension générée par le courant de faisceau qui passe à travers le ruban d'YSi lorsqu'il rejoint la masse ? Y a-t-il un rôle joué par le fait que les électrons secondaires ne retombent pas exactement dans la zone irradiée dont ils ont été émis ? Des réponses à toutes ces questions se trouvent dans la thèse de Mr. G. PLumereau. Vu le caractère synthétique du présent document, nous ferons l'économie de ces questions et supposerons fermement établie la fiabilité des mesures faites avec nos microthermocouples.

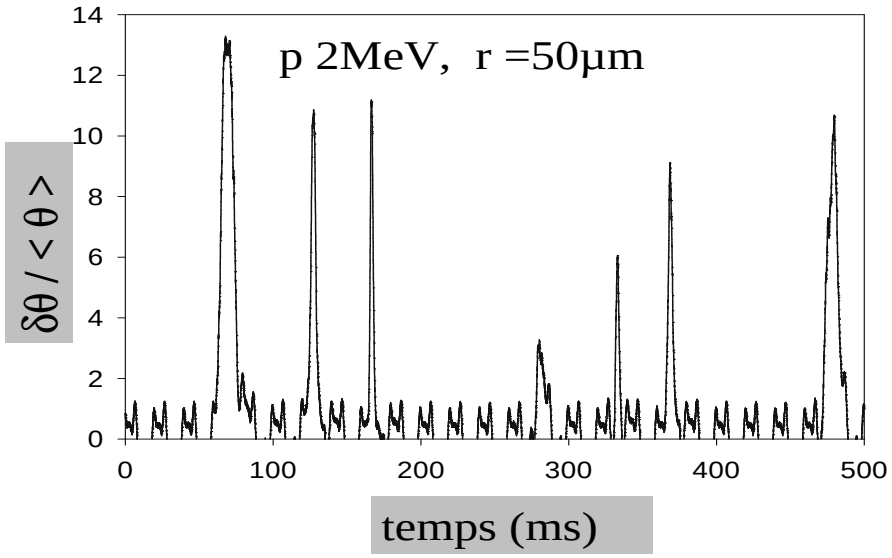

FIG. 1.8 – Données similaires à celles de la Figure 1.8 page 11, à ceci près que les mesures ont été faites 5 fois plus loin du faisceau ($r = 50\mu$m). Les fluctuations temporelles d'échauffement ont la même intensité relative que dans le cas des mesures à $r = 10\mu$m de la Figure 1.7 page 1.7. Ceci exclu que les fluctuations de r soient responsables des fluctuations mesurées car l'influence relative d'un bruit en position δr donné devrait s'atténuer à mesure que la distance r entre la microstructure et le faisceau s'accroît.

1.2 Echauffement de Bruit

Nous présentons ici la découverte de l'importance des fluctuations temporelles de l'échauffement. Il nous a semblé utile de respecter la chronologie du travail que nous avons effectué à ce sujet, c'est à dire de commencer par la découverte expérimentale, pour dans un second point passer à la modélisation qui a été la nôtre. Cette modélisation a bien sûr suggéré des mesures complémentaires et systématiques que nous présentons en troisième et dernier point.

1.2.1 Découverte des fluctuations d'échauffement

Considérons les Figures 1.7-1.8 obtenues en augmentant jusqu'à 50kHz la cadence de mesure des deux paires de rubans d'Or les plus proches du faisceau [5]. On constate que l'échauffement mesuré fluctue fortement aux échelles de temps de quelques ms à quelques dizaines de ms. Cette découverte inattendue était, dans la section précédente sur l'échauffement moyen, fortement masquée par le processus de moyenne interne réalisée par les amplificateurs de tension dont nous avions réglé la constante de temps à 0.25s. Reprenant l'équation de la chaleur 1.1, on devine que de telles fluctuations d'échauffement ne peuvent venir que de fluctuations soit de la puissance incidente ρ (et donc de sa valeur $\mathcal{P}$ intégrée sur le volume irradié), soit de fluctuations de r. En effet, les coefficients c et κ ne peuvent pas être raisonnablement mis en cause même en invoquant d'hypothétiques effets d'irradiation : d'une part selon la loi de Dulong et Petit, c est identique pour tous les matériaux [6] ; d'autre part les effets de variation de la conductivité thermique κ sous irradiation sont faibles et a priori non réversibles.

[5] On mesure systématiquement les deux paires de rubans d'Or les plus proches de façon à vérifier en permanence que ces deux signaux sont opposés puisque le gradient thermique se retourne lorsqu'on traverse la zone irradiée.

[6] Ce qui exprime que les degrés de liberté sont tous saturés d'énergie à température ambiante, c'est à dire que l'énergie interne atteint son maximum de $k_B T/2$ par degré de liberté, avec k_B la constante de Boltzmann.

Peut-on alors rendre responsables d'hypothétiques fluctuations δr de r, la position de la microstructure par rapport à l'échantillon, pour expliquer les données des Figures 1.7-1.8 ? Passant sur les précautions expérimentales systématiques réduisant δr, comme la mise du porte-échantillon en appui d'un patin rigidement lié au bâti ultra-vide, la comparaison des Figures 1.7 et 1.8 permet de conclure. En effet, supposons que δr soit la cause principale des fluctuations constatées. On s'attend alors à ce que un bruit expérimental de position donné ait une influence relative sur l'échauffement d'autant plus faible que r augmente. Or nous constatons justement l'inverse, à savoir que les fluctuations relatives de l'échauffement sont sensiblement les mêmes près du micro faisceau ($r = 10\mu$m) que loin ($r = 50\mu$m). Ceci permet d'exclure δr comme source principale des fluctuations d'échauffement.

Ce doit donc être $\mathcal{P} = I\mathcal{V}$ qui fluctue. Or, les accélérateurs d'ions légers sont conçus pour réduire les fluctuations de l'énergie du faisceau à un niveau insignifiant [7]. Ceci est en effet tout à fait impératif du fait que les processus générant les particules secondaires par interactions faisceau matière (réactions nucléaires, production d'X, rétro diffusion, etc...) dépendent fortement de l'énergie du faisceau incident. Par construction, on sait donc que les fluctuations temporelles de $\mathcal{V}$ sont limitées à mieux que 1 pour mille. C'est donc l'intensité de faisceau I qui doit être la source des fluctuations d'échauffement. Nous avons vérifié ce point par des mesures directes de l'intensité avec un ampèremètre rapide, et qualitativement constaté que les fluctuations d'intensité de faisceau "ressemblaient" nettement aux fluctuations d'échauffement. Cependant, pour des raisons explicitées en légende de la Figure 1.9, nous ne pouvons pas effectuer en même temps des mesures rapides de tensions thermoélectriques et d'intensité, la conjonction de ces mesures étant seulement possible dans le cas des mesures "continues" évoquées dans les Figures 1.1 à 1.6.

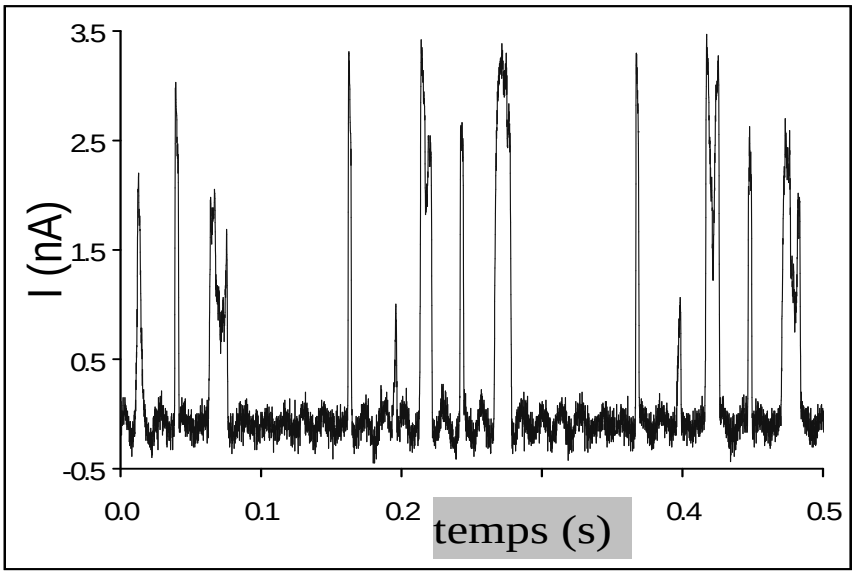

FIG. 1.9 – Fluctuations de l'intensité du faisceau de protons de $\mathcal{V} = 2$MeV utilisé pour mesurer les données des Figures 1.7 et 1.8. On reconnaît, au moins qualitativement, l'échelle de temps et la forme des fluctuations d'échauffement montrées précédemment. Les mesures d'intensité sont faites en l'absence de tout couplage aux amplificateurs mesurant la tension thermoélectrique. En effet, ces derniers injectent vers la masse un courant oscillant, à 50Hz, dont l'amplitude est presque 10 fois supérieure aux intensités de faisceau reportées ici, probablement à cause d'une isolation imparfaite entre l'alimentation de ces amplificateurs et l'étage d'entrée.

Nous arrivons donc à un problème inattendu : celui de l'équation de la chaleur avec un terme source spatialement localisé à l'échelle du micron, mais fortement fluctuant en

[7] Grâce, en particulier à la mise en place d'un tri des particules primaires par un aimant extrêmement précis.

temps. Ceci fait l'objet du paragraphe suivant.

1.2.2 Calcul de la température de Bruit

1.2.2.1 Mise en équation du problème

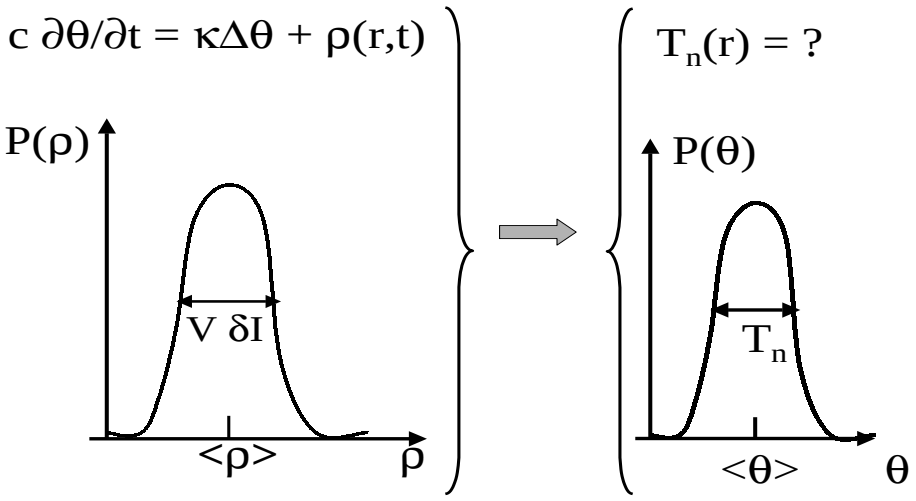

FIG. 1.10 – Résumé du problème de "la température de bruit" : étant donné que dans l'équation de la chaleur 1.1 la source ρ est une fonction aléatoire du temps, avec une certaine loi de probabilité, quelles sont les caractéristiques probabilistes correspondantes de l'échauffement, en tout point r donné de l'échantillon ? En particulier, que vaut son écart type T_n et quelle est sa dépendance en r ?

1.2.2.1.1 Caractérisation spectrale du bruit Du fait de la linéarité de l'équation de la chaleur, nous nous intéressons désormais exclusivement à la partie aléatoire $\rho_n(\overrightarrow{r},t)$ du terme source défini par :

$$\rho_n(\overrightarrow{r},t) = \rho(\overrightarrow{r},t) - <\rho(\overrightarrow{r})>_t = \rho(\overrightarrow{r},t) - <\rho>(\overrightarrow{r}) \tag{1.4}$$

Bien sûr, $\rho_n(\overrightarrow{r},t)$ est une fonction aléatoire et elle ne peut pas être décrite par une fonction usuelle du temps dont on pourrait prendre la transformée de Fourier. Car si tel était le cas, les valeurs passées suffiraient à prédire les valeurs futures de ρ_n qui ne seraient donc plus du tout aléatoires. Avant toute chose, il nous faut donc introduire des moyennes temporelles. Vu que $<\rho_n(r,t)>_t = 0$, la plus simple serait la variance $\sigma^2 = <\rho_n(\overrightarrow{r},t)^2>_t$, mais en fait il est plus pratique d'introduire une fonction plus générale [9] :

$$g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau) = <\rho_n(\overrightarrow{r},t)\rho_n(\overrightarrow{r}',t+\tau)>_t \tag{1.5}$$

On obtient ainsi $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r},0) = \sigma^2$ et pour $\tau > 0$ les valeurs de $\rho_n(\overrightarrow{r},t)$ et $\rho_n(\overrightarrow{r},t+\tau)$ sont de moins en moins corrélées ce qui produit une décroissance globale $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau)$. Il est pratique d'appréhender ce comportement avec τ est d'introduire la transformée de Fourier de g par rapport à τ :

$$g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',f) = \int g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau)e^{2i\pi f\tau}df \tag{1.6}$$

Un signal aléatoire donné est spécifié par les valeurs de $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',f)$. Par exemple, un bruit blanc est défini par : $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',f) = \Delta\rho^2_\square(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}')$ où $\Delta\rho^2_\square(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}')$ ne dépend pas de f. Ceci revient à dire que le temps de mémoire du signal sur lui-même est nul puisque alors on a : $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau) = \Delta\rho^2_\square(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}')\delta(\tau)$.

1.2.2.1.2 Cas du faisceau ponctuel et du bruit blanc Pour simplifier, nous considèrerons le faisceau comme étant parfaitement ponctuel et parfaitement blanc, réservant à plus tard une discussion de la levée de ces idéalisations. Donc nous choisissons $\Delta\rho^2_\square(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}') = \Delta q^2_\square \delta(\overrightarrow{r})\delta(\overrightarrow{r}')$, c'est à dire pour g :

$$g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau) = \Delta q^2_\square \delta(\tau)\delta(\overrightarrow{r})\delta(\overrightarrow{r}') \tag{1.7}$$

Avec cette équation et l'équation 1.1, nous cherchons maintenant à calculer la fonction d'auto corrélation de l'échauffement générale $< \theta_n(\overrightarrow{r},t)\theta_n(\overrightarrow{r}',t+\tau) >$. Pour cela, en premier lieu, nous transformons de Fourier l'équation de la chaleur 1.1 par rapport à l'espace et au temps, ce qui amène :

$$\theta\,(\overrightarrow{\nu},f) = \frac{\rho\,(\overrightarrow{\nu},f)}{4\pi^2\kappa\nu^2 - 2i\pi cf} \tag{1.8}$$

et permet donc d'obtenir pour la fonction de corrélation de l'échauffement :

$$< \theta(\overrightarrow{\nu},f)\theta(\overrightarrow{\nu}',f') >= \frac{< \rho(\overrightarrow{\nu},f)\rho(\overrightarrow{\nu}',f') >}{(4\pi^2\kappa\nu^2 - 2i\pi cf)(4\pi^2\kappa\nu'^2 - 2i\pi cf')} \tag{1.9}$$

Il ne reste plus, pour achever de poser le problème, qu'à insérer les caractéristiques du bruit considéré, synthétisées par la fonction g que nous transformons de Fourier par rapport à $(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',t,t+\tau)$, pour obtenir $< \rho(\overrightarrow{\nu},f)\rho(\overrightarrow{\nu}',f') >= \Delta q^2_\square \delta(f+f')$. Soulignons que le facteur $\delta(f+f')$, qui va introduire une grande simplification du calcul, provient de ce que, par construction même, la fonction $g(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}',\tau)$ ne doit pas dépendre du temps t. Par transformée de Fourier inverse, nous aboutissons à l'expression générale recherchée :

$< \theta_n(\overrightarrow{r},t)\theta_n(\overrightarrow{r}',t+\tau) >=$

$$\int\int\int\int \frac{\Delta q^2_\square \delta(f+f') e^{-2i\pi\overrightarrow{\nu}\overrightarrow{r}} e^{-2i\pi ft} e^{-2i\pi\overrightarrow{\nu}'\overrightarrow{r}'} e^{-2i\pi f'(t+\tau)} df\, d\overrightarrow{\nu}\, df'\, d\overrightarrow{\nu}'}{(4\pi^2\kappa\nu^2 - 2i\pi cf)(4\pi^2\kappa\nu'^2 - 2i\pi cf')} \tag{1.10}$$

Nous allons maintenant donner les résultats exacts dans certains cas particuliers intéressants.

1.2.2.2 Valeur de la température de bruit

1.2.2.2.1 Profil spatial de la $\mathcal{T}_n$. Pour un faisceau ponctuel et un bruit blanc, examinons d'abord le cas où $\tau = 0$ et $\overrightarrow{r} = \overrightarrow{r}'$. En effet, dans ce cas, nous pouvons définir l'amplitude *typique* des fluctuations d'échauffement $\mathcal{T}_n(\overrightarrow{r})$ par :

$$\mathcal{T}_n(\overrightarrow{r}) = \sqrt{< \theta^2_n(\overrightarrow{r},t) >} \tag{1.11}$$

Avec cette définition, $\mathcal{T}_n(\overrightarrow{r})$ est l'écart type des fluctuations d'échauffement pour une position $\overrightarrow{r}$ donnée et nous appellerons dans la suite $T_n(\overrightarrow{r})$ la "température de bruit" au point $\overrightarrow{r}$ considéré. Nous avons fait le calcul exact de la température de bruit dans tous les cas à symétrie simple : pour les échantillons "$d = 3$" (dont l'épaisseur est infiniment grande devant R_p) nous avons considéré une symétrie hémisphérique ; pour les échantillons "$d = 2$" dont l'épaisseur h est faible devant R_p nous avons choisi la symétrie cylindrique ; pour les échantillons "$d = 1$" dont les deux dimensions constituant la section S sont petites devant R_p nous avons choisi la symétrie droite-gauche. Nous obtenons finalement :

$$\begin{aligned}
\mathcal{T}_n(r) &= \left(\frac{\Delta q_\square}{4\pi^{\frac{3}{2}}\sqrt{\kappa c}}\right)\frac{1}{r^2} && si\text{"}d=3\text{"} && (1.12a)\\
&= \left(\frac{\Delta q_\square\sqrt{N_2}}{2\pi h\sqrt{\kappa c}}\right)\frac{1}{r} && si\text{"}d=2\text{"} && (1.12b)\\
&\simeq \left(\frac{\Delta q_\square}{\sqrt{2\pi}S\sqrt{\kappa c}}\right)\ln\left(\frac{R}{r}\right) && si\text{"}d=1\text{"} && (1.12c)
\end{aligned}$$

où N_1 et N_2 sont des constantes d'ordre 1 que l'on peut calculer exactement.

Soulignons que nous obtenons $\mathcal{T}_n(r) \sim \frac{1}{r^{d-1}}$ alors que l'échauffement moyen $< \theta > (r) \sim \frac{1}{r^{d-2}}$ comme il appert de l'équation 1.3 page 8 et de sa généralisation aux cas "$d = 2$" et "$d = 1$" ci-dessus mentionnés. L'influence relative de l'échauffement moyen $< \theta > (r)$ et de

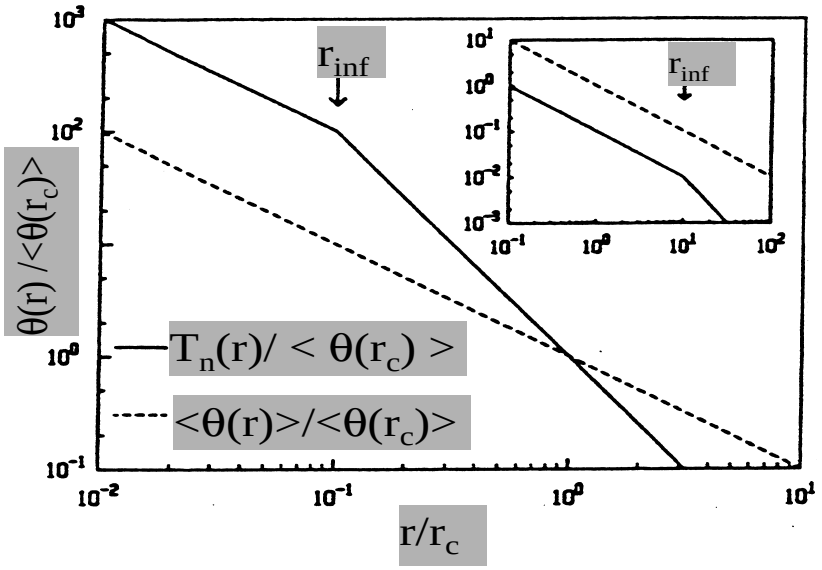

FIG. 1.11 – Lorsque la distance r au faisceau diminue, les fluctuations temporelles de l'échauffement jouent un rôle croissant car, pour un bruit blanc, leur amplitude typique $\mathcal{T}_n$ augmente comme $1/r^{d-1}$ alors que l'échauffement moyen $< \theta >$ n'augmente que comme $1/r^{d-2}$. Ceci provient de ce à mesure que la distance r diminue, les fréquences de bruit qui contribuent à l'échauffement sont plus nombreuses, s'étendant jusqu'à $f_r = D/r^2$, les fréquences supérieures ne contribuant quasiment pas car elles ont été largement amorties durant leur propagation depuis la zone irradiée. Dans le cas d'un bruit "gris" dont le spectre tombe à zéro pour $f \geq f_{sup}$, on en déduit que la dépendance en $1/r^{d-1}$ cesse d'être valable aux distances plus courtes que $r_{inf} = \sqrt{\frac{\kappa}{4\pi c}} \frac{\Delta q_\square}{<I\mathcal{V}>}$ et que $\mathcal{T}_n$ augmente alors comme $< \theta >$ en $1/r^{d-2}$. En encart on a représenté le cas où les fluctuations sont toujours négligeables dans l'échauffement global du fait qu'elles étaient déjà négligeables dans la source de puissance ρ, c'est à dire le cas où $\Delta q_\square$ est "petit".

la température de bruit $\mathcal{T}_n(r)$ dépend donc fortement de r : lorsque $r \to \infty$ l'échauffement moyen constitue l'essentiel de l'échauffement global θ ; *mais en revanche lorsque* $r < r_{inf} = \sqrt{\frac{\kappa}{4\pi c}} \frac{\Delta q_\square}{<I\mathcal{V}>}$, $\mathcal{T}_n(r)$ *domine l'échauffement global*, comme cela est décrit par la Figure 1.11.

Les équations 1.12a-c constituent donc le noyau de notre résultat majeur sur le transport thermique : *les fluctuations temporelles de l'échauffement sont susceptibles de dominer l'échauffement moyen lorsque l'on se rapproche de la zone irradiée*. Les paragraphes qui suivent vont permettre de comprendre plus en profondeur ce résultat.

1.2.2.2.2 Calcul des corrélations temporelles de l'échauffement. Pour étudier le comportement en temps des fluctuations d'échauffement en un point r fixé, nous considérons, toujours pour un faisceau ponctuel et un bruit blanc, la fonction de corrélation $\mathcal{C}(r,\tau)$ de l'échauffement pour $\tau \neq 0$ et $r = r'$. $\mathcal{C}(r,\tau)$ s'obtient à partir de l'équation générale 1.10 page 14 puisque $\mathcal{C}(r,\tau) =< \theta_n(r,t)\theta_n(r,t+\tau) >$. Sans entrer dans les détails signalons que contrairement aux équations 1.12a-1.12c qui sont exactes, le calcul de $\mathcal{C}(r,\tau)$ requiert de faire une approximation dite "du col" (laquelle peut néanmoins être contrôlée), ne donnant accès qu'au comportement asymptotique $\mathcal{C}(r,\tau \to \infty)$.

Puisque $\mathcal{C}(r,0) = \mathcal{T}^2_{noise}(r)$, il est naturel de poser $\mathcal{D}(r,\tau) = \frac{\mathcal{C}(r,\tau)}{\mathcal{C}(r,0)}$, i.e. $\frac{\mathcal{C}(r,\tau)}{\mathcal{T}^2_{noise}(r)}$. Il appert que pour le cas "$d = 3$" $\mathcal{D}(r,\tau)$ dépend seulement de $\frac{\tau}{\tau_r}$ où $\tau_r = \frac{r^2}{D}$ est le temps caractéristique déjà vu de diffusion thermique. Le régime asymptotique correspond donc à $\tau \gg \tau_r$. Ceci est montré sur la Figure 1.12 où l'on donne le calcul numérique de $\mathcal{D}(r,\tau)$ en fonction de $\frac{\tau}{\tau_r}$. Soulignons que : i) plus la dimensionnalité d est élevée, plus est rapide la décroissance de $\mathcal{D}$ lorsque $\frac{\tau}{\tau_r}$ augmente ; ii) $\mathcal{C}(r,\tau \to \infty) \sim \mathcal{D}(r,\tau \to \infty) \sim \frac{1}{\tau^\mu}$ où les exposants $\mu(d)$ sont ceux prédits par l'approximation du col :

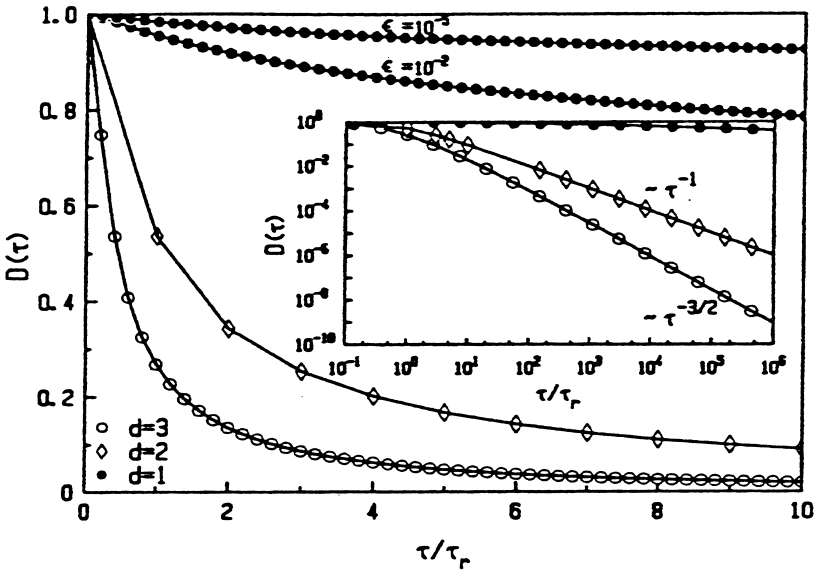

FIG. 1.12 – Décroissance temporelle de la fonction d'auto corrélation de l'échauffement, normalisée à sa valeur initiale. Plus la dimensionnalité d est élevée et plus vite les fluctuations se décorrèlent (plus rapide est la décroissance de $\mathcal{D}$). Signalons que $\tau_r = r^2/D$ est l'échelle de temps naturelle du problème. A $\tau \gg \tau_r$ les calculs numériques redonnent les valeurs prédites par l'approximation analytique "du col" : $\mathcal{D} \propto 1/\tau^\mu$ où μ dépend de d. Pour "$d = 1$" on a $\mu = 0$ c'est à dire une décroissance logarithmique, légèrement fonction du petit paramètre $\epsilon = r/R_e$ où R_e est la distance entre le faisceau et le thermostat.

$$\mathcal{D}(r, \tau \gg \tau_r) \sim \frac{1}{\tau^\mu} \quad \text{où} \quad \begin{cases} \mu = 3/2 & \text{si "}d = 3\text{"} \\ \mu = 1 & \text{si "}d = 2\text{"} \\ \mu = 0 & \text{si "}d = 1\text{"} \end{cases}$$

Ici $\mu = 0$ signifie en fait une dépendance logarithmique, laquelle ne peut d'ailleurs pas être correctement prédite par "l'approximation du col". Numériquement, on trouve que pour "$d = 1$" : $\mathcal{D}(r, \tau \gg \tau_r) \simeq 1 - \Lambda \frac{\ln(\frac{\tau}{\tau_r})}{\ln(\frac{R}{r})}$ avec $\Lambda \simeq 0.4$. Pour plus de détails voir la note[8] en bas de page.

Soulignons que les valeurs de μ donnent une information nouvelle, non contenue dans $\mathcal{T}_n(r)$. En effet, si l'on essaye d'injecter le $< r^2 >= D\tau$ usuel dans les équations 1.12a-c, on obtient les bonnes valeurs de μ pour les cas "$d = 1$" et "$d = 2$" mais en revanche dans le cas "$d = 3$" on obtient $\mu = 2$ ce qui n'est pas la valeur correcte.

1.2.2.2.3 Effet de la fréquence de coupure. Voyons maintenant si la dominance des fluctuations temporelles aux courtes distances se produit dans le cas plus réaliste où le bruit n'est pas blanc. Pour fixer les idées, nous supposerons que le bruit de la source est "gris", c'est à dire que le spectre de bruit est constant pour $f \leq f_{sup}$ où f_{sup} est une fréquence donnée et qu'il tombe à zéro pour les fréquences supérieures.

Théoriquement, il s'agirait donc de reprendre le calcul précédent avec une nouvelle fonction g. On peut éviter ceci en considérant ce qu'il se produit dans le cas d'une source ponctuelle *oscillante* à la fréquence f_0 :

$$\rho(\vec{r}, t) =< I\mathcal{V} > [1 + \cos(2\pi f_0 t)]\, \delta(\vec{r}) \tag{1.12}$$

[8]Pour être totalement rigoureux, signalons que les valeurs de μ données précédemment sont adéquates pour décrire les échelles de temps τ tels que $\tau_r \ll \tau \ll \tau_{res} = \frac{R_e^2}{D}$ où R_e est la taille globale de l'échantillon c'est à dire l'échelle où a lieu la thermalisation par le thermostat. Du fait de cette thermalisation, lorsque τ atteint $\tau_{res.}$, $\mathcal{D}$ décroît exponentiellement avec le temps. Cependant, comme $r_s \simeq 10\mu$m est extrêmement petit devant $R_e \geq 1$mm, l'échelle τ_{res} est extrêmement grande.

source dépendante du temps (mais bien sûr *non bruitée*) et dont la transformée de Fourier spatio-temporelle vaut :

$$\rho(\overrightarrow{\nu}, f) =< I\mathcal{V} > \left(\delta(f) + \frac{1}{2}(\delta(f - f_0) + \delta(f + f_0))\right) \tag{1.13}$$

ce qui inséré dans l'équation 1.8 amène, après transformées de Fourier inverses :

$$\theta(r,t) = \frac{< I\mathcal{V} >}{2\pi\kappa r}\left(1 + e^{-\frac{r}{r_{f_0}}}\cos(\frac{r}{r_{f_0}})\cos(2\pi f_0 t)\right) \tag{1.14}$$

où $r_{f_0} = \sqrt{\frac{D}{\pi f_0}}$, en rappelant que $D = \frac{\kappa}{c}$ est le coefficient de diffusion de la chaleur. On constate que la partie oscillante de l'échauffement est exponentiellement amortie au bout d'une distance r_{f_0} d'autant plus courte que f_0 augmente. Ceci correspond à un fait d'expérience de la vie quotidienne : la température de la cave d'une maison est sensiblement la même à toutes les périodes de l'année, car une épaisseur de quelques mètres suffit à amortir complètement les variations saisonnières de températures (avec $D = 10^{-6}\mathrm{m}^2\mathrm{s}^{-1}$ et $r_{f_0} = 3\mathrm{m}$ on obtient en effet que $f_0 \simeq 10^{-7}\mathrm{Hz}$, ce qui correspond bien à une échelle de 4 mois environ).

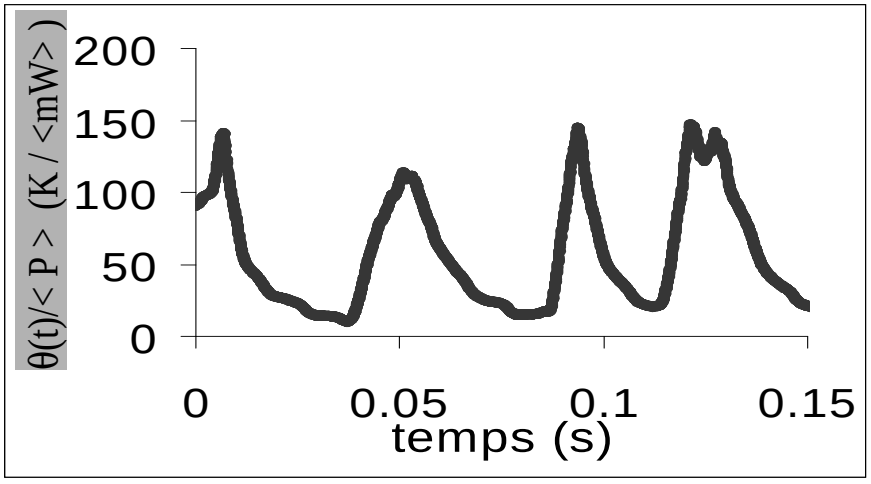

FIG. 1.13 – Echauffement instantané mesuré à $r = 7\mu$m d'un faisceau d'alphas de $\mathcal{V} =$ 2MeV, en ayant normalisé par la valeur moyenne de la puissance incidente $\mathcal{P} =< I\mathcal{V} >$. Visiblement les fluctuations dominent sur l'échauffement moyen, (cf. Figures 1.16-1.17).

En conséquence l'accroissement relatif des fluctuations temporelles de l'échauffement de la Figure 1.11 s'explique par le fait lorsque la distance r diminue, les fréquences de bruit-source qui contribuent sont de plus en plus nombreuses puisque leur intervalle s'étend jusqu'à $f_r \simeq D/r^2$. Les fréquences supérieures à f_r, en revanche, sont amorties et ne contribuent que négligeablement à $\theta(r)$. C'est pourquoi, dans le cas d'un bruit "gris" dont le spectre chute à zéro pour $f \geq f_{sup}$ on s'attend à ce que les fluctuations cessent d'accroître leur poids relatif dans θ aux échelles plus courtes que $r_{inf} = \sqrt{D/f_{sup}}$ puisqu'il n'y a plus de fréquences de bruit-source au delà de f_{sup} pour venir augmenter encore le rôle des fluctuations d'échauffement. Au fond, pour $r < r_{inf}$ tout se passe comme si la source était "continue" puisque aucun amortissement n'a lieu, ce qui permet de prédire que pour $r < r_{inf}$, $\mathcal{T}_n$ et $< \theta >$ évoluent similairement avec r. Ceci est représenté sur la Figure 1.11, soit dans le cas où r_{inf} est plus petit que r_c (où r_c est l'échelle où $\mathcal{T}_n$ devient plus grand que $< \theta >$) ; soit dans le cas inverse, lequel correspond alors au cas d'une source tellement peu bruitée que les fluctuations sont toujours négligeables dans l'échauffement.

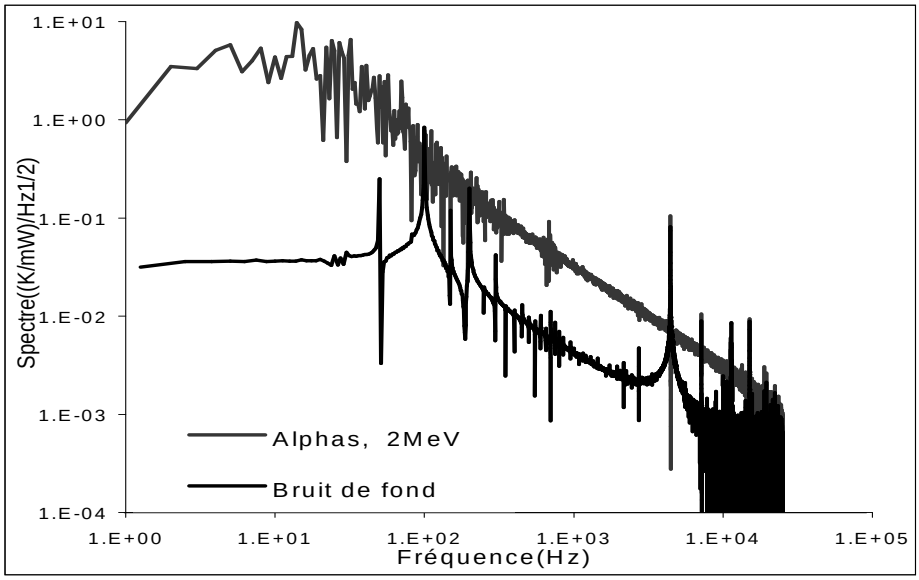

FIG. 1.14 – Spectre de bruit des fluctuations d'échauffement de la Figure 1.13. Le bruit de la chaîne de détection ("bruit de fond") est nettement plus faible à toutes les fréquences. Le spectre de bruit de l'échauffement présente une coupure vers $30Hz$ ce qui correspond à une distance $r_{inf} \simeq 170\mu$m en deçà de laquelle (comme c'est le cas ici puisque $r = 7\mu$m) les fluctuations d'échauffement mesurées sont une image fidèle des fluctuations de la source.

Cette séparation entre le cas où les fluctuations jouent un rôle ($r_c \geq r_{inf}$) du cas inverse se traduit par :

$$r_c \geq r_{inf} \quad \text{équivaut à} \quad \Delta q_{\square} \sqrt{f_{sup}} \gg < I\mathcal{V} > \tag{1.15}$$

1.2.2.2.4 Effet de la taille finie du faisceau. Pour prendre en compte les effets de la taille finie r_s du faisceau, on doit convoluer les résultats donnés par les équations 1.12a-c par le profil spatial de la puissance incidente $\mathcal{P}$ du faisceau. Pour éviter cela, signalons qualitativement, par analogie avec les résultats de l'équation 1.3 qu'à l'extérieur de la zone irradiée (i.e. pour $r \geq r_s$) la discussion du paragraphe précédent est correcte ; c'est à dire que tout se passe comme si le faisceau était ponctuel. A l'intérieur du faisceau il faut discuter selon l'ordre relatif des trois échelles r_{inf}, r_c, r_s. Pour être bref, le cas qui nous préoccupe à la Microsonde Nucléaire est le plus simple qui soit puisque $r_s = 10\mu$m est petit à la fois devant r_c et r_{inf} ces deux dernières échelles étant au-dessus de 100μm. Par application de ce que nous avons résumé dans la Figure 1.11 nous déduisons donc qu'à l'échelle de la zone irradiée la source est "continue" c'est à dire que la dépendance spatiale de $\mathcal{T}_n$ est la même que celle de $< \theta >$ donnée par l'équation 1.3. *Il sera donc licite, pour calculer les échauffements instantanés θ dans la zone proche du micro faisceau d'ions, d'utiliser l'équation 1.3 en remplaçant $< I >$ par sa valeur instantanée I.*

Les Figures 1.7-1.8 déjà commentées suggèrent que, dans le cas de la Microsonde Nucléaire, les fluctuations d'échauffements dominent bel et bien près du faisceau, c'est à dire que $r_{inf} << r_c$. L'objet des pages suivantes est de voir cela plus en détail.

1.2.3 Mesures des échauffements de bruit à la microsonde nucléaire.

Instruits par la modélisation précédente, il est naturel de présenter ici trois types de mesures : le spectre d'échauffement de bruit, la température de bruit, ainsi que l'échauffement maximal atteint durant une irradiation.

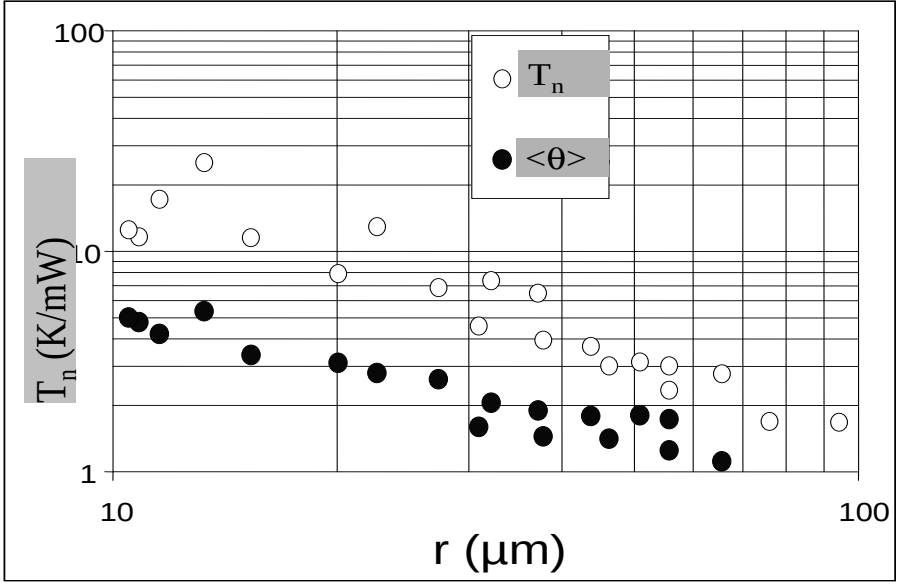

FIG. 1.15 – Profil spatial de la température de bruit pour des protons de $\mathcal{V} = 2$MeV. On a normalisé par la valeur moyenne de la puissance incidente $\mathcal{P} =< I\mathcal{V} >$. La température de bruit est typiquement 2 à 5 fois plus forte que l'échauffement moyen.

1.2.3.1 Spectre d'échauffement de bruit.

Le plus naturel est de partir du signal d'échauffement tel qu'il est mesuré en fonction du temps en un point r donné (cf. Figure 1.13) où l'on a normalisé l'échauffement instantané par la valeur moyenne $< \mathcal{P} >$ de la puissance incidente (ce qui donne des K/mW). On calcule alors la fonction d'auto corrélation de l'échauffement selon l'équation 1.5 (en retirant au préalable la valeur moyenne de l'échauffement, cf. équation 1.4) puis on en prend la transformée de Fourier par rapport à l'écart en temps relatif τ, et la racine carrée, ce qui aboutit à une unité un peu inhabituelle : des K/(mW$\times\sqrt{Hz}$) où les "racines de Hertz" sont la trace du fait que la fonction d'auto corrélation ne dépend pas du temps absolu t mais seulement de τ. On obtient alors le spectre de bruit de la Figure 1.14 où l'on constate que :

- le spectre de bruit enregistré en présence de faisceau est nettement supérieur à celui enregistré en l'absence de faisceau ("Bruit de fond") ;
- le spectre de bruit de l'échauffement n'est pas blanc mais présente une fréquence de coupure $f^* \simeq 30$Hz que l'on va qualitativement assimilée à la fréquence f_{sup} évoquée ci dessus dans le paragraphe sur le bruit non blanc (cf. section 1.2.2.2.3). Cette fréquence correspond à une échelle $r_{inf} = \sqrt{D/f^*} \simeq 170\mu$m. Selon la théorie ci dessus des fluctuations d'échauffements, on est donc amené à conclure que f^* ne provient pas de la distance $r = 7\mu$m à laquelle les mesures d'échauffement ont été faites (7μm correspond à une fréquence de 150Hz environ).

Le spectre de bruit de la Figure 1.14 est donc une image fidèle du spectre de bruit du courant de faisceau d'alphas ce qui revient à dire que l'on est dans le cas où $r_{inf} >> (r, r_s)$ avec les notations de la section 1.2.2.2 .

1.2.3.2 Mesures de T_n.

Passons à la température de bruit $\mathcal{T}_n$ c'est à dire à l'écart type des fluctuations. Les Figures 1.15 et 1.16 permettent de comparer le cas des protons et des alphas de même énergie. On s'aperçoit que $\mathcal{T}_n$, normalisée par $< \mathcal{P} >$, est plus forte dans le cas des protons que dans celui des alphas. Nous ne commenterons pas davantage ce point, qui a fait l'objet de recherches poussées pour tenter de comprendre l'origine du bruit dans la génération du faisceau à l'intérieur de la Microsonde Nucléaire (cf. la thèse de G. Plumereau) ... mais qui

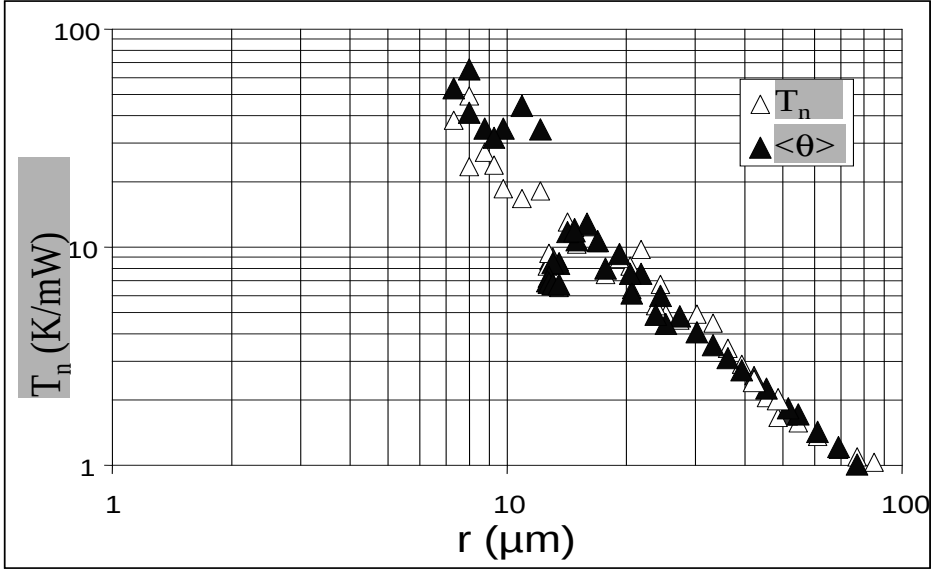

FIG. 1.16 – Profil spatial de la température de bruit pour des alphas de $\mathcal{V} = 2$MeV. On a normalisé par la valeur moyenne de la puissance incidente $\mathcal{P} =< I\mathcal{V} >$. La température de bruit est très similaire à l'échauffement moyen.

nous amènerait trop loin hors du sujet de ce travail.

Soulignons que les profils spatiaux de $\mathcal{T}_n$ et de $< \theta >$ sont quasi-parallèles tant que l'on peut mesurer $\mathcal{T}_n$ c'est à dire jusqu'à $r \simeq 100\mu$m environ. Ceci est cohérent avec le fait que nous avons trouvé ci dessus $r_{inf} \simeq 170\mu$m et que pour $r < r_{inf}$ on attend effectivement la même dépendance spatiale pour les fluctuations et pour l'échauffement moyen comme l'a montré la Figure 1.11.

Enfin, dans le cas des alphas, on trouve que $\mathcal{T}_n$ et $< \theta >$ ont des valeurs quasi identiques, alors qu'à première vue, les données correspondantes d'échauffement instantané semblaient montrer de façon évidente que les fluctuations étaient plus forte que l'échauffement moyen. Ceci vient de ce que, "à l'oeil", on est plus sensible à l'échauffement maximal qu'à l'écart type. C'est pourquoi nous nous intéressons maintenant à l'échauffement maximal $\theta_{max.}$.

1.2.3.3 Mesures de $\theta_{max.}$.

Il s'agit ici de porter le profil spatial de l'échauffement spatial $\theta_{max.}$ enregistré lors d'irradiations d'une dizaine de secondes environ. On retrouve, comme pour T_n, que $\theta_{max.}$ diminue parallèlement à la moyenne $< \theta >$ et que les fluctuations maximales sont plus fortes pour les protons que pour les alphas (nous n'avons reporté que le cas des alphas qui nous intéressera dans la prochaine partie). Il est à signaler qu'en protons $\theta_{max.}$ peut atteindre 30 fois l'échauffement moyen.

Pour résumer, nous avons découvert, calculé et systématiquement mesuré les fluctuations temporelles de l'échauffement et avons montré que leur importance est d'autant plus forte que l'on est proche de (ou dans) la zone irradiée. Signalons que la température de bruit (cf. équations 1.12a-c) diminue si la conductivité thermique augmente. Les fluctuations d'échauffements joueront donc un rôle bien plus important dans les mauvais conducteurs thermiques, tels que les verres isolants servant de substrats à nos micro-thermocouples, que dans les cristaux et/ou les métaux où κ est en général 10 à 100 fois plus élevée. Nous retrouvons ainsi une des deux idées exprimées dans le titre de ce travail : l'importance toute particulière des fluctuations (ici temporelles) pour le transport dans les verres isolants. Nous allons maintenant étudier les effets thermiques induits par l'échauffement ce qui nous permettra d'illustrer la deuxième idée explicitée en titre : l'importance des non-linéarités.

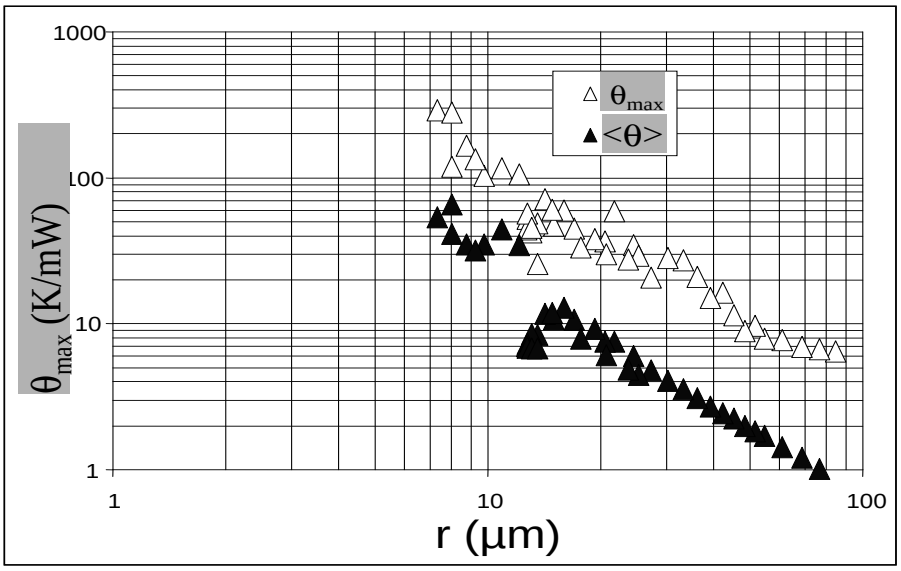

FIG. 1.17 – Profil spatial de la température maximale atteinte lors d'une irradiation de quelques secondes par des alphas de $\mathcal{V} = 2$MeV. On a normalisé par la valeur moyenne de la puissance incidente $\mathcal{P} =< I\mathcal{V} >$. La température maximale est plus d'un ordre de grandeur supérieure à l'échauffement moyen.

1.3 Effets thermiques induits par le faisceau.

Puisque nous avons montré dans la section précédente l'importance des fluctuations de l'échauffement, il nous a semblé utile de commencer, pour une fois, par une étude "théorique" de l'influence que pouvaient avoir *a priori*, ces fluctuations sur les effets thermiques affectant l'échantillon durant son irradiation. Nous verrons que, sur des temps d'irradiation "longs", ces fluctuations peuvent être prises en compte en substituant à l'échauffement "moyen" un échauffement "effectif" : ceci sera illustré en montrant les effets induits par le micro faisceau sur une fine couche de Zinc. Nous présenterons enfin une expérience de claquage optique sous faisceau laser femto seconde ultra intense qui illustrera les effets d'irradiation aux temps "courts".

1.3.1 Calcul *a priori* : domination des fluctuations géantes.

Nous nous intéressons ici aux dégâts irréversibles causés par l'échauffement. De tels effets thermiques sont *a priori* thermiquement activés avec une énergie caractéristique que nous appellerons E_{vap}, signifiant par-là que nous avons en tête surtout des effets de vaporisation du matériau du fait de l'échauffement qu'il subit, auquel cas l'effet $\mathcal{E}$ est l'épaisseur de matériau vaporisée par l'échauffement consécutif à l'intensité de faisceau I. Nous modélisons le caractère aléatoire du faisceau incident en tirant la valeur de son intensité I au hasard toutes les τ_0, et en gardant cette valeur constante entre ces intervalles successifs de largeur τ_0. En notant $T_0 = 300$K la température du thermostat auquel est fixé l'échantillon, étant donné l'effet

$$\mathcal{E}(I) = \mathcal{E}_\infty e^{-\frac{E_{vap}}{k_B(T_0+\theta(I))}} \tag{1.16}$$

-où $\mathcal{E}_\infty$ est l'effet produit par un échauffement (donc une intensité de faisceau) infini durant τ_0- la question posée est de savoir comment se moyenne la somme cumulée $\mathcal{S}$ des effets au bout de $N = t/\tau_0$ tirages de I avec :

$$\mathcal{S}(t) = \frac{\sum_{k=1}^{N} \mathcal{E}_\infty e^{-\frac{E_{vap}}{k_B(T_0+\theta(I_k))}}}{N\mathcal{E}_\infty e^{-\frac{E_{vap}}{k_B(T_0+\theta(<I>))}}} \tag{1.17}$$

où la normalisation de $\mathcal{S}$ permet d'apprécier l'écart à la situation où aucune fluctuation de I n'est permise autour de $< I >$, auquel cas $\mathcal{S}$ vaut alors évidemment 1 en permanence. Avec cette définition, $\mathcal{S}$ est automoyennante lorsqu'elle produit une droite horizontale sur la Figure 1.18, ce qui signifie que le numérateur de $\mathcal{S}$, correspondant à la somme cumulée des effets, est alors proportionnel au temps.

Bien sûr, il reste à préciser le lien entre l'intensité instantanée I et l'échauffement θ correspondant : en utilisant le fait que r_{inf} est très supérieur aux distances $r < 50\mu$m auxquelles nous considérerons l'échauffement, nous concluons, d'après la section précédente, que tout se passe près du faisceau comme si la source était "continue" c'est à dire qu'il est licite pour calculer θ d'utiliser l'équation 1.3 page 8 donnant $< \theta >$ en remplaçant la puissance moyenne $< I\mathcal{V} >$ par sa valeur instantanée $I\mathcal{V}$.

Précisons les ordres de grandeur. Même pour un matériau facilement vaporisable, tel le Zinc que nous étudierons plus tard, $E_{vap} \simeq 15000$K et donc $E_{vap} \gg (T_0 + < \theta >)$ ce qui rend l'argument de l'exponentielle d'activation très grand (et négatif). Ainsi, on comprend que les valeurs élevées de I, même si elles sont très rares vont dominer la somme cumulative $\mathcal{S}$ puisqu'elles vont produire une décroissance de l'argument de l'exponentielle résultant en une énorme augmentation de l'effet instantané. On s'attend donc à ce que $\mathcal{S}$ soit dominée par des valeurs anormales de I (c'est à dire nettement plus grandes que $< I >$) *produisant des fluctuations "géantes" de l'effet associé* $\mathcal{E}(I)$.

Ce rôle des fluctuations géantes est illustré sur la Figure 1.18 page 23 où l'on a utilisé des paramètres qui nous servirons dans la prochaine section : $E_{vap} \simeq 15000$K (cas d'une couche de Zinc), $< I >= 4.5$nA (cf. Figure 1.20), $\kappa = 1.5$W/Km (cas d'un substrat de verre), $r_s \simeq 7\mu$m (correspondant au micro faisceau des Figures 1.19-1.21). On a considéré deux types de distributions de probabilité pour I : soit une Poissonnienne, soit une distribution constante limitée à $[0.5\times < I >; 1.5\times < I >]$.

Dans le premier cas (en haut sur la Figure), $\mathcal{S}$ ne converge vers une valeur indépendante de t qu'au bout de plusieurs centaines de tirages (quelques secondes), et auparavant elle progresse par "bonds géants" : l'essentiel de la valeur de $\mathcal{S}$ est constitué seulement de deux événements, autour de $t = 0.2$s et de $t = 2$s. Au-delà de quelques secondes $\mathcal{S}$ devient constante, c'est à dire que la somme cumulée des effets (le numérateur de $\mathcal{S}$) est proportionnelle au temps, donc automoyennante. Cependant, dans ce régime à temps longs, $\mathcal{S}$ converge vers une valeur 10^6 fois supérieure à ce qu'il se produirait si le courant ne fluctuait pas du tout autour de $< I >$.

En revanche, dans le cas d'une distribution bornée entre la moitié et 3/2 de $< I >$, les effets de fluctuations géantes sont quasiment inexistants : $\mathcal{S}$ s'automoyenne au bout de quelques tirages seulement et converge vers $10 \times \mathcal{S}(t, < I >)$. Ceci vient de ce que les valeurs très proche de $I_{max} = 3/2 < I >$ sont atteintes très rapidement.

Il y a bien sûr moyen d'être plus général, et plus précis, dans cette appréciation des fluctuations géantes. Toute cette problématique s'insère dans la question générale de savoir comment se moyenne une somme de variables aléatoires e_k tirées dans une loi de distribution Π [10], [11]. A ce sujet, le théorème le plus connu est celui de Gauss exprimant la convergence vers la Gaussienne pour la somme. *Mais ce théorème cesse d'être valable lorsque la variance* $< e^2 > - < e >^2$ *est infinie*, ce qui se produit dès que, pour les grandes valeurs de e, Π se comporte comme $1/e^{1+\eta}$ avec $\eta \leq 2$. En effet soit, par exemple $\Pi = \frac{1}{1+e^{5/2}}$ qui entre dans la catégorie $\eta = 1.5$. Alors on constate que $< e >= \int_0^\infty \frac{e}{1+e^{5/2}} de$ donne une valeur finie alors que $< e^2 >= \int_0^\infty \frac{e^2}{1+e^{5/2}} de$ donne une valeur infinie, ce qui traduit intuitivement que les fluctuations vont avoir une influence bien plus forte que la valeur moyenne. Cet argument permet de deviner que le rôle des fluctuations anormales va persister tant que $\eta \leq 2$, puisque des valeurs supérieures de η donneront une variance finie, autorisant alors l'utilisation du théorème de Gauss.

Donnons rapidement le cheminement analytique permettant de prévoir les résultats les fluctuations géantes de la Figure 1.18. Partant d'une distribution Poissonnienne $\Pi(I) = e^{-I/<I>}/ < I >$, on cherche la distribution correspondante pour l'effet $\mathcal{E}$ donné par l'équation 1.16 en utilisant la loi de "conservation de la probabilité" $\Pi(I)dI = \Pi(\mathcal{E})d\mathcal{E}$. Sans entrer dans les détails de l'expression de $\Pi(\mathcal{E})$ signalons qu'elle décroît de plus en plus vite

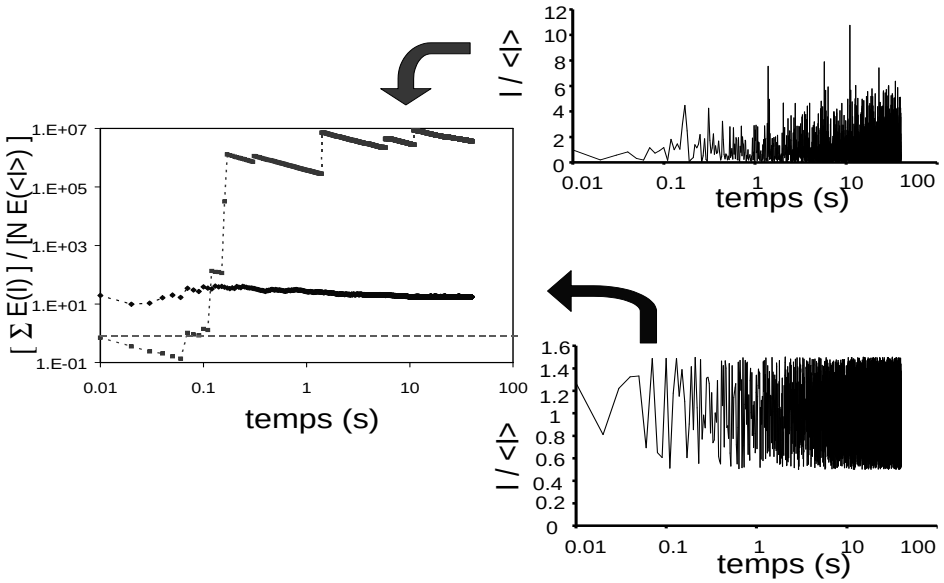

FIG. 1.18 – Simulation numérique des effets thermiques induit par un faisceau délivrant une puissance incidente bruitée dont on tire une valeur au hasard toutes les $\tau_0 = 10$ms. L'effet thermique $\mathcal{E}$ est supposé thermiquement activé (loi d'Arrhenius) ce qui le rend extrêmement sensible aux fluctuations temporelles de la puissance incidente, comme le montre la quantité calculée sur le graphe de gauche représentant la somme des effets au bout de $N = t/\tau_0$ tirages $\mathcal{S}(t) = \sum_{k=1}^{N} \mathcal{E}(I_k)$, somme que nous avons normalisée par $\sum_{k=1}^{N} \mathcal{E}(< I >) = N\mathcal{E}(< I >)$ pour montrer ce qu'il se passerait si le faisceau ne fluctuait pas du tout autour de $< I >$ (voir la ligne horizontale pointillée). En bas à droite, cas du faisceau dont l'intensité fluctue dans l'intervalle $[0.5\times < I >; 1.5\times < I >]$: la somme $\mathcal{S}$ s'automoyenne au bout d'environ 10 tirages vers une valeur de l'ordre de 10. En haut à droite, cas d'un faisceau dont la loi de probabilité est Poissonienne : la somme $\mathcal{S}$ s'automoyenne au bout d'un temps beaucoup plus long, environ 300 tirages vers une valeur beaucoup plus grande, de l'ordre de 10^6.

à mesure que $\mathcal{E}$ augmente. La question devient donc : à partir de quelle valeur de $\mathcal{E}_\eta$ décroît elle plus vite que $1/\mathcal{E}^{1+\eta}$? On trouve après ces calculs "simples mais laborieux" :

$$\mathcal{E}_\eta = \mathcal{E}_\infty e^{-\sqrt{\Gamma/\eta}} \quad \text{où} \quad \Gamma = \frac{E_{vap}}{k_B < \theta(r) >} \tag{1.18}$$

Ces effets $\mathcal{E}_\eta$ correspondent à des valeurs de I qui valent, compte tenu de l'équation 1.16,

$$\frac{I_\eta}{< I >} = \sqrt{\eta\Gamma} - \frac{T_0}{< \theta(r) >} \tag{1.19}$$

ce qui, vu $\Gamma \gg 1$, conduit à des valeurs de I_η nettement supérieures à $< I >$. Lorsque l'on tire au hasard dans $\Pi(I)$ le fait de tirer une valeur I_η grande devant $< I >$ est quelque chose qui arrive "rarement". Pour préciser l'échelle de temps t_η que l'on doit attendre en moyenne pour tirer la valeur I_{eta}, il suffit d'écrire :

$$\frac{\tau_0}{t_\eta} = \int_{I_\eta}^{\infty} \Pi(I) dI \quad \text{d'où} \quad \frac{t_\eta}{\tau_0} = e^{\frac{I_\eta}{< I >}} \tag{1.20}$$

On constate bien que t_η peut devenir extrêmement grand du fait que I_η est nettement supérieur à $< I >$. Cependant pour les mêmes raisons, l'effet associé à I_η est lui aussi exponentiellement grand devant celui associé à $< I >$. Finalement, d'après ce que nous avons dit plus haut sur la (laborieuse) convergence vers la Gaussienne, nous pouvons déduire que cet antagonisme entre "rareté" (t_η grand) et effet géant associé ($\mathcal{E}_\eta$ grand) se résout pour $\eta = 2$. En effet, les événements $I_{\eta<2}$ sont "relativement fréquents" mais leur effet n'est

"pas assez gigantesque" pour dominer la somme des effets ; inversement les événements $I_{\eta>2}$ entraînent bien des effets "tout à fait gigantesques", mais ces événements sont statistiquement trop rares pour influer sur la somme cumulée des effets. On s'attend donc à ce que la somme des effets cumulés devienne proportionnelle au temps lorsque $t >> t_2$ et que sa valeur à temps longs soit de l'ordre de $(t/t_2) \times \mathcal{E}_2$. C'est ce qu'il se produit sur la Figure 1.18 : processus d'automoyenne à temps longs, et domination d'un seul événement (qui dure seulement $\tau_0 = 10\text{ms}$!) lorsque $t \leq t_2$.

Retenons que le processus de moyenne des fluctuations d'échauffement dans la somme d'effets thermiquement activés est un effet un peu subtil, mais que son analyse permet de justifier pour les temps suffisamment longs, l'emploi d'un échauffement "effectif", ici $\theta_2 = \theta(I_2)$, qui va permettre d'oublier les fluctuations d'échauffement.

1.3.2 Les effets liés à l'échauffement "effectif".

Nous présentons ici des effets thermiques provoqués par le micro faisceau de la Microsonde Nucléaire. Le système choisi est une couche de Zinc (de 100nm) déposée par métallisation sur un substrat de verre. Nous avons conçu cet échantillon *spécialement* pour que les effets thermiques soient les plus importants possibles. En effet, d'une part la finesse de la couche de Zinc fait que l'essentiel de l'énergie du faisceau est dissipée dans le verre, lequel va produire un échauffement "fort" puisque sa conductivité thermique $\kappa = 1.5\text{W/Km}$ est une des plus faibles parmi tous les solides. D'autre part, l'énergie de vaporisation du Zinc est anormalement faible car ce métal a une énergie de cohésion faible du fait de sa structure électronique de "quasi-gaz rare" (sa couche d est pleine) comme les deux autres éléments de la même colonne (de la classification périodique des éléments) que sont le Cadmium et le Mercure.

En irradiant ce système avec un micro faisceau d'alphas de $\mathcal{V} = 2\text{MeV}$ (de demi-largeur $r_s = 7\mu\text{m}$), nous avons constaté que le Zinc disparaissait progressivement au cours de l'irradiation, le trou commençant par apparaître au centre de la zone irradiée pour s'étendre radialement sur une distance toujours plus grande, laquelle distance pouvant ultimement être plus grande que r_s pour une irradiation suffisamment longue. Nous avons suivi ce phénomène de deux façons.

1.3.2.1 Mesures in situ de la perte de Zinc

Nous avons enregistré en temps réel au cours de l'irradiation le spectre d'ions alphas rétro diffusés : l'existence du Zinc s'y manifeste par un pic isolé à haute énergie. Le nombre de coups présents dans ce pic dont l'intensité, pour un nombre d'ions incidents donné (c'est à dire pour un temps d'irradiation donné) est proportionnel à l'épaisseur h de Zinc à cet instant. La Figure 1.19 montre qu'au cours de l'irradiation le pic de Zinc disparaît progressivement, ce qui permet de mesurer in situ la cinétique de ce phénomène, reportée par exemple sur la Figure 1.20 page 26 dans le cas où l'intensité moyenne $< I >= 4.5\text{nA}$ conduit à une disparition totale du Zinc en $t_{vap} = 250\text{s}$ environ. Soulignons que t_{vap} est extrêmement sensible à $< I >$ puisque pour 6.5nA on a $t_{vap} \simeq 10\text{s}$; pour les intensités supérieures à 8.5nA, t_{vap} est inférieur à notre résolution en temps de 3s ; enfin pour 1.1nA aucune perte de Zinc n'est mesurée y compris après des milliers de secondes d'irradiation.

On peut rendre compte de *tous* ces comportements en utilisant le modèle de vaporisation esquissé avec les équations 1.15-1.20. La situation est particulièrement simple puisque notre résolution en temps de 3s correspond au régime des temps suffisamment longs (voir Figure 1.18) pour que la somme des effets cumulés, c'est à dire la fraction de Zinc perdu, soit automoyennante. On utilise donc un échauffement effectif θ_{eff} dont le profil spatial est donné par l'équation 1.3 page 8 pour calculer la cinétique de perte de Zinc en chaque point de la zone irradiée. Après intégration spatiale de cette cinétique sur toute la tache de faisceau, on obtient une prédiction directement utilisable sur la Figure 1.26 portant sur la fraction volumique v de Zinc restant dans la tâche irradiée. Donnons tout d'abord le temps t_0 nécessaire à la création d'un "trou d'aiguille" (zone sans Zinc) en $r = 0$ pour $N \simeq 1000$ mono couches atomiques de Zinc dont la pression de vapeur est $P_1 \exp \frac{E_{vap}}{k_B T}$:

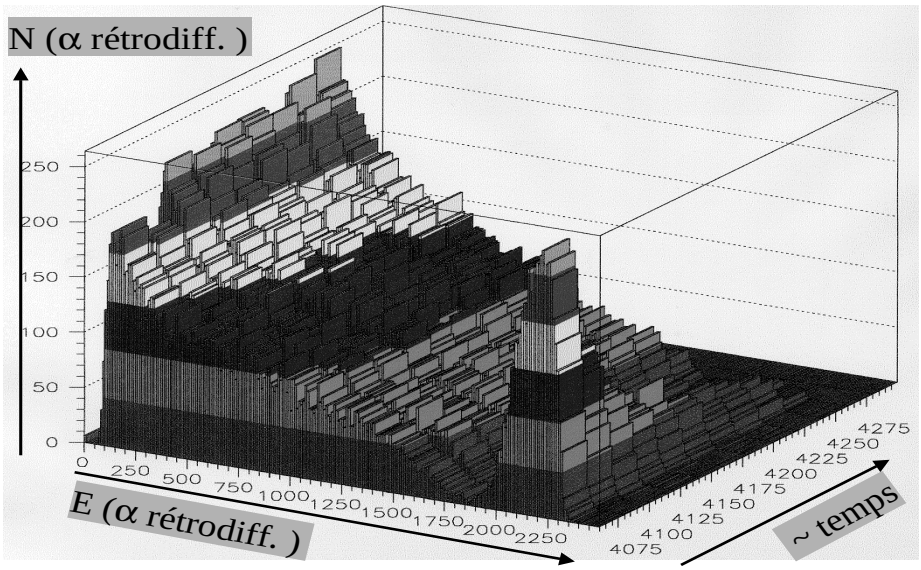

FIG. 1.19 – Spectre d'ions rétro diffusion par notre échantillon "couche de 100nm de Zinc/verre" pour un faisceau d'alphas de 2MeV. Le pic isolé à haute énergie correspond uniquement lié au Zinc : il disparaît au cours de l'irradiation, indiquant que la quantité de Zinc restant dans la tache irradiée est de plus en plus faible. La cinétique de cet effet est extrêmement sensible à l'intensité moyenne de faisceau (valant ici 4.5nA) puisqu'elle est inférieure à 3s dès que $< I >$ dépasse 8.5nA et virtuellement "infinie" pour 1.1nA.

$$t_0 = \tau_\mu e^{\frac{E_{vap}}{k_B(T_0+\theta_{eff}(r=0))}} \quad \text{avec} \quad \tau_\mu = \frac{NP_{ref.}}{P_1} \tag{1.21}$$

où $P_{ref} = 10^{-6}$mbar correspond à la vaporisation d'une mono couche atomique par seconde, $P_1 = 10^5$bar est la pression de vaporisation du Zinc à température infinie. On trouve $t_0 \simeq 10$s pour $< I >= 4.5$ nA du fait de la valeur de $\theta_{eff}(r=0)$ associée. Bien sûr, la loi exponentielle ci dessus donne une variation très rapide de t_0 avec $< I >$, ce qui rend déjà qualitativement compte de ce que nous avons mentionné plus haut, à savoir l'extrême sensibilité de t_{vap} vis à vis de $< I >$.

Pour $t \leq t_0$, la fraction v est linéaire en temps :

$$v(t) = \frac{A}{B}\frac{t}{t_0} \quad \text{avec} \quad B = \ln(\frac{t_0}{\tau_\mu}) \quad \text{et} \quad A \simeq 2.25\frac{E_1}{B\theta(r_s)} \tag{1.22}$$

tandis qu'au-delà de t_0 l'absence de Zinc dans une zone de plus en plus large au centre du faisceau donne :

$$v(t) = A\left[1 - \frac{B}{\ln(\frac{t}{\tau_\mu})}(1 - \frac{1}{\ln(\frac{t}{\tau_\mu})})\right] \tag{1.23}$$

Cette prédiction est reportée en trait continu sur la Figure 1.26 et rend compte raisonnablement bien des mesures.

1.3.2.2 Mesures ex-situ du profil du trou de Zinc.

Comme mesure complémentaire, nous avons, après irradiation durant un temps correspondant à une charge en alphas de 2μC, mesuré le profil spatial du trou de Zinc par microscopie électronique. Des considérations analogues à celles qui viennent d'être résumées ci dessus permettent la prédiction en trait continu sur la Figure 1.21. Là aussi l'accord théorie expérience est raisonnable. Soulignons que le fait que le trou de Zinc soit deux fois plus large que le diamètre du faisceau est un argument fort en faveur de l'origine thermique

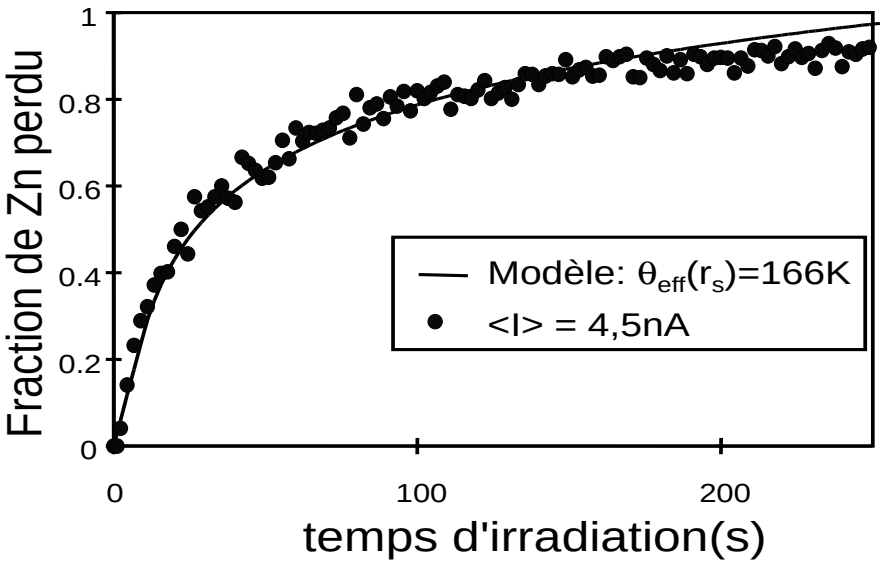

FIG. 1.20 – Dépendance temporelle de la fraction v de Zinc perdue dans la tache irradiée pour $< I >= 4.5$nA. Le modèle de vaporisation, avec l'approximation des temps longs (au sens de la Figure 1.18 page 23), ne dépend que de la température effective en un point quelconque par exemple en bord de faisceau $\theta_{eff}(r_s)$. Ce seul paramètre, dont la valeur est cohérente avec les études précédentes de l'échauffement sous micro faisceau, permet de rendre compte des données (trait continu) en utilisant les équations 1.21-1.23.

de la disparition du Zinc, par rapport à un hypothétique effet Coulombien lié à la charge implantée par le micro faisceau dans le substrat de verre.

1.3.3 Mesures des impulsions d'échauffement sous laser femto seconde.

Ayant constaté que les effets thermiques sous micro faisceau peuvent être totalement dominés par ce qu'il se produit sur un temps très court, nous présentons ici les mesures thermiques faites sous impact laser femto seconde où les effets thermiques se produisent en un temps extrêmement bref. Bien sûr cette brièveté ne suffit pas à établir une filiation complète avec les considérations précédentes puisque le faisceau laser est tout sauf aléatoire ! Cependant, nous allons retrouver l'extrême non linéarité des effets thermiques puisqu'une variation de 20% de l'énergie de l'impulsion laser suffira à passer d'une situation où il n'y a pas d'effets thermiques, à une situation où ces effets sont macroscopiques.

Pour fixer un peu les idées, précisons que le laser dont il est question ici est un Titane :Saphir en mode bloqué qui délivre des impulsions de 50fs contenant des photons de 790nm. Ces lasers permettent un physique nouvelle. Par exemple, en focalisant un tel laser sur du Quartz, ce matériau peut devenir réflecteur, alors qu'il est normalement parfaitement transparent pour ces longueurs d'onde. Le mécanisme induisant la réflectivité du Quartz est désormais connu [12], [13] : les électrons de valence absorbent 5 photons à la fois, ce qui leur permet de franchir le trou en énergie ($E_g \simeq 10$ eV) qui les sépare des états de conduction. Ces absorptions multi-photoniques sont extrêmement non linéaires, au point qu'on peut définir une fluence seuil $\phi_0 \simeq 0.7\text{J/cm}^2$ au-dessous de laquelle aucun effet se produit, et au dessus de laquelle le Quartz devient notablement réflecteur. Ce qui est moins bien connu, en revanche, c'est le mécanisme de désexcitation des électrons, une fois qu'ils ont été brutalement injectés en bande de conduction. Or la compréhension de ces mécanismes est importante pour comprendre le phénomène dit du "Claquage Optique", phénomène consistant en la formation d'un cratère, en surface du matériau, dès que la fluence atteint $\phi_c \simeq 7 \times \phi_0 \simeq 5\text{J/cm}^2$. Le "claquage optique" est-il un effet thermique [14], [15], de vaporisation consécutive à l'échauffement local lié à la désexcitation, par couplage électron phonon, des électrons injectés dans la bande de conduction ? Ou bien s'agit-il d'un

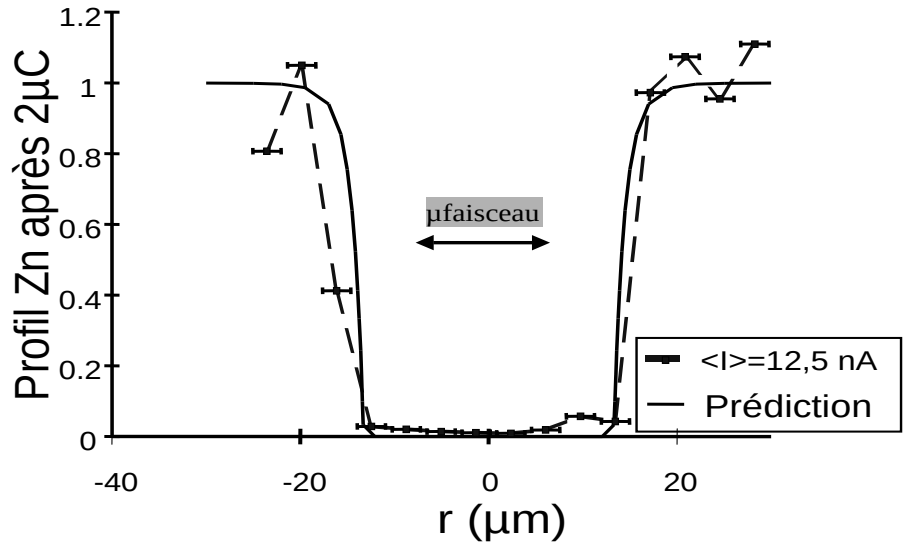

FIG. 1.21 – Profil du trou de Zinc (au centre) après une irradiation par Microsonde Nucléaire de 2μC avec $< I >= 12.5$nA. Le modèle de vaporisation permet la prédiction en trait continu.

phénomène "d'explosion coulombienne" [15], [16], lié à la formation d'une charge d'espace macroscopique dans la zone d'impact (car les électrons se précipitent vers la surface pour écranter la suite de l'impulsion laser), laquelle charge d'espace pourrait produire une expulsion des ions ? Telle est la question que nous allons aborder avec nos mesures thermiques.

Sur un échantillon de Quartz ultra pur, nous avons déposé des micro thermocouples de même structure que ceux de la Figure 1.1 page 4 et réalisé des mesures d'échauffement comme dans le cas de la Microsonde Nucléaire. Signalons que nous n'avons pas pu rapprocher nos microstructures à mieux que $r = 42\mu$m du point d'impact du faisceau laser, parce que pour des r plus petits, les micro thermocouples disparaissaient avant que la moindre mesure ne soit enregistrée. Nous avons compris que cela était lié au fait que dans les métaux et les semi-conducteurs, les valeurs de ϕ_c sont typiquement 10^3 fois inférieures que dans les diélectriques : la fluence laser contenues dans les "ailes" du faisceau principal est donc suffisante pour produire du "Claquage Optique" dans nos microstructures dans les cas où $r < 42\mu$m.

Peut être du fait de ces valeurs relativement "grandes" de r, nous n'avons pas détecté de signal thermique pour $\phi < \phi_c$. Ceci signifie que nos mesures *sous-estiment forcément* les échauffements puisqu'une partie de l'énergie absorbée quitte le matériau, emportée par la matière du cratère, et qu'elle ne participe donc pas à l'échauffement mesuré en r. Reprenant l'équation de la chaleur 1.1 page 7 nous écrivons :

$$\rho(r,t) = \alpha \times \rho_0 \mathcal{F}(\mathbf{r},t) \tag{1.24}$$

où $\rho_0\mathcal{F}$ est la puissance volumique incidente ($\mathcal{F}$ est la fonction exprimant la forme spatio temporelle de l'impulsion laser) et où α est le coefficient d'absorption de l'énergie laser par le Quartz. On peut voir nos mesures comme une façon de déterminer α.

En effet, à part ce coefficient global α, les autres caractéristiques de la puissance volumique incidente sont calculables *a priori*. Ainsi, du fait de la structure Gaussienne du pulse incident, et de sa durée ultra-brève, il est naturel de poser :

$$\mathcal{F}(r,z,t) = \exp[-r^2/(2r_l^2)] \times \exp(-z/z_*) \times \delta(t) \tag{1.25}$$

où la longueur d'absorption z_* peut être calculée par l'équation dite "de Helmholtz" laquelle donne le champ électrique et donc la densité électronique d'excitation en tout point de l'échantillon [12]. La constante diélectrique est ensuite calculée par le modèle de Drude,

et donne accès à l'échelle z_* recherchée. Près de ϕ_c, on trouve que z_* varie assez vite, et pour $\phi = 1.2 \times \phi_c = 6\mathrm{J/cm}^2$ on trouve $z_* = 200\mathrm{nm}$.

Ainsi définie, l'équation de la chaleur est totalement soluble [18], et après un calcul *exact*, on trouve, en posant notant $E_l = \phi\pi r_l^2$ l'énergie contenue dans le faisceau laser de rayon r_l :

$$\theta(r,z,t) = \frac{\alpha E_l}{2\pi c z_*} \frac{e^{-\frac{r^2}{2r_l^2+4Dt}}}{(2r_l^2+4Dt)} \mathcal{M}(t,z) \tag{1.26}$$

où

$$\mathcal{M}(t,z) = [e^{z/z_*} G(\mathcal{Z}_+) + e^{-z/z_*} G(\mathcal{Z}_-)] e^{Dt/z_*^2} \tag{1.27}$$

avec $\mathcal{Z}_\pm = \sqrt{Dt}/z_* \pm z/\sqrt{4Dt}$, et $G(u) = 1 - s(u)N(|u|)$ où $N(u) = 2/\sqrt{\pi}\int_0^u e^{-x^2}dx$ est la fonction erreur normalisée et $s(u<0) = -1$ tandis que $s(u \geq 0) = 1$.

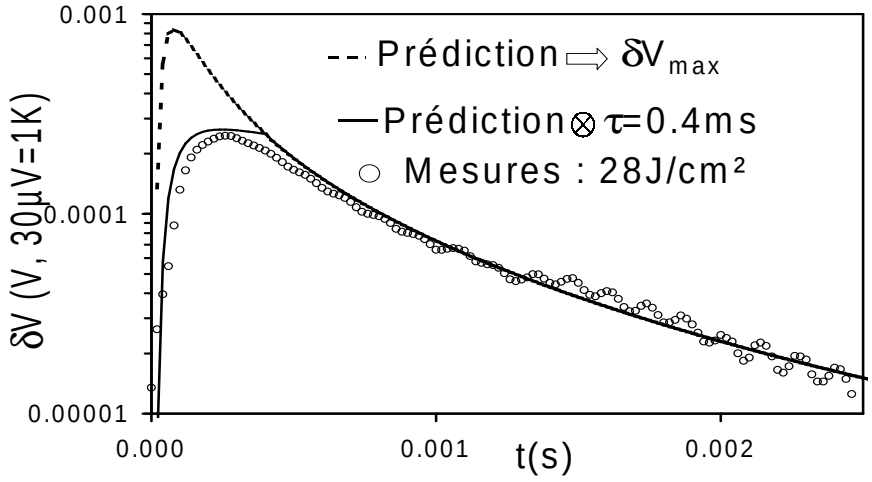

FIG. 1.22 – Tension mesurée pour un couple de rubans d'Or dont la plus proche des deux jonctions Au-a−YSi se trouve à $r = 42\mu$m du centre du faisceau laser. En tirets, prédiction de l'équation de la chaleur pour la géométrie à symétrie cylindrique pertinente ici aboutissant à l'équation 1.26 : l'ajustement présenté ici est obtenu avec $\alpha = 0.16$ et $D = 4.5 \times 10^{-6}$ $\mathrm{m^2 s^{-1}}$, ce qui est une valeur tout à fait réaliste pour le Quartz. Cet ajustement ne rend compte du signal que pour $t > 0.6ms$. En convoluant l'équation 1.26 par une constante de temps de réponse des micro thermocouples de $\tau = 0.4ms$ on rend compte de la partie $t < 0.6$ms du signal mesuré. Cet ajustement en trait plein est réalisable avec le même τ pour *tous les signaux mesurés*, à divers r et divers E_l. De plus, la courbure positive du signal à temps longs est un argument supplémentaire en faveur de l'origine thermique de nos mesures : cela signe le caractère diffusif de la physique sous-jacente, excluant de ce fait toute origine balistique au signal comme celle qui pourrait être invoquée à partir de considérations sur des phénomènes d'onde de choc (ou de parcours balistique macroscopique d'électrons) consécutifs à l'impulsion laser.

La Figure 1.22 montre le signal $\delta V(r, z = 0, t)$ mesuré à $r = 42$ μm en fonction du temps t, pour la fluence incidente la plus forte utilisée $\phi = 28$ J/cm^2 $\simeq 6 \times \phi_c$. En prenant $z = 0$ dans l'équation 1.26, le fait que Dt/z_*^2 soit très grand devant 1 (pour les échelles de temps de la mesure) permet de trouver $\mathcal{M}(t,0) = 2z_*/\sqrt{\pi Dt}$. Ainsi pour une position donnée $r > 2r_l$, θ est maximum lorsque $t_* \simeq r^2/D$: en effet, le terme exponentiel de l'équation 1.26 est responsable de la très rapide croissance du signal pour $t \leq t_*$, tandis que le facteur $t^{-3/2}$ produit la lente décroissance lorsque $t > t_*$. En laissant α et D libres

dans l'équation 1.26[9], le meilleur ajustement du signal δV ($t > 0.6$ ms) est obtenu pour $\alpha = 0.16$ et $D = (4.5 \pm 1.5) \times 10^{-6}$ m^{2}s^{-1} comme le montre la ligne en tirets de la Figure 1.22. Cette valeur de D est tout à fait réaliste pour le Quartz.

Cette procédure d'ajustement ne fonctionne clairement plus lorsque $t < 0.6$ ms. Nous avons montré que la façon la plus simple de rendre compte de ce comportement à $t < 0.6$ ms est d'invoquer la constante de temps τ nécessaire pour que nos micro thermocouples se thermalisent sur le Quartz. Nous avons déjà vu que $\tau = \mathcal{R}ce$ (voir note[10]) et que, du fait des incertitudes sur $\mathcal{R}$ on avait 30 μs $\leq \tau \leq 3$ ms. Cependant, en réalisant la convolution temporelle de l'équation 1.26 avec un temps de réponse de $\tau = 0.4$ms, nous avons pu réaliser des ajustements quasi parfaits (voir la ligne continue sur la Figure 1.22) du signal mesuré. Avec *la même valeur* de τ, nous avons pu réaliser des ajustements de qualité similaire pour *tous les signaux mesurés à divers r et divers* ϕ. Ceci nous donne confiance dans l'utilisation de τ pour rendre compte en totalité des signaux thermiques.

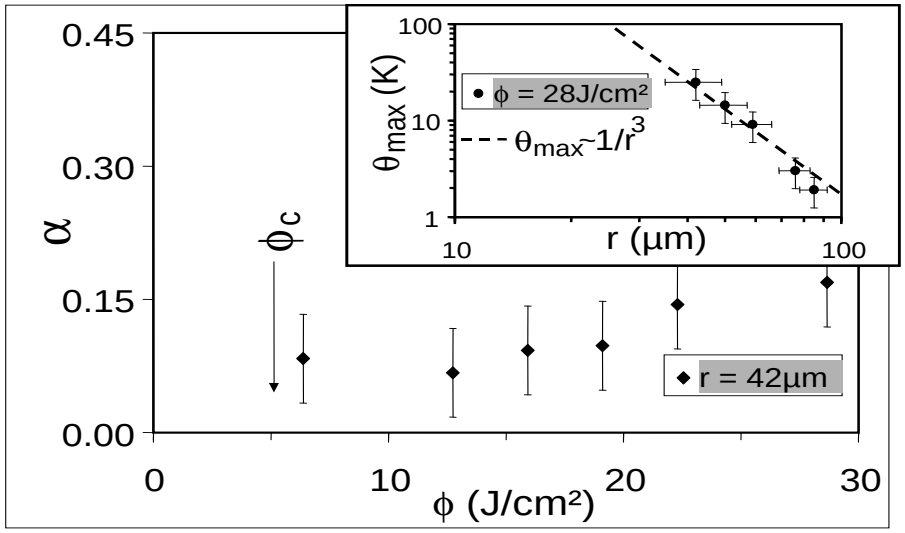

FIG. 1.23 – En encart : échauffement maximal mesuré pour la fluence maximale $\phi = 28$J/cm^2, montrant que la loi en $1/r^3$ est valide. La figure principale donne les valeurs du coefficient α d'absorption global en énergie par le Quartz, telle qu'elle est déduite des mesures de l'échauffement maximal de la Figure 1.22. La connaissance de α permet de remonter à l'échauffement maximal au centre de la zone irradiée par le laser, et de conclure que les effets de vaporisation jouent un rôle important dans la formation du cratère, tout au moins dès que la fluence ϕ vaut $1.2 \times \phi_c$.

En utilisant cette procédure, l'échauffement maximal mesuré $\theta_{max}(r, z = 0)$ est celui déduit de la ligne en tirets de la Figure 1.22, c'est à dire celle sans convolution par τ, réalisant l'ajustement entre le signal et l'équation 1.26 seulement pour $t > 0.6$ms. Pour $r = 42$ μm, $\theta_{max}(r, z = 0) = 30$K (soit 900$\mu$V). Comme $\theta_{max}(r, z = 0)$ correspond à $t = t_* \simeq r^2/D$, nous déduisons de l'équation 1.26 que $\theta_{max}(r, z = 0) \propto 1/r^3$. Comme le montre l'encart de la Figure 1.23, cette loi est bien vérifiée pour les mesures faites à divers r, et à fluence constante.

Toujours avec l'équation 1.26 on peut déduire des mesures $\alpha(\phi)$: comme le montre la Figure 1.23, $\alpha(\phi = 1.2 \times \phi_c) = 8 \pm 2$ %, avec une faible dépendance en ϕ. De plus, on montre, en utilisant l'équation 1.26 que, à l'intérieur du faisceau $r \leq r_l$, et du moment que $z \leq z_*$, l'échauffement atteint son maximum pour $t \to 0$. En utilisant $\mathcal{M}(t \to 0, z) = 2e^{-z/z_*}/\sqrt{\pi}$, on trouve que $\theta_{max}(r \leq r_l, z \leq z_*) = \alpha E_l e^{-r^2/2r_l^2 - z/z_*}/[2\pi^{3/2} c z_* r_l^2]$. Pour notre fluence

[9] On rappelle que $\delta V \propto T(r, z = 0, t) - T(r + 200\ \mu\text{m}, z = 0, t)$.

[10] On rappelle que $e = 0.8\mu$m est l'épaisseur de notre microstructure, c est la chaleur spécifique volumique, et $\mathcal{R}$ la résistance thermique de contact par unité de surface [7], [8].

la plus basse $E_l/(\pi r_l^2) = 6$ J/cm^2, *en utilisant le résultat expérimental* $\alpha = 8\%$, ainsi que la valeur calculée $z_* = 200$ nm, on trouve $T_{max}(0,0) = 3000$ ^{o}C. Pour le Quartz, ceci est au-dessus et de la température de fusion $T_m \simeq 1700$ ^{o}C et de celle d'ébullition $T_b \simeq 2600$ ^{o}C. Nous concluons donc que *les effets thermiques jouent un rôle capital dans le claquage optique dès* $\phi = 1.2 \times \phi_c$.

Juste à $\phi = \phi_c$, il n'est pas tout à fait évident de conclure. D'abord parce que l'on trouve $T_{max}(0,0) = 1500$ ^{o}C, valeur intermédiaire entre T_m et T_b, ce qui rend cruciale la question déjà mentionnée de la sous estimation de α par les mesures. De plus, autour de ϕ_c la longueur calculée z_* varie assez vite. Ceci renforce d'ailleurs le caractère "tout ou rien" des effets thermiques puisque $T_{max}(0,0) \propto 1/z_*$, et pourrait expliquer que l'on n'ait pas détecté de signal au-dessous de $1.2 \times \phi_c$.

Conclusion

On a présenté ici une étude finalement assez inhabituelle : l'étude des *dégâts induits par une méthode analytique*, le micro faisceau d'ions légers, réputée quasi non perturbative. Nous avons vu que cette réputation était très largement méritée, puisqu'il nous a fallu construire un échantillon très particulier, avec un matériau très volatil déposé sur un substrat très mauvais conducteur thermique, pour voir des dégâts induits. Cependant, le long de cette étude, plusieurs problèmes intéressants se sont posés : expérimentalement, la mesure de la température à l'échelle du micron (sous ultra-vide, etc ...) était inédite ; tout comme l'était la déduction des caractéristiques des fluctuations temporelles de l'échauffement à partir de celles de la puissance incidente.

Bien sûr ces problèmes ont été traités *avec des outils déjà bien connus* : lithographie, caractérisation spectrale de signaux aléatoires, influence des fluctuations géantes, etc... C'est pourquoi il nous semble opportun d'insister, pour terminer ce chapitre, sur les deux idées qui servent de fil conducteur à l'ensemble de ce travail. A savoir, d'une part l'importance des fluctuations (ici temporelles) pour le transport (ici de la chaleur) dans les verres isolants (qui nous ont servi de substrat en permanence) ; d'autre part l'importance des non-linéarités pour le transport dans ces systèmes, comme en témoigne, par exemple, l'extrême dépendance de la vaporisation du Zinc suivant l'intensité du faisceau incident. Il semble intuitif que ces non linéarités si fortes sont une autre façon d'exprimer que le transport est difficile dans les verres isolants, réalité que l'on relie par ailleurs au fait que ces systèmes utilisent une partie très spécifique des fluctuations présentes lors d'une expérience de transport, comme nous l'avons vu dans nos réflexions sur la façon dont les effets de vaporisation s'automoyennent. Finalement, pour illustrer encore les deux idées ci dessus, disons que pour retrouver tout ceci dans un matériau cristallin et/ou métallique, où le transport de la chaleur est bien plus facile, il faut que la sollicitation du système devienne immensément violente, comme cela a été le cas dans nos expériences de Claquage Optique.

Chapitre 2

Fluctuations spatiales et non-linéarités dans les isolants d'Anderson.

Introduction

Le travail que nous présentons ici, ainsi que celui du prochain chapitre, constitue une recherche "amont" que nous avons entreprise en espérant pouvoir l'appliquer ultérieurement à la réalisation d'un *d'un bolomètre* pour la Microsonde Nucléaire du Laboratoire Pierre Süe. Signalons rapidement qu'un bolomètre est un détecteur de particules qui mesure l'énergie de la particule incidente par l'échauffement transitoire que cette dernière produit lors de son absorption dans le bolomètre. Les bolomètres sont donc des détecteurs "nouveaux" par rapport aux détecteurs classiques mesurant l'énergie via le nombre de paires électrons-trou crées lors de l'absorption de la particule. L'avantage des bolomètres est qu'ils permettent d'espérer un gain d'un ordre de grandeur sur la résolution en énergie de la particule, ce qui accroît bien sûr énormément la finesse de l'information analytique disponible dans un instrument tel que la Microsonde Nucléaire. Par exemple, en imaginant qu'un bolomètre à ions légers soit opérationnel avec sa sensibilité théorique de 1keV sur des ions légers de plusieurs MeV, on pourrait par l'analyse du spectre de rétro diffusion, avoir une information sur la composition élémentaire qui serait résolue à 0.5nm environ, et ce jusqu'à une profondeur de 10nm sous la surface. On aurait alors un instrument unique, permettant de réunir la physique des surfaces (investiguée jusqu'à moins de $1nm$ de la surface avec des techniques spécifiques) et la physique du volume où les techniques d'investigation ont d'habitude une résolution en profondeur supérieure à 10nm.

L'inconvénient des bolomètres est qu'ils ne peuvent fonctionner qu'à très basse température $T < 1$K, car aux températures plus élevées l'échauffement produit par la particule incidente est trop faible pour être mesurable [1]. Pour justifier qualitativement la nécessité de températures si basses, rappelons qu'un bolomètre est un objet *macroscopique* [2] dont on prétend mesurer très précisément l'échauffement produit par *une seule particule incidente* de quelques MeV d'énergie. Un bolomètre est donc avant tout un dispositif comportant un thermomètre subKelvin extrêmement précis (lequel est déposé sur le solide servant de lieu d'absorption aux particules incidentes). Or la maîtrise de l'élaboration de matériaux pouvant servir de thermomètres aux très basses T est *une chose rare*, et la physique de la grandeur servant de thermomètre est *encore mal comprise*. Ceci explique que nous ayons entrepris les travaux reportés ici et dans le Chapître 3 (voir note [3] en bas de page).

[1] Et de plus, les fluctuations thermodynamiques de l'énergie interne du bolomètre dégradent limitent inacceptablement la résolution possible en énergie, dès que $T > 1K$.

[2] Sa surface en effet doit être au moins de 10mm^2 dans le cas de la Microsonde, et son épaisseur de 100μm-1mm pour arrêter les ions légers de plusieurs MeV à coup sûr.

[3] Pour être tout à fait complet, soulignons que la réalisation concrète d'un bolomètre requiert, outre des moyens financiers (pour la cryogénie notamment), de pouvoir disposer d'une équipe de plusieurs physiciens permanents impliqués quotidiennement dans le projet. En dernier ressort, c'est ce point là qui n'a pu être réalisé, du fait de l'extrême faiblesse du flux d'embauches en recherche fondamentale, et c'est cette

Les semi-conducteurs amorphes sont de bons candidats pour être des thermomètres subKelvin. En effet, la perte de la symétrie par translation discrète constitue une diminution extrêmement forte des contraintes pesant sur les solutions possibles des équations du problème physique. En invoquant (qualitativement) le principe "de bon sens" formulé par Pierre Curie ("les solutions d'un problème sont *au moins aussi symétriques* que l'ensemble des causes qui leur a donné naissance"), on s'attend à ce que ces systèmes "répondent à toutes les échelles d'énergie", c'est à dire à ce que la bande interdite en énergie soit supprimée : le système devrait donc être sensible à toutes les échelles de température, d'où un intérêt *a priori* en thermométrie subKelvin.

Comme cela a été montré par Anderson, à la fin des années cinquante [19], ces systèmes présentent une transition Métal-Isolant lorsque la quantité de désordre est accrue ou lorsque le niveau de Fermi E_F est abaissé (en diminuant, par exemple, le dopage du semiconducteur). Comme suggéré précédemment, cette transition n'est *pas liée à l'annulation de la densité d'états au niveau de Fermi* mais à un changement des fonctions d'onde avec le désordre. L'idée principale est que lorsque le désordre est faible (ou que E_F est élevé) les états propres électroniques restent délocalisés, alors que lorsque le désordre excède une certaine valeur critique (ou que E_F est inférieur à un seuil E_{mob}) les fonctions d'onde deviennent exponentiellement localisées autour d'une origine r_0 et sur une longueur de localisation ξ : $\psi \propto \exp -\frac{r-r_0}{\xi}$. Cette localisation des états propres suggère l'existence d'une transition Métal-Isolant à température nulle $T = 0$ et, pour fixer les idées, disons que des traces manifestes de cette transition de température nulle subsistent jusqu'à $T \sim 1$Kelvin.

Nous étudions ici le transport subKelvin [20]-[26] dans des alliages $a - Y_x Si_{1-x}$ avec $x \simeq 0.19$, qui sont des systèmes réalisés par co-pulvérisation cathodique (où le plasma est confiné par champ magnétique) sur un substrat refroidi à 77K de façon à empêcher toute ségrégation des atomes incidents [27]-[32]. Puisque l'on a en vue des applications éventuelles en bolométrie, on s'est intéressé aux effets de non-linéarités courant-tension, c'est à dire aux effets "non perturbatifs" du champ électrique F (de très basse fréquence) appliqué à l'échantillon. En effet, dans un bolomètre, l'absorption d'une particule incidente se traduit par un saut transitoire de courant (à F fixée), et bien sûr, on cherche à maximiser ce saut en travaillant à des valeurs élevées de F. Cependant, à la limite des champs très forts, l'utilité "bolométrique" disparaît puisque le transport devient indépendant de T. Nous verrons en premier lieu que, formellement, on peut déduire [33]-[41] le transport à champs forts de celui à $F \to 0$ en remplaçant T par F. Cependant, cette transposition formelle cache une importante différence pour le transport dans ces deux cas extrêmes que sont $F \to 0$ ou $F \to \infty$: la nature statistique du chemin portant l'essentiel du courant n'est pas du tout la même dans les deux cas.

Ceci se manifestera dans notre deuxième point, consacré aux champs "intermédiaires", où nous montrerons que les non linéarités traduisent, pour une part, le passage graduel entre ces deux types de chemin portant l'intensité, comme cela avait été prédit par les travaux de Böttger et Bryksin [42]-[46]. Nous montrerons que, contrairement aux nombreuses études menées aussi bien sur des amorphes [47]-[55] que sur des Semi-conducteurs dopés [56]-[68], nos mesures ne peuvent être correctement expliquées que par un modèle incluant explicitement cet effet, et qu'elles permettent de mesurer la valeur d'un exposant critique, jusqu'ici inconnu, exprimant ce changement graduel du chemin de conduction.

Enfin, la troisième partie portera sur le modèle dit "des électrons chauds", dont nous montrerons qu'il n'est pas pertinent pour nos systèmes, information d'importance puisque ce modèle est en revanche pertinent pour le comportement d'autres semi-conducteurs amorphes, réputés très voisins des nôtres [65], [68]-[77]. Nous montrerons ainsi que, un demi-siècle après le travail d'Anderson, nous sommes toujours en attente d'une vision unifiée du transport dans ces systèmes [77].

---

impossibilité qui a concrètement amené ma demande de départ du Laboratoire Pierre Süe.

2.1 Transport en régime "extrême" : $F \to 0$ ou ∞

Nous donnons ici d'abord un argument intuitif sur le mécanisme de conduction par saut à portée variable ainsi qu'un bref aperçu du cadre expérimental. "Le décor étant ainsi planté", nous examinons ensuite l'analogie formelle existant pour le transport entre les deux régimes extrêmes $F \to 0$ ou bien $F \to \infty$. En dernier lieu, nous soulignerons la profonde différence existant entre ces deux régimes, au-delà de leur identité formelle.

2.1.1 Saut à portée variable et cadre expérimental.

2.1.1.1 Argument intuitif de Mott.

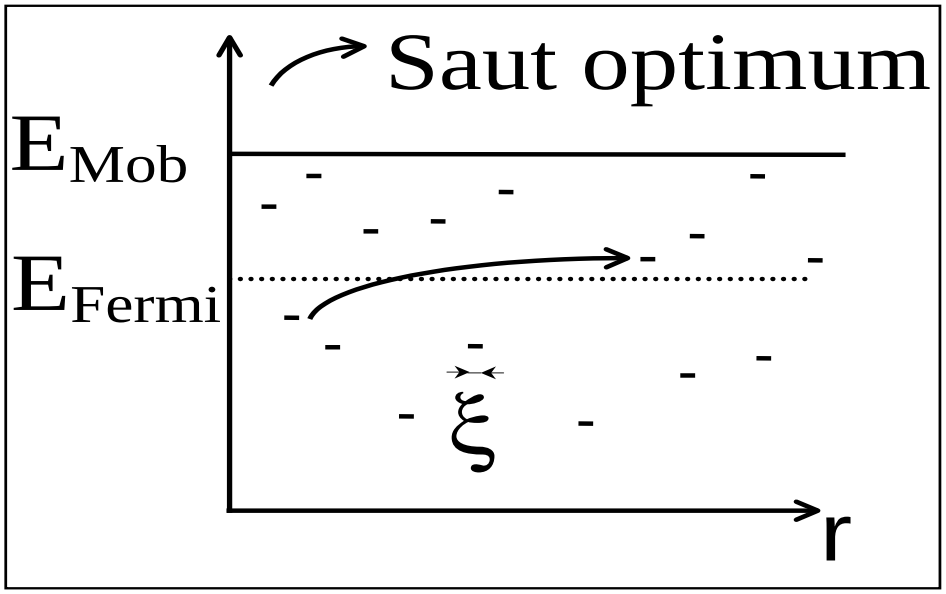

FIG. 2.1 – Schéma "espace-énergie" des états électroniques d'un semi-conducteur amorphe : pour les énergies inférieures au seuil de mobilité E_{mob}, les états deviennent spatialement exponentiellement localisés sur une échelle ξ. La valeur E_F du niveau de Fermi est fixée par celle du dopage, qui correspond dans notre cas à la quantité d'Yttrium x présent dans notre alliage $a - Y_x Si_{1-x}$. Le transport électrique se fait par saut entre états localisés : plus T est faible, plus est grande la longueur du saut le plus probable (et plus est faible son amplitude énergétique). C'est pourquoi on parle de transport par "saut à portée variable".

C'est Mott qui a prédit [20], dix ans après le travail originel d'Anderson, que, dans les isolants désordonnés [4] , R diverge de façon très spécifique lorsque T décroît. L'argument de Mott peut se résumer très simplement : considérons deux états électroniques i et j respectivement localisés autour de r_i et r_j dans l'espace des positions, comme cela est décrit sur la Figure 2.1 page 33. Désignons par E_i et E_j les énergies correspondantes et supposons par simplicité que $E_i < \mu < E_j$, où μ est le potentiel chimique [5]. Mott considère la probabilité $P_{i,j}$ qu'un électron dans l'état i se retrouve dans l'état j. Il écrit :

$$P_{i,j} \propto e^{-\left(\frac{r_{i,j}}{\xi} + \frac{E_{i,j}}{k_B T}\right)} \tag{2.1}$$

où k_B est la constante de Boltzmann, $r_{i,j} = |r_i - r_j|$ et $E_{i,j} = E_j - E_j$. L'idée clef est que lorsque $r_{i,j}$ augmente les deux arguments de l'exponentielle varient en sens inverse. En effet, l'augmentation de $r_{i,j}$ décroît d'une part la probabilité que l'effet tunnel ait lieu -ce qui est exprimé par le fait que $\exp -\frac{r_{i,j}}{\xi}$ décroît- ; mais d'autre part accroît la possibilité que $E_{i,j}$ soit petit. En effet, $E_{i,j}$ peut être choisi égal à l'écart entre niveaux dans une boite de

[4] "Isolant" est à prendre au sens de la transition d'Anderson à $T = 0$, c'est à dire que $R(T \to 0) \to \infty$.
[5] μ intervient dans la statistique de Fermi Dirac, et $\mu(T \to 0) \to E_F$.

taille $r_{i,j}$ contenant donc $\left(\frac{r_{i,j}}{\xi}\right)^d$ sites de localisation, en notant par d la dimensionnalité du système . Si T_0 est l'écart de niveaux à l'échelle ξ, on obtient, en tirant les niveaux d'énergie indépendamment, :

$$E_{i,j} = k_B T_0 \left(\frac{r_{i,j}}{\xi}\right)^{-d} \tag{2.2}$$

c'est à dire une diminution de $E_{i,j}$ lorsque $r_{i,j}$ augmente. L'utilisation de cette dernière expression dans $P_{i,j}$ permet de maximiser $P_{i,j}$ simplement en dérivant par rapport à $r_{i,j}$. Le saut le plus probable correspond à :

$$r_{i,j} = r_{Mott} \simeq \frac{\xi}{2}\left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma} \quad \text{et} \quad E_{i,j} = E_{Mott} \simeq \frac{k_B T}{2}\left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma} \quad \text{où} \quad \gamma = \frac{1}{d+1} \tag{2.3}$$

Ces deux quantités sont respectivement appelées "rayon de Mott" et "énergie de Mott" et définissent les paramètres du saut le plus probable à basse température. Notons que lorsque T tend vers 0, r_{Mott} diverge et que E_{Mott} tend vers 0. Ceci reflète que dans les isolants désordonnés une optimisation peut être réalisée entre l'effet tunnel et le désordre en énergie. Ce mécanisme de conduction appelé "Saut à Portée Variable" dominera à basse température car il produit une divergence extrêmement lente de la résistance électrique par rapport à ce donnerait une activation simple du type loi d'Arrhenius. En effet, en supposant que $R \propto P^{-1}_{i,j,Mott}$, nous obtenons la fameuse prédiction de Mott :

$$R \propto \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma} \tag{2.4}$$

L'argument de Mott ci dessus ne donne que la résistance associée à un saut électronique *typique*. Nous verrons dans la section 2.1.3 comment on peut justifier cette loi en ce qui concerne la résistance associée à un échantillon macroscopique, comportant un grand nombre de sauts électroniques.

Précisons tout de suite les ordres de grandeurs pour notre échantillon : $\xi \simeq 7$nm et vers $T = 100mK$ on trouve $(T_0/T)^{\gamma} \simeq 50$ ce qui correspond à des sauts de longueur $r_{Mott} \simeq 200$nm et d'amplitude en énergie $E_{Mott} = 2.5$K. Ces valeurs peuvent être déduites des expériences de transport dont nous décrivons brièvement le cadre maintenant.

2.1.1.2 Cadre expérimental

Comme cela est montré sur la Figure 2.2 page 35, notre échantillon d'$Y_{0.19}Si_{0.81}$ amorphe est déposé sur un substrat de Saphir sur lequel deux électrodes d'Or en forme de peigne interdigité ont été évaporées et gravées. L'espacement entre deux doigts d'Or consécutifs appartenant à chacun des deux peignes est $l = 128\mu$m : c'est la longueur sur laquelle est appliquée la tension $V = Fl$ produisant le courant I mesuré. A T fixée, ce courant I est mesuré après avoir attendu $t_{att} \geq 100$s pour laisser disparaître tout effet transitoire lié, via la résistance C des câbles, à la nouvelle valeur de F que l'on vient d'imposer. Pour éviter toute contamination du courant mesuré par d'éventuelles fuites via le diélectrique des blindages coaxiaux protégeant la mesure, nous avons limité les valeurs rapportées à $I > 10^{-13}$A, valeur 1000 fois supérieure à la résolution de notre Ampèremètre Keithley 617.

Comme le montre la Figure 2.2, nous avons pris beaucoup de soin à thermaliser correctement notre échantillon sur le thermostat (constitué par la chambre de mesure en Cuivre de notre cryostat à dilution [6]) en soudant le plus grand nombre possible de fils d'Or entre une piste métallique sur l'échantillon est le porte échantillon. Nous montrerons dans la

[6]Pour atteindre des T aussi basses, on utilise la propriété qu'ont les mélanges He_3/He_4 de se démixer en deux phases à $T \leq 0.7$K. La phase riche en He_4 est alors superfluide et ne contient qu'un faible pourcentage d'He_3. Elle joue alors vis à vis de la phase riche en He_3 le rôle d'une phase de "vapeur" d'He_3. C'est à dire que si l'on pompe sur cette phase riche en He_4, le flux sera essentiellement constitué d'He_3 "sortant" de la phase riche en He_3 : cela produit alors du "froid" (le système fournit de la chaleur) comme à chaque fois que l'on pompe sur un liquide à travers sa vapeur. Pour être très concret, le principe est le même que

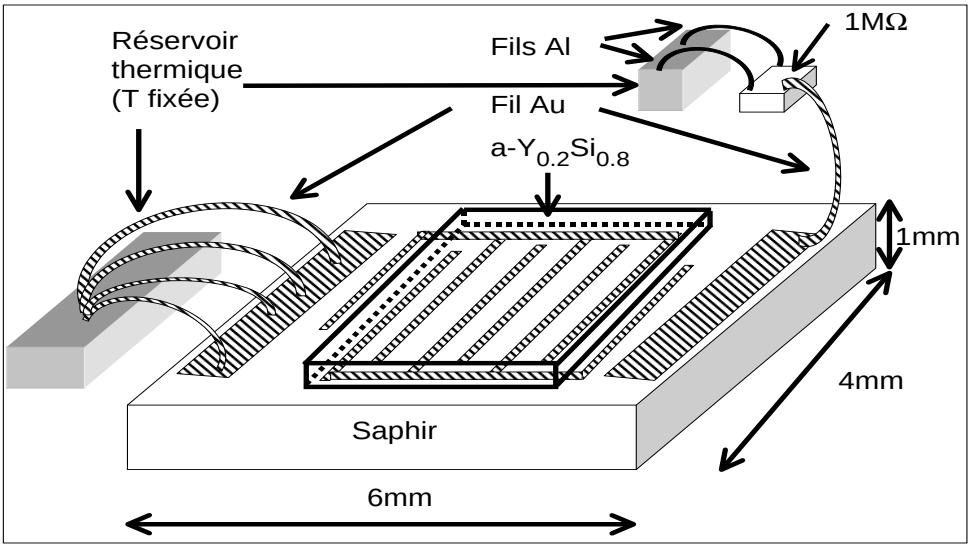

FIG. 2.2 – Cadre expérimental : notre échantillon est une couche de 9μm d'$a - Y_{0.19}Si_{0.81}$ déposée sur un substrat de Saphir, avec des électrodes d'Or en peigne interdigité pour les expériences de transport. La thermalisation de l'échantillon par le thermostat T est réalisée par 43 fils d'Or soudés par ultra sons sur la large bande d'Or à gauche du substrat. Le dispositif en haut à droite sert aux mesures indépendantes de conductance thermique entre notre échantillon et le thermostat (cf. section 2.3) : une résistance submillimétrique, dont la résistance est *insensible à* T, est suspendue entre deux fils d'Aluminium micro soudés. Ainsi, pour $T \ll 1K$ la chaleur dissipée par l'application d'une tension sur cette résistance ne peut s'écouler que via le fil d'Or relié à l'échantillon, puisque les fils d'Aluminium sont supraconducteurs et donc très mauvais conducteurs thermiques. On dispose alors d'une source de chaleur contrôlée directement couplée à l'échantillon.

section 2.3 que cette thermalisation était suffisamment efficace pour que la température de notre échantillon soit toujours très proche de celle du thermostat, en dépit de la dissipation de la puissance électrique IFl dans notre échantillon. Par ailleurs, nous avons vérifié que le dispositif de régulation de T fixait la valeur de la température à mieux que 1% près.

On obtient ainsi le réseau de courbes $I(F)$ représenté sur la Figure 2.3 page 36. Ceci constitue les données que nous allons exploiter durant tout le reste du chapitre. On constate déjà que lorsque F/T devient très grand, le courant mesuré I n'est plus dépendant de T : c'est ce que nous appellerons le régime $F \to \infty$, par opposition au régime $F \to 0$ pour lequel la résistance $R = Fl/I$ est indépendante de F et ne dépend que de T.

2.1.2 Analogie formelle entre les deux régimes extrêmes.

Nous admettons ici ce qui ne sera montré qu'en section 2.1.3, à savoir que l'argument intuitif de Mott (équations 2.1-2.4) est valide lorsqu'il s'agit, non pas seulement de la résistance du saut localement le plus probable, mais de la résistance de l'échantillon entier. Nous étudions ici les régimes "F nul" et "F infini", dont on peut établir qu'ils correspondent respectivement à $eF\xi \ll k_BT$ et à $eF\xi \gg k_BT$.

---

celui qui fait que l'on a froid au sortir de la douche, du fait du pompage de l'eau liquide (recouvrant la peau) par le vaste volume de la salle de bains. Sauf que là il s'agit d'un mélange des isotopes de l'Hélium, circulant en circuit fermé ultra propre, dans un cryostat que l'on a préalablement refroidi à la 4.2K en le remplissant de plusieurs dizaines de litres d'Hélium (He_4) liquide.

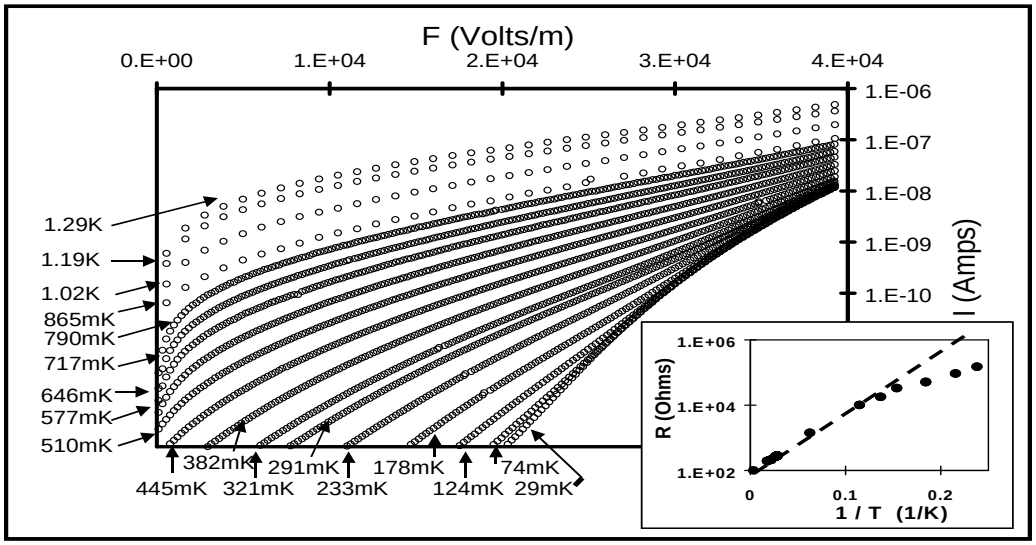

FIG. 2.3 – Comportement du courant en fonction du champ électrique F appliqué à notre échantillon décrit Figure 2.2. On dispose de courbes $I(F)$ à 36 valeurs de T comprises entre 29mK et 1.3K (on en a représenté que 18 par souci de clarté). Le régime $F \to 0$ suit une loi d'Efros-Shklovskii (voir Figure 2.4 page 37), tandis que le régime à fort F, caractérisé par la disparition de la dépendance en T suit une loi de Shklovskii, formellement analogue à celle de $F \to 0$ en remplaçant T par F. En encart, on donne $R(F \to 0)$ en fonction de $1/T$ pour les températures au-dessus de $4.2K$: la ligne pointillée correspond à une loi d'activation simple avec une énergie caractéristique $T_1 = 40$K, énergie qui nous donne la différence entre le niveau de Fermi E_F et le bord de mobilité E_{mob}.

2.1.2.1 Mesures à $F \to 0$: loi d'Efros-Shklovskii.

Considérons l'encart en bas à droite de la Figure 2.3 page 36. On constate que pour les températures supérieures à 10K on a :

$$R(F \to 0) = R_1 e^{\frac{T_1}{T}} \quad \text{où} \quad T_1 = 40 \pm 4K \quad \text{et} \quad R_1 = 88 \pm 2\Omega \tag{2.5}$$

Cette loi dite "d'activation simple" évoque, de façon évidente, une conduction par excitation des électrons quittant le niveau de Fermi pour sauter *par-dessus* le bord de mobilité E_{Mob} défini sur la Figure 2.1 page 33. On a donc $T_1 = E_{Mob} - E_F$.

En revanche pour $T \leq 8$K, $R(F \to 0)$ croit *moins vite quand T diminue* que ce qui serait attendu selon l'équation 2.5 ci dessus. Ceci indique que le transport se produit par un mécanisme plus subtil que "l'activation simple", ce mécanisme amenant une divergence plus lente de la résistance. On pense alors naturellement au mécanisme de saut à portée variable, qui se produit entre états localisés et qui, selon l'équation 2.4 page 34 produit une divergence de $\ln R$ en $1/T^\gamma$ avec $\gamma < 1$.

Pour analyser précisément $R(F \to 0, T \leq 8\text{K})$, nous avons porté les données de la Figure 2.3 selon une représentation $(F/T, \ln(V/I))$ correspondant à la Figure 2.7 page 42. Les valeurs de $G(F \to 0) = 1/R(F \to 0)$ ont été obtenues par extrapolation linéaire (des premiers points de chaque courbe) vers les champs faibles. Vu la restriction que nous nous sommes imposée sur les valeurs de $I > 10^{-13}$A, pour permettre une extrapolation précise, nous l'avons limitée aux cas 0.4K$< T <$ 1.3K. Nous avons vérifié que les valeurs obtenues pour $G(F \to 0)$ dépendent négligeablement du nombre de points que nous sélectionnons à bas champ. Pour trouver le meilleur exposant γ rendant compte de nos mesures, il ne suffit pas de porter $\ln[G(F \to 0)]$ en fonction de $T^{-\gamma}$ car dans une telle représentation il existe un large intervalle de valeurs de γ pour lesquelles les mesures ont l'air de s'aligner *à peu près* sur une droite. En fait, pour comparer les divers γ, le mieux est d'adopter la représentation de la Figure 2.4, où l'on constate que $\gamma = 0.5$ est meilleur que $\gamma = 1/4$ et que $\gamma = 1$. Par

une procédure d'ajustement des données selon une loi $G(F \to 0, T) = G_0 \exp -(T_0/T)^\gamma$ où l'on laisse γ, T_0 et G_0 libres, on trouve que le meilleur jeu de paramètres est :

$$\gamma = 0.47 \pm 0.02 \quad \text{et} \quad T_0 = 257 \pm 1.5K \quad \text{et} \quad R_0 = \frac{1}{G_0} = 92 \pm 5\Omega \tag{2.6}$$

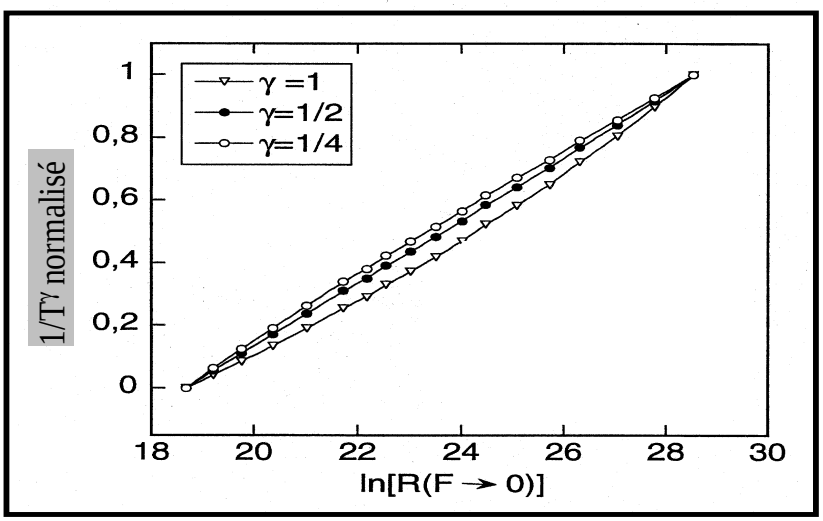

FIG. 2.4 – Valeur normalisée de $T^{-\gamma}$ pour 3 valeurs de γ en fonction du logarithme de la résistance à $F \to 0$. Ce qu'on appelle "valeur normalisée" de $T^{-\gamma}$ est $(T^{-\gamma} - T_{Min}^{-\gamma})/(T_{Max}^{-\gamma} - T_{Min}^{-\gamma})$ où T_{Min} et T_{Max} sont les deux valeurs extrêmes expérimentales de T.

Faut-il conclure de cette valeur, en comparant avec l'équation 2.3 page 34, que pour notre échantillon $d = 1$? Ce ne serait pas acceptable physiquement, puisque toutes les dimensions de notre système sont très grandes devant l'échelle d'un saut électronique, et que donc on attend $d = 3$ c'est à dire $\gamma = 1/4$. En fait, cette valeur $\gamma = 1/2$ est observée depuis longtemps dans beaucoup de systèmes similaires au notre et *elle avait été prévue* par le modèle d'Efros et Shklovskii [21]. Ces auteurs en effet ont proposé d'inclure les interactions entre électrons localisés en modifiant la densité d'états au niveau de Fermi. Au lieu d'une valeur constante pour la densité $n(E)$ autour du niveau de Fermi, Efros et Shklovskii donnent des arguments prédisant que les interactions électron-électron, négligés jusqu'ici, sont responsables d'une annulation continue de la densité d'états juste au niveau de Fermi, avec une dépendance fonctionnelle de la densité n avec l'énergie telle que $\gamma = 1/2$ *quelle que soit la dimensionnalité d*. Ces auteurs précisent que, si $\epsilon_0\epsilon_r$ est la constante diélectrique du matériau, alors on doit avoir :

$$k_B T_0 = \frac{2.9e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\xi} \tag{2.7}$$

où l'on reconnaît dans la formule précédente l'énergie d'interaction entre deux électrons éloignés de ξ, ce qui est naturel puisque Efros et Shklovskii considèrent les effets d'interaction entre électrons et que ξ est la seule longueur fondamentale du problème. Toute l'astuce d'Efros et Shklovskii tient donc dans l'argumentation qu'ils donnent au sujet de la dépendance fonctionnelle de la densité d'états autour de E_F leur permettant de prédire $\gamma = 1/2$ quelle que soit d.

En utilisant les paramètres trouvés à l'équation 2.6 et en utilisant l'équation 2.7 on trouve que ceux ci sont compatibles avec $\xi = 7$nm et $\epsilon_r = 29$, cette dernière valeur étant assez grande du fait de la relativement grande "polarisabilité" des électrons participant au saut à portée variable. Sans entrer dans les détails, signalons que ces deux paramètres ξ et ϵ_r peuvent être extraits *indépendamment l'un de l'autre* [79]-[82] à partir des données de la

Figure 2.5, pour peu que l'on utilise à la fois les données à $F \to 0$ et celles correspondant au régime de champ intermédiaire, selon le modèle dont nous montrerons la pertinence en section 2.2. .

2.1.2.2 Mesures à $F \to \infty$: loi de Shklovskii et effet tunnel à travers E_{Mob}.

Le cas des champs forts "$F \to \infty$" est défini par $eF\xi/(k_BT) \gg 1$. Dans ce cas, on montre, à la suite des travaux initiés par B. Shklowskii [33]-[38], que le courant est porté par des sauts entre des sites i et j tels que leur différence en énergie $E_{i,j}$ vaut $eFr_{i,j}$. Autrement dit, pour de tels sauts il n'y a plus d'exponentielle d'activation thermique puisque l'intégralité de l'énergie du saut est fournie par le champ électrique. C'est pourquoi, on se convainc assez facilement que le courant $I_{i,j}$ entre ces deux sites vaut $I_{i,j} \propto \exp -2r_{ij}/\xi$, ce qui, après une certaine procédure d'optimisation que l'on exposera en section 2.1.3., amène :

$$I = I_0 \exp\left[-\left(\frac{F_0}{F}\right)^{\gamma'}\right] \quad \text{avec} \quad \gamma' = \gamma \quad \text{et} \quad F_0 = N_\gamma \frac{k_B T_0}{e\xi} \tag{2.8}$$

où N_γ est une constante numérique, qui fut calculée [36] dans le cas du saut à portée variable de Mott : $N_{\gamma=1/4} = 4.8$. Pour le cas qui nous préoccupe $N_{1/2}$ n'est pas connu *a priori*.

De façon évidente, nos courbes (I, F) obtenues aux plus basses températures appartiennent entièrement au régime des champs forts puisqu'on ne peut pas distinguer celle enregistrée à 29mK de celle enregistrée à 49mK, et que la dissipation de l'énergie électrique ne chauffe pas l'échantillon (cf. section 2.3). D'ailleurs avec $\xi = 7$nm, on obtient $eF\xi/(k_BT) \geq 50$ pour tous les points reportés sur la Figure 2.3 page 36 à $T = 29$mK, ce qui vérifie largement le critère champs forts.

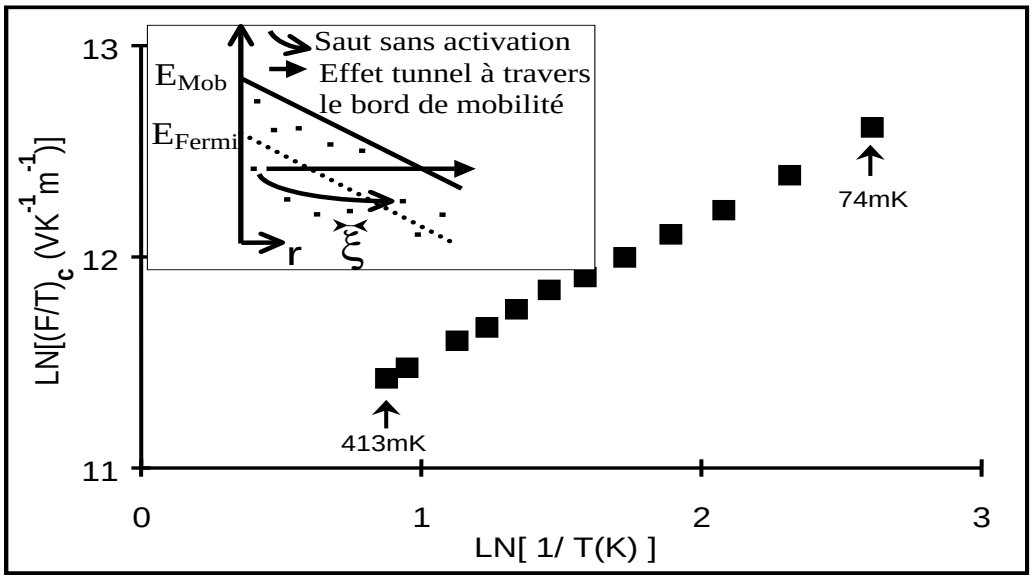

FIG. 2.5 – Encart : A très fort champ, le transport peut se faire soit par effet tunnel à travers le bord de mobilité (flèche horizontale), soit par sauts entre états localisés où l'énergie du saut n'a pas à être fournie par les phonons puisqu'elle est fournie par le champ électrique (flèche arquée vers le bas). Figure principale : Valeur critique du rapport $(F/T)_c$ pour lequel le transport devient de type "champ infini", c'est à dire indépendant de T puisque F_c est défini par $I(F_c, T) = k \times I(F, 29\text{mK})$ avec $k = 1.1$. Quelle que soit la valeur de k choisie proche de 1, on observe que $(F/T)_c$ dépend de T, ce qui suggère (par comparaison des équations 2.8 et 2.12 avec $\gamma = \gamma'$ et $\alpha = \alpha'$) que le saut sans activation n'est pas le seul mécanisme de conduction en régime des champs forts, par exemple du fait de l'effet tunnel à travers le bord de mobilité.

Cherchant le meilleur ajustement possible entre $I(F, 29\text{mK})$ et l'équation 2.8, avec $\gamma' = 1/2$ mais F_0 et I_0 libres, nous trouvons $F_0 = (3.8 \pm 0.05) \times 10^7$ V/m, ce qui conduit à $4 \leq N_{1/2} \leq 11$ compte tenu de la marge d'incertitude sur ξ autour de sa valeur optimale de 7 nm. Ces valeurs sont raisonnables, comme cela avait été déjà constaté dans [51], [53], [64], [67] (le cas de [52] faisant seul exception). Cependant, l'écart normalisé χ^2 entre chaque point de donnée et l'équation 2.8 est un peu grand, ce qui amène à mettre en question l'ajustement avec l'équation 2.8. D'ailleurs, si on laisse γ' libre dans l'ajustement, sa valeur optimale n'est pas 0.5 mais 0.65, cette dernière diminuant nettement le χ^2.

Nous avons montré qu'il était raisonnable de penser que ces (menus) problèmes provenaient de ce qu'au moins un autre mécanisme est susceptible de venir "concurrencer" le transport par sauts assistés par le champ F : à savoir la possibilité qu'un électron quitte son niveau localisé, et, par effet tunnel à énergie constante, se retrouve au-dessus du bord de mobilité E_{mob}, avant de retomber quelque part dans la bande d'états localisés. Un tel mécanisme produit un courant [54] :

$$I \propto \exp\left[-\left(\frac{4}{3eF}\right)\sqrt{\frac{2m(k_B T_1)^3}{\hbar^2}}\right] = \exp\left[-\frac{F_1}{F}\right] \tag{2.9}$$

où, comme nous l'avons vu plus haut, $k_B T_1$ est l'énergie séparant le niveau de Fermi de E_{mob} et m la masse de l'électron. Avec $T_1 = 40$ K, l'équation 2.9 prédit $F_1 = 1.4 \times 10^6$ V/m. Un ajustement de $I(F, 29\text{mK})$ avec l'équation 2.9 fournit un χ^2 par point un peu meilleur que celui obtenu avec l'équation 2.8, ainsi que comme valeur optimale $F_1 = (5.5 \pm 0.05) \times 10^5$ V/m, ce qui constitue une valeur seulement 2.5 fois plus faible que la valeur prédite.

Pour achever de prouver que la loi de Shklovskii, à elle seule, ne rend pas compte du transport en champ fort, nous pouvons considérer la Figure 2.5 où l'on a reporté la valeur critique du rapport $(F/T)_c$ pour lequel le transport devient de type "champ infini", c'est à dire indépendant de T puisque F_c est défini par $I(F_c, T) = k \times I(F, 29\text{mK})$ avec $k = 1.1$. Le fait que $(F/T)_c$ dépende nettement de T prouve que l'équation 2.8 n'est pas la seule en jeu : ceci apparaîtra en section 2.2.

2.1.3 Différence des types de chemin de conduction pour $F \to 0$ et $F \to \infty$

Jusqu'ici, nous n'avons pas réellement établi le comportement de la résistance d'un échantillon *macroscopique* . En effet, il doit exister de nombreux cas où l'électron *ne trouve pas de niveau éloigné de lui de* r_{Mott}, E_{Mott}. Or la conductance $G_{i,j}$ entre deux sites i et j dépend exponentiellement de $r_{i,j}, E_{i,j}$. Il n'est donc pas évident de savoir dans quel sens les fluctuations du couple r_{Mott}, E_{Mott} vont jouer. Va t-il y avoir compensation entre les sauts favorables ($G_{i,j} > G_{Mott}$) et les sauts défavorables ($G_{i,j} < G_{Mott}$) ? La réponse demande une analyse statistique fine (initiée par Ambegaokar, Halperin et Langer [22] et complétée ensuite [23]-[26]) dont nous donnons un aperçu.

Partant d'un réseau d-dimensionnel de sites tous reliés entre eux par les conductances $G_{i,j} \propto P_{i,j}$ définies par l'équation 2.1, la question est désormais de savoir comment estimer la conductance G_{macro} totale à l'échelle macroscopique. Le fait que $G_{i,j}$ varie exponentiellement vite avec les paramètres du saut exclue que l'on se contente de prendre la valeur moyenne de ces paramètres pour obtenir G_{macro}. En effet, lorsque les fluctuations entre conductance de sauts sont fortes, la résistance totale d'un chemin de conduction n'est pas seulement déterminée par le nombre de résistances rencontrées -i.e. par sa longueur- mais aussi par la valeur des résistances les plus fortes rencontrées. Il va donc y avoir compétition entre des chemins "directs" -donc courts- mais comportant forcément quelques résistances très fortes, et des chemins très tortueux -donc longs- mais qui réussissent à éviter toute résistance trop forte. Cette optimisation se théorise au moyen de ce que l'on appelle génériquement "les modèles de percolation" et le travail d'Halperin et al. en est un exemple adapté au transport dans le régime de saut à portée variable. Les auteurs commencent par classer tous les liens existant entre tous les sites par conductances décroissantes. Par la pensée, ils enlèvent tous ces liens et les rajoutent un par un en commençant par les plus conducteurs. A chaque étape, on teste pour savoir s'il existe un chemin traversant l'échantillon. Dès qu'un tel chemin existe, on stoppe le processus, car les liens que l'on pourrait

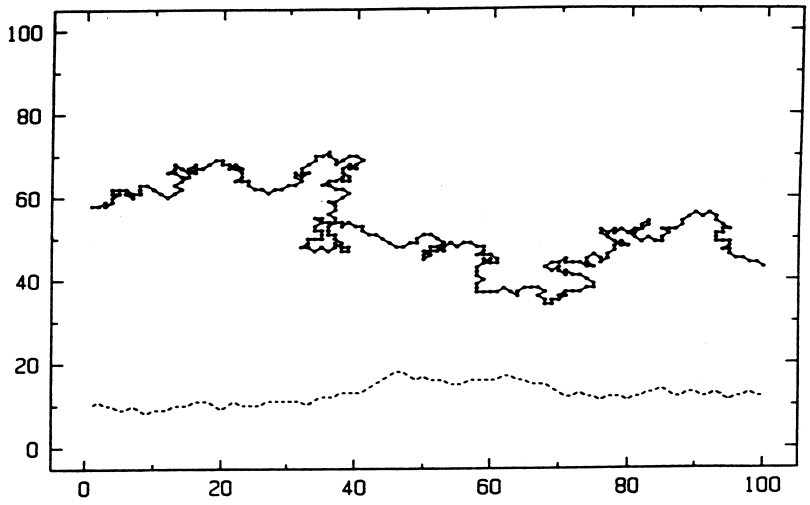

FIG. 2.6 – Percolation dans un réseau de 100x100 sites reliés chacun à leurs quatre premiers voisins. Le chemin tortueux est optimal si la résistance R_{ij} reliant deux sites voisins est lognormalement distribuée , i.e. si $R_{ij} = \exp \eta_{ij}$ où les η_{ij} sont normalement distribués. Ce chemin très tortueux est analogue à celui du transport en régime de saut à portée variable, pour une valeur de T donnée. Le chemin presque droit est optimal vis à vis de variables distribuées de façon étroite et dont on cherche à optimiser la somme le long d'un chemin traversant le réseau. Pour construire un tel chemin, on a donc posé $R_{ij} = \eta_{ij}$ où les η_{ij} sont normalement distribués. C'est le chemin du régime $F \to \infty$.

rajouter ont une importance négligeable puisqu'ils se retrouvent en parallèle avec des liens exponentiellement moins résistants qu'eux. On convient d'appeler "conductance critique" G_c la dernière des conductances rajoutée lors de la construction du chemin.

La Figure 2.6 page 40 illustre ce processus d'optimisation. Sur un réseau de 100x100 sites on a affecté une résistance $R_{i,j}$, entre sites premiers voisins, lognormalement distribuée, puisque $R_{i,j} = \exp(\eta_{i,j})$ où l'on a pris les $\eta_{i,j}$ normalement distribués. Ensuite, on a - comme ci dessus- enlevé toutes les résistances et on les a réintroduites une par une dans l'ordre des résistances croissantes. La procédure a été stoppée dès qu'un chemin traversant complètement l'échantillon s'est formé. Le chemin optimal obtenu est très tortueux, ainsi que nous l'avions qualitativement annoncé, et ceci est lié à la très large distribution des $R_{i,j}$. En effet, le chemin optimal correspondant aux $\eta_{i,j}$ a aussi été calculé et il se révèle beaucoup plus droit que celui optimisant R puisqu'il correspond à la ligne pointillée de la Figure 2.6. Ces deux types de chemins correspondent à deux classes d'universalité étudiées dans ce que l'on appelle les problèmes "d'optimisation en milieu aléatoire" [24] [23] : le chemin tortueux appartient à la classe d'universalité dite "de percolation isotrope", tandis que l'autre appartient à la classe d'universalité de la "percolation dirigée".

Notons pour terminer que :

- l'on retrouve la loi de Mott à l'échelle macroscopique mais que la valeur de T_0 est affectée d'un facteur $4\nu_c \simeq 16$ provenant spécifiquement de la nature percolative du problème et que nous n'avions bien sûr pas obtenu par l'approche intuitive exposée en section 2.1. . Ce facteur correspond à un facteur $(4\nu_c)^\gamma$ pour $\ln R$ par rapport à l'équation 2.4 page 34. Signalons que, en toute rigueur, on ne peut pas directement faire appel aux résultats de percolation sur réseaux pour estimer ν_c car les liens du chemin de conduction *ne sont pas tous de longueur égale*, et l'on ne se trouve donc pas sur un réseau régulier. En effet, les valeurs de $r_{i,j}$ et de E_i, E_j fluctuent de lien en lien et la seule contrainte que l'on impose pour construire le chemin de conduction est $G_{i,j} > G_c$. C'est pourquoi, il n'est pas surprenant que, suivant les auteurs, ce

coefficient varie quelque peu.

– Par des arguments généraux de percolation [26], on peut établir l'existence de la longueur typique de percolation $\mathcal{L}_p$ qui est la taille de ce que l'on appelle les "blobs", c'est à dire l'échelle au-delà de laquelle le système redevient homogène. Concrètement, cette longueur diverge lorsque la température diminue, puisque alors les résistances sont de plus en plus largement distribuées -et donc de moins en moins automoyennantes- ce qui revient à dire qu'il faut explorer un volume de plus en plus vaste avant d'échantillonner suffisamment la distribution des $G_{i,j}$ pour avoir une grandeur représentative du comportement macroscopique. De manière équivalente, on peut dire que $\mathcal{L}_p$ diverge au seuil de percolation p_c . Pour donner une image concrète, on peut suggérer que, à l'intérieur d'un blob il existe au moins un chemin ne comportant pas de résistances locales trop fortes ; mais qu'à chaque extrémité de blob se trouve une résistance "dominante" de l'ordre de $R_c = 1/G_c$, c'est à dire à la fois forte et incontournable, dont la valeur influe notablement sur la résistance macroscopique. On peut montrer que si r_m est la longueur typique du saut de Mott, on a :

$$\mathcal{L}_p = r_m \left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma\nu_p} \quad \text{où} \quad \nu_p(d=2) = \frac{4}{3} \quad \text{et} \quad \nu_p(d=3) = 0.9 \tag{2.10}$$

Soulignons que dans l'expression ci-dessus on retrouve bien une divergence de $\mathcal{L}_p$ lorsque l'on tend vers le seuil de percolation. Sur la Figure 2.6 la longueur de blob $\mathcal{L}_p$ est d'environ 10 fois la taille d'un saut élémentaire.

Pour résumer, nous avons établi que le saut à portée variable (avec l'exposant $\gamma = 1/2$ d'Efros et Shklovskii) rend bien compte du transport subKelvin dans chacun des régimes extrêmes : soit $F \to 0$, auquel cas les sauts sont "pilotés par T" ; soit $F \to \infty$, auquel cas c'est "F qui pilote". Au-delà de l'analogie formelle entre les lois de transport, nous avons vu cependant que les chemins de percolation associés à ces deux types saut à portée variable sont très différents. Nous allons maintenant établir que le passage, lorsque F augmente, du chemin "tortueux" au chemin "presque droit", influe notablement sur les non-linéarités $I(F)$ en régime de champ "intermédiaire".

2.2 Détermination de l'importance des retours.

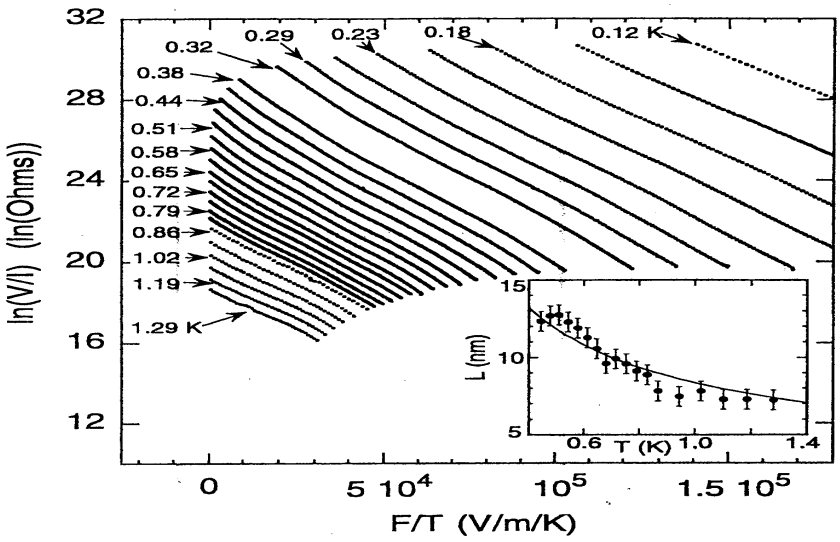

FIG. 2.7 – Représentation des données de la Figure 2.3 adaptée au test de l'équation 2.11 : selon cette prédiction les mesures à T donnée devraient former des droites, ce qui est *presque* le cas. Cependant, un regard plus attentif révèle des courbures, systématiquement positives à basses valeurs de F/T, et négatives à fortes valeurs de F/T. De même, la confrontation entre les valeurs de $L(T)$ extraites via l'équation 2.11 et le meilleur ajustement avec la prédiction $L \propto T^{-\gamma}$, en trait plein, suggère qu'une théorie plus fine est nécessaire pour le transport à champ intermédiaire.

Il s'agit maintenant de décrire le transport lorsqu'on ne peut ni négliger l'effet de T ni celui de F pour les sauts électroniques. Nous commençons par donner la relation la plus simple susceptible de décrire le transport en champ intermédiaire, et nous montrons qu'elle semble *presque* rendre compte des données si l'on veut bien les regarder "d'un peu loin". En second lieu, nous exposons, brièvement, les divers essais théoriques au sujet du transport en champ intermédiaire, ce qui, vu la complexité des problèmes rencontrés, nous amènera à douter un peu plus encore du fait que la relation la plus simple exposée tout d'abord puisse réellement rendre compte des données. Enfin, nous montrons qu'un seul des modèles exposés est pertinent pour nos données et que plusieurs grandeurs inconnues jusqu'alors peuvent être déterminées du fait de cette confrontation théorie-expérience.

2.2.1 Relation la plus simple pour les champs intermédiaires.

Le plus simple est d'écrire que, dans l'argument de Mott, l'énergie d'activation $E_{i,j}$ est diminuée par le travail que le champ électrique fournit lors du saut de Mott de longueur $r_m = \xi/2(T_0/T)^\gamma$. On aboutit donc [36] à :

$$G(F,T) = G(0,T)\exp\frac{eFL}{k_BT} \quad \text{où} \quad L = Cr_m = C(\frac{\xi}{2})(\frac{T_0}{T})^\gamma \tag{2.11}$$

où la constante C est censée être un nombre d'ordre 1. Donc, puisque L ne dépend que de T, dans la représentation de la Figure 2.7, on s'attend à ce que les mesures forment un réseau de droites, dont la pente sera $eL/(k_BT)$ permettant ainsi d'avoir accès à L pour chaque température T.

Il est frappant de constater que sur la Figure 2.7 les données *semblent s'aligner à peu près sur des droites*, comme cela est le cas dans la grande majorité des études de non-linéarités réalisées précédemment [49]-[50], [52], [56]-[63], [66]. En y regardant de plus près, c'est à dire en regardant ces droites non pas "par-dessus" mais "en incidence rasante", on

constate que, pour T donnée, les points constituent plutôt un "S" écrasé dont la courbure est systématiquement vers le haut à faible valeur de F/T, tandis qu'elle s'oriente systématiquement vers le bas pour les fortes valeurs de F/T. De même il semble y avoir une oscillation, en encart de la Figure 2.7, entre les valeurs de $L(T)$ obtenues et la prédiction $L = L_0(\frac{T_0}{T})^\gamma$ où l'on a forcé γ à valoir $1/2$ en où l'on laisse L_0 libre. On trouve alors que $L_0 = (0.52 \pm 0.01)$ nm avec un χ^2 par point de 1.1 . En plus de ces courbures systématiques détectées sur la Figure 2.7, l'insuffisance de l'équation 2.11 est confirmée par deux remarques :

- si on laisse γ libre dans l'ajustement de $L(T)$ la meilleure valeur $\gamma = 0.65$ produit un χ^2 deux fois inférieur à celui produit par la valeur attendue $\gamma = 0.5$.
- si on extrait L non pas à partir des quelques points proches de l'origine des "droites" de la Figure 2.7 mais à partir de l'ensemble des données on obtient quasiment les mêmes valeurs de $L(T)$ alors que le χ^2 s'est dégradé énormément. Ainsi, il semble que l'extraction de $L(T)$ ne soit pas une méthode extrêmement discriminante vis à vis des données.

Les deux sections suivantes vont donc consister à extraire l'information physique contenue "dans les courbures systématiques" de la Figure 2.7.

2.2.2 Théories du transport en champ intermédiaire.

Les diverses théories du transport en champ intermédiaire que nous discutons maintenant arrivent toutes à une expression, pour le courant $I(F,T)$, de la forme :

$$I(F,T) = I_1 \exp\left\{-\left(\frac{T_0}{T}\right)^\gamma \left[1 - A\frac{(eF\xi)^\alpha}{(k_BT)^{\alpha'}} + B\left(\frac{eF\xi}{k_BT}\right)^\beta\right]\right\} \qquad (2.12)$$

où bien sûr, les exposants α, α', β ainsi que les prefacteurs A, B dépendent de la modélisation effectuée [7]. La complexité de l'équation 2.12 provient de ce que trois effets doivent être pris en compte simultanément dans le régime des champs intermédiaires :

(i) Pour un site i appartenant au chemin de percolation, la densité des sites qui lui sont liés par une conductance non négligeable (supérieure à G_c) dépend de F. Un exemple extrême de ceci a déjà été vu lorsque l'on a décrit le saut "activé par le champ" dans le cas des champs forts (voir l'équation 2.8 et la Figure 2.5).

(ii) Le potentiel chimique local μ_i peut fluctuer assez fortement autour de sa valeur moyenne donnée par eFr_i et entraîner de fortes fluctuations des résistances locales, lesquelles sont susceptibles d'optimiser le passage du courant : le système peut concentrer le champ qui lui est appliqué sur les conductances les plus faibles, de façon à augmenter le courant global.

(iii) A $F \to 0$ le chemin de percolation est très tortueux (cf. Figure 2.6) ce qui se traduit par le fait qu'il contient de nombreux "retours", c'est à dire des portions de chemin où les électrons sautent *contre* la force électrique. Ces retours qui permettent au chemin d'être optimal à $F \to 0$ vont progressivement devenir des points de blocage du courant lorsque F sera devenu non négligeable.

Passons d'une phrase sur les modèles prédisant que $\alpha \neq \alpha'$ [34],[39] qui sont fort critiquables théoriquement et parfaitement non pertinents pour nos données puisque comme le montrent les Figures 2.8-2.9 pages 45-47, le transport à champ intermédiaire ne dépend que de F/T, ce qui restreint les modèles pertinents à ceux qui prédisent $\alpha = \alpha'$.

Parmi les modèles prédisant $\alpha = \alpha'$ deux catégories sont à distinguer :

(a) Les travaux qui négligent totalement l'effet *(iii)*, auquel cas $B \equiv 0$: .

- Selon Pollak et Reiss [36], à la suite de Hill [35], c'est l'effet *(i)* qui domine sur l'effet *(ii)*, ce qui permet à ces auteurs de prédire que $\alpha = 1$ et $A = 3/32$.
- En revanche selon Shklovskii [37], c'est exactement l'inverse : en concentrant l'essentiel du champ appliqué sur les quelques conductances critiques G_c situées aux extrémités des blobs, il construit un modèle montrant que les non linéarités $I(F)$ doivent être beaucoup plus fortes que ce que prédisent Pollak et Riess. En effet,

[7] Sans parler du pré facteur I_1 qui lui n'est tout simplement jamais calculé.

selon Shklovskii : $A \simeq 1$ et $\alpha = 1/(1+\nu_p) \simeq 1/2$ en dimension $d = 3$, ce qui produit un démarrage beaucoup plus vif des non linéarités lorsque F augmente.

(b) Les travaux qui prennent en compte l'effet des "retours" c'est à dire le changement de percolation. Il s'agit là uniquement des travaux de Böttger et Bryksin. Le problème étant extraordinairement compliqué, de nombreux articles ont été nécessaires [42]-[46], et finalement, les prédictions les plus fiables s'appuient en partie sur des résultats numériques [43]-[44] : $\alpha = 1$, $A = 1/6$, $B \simeq 0.02$ et $1/\beta \simeq 1.1$. Signalons que ce dernier exposant β n'est prédit qu'avec une marge d'erreur de 50% du fait des méthodes numériques utilisées. *L'analyse de nos données va justement permettre de déterminer cet exposant* β dont nous verrons qu'il décrit la façon dont la longueur Λ des "retours" diminue à mesure que F augmente. Bien sûr le fait que B soit positif exprime que les non-linéarités $I(F)$ vont être moins fortes que dans le cas $B \equiv 0$: on retrouve bien l'idée que les "retours" vont jouer comme des goulots d'étranglement lorsque F augmente.

2.2.3 Détermination de l'importance des "retours"

Nous établissons ici trois points principaux : d'abord que les non-linéarités sont une fonction universelle du paramètre F/T, ensuite que la prise en compte des points *(i)* et *(ii)* est *insuffisante* pour rendre compte des données, enfin que, en prenant en compte les "retours" via le modèle de Böttger et Bryksin on peut rendre compte des données correctement et déduire des informations sur le comportement des retours lorsque le champ F augmente.

2.2.3.1 Les non-linéarités en champ intermédiaire sont une fonction universelle de F/T

Afin de tester l'équation 2.12 qui résume les divers modèles du transport en champ intermédiaire, nous définissons :

$$\Psi(F,T) = \sqrt{\frac{T}{T_0}} \ln\left(\frac{I(F,T)}{I_{E.S.}(F,T)}\right) \text{ , avec } I_{E.S.}(F,T) = \frac{V}{R_0}\exp\left[-(\frac{T_0}{T})^{1/2}\right] \qquad (2.13)$$

où $V = Fl$, $R_0 = 92\,\Omega$ et $T_0 = 257\,K$ (voir l'équation 2.6) et $I_{E.S.}(F,T)$ est le courant qu'on attendrait s'il n'y avait pas du tout de phénomène non linéaire, c'est à dire si la loi d'Efros-Shklovskii de l'équation 2.4 page 34. Avec cette définition, on montre aisément que, si l'équation 2.12 concerne les non-linéarités de $G(T,F)$ (au lieu de celles de $I(T,F)$), Ψ vaut simplement $A(eF\xi)^{\alpha}/(k_BT)^{\alpha\prime} - B(eF\xi/k_BT)^{\beta}$. Nous avons été amenés à réaliser notre analyse sur les données concernant $G(T,F) = I(T,F)/(Fl)$ plutôt que sur celles concernant $I(T,F)$ du fait qu'aucune des théories proposées ne permet réellement un raccord entre les champs intermédiaires et le régime "linéaire" ($F \to 0$) puisque, en faisant $F \to 0$ dans l'équation 2.12, on trouve $I(F \to 0) = I_1 \exp\left[-(T_0/T)^{\gamma}\right]$, ce qui ne correspond pas à l'équation 2.4 page 34. Cette difficulté est d'ailleurs systématiquement ignorée dans les études expérimentales de transport en champ intermédiaires, lesquelles étudient toutes $G(F,T)$ au lieu de $I(F,T)$. Cependant, en plus du problème de l'extrapolation aux champs nuls, on peut donner un argument numérique justifiant ce choix du test des théories sur $G(F,T)$: c'est que la dépendance exponentielle de I avec F dans l'équation 2.12 a une influence bien plus forte que le dénominateur dans $G(F) \sim I(F)/F$.

Bien sûr, on ne traite ici que des champs intermédiaires, ce qui demande d'exclure au préalable les points des données de la Figure 2.3 correspondant aux champs forts, c'est à dire ceux tels que $I(F,T) \leq 1.1 \times I(F, 29\text{mK})$ (voir note [8] en bas de page). Une fois les points "champs forts" éliminés, on calcule Ψ pour chacun des 7164 points restants.

Comme le montre la Figure 2.8 page 45, $\Psi(F,T)$ *est une fonction universelle* de la variable F/T sur plus de trois ordres de grandeur, ceci bien que les 7164 points de la

[8] Encore une fois quel que soit le nombre proche de 1 que l'on prend à la place de 1.1 pour définir les champs forts, les résultats sont les mêmes.

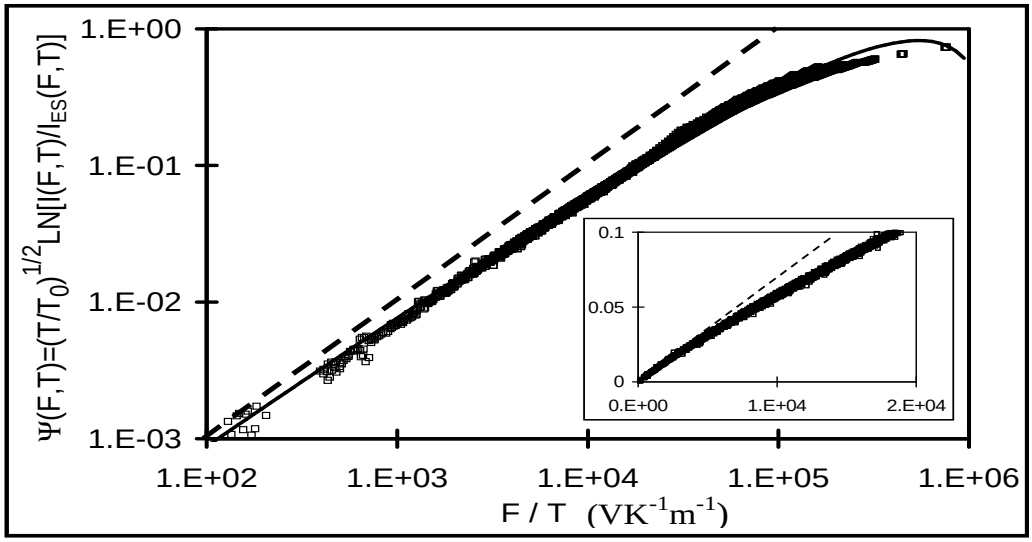

FIG. 2.8 – Représentation des données de la Figure 2.3 adaptée au test de l'équation 2.12 : le fait que l'ensemble des données (une fois les points "champ fort" enlevés) s'aligne sur une seule courbe prouve que le transport en champ intermédiaire ne dépend que de F/T, ce qui implique $\alpha = \alpha'$ dans l'équation 2.12. Parmi les modèles restants, on peut exclure tous ceux qui supposent que les "retours" ne jouent aucun rôle dans les non linéarités c'est à dire qui supposent $B \equiv 0$. En effet, dans ce cas, les points devraient s'aligner sur une *droite* de pente α (en pointillé, cas où $\alpha = 1$ correspondant au modèle de Pollak et Riess [36], lequel est équivalent à l'équation 2.11 page 42). Le trait continu représente l'ajustement par le modèle de Böttger et Bryksin (voir les paramètres dans le texte), ajustement qui demande de minimiser à la fois l'écart constaté sur cette Figure et en même temps celui constaté sur la Figure 2.9 page 47, selon la méthode exposée dans les équations 2.14-2.15 page 46. Ceci provient de ce que les deux termes de la théorie sont opposés et que leurs exposants sont proches. L'encart correspond à un grossissement sur la région $F/T \leq 2 \times 10^4$ V/Km, en échelles linéaires, ce qui permet de voir que l'écart à la prédiction de Pollak et Riess est présent y compris aux plus faibles F/T.

Figure 2.8 correspondent à 36 températures différentes comprises entre 49 mK et 1.29 K. Comme annoncé dans la section précédente, le fait que $\Psi(F,T)$ ne dépend que de F/T implique $\alpha = \alpha'$, ce qui exclue définitivement, pour notre échantillon, les modèles prédisant des valeurs différentes pour α et α'. De plus, la pente (en échelle log-log) de $\Psi(F/T)$ *aux faibles valeurs de* F/T est très proche de 1 et clairement plus grande que la valeur $1/(\nu+1) \simeq 0.53$ prédite par Shklovskii [37] (voir note [9]).

Ceci dit, nos données sont mal décrites par le modèle de Pollak et Riess [36] selon lesquels $\Psi \sim F/T$. En effet, la pente "log-log" de $\Psi(F/T)$ décroît à mesure que F/T. On s'aperçoit du fait que *la représentation de la Figure 2.8 est beaucoup plus discriminante* que celle de la Figure 2.7 où il semblait que la prédiction de Pollack et Riess (qui se ramène à l'équation "intuitive" 2.11) soit valide. Cette impression avait déjà été mise en doute sur des arguments qui avaient pu paraître "faibles" (existence de petites courbures systématiques, valeurs de χ^2, etc...). La Figure 2.8, elle, ne permet plus de doute au sujet du caractère

[9] Le fait que la concentration du champ appliqué sur les conductances les plus faibles se révèle non pertinente reste difficile à comprendre [40], tant cette construction proposée par Shklovskii semble ingénieuse : Levin et Shklovskii [41], sur la base de simulations, ont expliqué que cette concentration ne se produisait que lorsque on se trouve très "loin" dans le régime isolant, précisément lorsque $(T0/T)^{1/2} \geq 70$. En effet, les résistances locales sont alors très largement distribuées, c'est à dire que la longueur de blob $\mathcal{L}_p$ est très grande devant celle d'un saut, ce qui renforce la nécessité de concentrer le champ électrique sur les conductances critiques en bout de blob puisqu'elles sont si faibles par rapport à celles de l'intérieur d'un blob.

insuffisant de la prédiction de Pollak et Riess.

Avant de passer à la théorie de Böttger et Bryksin, signalons que les tentatives d'ajustement de $\Psi(F/T)$ par des "fonctions simples" ne donnent pas de bons résultats : si l'on essaye par une loi de puissance unique $(F/T)^{\alpha''}$ où α'' est libre, le résultat est mauvais quel que soit α'', particulièrement du fait des points de la région $F/T \geq 3 \times 10^4\,\mathrm{V\,K^{-1}m^{-1}}$. De même, si l'on essaye un polynôme $\Sigma_{i=1}^{m} a_i (F/T)^i$ l'ajustement est systématiquement mauvais même si on prend $m = 5$ termes indépendants.

2.2.3.2 Pertinence du modèle de Böttger et Bryksin.

Nous développons ici une analyse des données visant à tester la pertinence du modèle de Böttger et Bryksin pour notre échantillon. Ce test n'est pas simple à faire du fait que la prédiction de ces auteurs est que Ψ doit être *la différence de deux puissances de F/T dont les exposants peuvent être proches*, la proximité des exposants étant rendue possible sans être certaine du fait de l'incertitude sur la valeur de β. Nous avons donc à chercher le meilleur ajustement entre les valeurs de $\Psi(F/T)$ extraites des données et la fonction :

$$\Gamma \frac{F}{T} - \Delta \left(\frac{F}{T}\right)^{\beta} \tag{2.14}$$

où Γ, Δ, β sont des paramètres libres. Du fait que les valeurs de $\Psi(F/T)$ sont réparties sur plusieurs ordres de grandeur, nous réalisons l'ajustement sur $\ln(\Psi)$, c'est à dire que nous cherchons à minimiser *l'erreur relative par point* $\mathcal{E}$. Cette erreur $\mathcal{E}$ est définie par :

$$\mathcal{E}^2 = \frac{1}{7164 s^2} \sum_{j=1,7164} (1-x) \left[\ln\left(\frac{\Psi((F/T)_j)}{\Gamma(F/T)_j - \Delta(F/T)_j^{\beta}}\right)\right]^2 + x \left[\ln\left(\frac{\Gamma(F/T)_j - \Psi((F/T)_j)}{\Delta(F/T)_j^{\beta}}\right)\right]^2 \tag{2.15}$$

où x est un poids à choisir dans l'intervalle $[0,1]$ et $s^2 = \left\langle (\ln(\Psi) - <\ln(\Psi)>)^2 \right\rangle \simeq (0.08)^2$ est la variance de $\ln(\Psi)$ *extraite des données*.

Pour comprendre mieux pourquoi nous avons mis en place l'équation 2.15, soulignons que le premier terme du membre de droite est l'erreur relative par point sur Ψ tandis que le second est l'erreur relative par point sur le "second terme de Böttger et Bryksin" $\Delta(F/T)^{\beta}$, exprimant l'influence des "retours". La minimisation de ces deux termes à des effets *opposés sur la valeur de* β. En effet :

- si l'on choisit de ne garder que le premier terme (en posant $x = 0$), on obtient $\beta = 1.38 \pm 0.03$ et on constate à la fois un bon accord entre les valeurs de $\Psi((F/T)_j)$ et la courbe prédite, mais en même temps l'écart entre $\Gamma(F/T)_j - \Psi((F/T)_j)$ et $\Delta(F/T)_j^{\beta}$ devient manifestement trop grand, en particulier dans la région $F/T < 5 \times 10^4\,\mathrm{V\,K^{-1}\,m^{-1}}$.
- Réciproquement, si l'on choisit $x = 1$, on trouve $\beta = 1.03 \pm 0.03$, avec un bon accord entre $\Gamma(F/T)_j - \Psi((F/T)_j)$ et $\Delta(F/T)_j^{\beta}$, mais un écart manifeste entre les valeurs de $\Psi((F/T)_j)$ et la courbe prédite, particulièrement pour les valeurs fortes de F/T.
- En gardant x dans l'intervalle $[0.05, 0.95]$, on trouve que les valeurs optimales de $\beta(x)$ sont toujours dans l'intervalle $[1.05, 1.15]$, et que cette incertitude est à peine supérieure à celle que l'on obtient pour β en fixant la valeur de x (par exemple $x = 0.5$).

Nous concluons de cette étude, que même en gardant l'intervalle d'incertitude le plus grand, les valeurs optimales à adopter dans le modèle de Böttger et Bryksin pour rendre compte de nos données sont : $\beta = 1.15 \pm 0.1$, $\Gamma = (1.25 \pm 0.5) \times 10^{-5}\,\mathrm{K\,m/V}$ et $\Delta = 1.4 \times 10^{-6}(\mathrm{m\,K/V})^{\beta}$ ($\Delta^{1/\beta}/\Gamma = 0.70 \pm 0.07$). L'accord obtenu est alors excellent, comme le montrent les traits continus sur les Figures 2.8-2.9 pages 38-39 obtenues avec $\left(\beta = 1.15; \Gamma = 1.25 \times 10^{-5}\mathrm{V\,m\,V^{-1}}\right.$; l'erreur relative par point est alors seulement de $(\mathcal{E}(x = 0.5) = 0.72)$ et le seul petit écart systématique entre le modèle et les données se situe aux valeurs extrêmes de F/T, c'est à dire lorsque l'on est tout proche de passer dans le régime "champs forts".

Signalons qu'en comparant les équations 2.13 page 44 et l'équation 2.14 on trouve $\Gamma = Ae\xi/k_B$ où selon les auteurs du modèle $A = 1/6$. Vu que on a déduit des données que $\Gamma =$

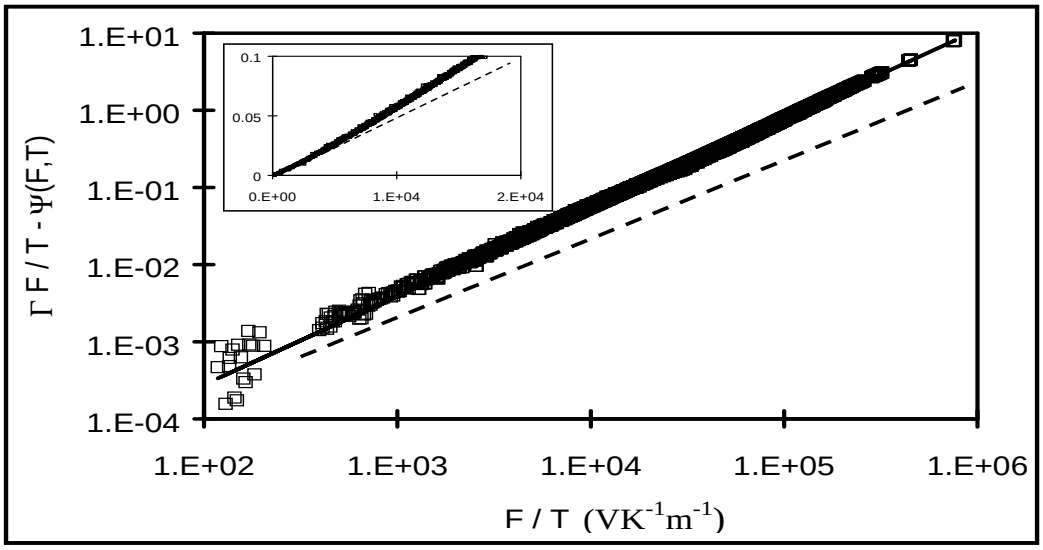

FIG. 2.9 – Représentation des données de la Figure 2.3 adaptée au test du terme de Böttger et Bryksin exprimant l'influence de la disparition progressive des "retours" lorsque F augmente : selon ce modèle, les 7164 points ici présentés doivent s'aligner sur une droite de pente β. Par comparaison avec la ligne en tirets (correspondant à une pente 1) on déduit que $\beta > 1$. Le modèle de Böttger et Bryksin [42]-[46] correspond à la ligne continue : les paramètres optimaux (voir texte) ont été obtenus en minimisant à la fois l'écart entre les points et la ligne continue sur cette Figure mais aussi en faisant en même temps de même pour l'écart correspondant sur la Figure 2.8 page 45. L'encart est un grossissement sur la région F/T faible, en échelles linéaires.

1.25×10^{-5} m K/V, on déduit que $A\xi = 1.1$ nm, soit $\xi \simeq 7$ nm, valeur qui avait été annoncée juste après l'équation 2.7 page 37. Autrement dit, en combinant l'équation 2.7 donnant T_0 à partir du comportement à $F \to 0$ et la valeur de Γ que l'on déduit du comportement en "champs intermédiaires", on peut extraire *indépendamment* les deux paramètres inconnus *a priori* que sont la longueur de localisation ξ et la constante diélectrique relative ϵ_r. L'ordre de grandeur de ϵ_r étant donné [80]-[81] par $(\xi/\lambda_{T.F.})^2$ avec $\lambda_{T.F.}$ est la longueur d'écran de Thomas Fermi [82], la cohérence des paramètres extraits de l'ensemble des modèles peut être appréciée puisque la longueur de Thomas Fermi est grosso modo de quelques fractions de nm dans notre système comportant $\simeq 20\%$ d'électrons "libres" par atome, électrons qui participent à la localisation d'Anderson.

2.2.3.3 Extraction de la longueur maximale des "retours".

Ayant établi la pertinence du modèle de Böttger et Bryksin pour le transport à champ intermédiaire dans nos échantillons, nous disposons désormais d'une information sur l'importance des "retours" du chemin de percolation vis à vis de la conduction. Comme expliqué plus haut, le second terme de l'équation 2.14 page 46 donne, via β et Δ, des informations au sujet de la longueur typique Λ des retours et de la façon dont cette longueur diminue lorsque F augmente. En effet, selon Böttger *et al.* [44], en notant $\Upsilon = \ln\left[I(F,T)/I_1\right]$ (Υ est l'argument de l'exponentielle de l'équation 2.12 page 43), Λ est donnée par :

$$\Lambda(\Upsilon) \simeq 2\delta r_m \Big(\frac{\Upsilon_c}{\Upsilon - \Upsilon_c}\Big)^{\frac{1}{\beta}} \Big(\frac{\Upsilon_m - \Upsilon}{\Upsilon_c}\Big)^{\zeta} \tag{2.16}$$

où l'exposant $\zeta = 1.0 \pm 0.3$ et le coefficient $\delta \simeq 0.25$ sont des constantes numériques [44], et où Υ_c (respectivement Υ_m) correspond au seuil de percolation isotrope (respectivement dirigée).

Dans l'équation 2.16, le premier facteur fait que $\Lambda(\Upsilon = \Upsilon_c) \to \infty$, c'est à dire qu'aucun courant ne circule *juste* au seuil de percolation isotrope. En effet, on peut montrer qu'une température T donnée correspond à $\Upsilon_c = (T_0/T)^\gamma$, et, en régime linéaire $F \to 0$ on trouve $\Upsilon(F \to 0) \simeq \Upsilon_c + 1$ [25] ce qui donne une valeur finie à $\Lambda(F \to 0)$. Lorsque F augmente hors du régime linéaire alors Υ augmente, et donc Λ décroît (cf. équation 2.16). En augmentant encore davantage F, Υ atteint Υ_m et Λ s'annule, ce qui indique que les chemins de conduction sont désormais de type "percolation dirigée".

Ainsi, la longueur maximale Λ_{max} des retours s'obtient juste au démarrage du régime "champs intermédiaires", ce qui correspond à $\Upsilon = (T_0/T)^\gamma + 1$ ainsi qu'à ainsi qu'à $(\Upsilon_m - \Upsilon)/\Upsilon_c \simeq (\Upsilon_c - \Upsilon_m)/\Upsilon_c = N_{ret}$ avec $N_{ret} \simeq 0.07$ (cf. [44]). Ceci, en utilisant l'équation 2.16 amène à :

$$\Lambda_{max} = \xi \delta N_{ret}^{\zeta} \left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma(1+\frac{1}{\beta})} = \Delta^{\frac{1}{\beta}} \frac{k_B}{e} \left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma(1+\frac{1}{\beta})} \tag{2.17}$$

où la dernière égalité est obtenue en utilisant la prédiction de Böttger *et al.* $\Delta = (N_{ret}^{\zeta} \delta e \xi / k_B)^\beta$ [44].

Ainsi, on peut comparer Λ_{max} à la longueur de blob $\mathcal{L}_p = \xi (T_0/T)^{\gamma(1+\nu)}$ déjà donnée dans l'équation 2.10 page 41. On obtient :

$$\frac{\Lambda_{max}}{\mathcal{L}_p} = \frac{\Delta^{\frac{1}{\beta}} k_B}{e\xi} \left(\frac{T_0}{T}\right)^{\gamma(\frac{1}{\beta}-\nu)} \simeq \frac{\Delta^{\frac{1}{\beta}} k_B}{e\xi} \tag{2.18}$$

où la dernière égalité provient du fait que, pour les valeurs expérimentalement déduites de β, Λ_{max} *et* $\mathcal{L}_p$ *ont des exposants critiques très proches* puisque $1/\beta - \nu$ est dans l'intervalle $[-0.08, 0.07]$. Autrement dit, nous trouvons que le rapport $\Lambda_{max}(T)/\mathcal{L}_p(T)$ *ne dépend pas de la température* T.

En utilisant $k_B/(e\xi) = A/\Gamma$ dans l'équation 2.18, nous trouvons $\Lambda_{max}(T)/\mathcal{L}_p(T) = \Delta^{\frac{1}{\beta}}/\Gamma A = (0.70 \pm 0.07) A \simeq 0.12$, où nous avons utilisé la valeur $\Delta^{\frac{1}{\beta}}/\Gamma = 0.70 \pm 0.07$ déduite de l'ajustement de nos données par le modèle de Böttger et Bryksin. Ainsi, $\Lambda_{max}(T)/\mathcal{L}_p(T)$ *n'est pas très inférieur* à sa valeur maximale, à savoir 1.

En conclusion, *l'importance que les "retours" jouent pour le transport (en champ intermédiaire) dans nos échantillons est forte. Si l'on supprimait le terme correspondant aux "retours" dans l'équation 2.12 page 43, les non-linéarités $I(F)$, à T fixée, seraient beaucoup plus violentes, puisqu'elles ne seraient plus freinées par le goulot d'étranglement que constituent les "retours" lorsque F augmente, retours qui "fondent progressivement" à mesure que F augmente.* Nous allons maintenant montrer que les autres modèles de non-linéarités, fondés sur des effets de découplage thermique, ne sont pas pertinents pour notre échantillon.

2.3 Chauffage des phonons ou des électrons.

Durant toute la section 2.2, nous avons supposé que la température de notre échantillon était bien celle du thermostat. Nous présentons ici les éléments de preuve justifiant cette hypothèse, en montrant en premier lieu que les phonons de notre échantillon d'$a-YSi$ sont bel et bien à la température du thermostat. En second lieu, nous montrons que le modèle des "électrons chauds" n'est pas pertinent pour nos échantillons. Ceci permettra de faire une opposition franche avec d'autres travaux où justement ce modèle rend extrêmement bien compte des non-linéarités.

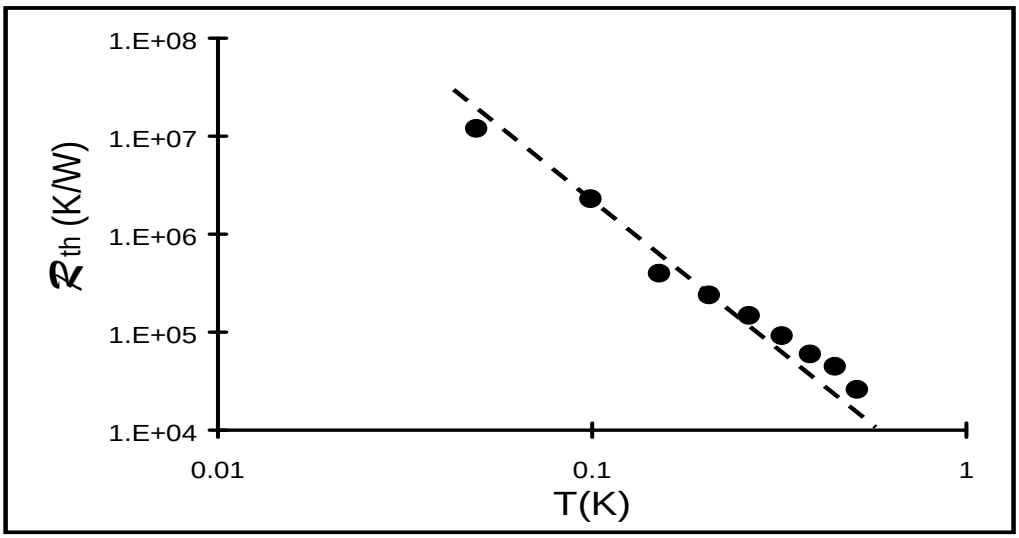

FIG. 2.10 – Valeur de la résistance thermique $\mathcal{R}_{th}$ existant entre l'échantillon et le thermostat. Le comportement en T^{-3} est attendu (modèle de résistances interfaciales dit de Kapitza). la valeur de $\mathcal{R}_{th}$ mesurée permet d'assurer que les échauffements de l'échantillon par rapport au substrat sont plusieurs ordres de grandeurs trop faibles pour rendre compte des non-linéarités de la Figure 2.3 page 36.

2.3.1 Mesure de l'impédance thermique $a-YSi$-thermostat

La mesure de la résistance thermique $\mathcal{R}_{th}$ entre notre échantillon et le cryostat a été réalisée grâce au dispositif annexe de la Figure 2.2, page 35, comportant la petite résistance de 1MΩ suspendue entre deux fils supraconducteurs, ce qui force la puissance électrique qu'on y dissipe à s'écouler vers le thermostat via l'échantillon.

Nous avons procédé en appliquant un voltage constant $V = Fl$ à notre échantillon, ce qui a produit un courant $I(F,T)$ dépendant de la température T du cryostat. Ensuite, nous avons dissipé une puissance électrique $1\,\mathrm{nW} \leq \mathcal{P} \leq 100\,\mathrm{nW}$ dans la petite résistance de $1\,\mathrm{M\Omega}$. Cette puissance, en s'écoulant vers le thermostat via le substrat de l'échantillon a produit un échauffement δT de ce dernier, amenant une variation δI du courant mesuré. Nous avons vérifié que δI était bien proportionnel à $\mathcal{P}$.

Supposons pour l'instant que les non-linéarités $I(F)$ ne sont dues au chauffage de l'échantillon : nous déduisons de δI la valeur de la résistance thermique $\mathcal{R}_{th} = \delta T/\mathcal{P}$ existant entre le substrat. La Figure 2.10 montre l'évolution $\mathcal{R}_{th}$ en fonction de T, et par exemple on y constate que $\mathcal{R}_{th}(74\,\mathrm{mK}) \simeq 10\,\mathrm{mK/nW}$. Pourtant, on voit sur la Figure 2.3 page 36 que les courbes $I(F, 74\,\mathrm{mK})$ et $I(F, 124\,\mathrm{mK})$ se confondent pour une puissance dissipée $IV \simeq 0.04\,\mathrm{nW}$ correspondant, du fait de la valeur de $\mathcal{R}_{th}$, à $\delta T \simeq 0.4\,\mathrm{mK}$. Cette valeur de δT est très inférieure à l'écart de 50 mK entre ces deux courbes $I(F)$. Nous confirmons donc l'hypothèse faite plus haut affirmant que ce n'est pas l'échauffement de l'échantillon qui produit les non-linéarités courant tension. Si nous avions fait l'hypothèse

inverse nous serions arrivés à une contradiction entre la valeur de $\mathcal{R}_{th}$ requise par les non-linéarités de la Figure 2.3 et celle mesurée par le dispositif thermique aboutissant à la Figure 2.9.

On peut facilement refaire ce raisonnement à toutes les températures et l'on trouve à chaque fois que l'échauffement de l'échantillon via la puissance IV est négligeable. Signalons pour finir que l'on trouve sur la Figure 2.10 $\mathcal{R}_{th} \sim T^{-3}$, ce qui est la dépendance attendue pour une résistance thermique d'interface (dite de Kapitza) entre deux matériaux. Dans notre cas, l'interface en question est celle reliant le substrat de Saphir et la piste d'Or (à gauche sur la Figure 2.2 page 35) sur laquelle sont soudés les 43 fils d'Or assurant la thermalisation.

2.3.2 Les électrons d'$a-YSi$ ne sont pas chauds.

Nous testons ici la pertinence éventuelle du modèle dit "des électrons chauds" dont l'idée consiste à rendre compte des non-linéarités $I(F,T)$ par un découplage de la température T des phonons de celle des électrons localisés lesquels sont supposés être à une température T_e supérieure à T à cause de la finitude de la conductance thermique g qui les relie aux phonons [65]. Nous discuterons les questions physiques posées par un tel modèle au prochain paragraphe.

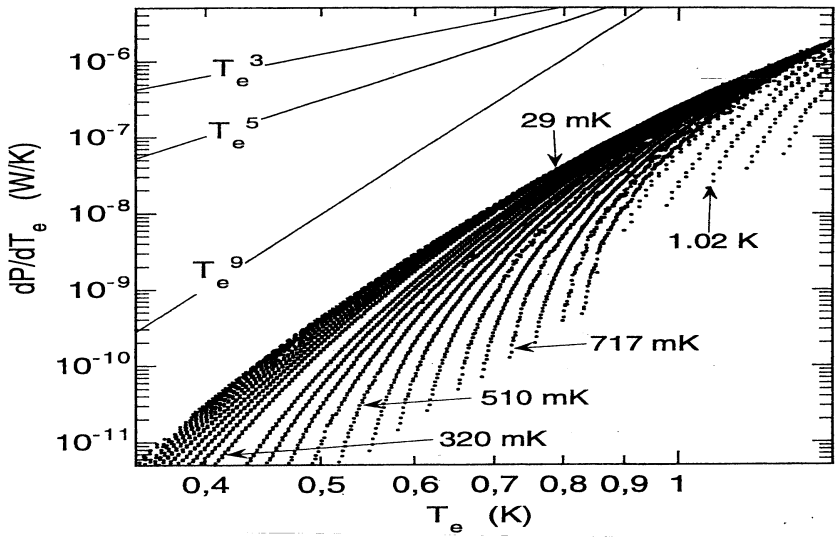

FIG. 2.11 – Valeur de dP/dT_e déduites des données, via l'équation 2.19 page 50. Le fait que l'on obtienne ni une droite ni une courbe unique suffit à montrer que le modèle des électrons chauds ne s'applique pas dans notre cas

L'idée est donc de dire que toutes les non-linéarités sont contenues dans la valeur de la température électronique T_e définie par :

$$R(T,F) = R_0 \exp\left((T_0/T_e)^\gamma\right) \quad \text{où } T_e \text{ est donnée par} \quad P + P_p = IV = g(T_e^\eta - T^\eta) \quad (2.19)$$

avec g et η qui caractérisent le lien thermique "électrons-cryostat" et P_p désignant la puissance parasite injectée dans l'échantillon du fait du blindage limitée, des vibrations non amorties, etc ... Puisque nous avons exclu, à la section précédente, un chauffage entre le substrat de saphir et le thermostat, la résistance thermique dont il s'agit dans l'équation 2.19 est :

- soit la résistance de Kapitza entre le substrat et l'$a-YSi$, auquel cas $\eta = 4$[75]
- soit la résistance thermique existant entre les électrons localisés de l'$a-YSi$ et les phonons de l'$a-YSi$ auquel cas $\eta = 5$ to 6 [65] [73][76], [72] [69], [70], [71], [68], [74].

Pour tester ce modèle nous avons calculé, à partir des données de la Figure 2.3 page 36, les valeurs de T_e correspondant à chaque couple expérimental I, V. Nous en avons déduit ensuite numériquement les valeurs de dP/dT_e, lesquelles sont censées, selon le modèle, valoir $g\eta T_e^{\eta-1}$, et donc ne dépendre ni de T ni de P_p. La Figure 2.10 montre que :

- les valeurs de dP/dT_e dépendent de T, dans la plupart des cas, ce qui est en contradiction avec le modèle de l'équation 2.19 ;
- pour les basses T il y a une certaine tendance à une plus faible dépendance en T pour dP/dT_e, mais d'une part l'exposant η dépend de T_e (les points ne s'alignent pas sur une droite) et d'autre part l'exposant η est d'ordre 9 c'est à dire bien plus grand que ce qui est attendu ;
- si l'on prend les valeurs de g et de η des systèmes où le modèle des électrons chauds fonctionne (tels le système au Ge dopés par Transmutation neutronique, ou bien des alliages $a-Nb_xSi_{1-x}$, voir prochain paragraphe), on trouve des valeurs de dP/dT_e 10^3 à 10^6 plus fortes que celles que nous trouvons pour notre échantillon sur la Figure 2.10.

Nous concluons que le modèle des électrons chauds n'est pas pertinent dans notre cas.

2.3.3 Les électrons chauds nécessitent-ils une "mutation conceptuelle" ?

Alors que tout semble réglé en ce qui concerne le transport par saut à portée variable dans notre échantillon, pour toutes les valeurs de F, nous pensons important de souligner que des systèmes réputés très similaires au nôtre ne se prêtent pas du tout à la même analyse. Ainsi, un certain nombre de travaux ont analysé avec succès le transport en régime non linéaire dans le saut à portée variable en utilisant le modèle des électrons chauds ci dessus décrit [68]-[74].

Il est impossible d'analyser tous les travaux en question, nous choisissons donc d'évoquer un des plus récents et des plus convaincants, réalisé par L.Dumoulin et son équipe au C.S.N.S.M. d'Orsay [77]. Il s'agit du systèmes $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$ réalisé par co-évaporation, méthode beaucoup plus "douce" et précise que la pulvérisation cathodique sur cible froide utilisée pour élaborer notre $a-Y_{0.19}Si_{0.81}$. Cependant, au delà de cette différence de méthode d'élaboration, la similitude des compositions est frappante.

La similitude s'amplifie lorsque l'on regarde le transport subKelvin à champ faible : dans les deux cas on trouve une loi d'Efros Shklovskii ($\gamma = 1/2$), la valeur de T_0 étant cependant plus faible dans les $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$ étudiés ($T_0 \simeq 10$K) que dans notre échantillon ($T_0 \simeq 257$K). Cependant cette différence est atténuée par le fait que nos données couvrant l'ensemble des régimes de F (de $F \to 0$ jusqu'aux champs forts) ne concernent que $T \geq 350$mK ; tandis que pour $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$ les études correspondantes sont menées jusqu'à 30mK. Finalement, en dépit d'un facteur 25 sur la valeur de T_0 entre ces deux systèmes, les valeurs expérimentales de $(T_0/T)^{1/2}$ sont très proches.

Pourtant les non-linéarités du transport dans $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$ sont très bien modélisées par l'équation 2.19 page 50 avec $g \simeq (130 \pm 30)$ W/(K^{5}cm^3) et $\eta = 5$. De plus, des expériences très probantes viennent d'être faites avec des dispositifs bolométriques où $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$ sert de thermomètre :

- le réseau de courbes non linéaires est mesuré et ajusté par l'équation 2.19, ce qui donne accès à la conductance thermique G_e (déduite de g via un facteur trivial) entre les électrons et les phonons de $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$.
- un dispositif annexe permet de mesurer la capacité calorifique des électrons localisés de $a-Nb_{0.9}Si_{0.91}$.
- des particules alpha sont envoyées sur le substrat, produisant des impulsions de courant qui relaxent avec un temps τ_e. Le résultat impressionnant est que *ces trois grandeurs mesurées indépendamment sont liées par la relation attendue pour un bain d'électrons avec une température bien définie puisque la relation est* $\tau_e = C_e/G_e$.

On est donc fondé en droit à se représenter les électrons localisés comme formant un système qui a sa propre température. Ce genre de concept a bien sûr déjà été élaboré pour les métaux, en développant l'idée que, lorsque F augmente, l'énergie gagnée par un électron de Fermi entre deux chocs "électron-phonon" est supérieure à celle qu'il perd dans le choc ;

ce qui amène via l'interaction entre électrons de conduction à définir une température électronique supérieure à celle des phonons, lorsque F augmente.

Cependant, dans le cas des électrons localisés par le désordre, ce scénario est moins naturel puisque les électrons ne voyagent pas balistiquement entre deux chocs mais bien au contraire avancent par sauts entre états localisés. L'électron ne gagne donc pas insensiblement de l'énergie cinétique en avançant puisque les états proches en énergie sont éloignés dans l'espace du fait même de la localisation par le désordre : ceci contraste totalement avec le cas des métaux qui dont les états électroniques se recouvrent toujours les uns les autres puisqu'ils sont délocalisés. Le succès (manifeste et magnifique) constaté pour le modèle des électrons chauds sur certains systèmes pose donc une question de droit : qu'est-ce qui rend possible un tel succès ? La réponse se trouve sûrement dans la droite ligne de ce qui a été proposé par L.Dumoulin et son équipe [77]. A savoir une justification par les sauts "multi-électroniques" : lorsqu'un électron arrive sur un site nouveau, il modifie l'énergie potentielle des électrons localisés au voisinage et peut donc *induire* une cascade de sauts successifs. Ceci correspondrait à une sorte de thermalisation de l'énergie de l'électron incident, ou encore à une forme de mutualisation, entre électrons, des coûts énergétiques des sauts portant le courant. Ainsi l'expression "saut à portée variable assisté par interaction électronique" a été proposée.

Conclusion

Pour clore ce Chapitre, soulignons que les isolants d'Anderson font partie des "verres isolants" puisque leur conduction est nulle à $T = 0$ et que le désordre y joue un rôle majeur. Que ce soit à champ "nul" ou "infini", nous avons expliqué (ce qui était déjà connu) que le transport se fait par saut à portée variable puisqu'il y a toujours moyen d'optimiser entre le désordre et ce qui produit le saut (c'est à dire la température à $F \to 0$ et le champ F lorsque l'on est en champ "infini"). Limitée est cependant l'analogie entre ces deux types de sauts à portées variables de régimes extrêmes, puisque les chemins de percolation portant le courant appartiennent à deux classes d'universalité différentes (percolation isotrope ou bien dirigée). Autrement dit, suivant qu'on est à F "nul" ou "infini", le système n'utilise pas du tout le même sous-ensemble de fluctuations spatiales pour assurer le transport. Nous retrouvons ainsi la première des deux idées exprimées dans le titre de ce travail.

La deuxième idée, à savoir l'importance des non-linéarités dans les verres isolants vient naturellement puisqu'elle trouve son application dans l'étude des non-linéarités en champ intermédiaire où nous avons mis en lumière l'influence du changement graduel de chemin de percolation sur le transport : les "retours" du chemin de percolation isotrope, si nécessaires à champ faible pour trouver le meilleur chemin de conduction, deviennent, lorsque F augmente, des goulots d'étranglements qui ne disparaissent que progressivement, ce qui réduit l'ampleur des non-linéarités courant tension (et donc la sensibilité bolométrique éventuelle).

Enfin, nous avons tenu à montrer rapidement que, 50 ans après la découverte de la localisation par Anderson, le problème du transport dans ces systèmes reste très ouvert [78], comme en témoigne le succès du modèle des électrons chauds [77], alors que ce même modèle n'est pas encore complètement justifié vis à vis des concepts originaux de la localisation. C'est pourquoi il est presque certain que des progrès conceptuels vont être faits en ce sens, ce qui renouvellera certainement notre vision des isolants d'Anderson.

Chapitre 3

Fluctuations spatio-temporelles et verres structuraux

Introduction

Comme nous l'avons déjà expliqué en Introduction du chapitre 2, les bolomètres sont une source potentielle de développement pour la Microsonde Nucléaire du Laboratoire Pierre Süe. Dans ce cadre il est naturel de chercher à acquérir la maîtrise de l'élément central du bolomètre, à savoir un thermomètre subKelvin. Vu la finalité de ce document, nous n'avons exposé au chapitre précédent que les résultats permettant une avancée dans la compréhension "fondamentale" du transport dans $a-YSi$, sans mentionner les retombées concrètes en termes d'applicabilité à la bolométrie. Or, du point de vue bolométrique, nos études nous ont montré que $a-YSi$ ne constituait pas un thermomètre exploitable en bolométrie car *sa méthode d'élaboration par co-pulvérisation cathodique ne permettait pas de maîtriser suffisamment la valeur de sa résistance subKelvin* : dans une série d'échantillons réalisés en même temps, nous obtenions des systèmes qui, à $T \leq 1$K, se révélaient soit légèrement métalliques, soit légèrement isolants, soit très isolants. En termes de détection bolométrique, ceci n'est pas acceptable puisque la valeur de la résistance du thermomètre doit être parfaitement adaptée vis à vis de la chaîne de détection mesurant les impulsions thermiques.

Nous nous sommes donc tournés vers d'autres matériaux, en souhaitant en maîtriser la synthèse suffisamment pour en faire des thermomètres subKelvin exploitables. Puisque, comme nous l'avons expliqué en introduction du chapitre 2, les amorphes sont "sensibles à toutes les échelles de température", nous sommes restés dans le cadre des verres. Nous avons choisi les "verres structuraux", c'est à dire la famille très large de matériaux comportant aussi bien la silice amorphe pure ($a-SiO_2$), que des matériaux à base de polymères (capton, mylar, polystyrène ...) et dont le plus connu est tout simplement "le verre à vitre" ($a-SiO_2$ auquel sont mélangés de nombreux éléments tels que certains alcalins ou bien d'autres oxydes). Ces matériaux présentent tous un incontournable désordre chimique local et on a constaté qu'ils avaient tous, malgré leur extrême diversité de composition, des propriétés très similaires et fort différentes de celles de leurs équivalents cristallins. Parmi ces propriétés "spécifiquement vitreuses", on trouve la forte dépendance en température de la constante diélectrique ϵ_r, y compris lorsque celle ci est mesurée à des fréquences aussi basses que le kiloHertz (ou moins). Cette dépendance de ϵ_r avec T persiste jusqu'aux plus basses températures (par exemple 10mK) et c'est pourquoi nous nous y sommes intéressés en espérant une application thermométrique et/ou bolométrique.

De même que dans le chapitre 2, nous ne détaillerons que les aspects de "compréhension fondamentale" qui ressortent de notre étude des verres structuraux, sans détailler les raisons qui font que (une fois encore !) les matériaux étudiés ici ne sont pas de bons candidats à une thermométrie de précision. D'un mot, mentionnons que ceci vient des instationnarités constatées dans ces verres structuraux : à T fixée, ϵ_r décroît lentement lorsque le temps passe, et ces instationnarités ne semblent jamais se résorber y compris sur des échelles de temps de l'ordre de plusieurs 10^5s. Ceci est bien sûr incompatible avec une thermométrie

de précision, censée détecter des impulsions bolométriques avec une précision de l'ordre de 1 pour mille puisque le lien entre ϵ_r et T change constamment (les instationnarités de ϵ'_r correspondent à un glissement de quelques mK par jour).

Même si nous ne présentons pas le détail de ces instationnarités, soulignons qu'à la fin de ce chapitre 3 leur existence semblera naturelle puisque nous aurons montré que dans ces systèmes désordonnés les interactions entre entités participant à ϵ_r jouent un rôle physique majeur. On sera donc en présence d'un problème où coexistent fort désordre et fortes interactions, ce qui, par analogie par exemple avec les verres de Spin, rendra "intuitive" la présence d'instationnarités.

Le plan du chapitre est le suivant : en premier lieu, nous montrerons que le modèle "des systèmes à deux niveaux quasi-indépendants", élaboré dès les années 70, est, malgré son extrême simplicité, à première vue capable de rendre compte des propriétés vitreuses telles que la dépendance $\epsilon_r(T)$ si particulière aux amorphes. Avec un raffinement assez marginal, nous montrerons même que ce modèle est capable de rendre compte d'un effet inattendu, à savoir le petit effet du champ magnétique H sur ϵ_r. En second lieu, nous montrerons que ce modèle ne peut cependant *pas rendre compte des effets non linéaires* que le champ électrique F produit sur la constante diélectrique ϵ_r. Nous retrouverons là l'idée déjà exprimée dans les chapitres précédents, à savoir que l'étude des effets non linéaires dans les verres isolants est spécialement riche d'enseignements car elle révèle quel est le sous ensemble particulier de fluctuations qui dominent le transport. Enfin, en troisième partie, nous donnerons des éléments, à la fois théoriques et expérimentaux, indiquant justement la nature de ces fluctuations dominant le transport : nous montrerons qu'une délocalisation dynamique des excitations entre les entités élémentaires suffisamment "semblables" est responsable du transport dans les verres structuraux à basse fréquence : nous baptiserons ces entités collectives "dipolitons", par analogie avec les autres entités collectives bien connues que sont les "magnons" ou les "phonons".

3.1 Pertinence du modèle des systèmes à deux niveaux quasi-indépendants

Nous commençons ici par donner un aperçu du mode d'élaboration de nos échantillons vitreux ainsi que du comportement "vitreux" $\epsilon_r(T)$ étudié dans ce chapitre. En second lieu, nous exposons brièvement en quoi le modèle si simple des "systèmes à deux niveaux quasi-indépendants" permet à première vue de rendre compte de $\epsilon_r(T)$. Enfin, nous montrons comment une modification, somme toute très marginale, de ce modèle permet de rendre compte d'un effet inattendu : la dépendance de ϵ_r avec le champ magnétique H.

3.1.1 Elaboration des échantillons et "thermométrie capacitive".

Nous présentons ici d'abord le mode d'élaboration de nos échantillons, pour donner ensuite un exemple typiquement "vitreux" du comportement de $\epsilon_r(T)$ avant de présenter le modèle explicatif usuel des propriétés vitreuses des "verres structuraux".

3.1.1.1 L'expérience "PRALINE"

La Figure 3.1 page 55 présente le schéma de principe de notre expérience "PRALINE" dont le nom est l'acronyme de "Préparation et Analyse en Ligne d'INterfaces Expérimentales". Les trois chambres sont munies de groupes de pompages permettant d'atteindre un vide de quelques 10^{-7} mbar en utilisation de routine (jusqu'à quelques 10^{-9} mbar dans certaines parties si besoin).

Ces trois chambres peuvent être isolées les unes des autres, afin qu'elles remplissent chacune une fonction sans "polluer" les autres :

- la chambre du centre est munie d'un évaporateur de Cuivre à bas flux (déposant seulement 0.1nm/s).
- la chambre de gauche est dédiée à la synthèse par "déposition de vapeur assistée par plasma" : un système d'injection de vapeur de "TEOS" (Tetra Ethyl Ortho Silane :

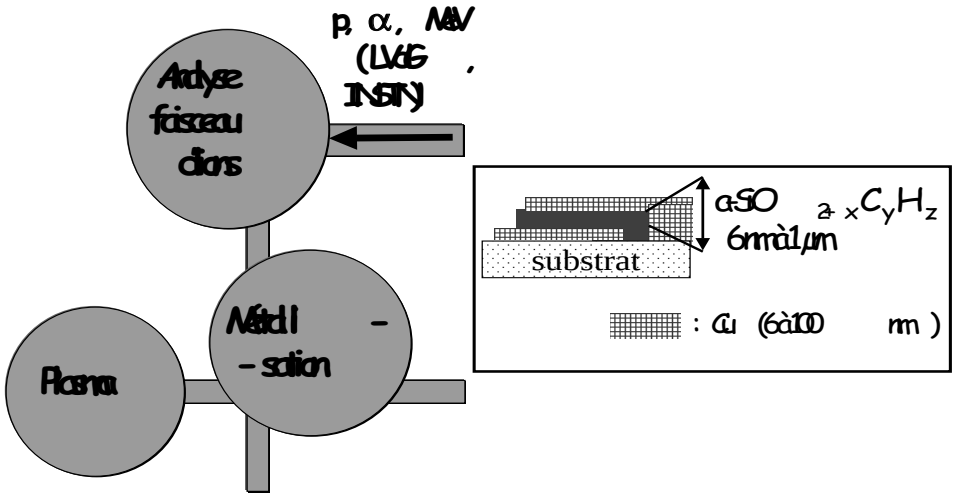

FIG. 3.1 – En encart : schéma des échantillons Cuivre/verre/cuivre dont on mesure la capacité diélectrique C et la conductance de fuite G. Ainsi, on a accès, respectivement, à la partie réelle et imaginaire de la constante diélectrique ϵ_r du verre structural $a-SiO_{2+x}O_yH_z$, lequel est synthétisé par plasma radiofréquence à partir de vapeurs de TEOS dans la chambre de gauche. L'ensemble de l'élaboration se fait sans retour à l'atmosphère ambiante grâce aux transferts mécaniques entre les chambres. L'analyse par faisceau d'ions permet de déterminer les épaisseurs des couches réalisées et leur composition. L'encapsulation de l'échantillon par une couche supplémentaire de verre structural (non représentée) est possible afin d'éviter une possible perturbation par l'adsorption de couches (d'eau surtout) qui pourraient faire un lien parasite entre les deux électrodes.

$SiO_4C_8H_{20}$) permet, sous une pression de quelques Pascals, de créer un plasma (par injection de quelques Watts de champ radiofréquence) qui génère un dépôt amorphe de composition $a-SiO_{2+x}O_yH_z$, où $x \simeq -0.3$, $y \simeq 0.7$, $z \simeq 0.3$; valeurs pouvant être un peu ajustées par injection dans le plasma de gaz tels que l'Hélium ou l'Hydrogène.

– la chambre "du haut" est dédiée à l'analyse de nos échantillons puisqu'elle est reliée au faisceau d'ions légers (de taille transverse millimétrique) du Laboratoire Van de Graaf de l'INSTN. On peut ainsi déterminer x, y, z ainsi que les épaisseurs des couches constituant l'échantillon.

Nous avons ainsi (sur des substrats soit de $a-SiO_2$ soit de Si) obtenu les échantillons décrits dans l'encart de la Figure 3.1 où une couche isolante vitreuse est enserrée entre deux électrodes métalliques, ce qui permet la mesure des composantes réelles ϵ'_r et imaginaires ϵ''_r de la constante diélectrique du verre via celles de la capacité C et de la conductance parallèle de fuite G données par :

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon'_r S}{h} \quad \text{et} \quad G = \frac{\omega \epsilon_0 \epsilon''_r S}{h} \tag{3.1}$$

où $S \simeq 10$ mm^2 est la surface en regard des électrodes, h est l'épaisseur du diélectrique, et $\omega = 1$ kHz la fréquence du champ alternatif F utilisé pour la mesure.

Soulignons que l'ensemble de l'élaboration se fait sans remise à l'air, grâce aux transferts mécaniques reliant les trois chambres, ce qui évite que les interfaces métal-isolant soient "polluées" par une quelconque réaction avec l'atmosphère ambiante. Par ailleurs il est facile d'encapsuler l'échantillon, en le recouvrant d'une couche de verre supplémentaire pour éviter tout effet de couches adsorbées qui pourraient, par effet de bord, "polluer" la mesure de la capacité en faisant "un pont" entre les deux électrodes. Tous les échantillons de la section 3.3 ont été ainsi encapsulés, puisque leur très faible épaisseur les rendaient a

priori vulnérables à de tels effets de bord".

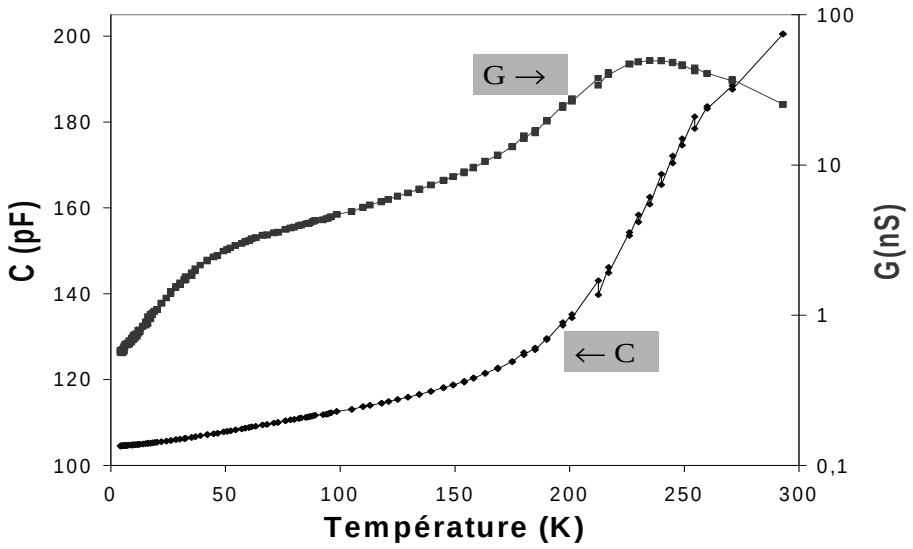

FIG. 3.2 – Axe de gauche : Capacité diélectrique $C \propto \epsilon_r'$ où ϵ_r' est la partie réelle de la constante diélectrique, mesurée à 1 kHz. C est sensible à la température T de l'ambiante jusqu'aux plus basses températures. Axe de droite : Conductance de fuite $G \propto \epsilon_r''$ où ϵ_r'' est la partie imaginaire de la constante diélectrique [83].

3.1.1.2 Comportement physique spécifique des verres structuraux.

Les Figures 3.2-3.3 pages 56-57 sont un exemple typique de propriété "vitreuse" [83] au sens où d'une part elles sont nettement différentes de leur équivalent dans les cas cristallins ; d'autre part elles se caractérisent par une sensibilité à toutes les échelles de T, comme nous l'avions annoncé en introduction. Signalons que, dans ces systèmes, d'autres quantités montrent de telles caractéristiques "vitreuses" [84], [85] : la propagation du son, la capacité calorifique, la conductivité thermique, ... sont autant d'observables dont on peut rendre compte en utilisant le même modèle que celui que nous développerons pour comprendre le comportement de ϵ_r. Nous nous intéresserons à la partie réelle ϵ_r' (de préférence à ϵ_r''), tout simplement car cette quantité est naturelle pour caractériser un isolant. Nous allons voir dans la prochaine section les idées fondatrices du modèle à deux niveaux qui est usuellement utilisé dans ces systèmes.

3.1.1.3 Le modèle des systèmes à deux niveaux quasi-indépendants.

Le modèle à deux niveaux, élaboré pour les verres, part de deux constatations simples : *i)* la densité massique des verres est inférieure (typiquement de 10%) à celle des cristaux de même composition chimique ; *ii)* l'absorption dans ces systèmes (par exemple celle des excitations acoustiques) peut être saturée à basse T pour peu que l'on augmente un peu l'excitation correspondante. De la première constatation on arrive à l'idée que les verres contiennent des "trous", c'est à dire des endroits anormalement vides d'atomes. De la seconde constatation on arrive à l'idée que certains degrés de liberté n'appartiennent pas à un continuum de niveaux mais à un ensemble discret de niveaux.

Ainsi, au début des années 70, deux groupes [86] ont indépendamment proposé le modèle à deux niveaux schématisé sur la Figure 3.4 : l'existence de "trous" permet à certains atomes

[1] Signalons que l'encapsulation joue un rôle sur la valeur de C mesurée à température ambiante, mais aucun rôle pour $T < 1$K où l'atmosphère résiduelle n'est constituée que des rares atomes d'Hélium qui n'ont pas été pompés lors de la descente en froid. De plus pour les échantillons les plus épais (800nm) l'encapsulation ne change quasiment rien, même à l'atmosphère ambiante.

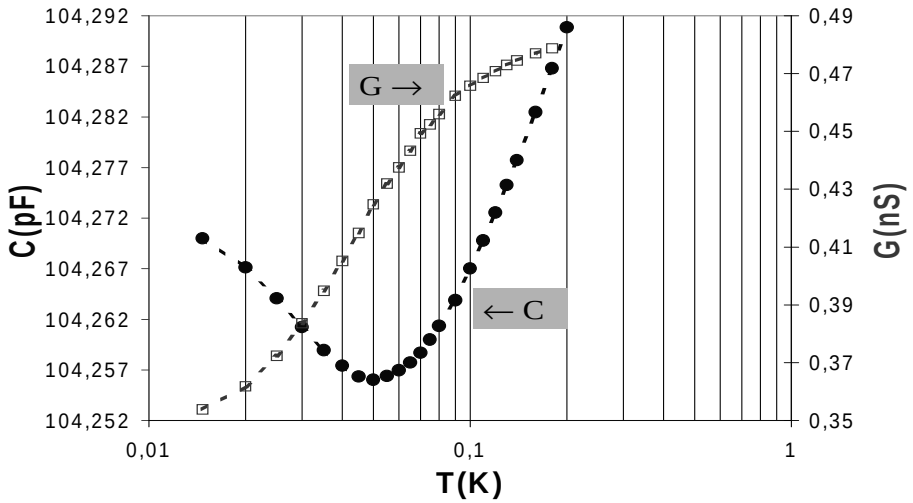

FIG. 3.3 – Même représentation que la Figure 3.2 page 56 mais restreinte aux plus basses températures. ϵ'_r est minimum pour ce que l'on appelle la "température de réversion" $T_{rev} \simeq 50$ mK. Autour de T_{rev} les variations de ϵ'_r sont en $\pm \ln T$. Ceci est l'exemple type d'une propriété "vitreuse" à laquelle nous allons nous intéresser durant tout ce chapitre 3.

de fluctuer entre leur position d'origine et l'endroit vacant. Ces fluctuations participent à la constante diélectrique ϵ'_r pour peu que l'atome en question soit électriquement chargé, autrement dit pour peu que les liaisons de cet atome aient un caractère ionique (même faible) : suivant que l'atome se trouve d'un côté ou de l'autre du double-puits son moment dipolaire se renverse. Les deux positions entre lesquelles l'atome fluctue forment un double-puits de potentiel qui se caractérise *a priori* par deux énergies : la dissymétrie Δ en énergie potentielle, et la hauteur W de la barrière séparant les deux cotés du puits. Bien sûr, du fait du désordre chimique local, on s'attend à ce que W et Δ soient très largement distribuées en énergie. L'inconvénient de cette distribution est qu'une moyenne sur le désordre est requise avant toute prédiction. L'avantage, cependant, est que l'on peut raisonnablement espérer que cette distribution masquera tous les détails fins du double-puits (telle que son profil exact de potentiel, etc ...), rendant les prédictions assez "solides".

A "haute" température, les fluctuations de positions atomiques ont lieu par saut classiquement activés par dessus la barrière de potentiel. Ceci explique que la constante diélectrique diminue continûment avec T depuis l'ambiante. Comme les seules les barrières susceptibles d'être franchies classiquement sont celles où W n'est pas trop grand devant $k_B T$, on s'attend à ce que ϵ'_r diminue avec T, comme le montre la Figure 3.2 [2]. Le net ralentissement de la pente de ϵ'_r avec T qui s'amorce vers 150 K traduit la mise hors jeu des sauts classiques qui deviennent exponentiellement rares lorsque T diminue trop.

Nous nous intéresserons particulièrement au régime $T < 1$ K, dans lequel il est certain que tous les sauts classiques ont disparu. Les variations de ϵ_r s'expliquent alors par le fait que la barrière d'un double-puits donné peut être franchie *par effet Tunnel*. Cet effet, spécifiquement quantique, permet de préciser l'écart entre les niveaux d'énergie du double-puits. En effet, une énergie cinétique Δ_0 est associée à la délocalisation permise par l'effet tunnel et on a :

$$\Delta_0 = \hbar\Omega_0 \exp\left[-a\sqrt{\frac{2mW}{\hbar^2}}\right] \tag{3.2}$$

où a est la largeur de la barrière tunnel et $\hbar\Omega_0$ est le niveau fondamental d'un *simple*

[2] Pour ϵ''_r, le maximum atteint vers $T = 220$ K s'explique par le fait que $\omega\tau \sim 1$ où τ est le temps de saut classique par-dessus la barrière et ω la fréquence du champ excitateur F [85].

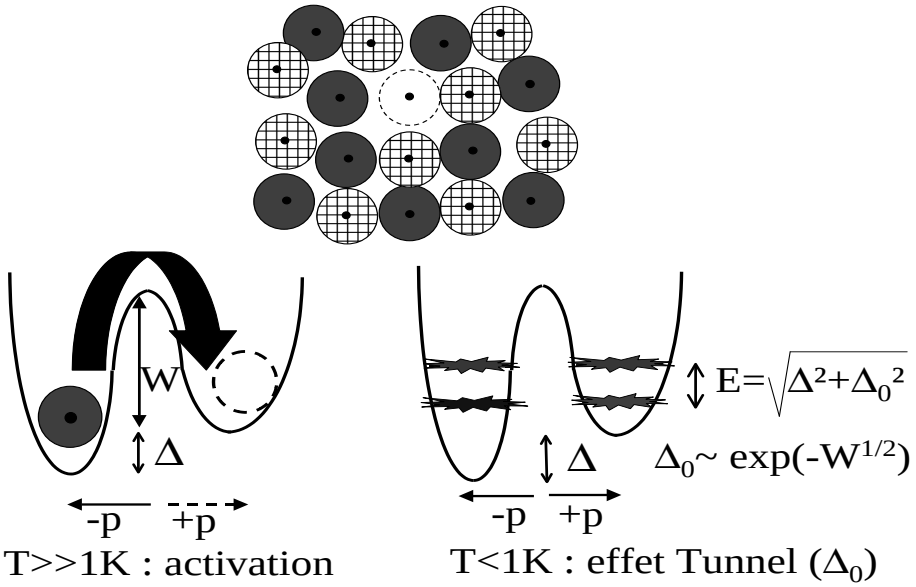

FIG. 3.4 – Le modèle à deux niveaux des verres suppose l'existence de "trous" permettant un mouvement de va et vient d'un atome voisin (ici le noir) pour lequel le "trou" représente un site d'énergie potentielle proche de celle de son site originel [85]-[88]. L'atome fluctue donc dans un double-puits de potentiel, caractérisé par deux énergies Δ (dissymétrie en énergie potentielle) et W (la hauteur de la barrière). Du fait du désordre local, Δ et W sont distribuées sur une très grande gamme en énergie (de l'ordre de $T_g \simeq 1000$ K, la température de trempe du verre). Ces fluctuations d'atomes, lorsqu'ils sont électriquement chargés, contribuent à ϵ'_r puisqu'elles participent au moment dipolaire P du matériau. A $T \gg 1$ K, les fluctuations se font par saut au-dessus de la barrière du double-puits, tandis que, à basse T, ces transitions se font par effet tunnel à travers la barrière : le double-puits se comporte alors comme un système quantique dont les deux niveaux sont séparés par un écart en énergie $E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}$ où Δ_0 est l'énergie associée à la délocalisation tunnel.

puits de largeur b, c'est à dire l'énergie quantique de confinement $\hbar^2/(2mb^2)$. L'argument le plus simple est de supposer que Δ et W sont distribuées uniformément sur l'intervalle $[0; k_B T_g \simeq 10^3\text{K}]$, ce qui amène à la densité d'états :

$$P(\Delta, \Delta_0) = \frac{\bar{P}}{\Delta_0} \tag{3.3}$$

Dans l'équation précédente $\bar{P}$ est une constante du fait que nous avons négligé toute interaction entre les atomes occupant les divers double-puits : nous avons seulement compté le nombre de double-puits ayant le même Δ, Δ_0 sans tenir compte de la modification possible exercée par les double-puits voisins. Nous allons voir en effet que cette version "sans interactions" du modèle à deux niveaux permet de rendre compte, à première vue, de l'essentiel des propriétés "vitreuses" et donc de déduire des mesures, par exemple, l'ordre de grandeur de $\bar{P}$. Nous montrerons aux sections 3.2 et 3.3 que ce modèle de systèmes à deux niveaux quasi indépendants est cependant tout à fait insuffisante lorsqu'on y regarde de plus près, et que certains auteurs proposent de modifier la densité d'états ([89], [90]).

Montrons donc en quoi la dynamique de double-puits *indépendants* permet de rendre compte de comportements tels que celui de la Figure 3.3 page 57. Pour cela [85] nous nous appuyons sur la Figure 3.9 page 67 qui montre les deux composantes de ϵ'_r :

- en premier lieu ϵ'_r comporte une composante dite "de relaxation", qui exprime simplement le fait que le champ F servant à la mesure déplace quelque peu l'équilibre thermodynamique du système. En effet, à tout instant t, F change l'asymétrie en énergie potentielle Δ d'une quantité $pF(t)$. Dans le cas où Δ et $pF(t)$ sont de même signe, ceci amène une augmentation de l'écart entre niveaux E et donc une dimi-

lution du poids statistique (Boltzmannien) associé à l'état excité situé à l'énergie E au-dessus de l'état fondamental. Un raisonnement similaire établit que pour les Δ opposés à $pF(t)$ il y a au contraire une augmentation du poids d'états excités. Contrairement à ce qui se passait à $F \equiv 0$, les double-puits dont les Δ sont opposés ne se compensent donc plus à F fini : une polarisation nette apparaît donc, et cette polarisation est proportionnelle à l'amplitude de F tant que $pF \ll k_B T$ [3]. Bien sûr, du fait de l'intervention du poids Boltzmannien, seuls les double-puits pour lesquels E n'est pas trop grand devant $k_B T$ contribuent à ce mécanisme "de relaxation" (les autres sont "gelés dans leur état fondamental" [4]). C'est pourquoi on prévoit que la contribution de relaxation va diminuer avec T.

– en second lieu, ϵ'_r comporte une composante dite "de résonance", d'origine spécifiquement quantique. En effet, imaginons qu'un double-puits est dans son état fondamental à l'instant $t = 0$ où le champ F passe par la valeur nulle. Le point important est que le système ne va pas pouvoir rester exactement dans cet état aux instants ultérieurs où F sera fini. En effet, F déforme le double-puits de potentiel (en modulant Δ de $pF(t)$) : l'état fondamental, de durée de vie infinie à $F = 0$, n'est donc plus un état propre à F fini. Autrement dit, lorsque $F \neq 0$, le système va se mettre dans un état superposé entre son état de plus basse énergie et le seul autre état disponible, à savoir l'état excité d'énergie E. Sur la Figure 3.9 page 67 on a représenté la probabilité π_+ d'être dans l'état excité à l'instant t du fait de cette superposition des états : π_+ oscille en temps avec la fréquence h/E dite de "Bohr", et le fait qu'en moyenne π_+ soit positive implique que la valeur du moment dipolaire du double-puits change sous l'effet de F, ce qui apporte une contribution à ϵ'_r, dont on montre (cf. section 3.2) qu'elle ne dépend pas du signe de Δ [5]. Pour trouver le sens de variation de cette contribution "résonnante", il suffit de considérer ce qu'il se passe pour les puits qui sont dans l'état excité à $t = 0$: les oscillations de π_+ sont en opposition de phase avec celles obtenues lorsque le système était dans son état fondamental à $t = 0$. Finalement, pour que la contribution résonante soit forte, il faut que la population de puits excités soit négligeable par rapport à celle des puits dans leur état fondamental ; dans le cas contraire les interférences destructives entre les deux évolutions de π_+ de la Figure 3.9 page 67 annulent cette contribution. C'est pourquoi, la contribution résonante augmente lorsque T diminue. Ceci n'est pas surprenant vu l'origine quantique de la contribution "résonante" : les effets quantiques, en général, augmentent lorsque T baisse.

La température de réversion est donc un "crossover" entre un régime de relaxation et un régime de résonance. *Dans la limite perturbative où* $F \to 0$, une étude quantitative du modèle à deux niveaux sans interactions permet de retrouver que le comportement de ϵ'_r doit être en $\ln T$ au-dessus de T_{rev} et en $-\ln T$ au-dessous : ceci est remarquablement observé sur la Figure 3.3 page 57. Cependant signalons déjà que selon cette analyse sans interactions, la pente $|\partial \epsilon'_r / \partial \ln T|$ devrait être deux fois plus forte au dessous de T_{rev} qu'au-dessus. Ceci n'est pas observé dans notre échantillon qui présente des pentes à peu prés égales de par et d'autre de T_{rev} de même que tous les autres verres étudiés dans la littérature. Il y a là l'indice d'une insuffisance du modèle sans interactions (cf. sections 3.2-3.3), insuffisance soupçonnée par un certain nombre de travaux récents [91]-[100].

3.1.2 Preuve de l'existence d'un effet de champ magnétique.

Nous montrons ici que ϵ'_r dépend un peu du champ magnétique H appliqué [101]. Cet effet a été découvert quelque mois avant nous par un autre groupe [102]-[104] (ce que nous ignorions durant nos expériences) et a constitué une véritable surprise puisque des mesures antérieures n'avaient pas détecté un tel effet [105]. En effet, puisque l'on peut oublier les

[3] Il suffit de faire un développement limité de $E(F)/(k_B T)$ pour s'en convaincre.

[4] Et leur contribution à la relaxation est exponentiellement petite, donc négligeable.

[5] Car, de même que pour la relaxation, lorsque l'on passe de Δ à $-\Delta$, deux quantités changent de signe à la fois : la polarisation de l'état fondamental, et la "force" exercée par F sur le double-puits. Ces deux changements de signe se compensent et les contributions des valeurs opposées de Δ *s'ajoutent.*

effets de spin (voir note [6] en bas de page), on peut prévoir que le champ magnétique H n'aura quasiment aucun effet sur ϵ_r' dans le cadre des systèmes à deux niveaux quasi indépendants. En effet, Δ étant insensible à H, la seule dépendance que l'on puisse trouver serait une dépendance de Δ_0 avec H. Effectivement la transparence tunnel d'une barrière de taille a est influencée par des champs de l'ordre de $H_c = h/(ea^2)$ où e est le quantum de charge, mais vu $a \simeq 0.1$ nm, nous obtenons $H_c \simeq 10^5$ Teslas, valeur colossale qu'il semble raisonnable "d'oublier". Plus précisément, de tels champs produisent un déphasage entre les divers chemins de Feynman situés "sous la barrière interdite" ce qui, par effet d'interférences, amène une *diminution de la transparence tunnel* :

$$\frac{\delta\Delta_0(H)}{\Delta_0} = -\left(\frac{H}{H_c}\right)^2 \quad \text{où} \quad \delta\Delta_0(H) = \Delta_0(H) - \Delta_0(H=0) \tag{3.4}$$

et avec $H_c \simeq 10^5$ Teslas, nous obtenons $\delta\Delta_0(H)/\Delta_0 \simeq -10^{-10}$ ce qui *a priori* semble si faible qu'on n'attend aucun effet mesurable de H sur ϵ_r'.

Nous exposerons d'abord en quoi la mesure des effets de H sur ϵ_r' est difficile [101] pour ensuite donner la preuve que de tels effets existent dans les mesures, et sont bien plus forts que prévu. Enfin nous expliquerons comment l'on peut extraire ces effets des mesures.

3.1.2.1 La difficulté de l'expérience

La mesure de petits effets magnétiques (tels que ceux que nous cherchons ici) est très difficile à basse température. En effet, la thermométrie subKelvin usuelle consiste à mesurer la valeur de la résistance θ_{RuO2} d'un système d'Oxyde de Ruthénium qui suit des lois de saut à portée variable telles que celles que nous avons étudiées au chapitre 2. Or ces oxydes présentent une légère magnétorésistance, dont l'existence est connue, mais qu'il est bien sûr très difficile de mesurer précisément. En effet, lorsque l'on augmente H, la dissipation par courants de Foucault dans les pièces métalliques du cryostat produit un apport de chaleur impossible à annuler totalement : si l'on mesure $\theta_{RuO2}(H)$ en augmentant simplement le champ H sans rien changer par ailleurs, une partie du signal proviendra des effets d'échauffements du cryostat par le champ. La technique utilisée pour trouver l'ordre de grandeur de la magnétorésistance est la suivante [29] :

- à $H = 0$ on calibre d'abord la relation entre la Puissance $\mathcal{P}$ injectée volontairement dans le cryostat et la température constatée T.
- à $\mathcal{P}$ constant on monte alors la valeur de H et on attend suffisamment pour qu'il soit raisonnable de penser que toute la chaleur dissipée par la montée de H à la valeur considérée a été évacuée par le système cryogénique. On affecte l'écart constaté entre la valeur de θ_{RuO2} que l'on lit alors et celle qu'elle avait à champ nul comme provenant uniquement de la magnétorésistance de la RuO_2.

Avec cette technique on obtient les données de l'encart du bas de la Figure 3.5 page 61 : la magnétorésistance dépend de T et de plus elle change de signe à bas champ. On pourrait envisager de tenir compte de ces données pour corriger des variations de T que l'on génère lorsque l'on augmente H en maintenant θ_{RuO2} constant (voir encart du haut de la Figure 3.5 page 61). Cependant, en corrigeant ainsi nos données on les "pollue" plus qu'on ne les corrige car la mesure ci dessus décrite de magnétorésistance de la $RuO2$ repose

[6] Cette question n'est pas facile à traiter du fait du manque d'information quasi complet au sujet de la nature microscopique des espèces fluctuant dans les double-puits : il peut s'agir aussi bien d'atomes, avec un électron célibataire ou pas, que de liaisons électroniques covalentes qui au lieu d'être rectilignes flambent entre deux positions "arquées". Ainsi, s'il est certain que l'effet Zeeman sur les spins nucléaires est beaucoup trop faible (0.3 mK/Tesla), l'effet Zeeman sur d'éventuels spins électroniques donne une énergie de 0.7 K/Tesla, dont l'ordre de grandeur est susceptible de jouer un rôle aux températures où l'on travaille. Cependant, l'essentiel des effets de H se produisant pour $T \leq T_{rev}$, on peut arguer du fait que, dans ce régime, ϵ_r' provient des transitions tunnel induites par le champ F, et que de telles transitions ne sont permises qu'entre états de même spin [101]. D'autres arguments, expérimentaux eux, existent, tels que l'étude systématique des effets de H dans des cristaux contenant des défauts qui sont régis par le même genre d'effets Tunnel que ceux existant dans les verres : l'avantage de ces cristaux est que l'on peut parfaitement contrôler qu'ils ne contiennent aucune impureté magnétique. Le fait qu'ils présentent les mêmes sensibilités à H que les verres vient alors exclure que de tels effets soient liés au spin éventuel des espèces tunnel dans les verres.

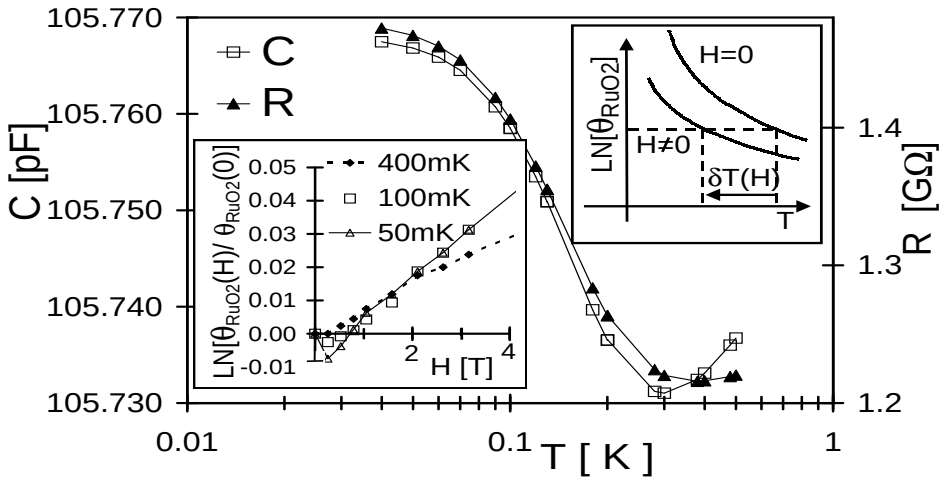

FIG. 3.5 – Figure principale : Axe de gauche : comportement en température de la capacité $C \propto \epsilon_r'$ mesurée à $\omega = 1$ kHz sous un champ de $F = 3.75$ MV/m ; Axe de droite : comportement correspondant de $R = 1/G$ où $G \propto \omega\epsilon_r''$ est la conductance de fuite du verre. Encart du bas : Variation avec H de la résistance θ_{RuO_2} d'Oxyde de Ruthénium servant de thermomètre usuel dans les expériences subKelvin [29]. Ces variations sont mesurées par une technique trop imprécise (voir texte) pour que l'on puisse s'en servir pour corriger les variations de T qui se produisent lorsque H augmente. En effet, comme le montre l'encart du haut, les mesures se font en forçant θ_{RuO2} à rester constant quelque soit H, ce qui génère des variations de températures $\delta T(H)$. Il faudra donc trouver une autre façon de corriger les effets de $\delta T(H)$ pour l'interprétation de nos mesures (voir Figure 3.6 page 62.

sur une hypothèse approximative : on suppose que la "courbe de puissance" c'est à dire la relation $\mathcal{P}(T)$ *ne dépend pas de* H. Or ceci ne peut pas être rigoureusement vrai, du fait, par exemple, que même lorsque le champ est parfaitement établi à sa valeur nominale, les vibrations du système cryogénique [7] dans le champ magnétique produisent une dissipation de chaleur qui perturbe T. Nous avons montré que les données de l'encart du bas de la Figure 3.5, une fois traduites en termes de $\delta T(H)$, n'étaient pas précises à mieux que quelques pour-cent près. Cette marge d'incertitude est trop forte dans notre cas, car nous verrons que les effets $\delta\epsilon_r'(H)/\epsilon_r'$ une fois traduits en équivalent thermique, correspondent à des variations équivalents à moins de 5% de T.

3.1.2.2 Existence de l'effet magnétique et obtention de son ordre de grandeur.

3.1.2.2.1 Preuve de l'existence de l'effet Nous allons cependant apporter une preuve simple et peu contestable de l'existence d'un effet de H sur ϵ_r'. Considérons pour cela la Figure 3.6 page 62 montrant les valeurs de $\delta C(H) = [C(H) - C(0)]_{constant\ \theta_{\mathrm{RuO_2}}}$ où, comme l'indique l'indice, on a forcé θ_{RuO2} à rester constant quel que soit H -les valeurs de T sont celles mesurées à $H = 0$-. Le point important est de remarquer que les effets liés à $\delta T(H)$ ne peuvent pas expliquer toutes les données, même qualitativement. En effet, quelque soit $\delta T(H)$, si $\delta\epsilon_r(H)$ était nul, $\delta C(H)$ et $\delta R(H)$ s'annuleraient pour la même valeur de H : ceci est clairement démenti par les données (à chacune des températures). *Il est donc certain qu'une dépendance* $\epsilon_r(H)$ *existe dans notre échantillon* mais qu'elle demande pour être extraite qu'une correction extrêmement précise des effets de $\delta T(H)$ soit faite vis à vis des mesures de la Figure 3.6.

[7] plus précisément ceci n'est vrai que parce que le système cryogénique comporte des parties métalliques.

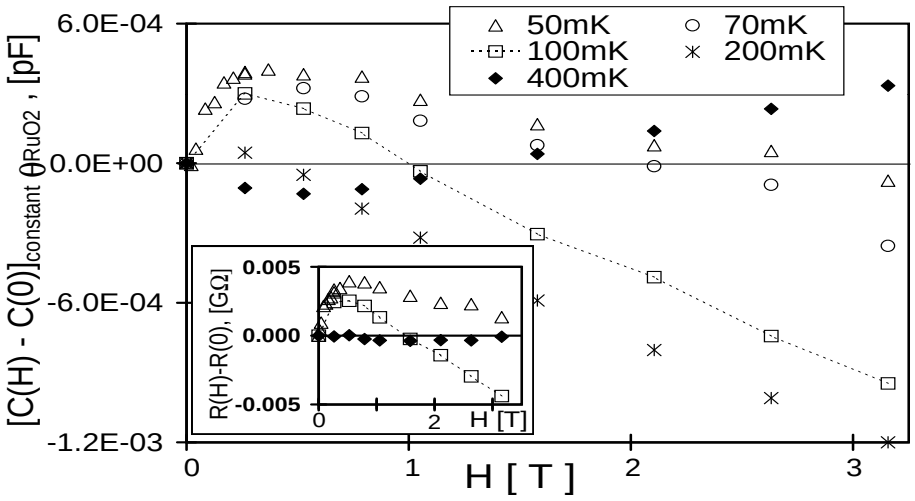

FIG. 3.6 – $\delta C(H)$ mesuré en forçant $\theta_{\mathrm{RuO_2}}$ à rester constant lorsque H augmente (les valeurs de T reportées sur les courbes sont à $H = 0$). Encart : Mesures correspondantes pour $\delta R(H)$ (mêmes symboles). Le fait que $\delta R(H)$ et $\delta C(H)$ ne s'annulent pas au même H ne peut pas s'expliquer en faisant *seulement* référence à des effets de $\delta T(H)$ et implique forcément qu'une dépendance $\delta\epsilon_r(H)$ est mesurable dans notre échantillon. Les barres d'erreurs sur C et sur R valent respectivement $c_{noise} = \pm 10^{-5}$ pF et $r_{noise} = \pm 10^{-5}$ GΩ : elles sont bien plus petites que la taille des points.

3.1.2.2.2 Méthode permettant d'obtenir $\delta\epsilon_r'(H)$ à un facteur multiplicatif près. Nous allons maintenant montrer qu'en utilisant *à la fois* $\delta R(H)$ et $\delta C(H)$, on peut éliminer très précisément les effets liés à $\delta T(H)$ et extraire des données de la Figure 3.6 l'ordre de grandeur de $\delta\epsilon_r'(H)$, c'est à dire de connaître sa valeur à un facteur η près, où $0.1 < \eta < 10$. Cet intervalle peut sembler très grand, mais nous verrons à la section 3.1.3 que l'interprétation physique que nous proposerons ne met en jeu que $\ln(\eta)$.

L'idée principale est que, puisque les effets recherchés correspondent à de très faibles variations relatives, les développements limités (au premier ordre le plus souvent) permettront une description précise. Nous définissons pour toute quantité X mesurée en fonction de H à θ_{RuO2} constant, la quantité $\delta X(H)$ par $X(H) - X(0)$, et, pour C, nous obtenons :

$$\delta C(H) = \left(\frac{\partial C}{\partial T}\right)\delta T(H) + \delta C_{int.}(H) \tag{3.5}$$

où $\delta C(H)$ est la valeur mesurée sur la Figure 3.6 page 62, où $\delta C_{int.}(H)$ est proportionnelle à la variation intrinsèque $\delta\epsilon_r'(H)$ que l'on cherche, et où jusqu'à nouvel avis, toutes les dérivées partielles par rapport à T sont prises à $H = 0$. En introduisant la quantité correspondante $\delta R_{int.}(H)$ pour les mesures de R, nous obtenons une équation similaire à la précédente :

$$\delta R(H) = \left(\frac{\partial R}{\partial T}\right)\delta T(H) + \delta R_{int.}(H) \tag{3.6}$$

En combinant les deux équations précédentes on peut éliminer *précisément* $\delta T(H)$, et obtenir :

$$\delta C_{int.}(H) = \eta\left(\frac{\left(\frac{\partial C}{\partial T}\right)}{\left(\frac{\partial R}{\partial T}\right)}\delta R(H) - \delta C(H)\right) \tag{3.7}$$

où $\eta = \frac{1}{(\alpha-1)}$ avec α défini par :

$$\alpha = \frac{\delta R_{int.}(H)}{\delta C_{int.}(H)} \frac{\left(\frac{\partial C}{\partial T}\right)}{\left(\frac{\partial R}{\partial T}\right)} \tag{3.8}$$

Ici, nous avons introduit α pour essayer d'éliminer une des trois quantités inconnues que sont $\delta T(H)$, $\delta C_{int.}(H)$ et $\delta R_{int.}(H)$ puisque nous ne disposons que de deux quantités mesurées, à savoir $\delta C(H)$ et $\delta R(H)$. Malheureusement, nous ne pouvons pas calculer α *a priori* car, comme nous le verrons aux sections 3.2-3.3, il manque toujours une théorie exhaustive de la dynamique des double-puits et de ϵ_r, surtout aux fortes valeurs du champ F que nous avons utilisées pour augmenter le rapport "signal/bruit" dans nos mesures.

Nous allons donc faire une hypothèse : à savoir qu'il n'y a qu'un seul paramètre fondamental du problème, noté $\mathcal{Y}$, qui varie avec H. Autrement dit, les variations relatives des autres paramètres sont supposées bien plus petites que celles de $\mathcal{Y}$. Nous verrons en section 3.1.3 que ce paramètre $\mathcal{Y}$ est Δ_0. Sous cette hypothèse (assez peu générale puisque l'on ne précise pas $\mathcal{Y}$), on s'aperçoit que α et η *ne peuvent pas dépendre de* H. En effet, ne conservant que les termes du plus bas ordre, nous obtenons que les variations relatives des parties réelles et imaginaires de $\delta\epsilon_r(H)$ (c'est à dire $\delta C_{int.}(H)$ et $\delta R_{int.}(H)$) seront proportionnelles au *même* terme $\delta\mathcal{Y}(H)/\mathcal{Y}$.

Il n'y a pas d'argument équivalent disant que α et $\eta = 1/(\alpha - 1)$ ne peuvent pas dépendre de T. Cependant nous avons montré [101], à partir de la forme des courbes de la Figure 3.6 et d'arguments assez généraux, que, *à chacune des* températures étudiées, η *est positif* et se situe forcément dans l'intervalle $[0.1, 10]$. Pour résumer, nous avons montré (voir l'Appendice de [101]) que l'influence de $\delta T(H)$ sur les mesures de $\delta C(H)$ et de $\delta R(H)$ augmente lorsque H augmente : la dépendance quasi linéaire de $\delta C(H), \delta R(H)$ visible à fort H sur la Figure 3.6 provient des effets de $\delta T(H)$.

3.1.2.3 Extraction de $\delta\epsilon_r'(H)$ à T fixée.

Puisque nous avons établi que $0.1 < \eta < 10$ à toutes les T, l'ordre de grandeur de $\delta C_{int.}(H)$ s'obtient en faisant $\eta = 1$. Il n'y a plus qu'à utiliser l'équation 3.7 et les données de la Figure 3.6 page 62 pour obtenir la variation intrinsèque $\delta C_{int.}(H)$ que nous cherchions. Sur la Figure 3.7 on constate que $\delta C_{int.}(H)$ est essentiellement *positif* aux plus basses T et qu'il devient *négatif* aux T plus élevées, c'est à dire aux environs de $T_{rev.}$. Ce changement de signe survient vers 200 mK, où l'on constate que $\delta C_{int.}(H) \simeq 0$ jusqu'à 3 Teslas. Signalons que le comportement de la Figure 3.7 a été reproduit sur un deuxième échantillon similaire.

L'encart de la Figure 3.7 détaille ce qu'il se passe pour $\delta C(H)$ juste à la température de réversion $T_{rev.}$. Signalons qu'ici, pour améliorer encore le rapport "signal/bruit" on a encore accru le champ puisqu'on a utilisé $F = 8.75$ MV/m. A faible H, la contribution de $\delta T(H)$ à $\delta C(H)$ est négligeable puisque $\partial C/\partial T = 0$ juste à $T_{rev.}$ (à fort H ceci n'est plus vrai du fait de l'augmentation de $\delta T(H)$). Le point important est ici la décroissance de $\delta C(H, T_{rev.})$ à faible H : elle confirme en effet que $\delta C_{int.}(H)$ est négatif près de $T_{rev.}$ et que η est bel et bien positif à 400 mK, comme nous l'avions obtenu, à $F = 3.75$MV/m, par l'analyse des données à 400 mK de la Figure principale en utilisant l'équation 3.7.

On peut transcrire les données de la Figure 3.7 (obtenues, on le rappelle, avec $\eta = 1$) en équivalent thermique en définissant $\delta T_{int.C} = \delta C_{int.}(H)/(\frac{\partial C}{\partial T})$. On trouve que $\delta T_{int.C}(H)$ vaut toujours moins de 7% de T quelle que soit T. *Ainsi, au-delà d'un effet toujours possible lié à la différence de composition chimique des verres, ceci pourrait expliquer pourquoi les expériences précédentes de Frossati n'avaient détecté aucun effet de* H *sur* ϵ_r' [105]. En effet, la précision relative sur la mesure de T était alors de 5%. En ajoutant quadratiquement les incertitudes des deux termes de l'équation 3.7 page 62, l'incertitude finale c_{err} sur les valeurs $\delta C_{int.}(H)$ de la Figure 3.7 vaut :

$$c_{err} = \eta\sqrt{(c_{noise})^2 + (r_{noise}\frac{\partial C}{\partial T})^2(\frac{\partial R}{\partial T})^{-2}} \tag{3.9}$$

Sur la Figure 3.7, c_{err} a été reportée une fois pour chaque T : du fait de la forte augmentation de $\partial R/\partial T$, cette incertitude est bien plus forte à 0.4 K qu'à basse T où elle excède à peine la taille des points. Cependant même à 0.4 K, c_{err} équivaut à une incertitude

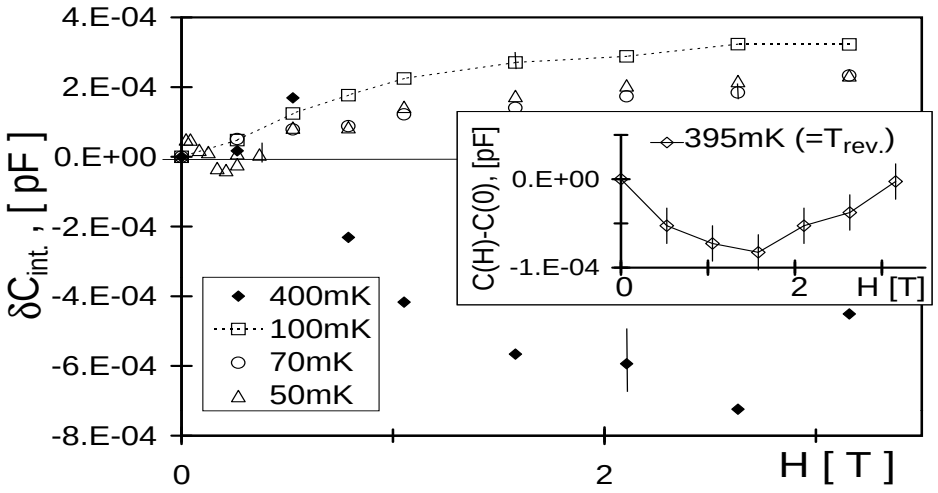

FIG. 3.7 – $\delta C_{int.}(H) \propto \delta\epsilon_r'$ est déduit de la Figure 3.6 page 62 en utilisant l'équation 3.7 page 62 et $\eta = 1$. Par souci de clarté la barre d'erreur (voir l'équation 3.9) n'est reportée que pour un seul H à chaque T : elle est beaucoup plus forte à 400 mK qu'au dessous de 100 mK où elle excède alors à peine la taille de points. En encart : $\delta C(H)$ mesuré juste à $T_{rev.}$ (avec un champ de mesure encore plus fort $F = 8.75$ MV/m pour améliorer encore le rapport "signal/bruit"). Du fait que $\partial C/\partial T = 0$ à $T_{rev.}$, l'équation 3.7 n'est plus nécessaire à faible H puisque $\delta T(H)$ n'a aucun effet sur $\delta C(H)$ qui vaut alors $\delta C_{int}(H)$. La comparaison avec les données de la Figure principale à 400 mK (où $F = 3.75$MV/m) renforce l'idée que $\eta > 0$ à 400 mK. A plus fort H, $\delta T(H)$ n'est plus négligeable et produit la ré augmentation de $\delta C(H)$.

sur T de $\pm 0.5\%$, dix fois plus faible que dans les expériences de Frossati [105], et nettement plus faible que l'incertitude pesant sur les mesures indépendantes de la magnétorésistance de la RuO_2.

Soulignons que $\delta C_{int.}(H)/c_{err}$ ne dépend pas de la valeur choisie $\eta = 1$: les tendances de $\delta C_{int.}(H)$ sur la Figure 3.7 sont donc fiables à chaque T, même si la possible dépendance de η avec T empêche toute comparaison précise entre les courbes $\delta C_{int.}(H)$ à des T différentes. En comparant nos données avec celles de Strehlow *et al.* ayant découvert l'effet de H avant nous [102]-[103], nous constatons que notre dépendance $\delta\epsilon_r'(H)$ est un peu plus faible que la leur, mais qu'elle a le même ordre de grandeur. Le travail de Strehlow *et al* ayant découvert que $\delta\epsilon_r'(H)$ est piquée à faible $H \sim 0.05$ T, nous avons cherché un tel pic sur les seules données (celles à 50 mK) que nous avions dans cette gamme de H : il est difficile de conclure dans notre cas car, si effet il y a, il est proche de notre incertitude c_{err}.

3.1.3 Modélisation dans le cadre des double-puits quasi-indépendants

Passons à l'interprétation physique des données de la Figure 3.7. Tout d'abord, notons que du fait de la dépendance en T des données (comme leur changement de signe par exemple), on peut exclure aussi bien le rôle des câbles que celui de "la matrice" entourant les double-puits. De plus, on a déjà signalé, en note de bas de page en introduction de la section 3.1.2., que l'on pouvait exclure les effets de spin pour peu que l'on s'intéresse à ce qu'il se passe suffisamment au dessous de T_{rev} [8]. C'est ce que nous ferons, en nous

[8] Au voisinage de T_{rev} et au-dessus, l'effet dominant est celui des transitions assistées par le thermostat de phonons. Dans ce cas, si un effet de spin électronique entre en jeu, la dynamique d'un système à 4 niveaux doit être calculée, puisque le thermostat "fournit" la possibilité de renverser les spins. C'est pourquoi, vu la complexité du problème, et vu le manque d'information microscopique sur la nature des double-puits, on n'interprètera pas les effets de H lorsque $T \geq 200$ mK.

concentrant sur l'interprétation des données à $T \leq 100$ mK. Dans ce cas, la Figure 3.7 nous montre que $\delta\epsilon_r'(H)$ est positif, et que son augmentation avec H est visiblement sous-linéaire.

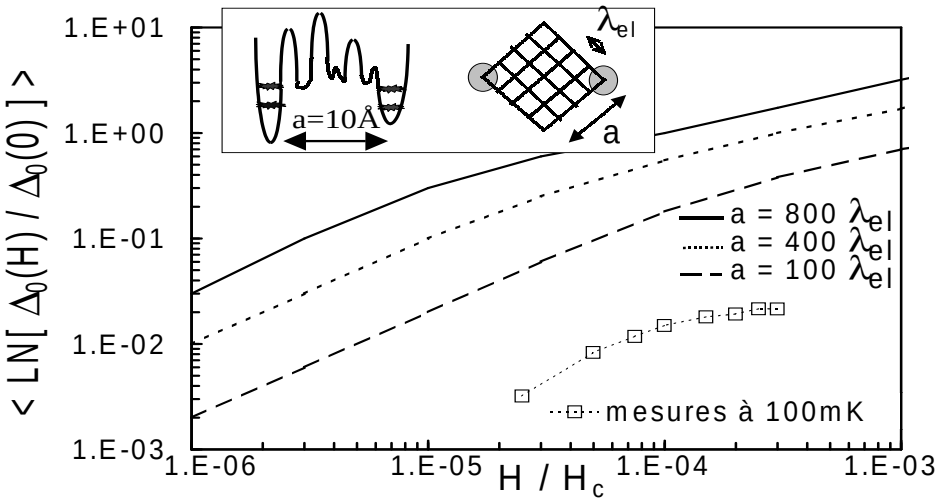

FIG. 3.8 – En encart : représentation schématique du désordre de potentiel dans une barrière de taille a entre deux sites (cercles gris) représentant les deux parties du double-puits : les fluctuations de potentiel sont modélisées par un ensemble "d'impuretés" espacées entre elles de λ_{el} dont les énergies sont tirées au hasard soit très au-dessus, soit très au-dessous des deux niveaux du double-puits. Figure principale : Δ_0 est la somme cohérente de toutes les amplitudes le long des chemins reliant les deux sites : du fait du terme de phase supplémentaire introduit par H, $< \ln \Delta_0 >$ augmente avec H, la dépendance en H^2 à très bas champ (non montrée) se transformant petit à petit en une dépendance en $H^{0.5}$ à plus fort H. On a ici noté par des crochets la moyenne d'ensemble sur les diverses configurations d'impuretés et ici $H_c = \frac{\hbar}{e\lambda_{el}^2}$. Les trois courbes pour $a/\lambda_{el} \geq 100$ sont des simulations numériques dues à E. Medina et M. Kardar [106] et les données à 100 mK ont été extraites de la Figure 3.7 page 64 en utilisant l'équation 3.10 page 65. Les calculs numériques de Médina rendent compte à la fois *du signe* et aussi de la *dépendance sous-linéaire de nos données*. En extrapolant le comportement logarithmique calculé aux grandes valeurs de a/λ_{el} on trouve $a/\lambda_{el} \simeq 5 - 10$ pour notre échantillon. Ceci correspond à un dipôle élémentaire $p \sim 10$ D assez proche de ce qui est obtenu d'ordinaire par mesure d'échos de dipôles dans les verres.

3.1.3.1 Lien entre $\delta C_{int.}(H)$ et $\delta\Delta_{0,max}(H)$

Pour la partie C_{DP} de C qui provient spécifiquement des "double-puits", le résultat usuel [110] au-dessous de $T_{rev.}$ est : $C_{DP} = \mathcal{C} \ln (E_{max}/k_B T)$ où $E_{max} = \sqrt{\Delta_{max}^2 + \Delta_{0,max}^2}$ est l'écart entre niveaux maximum pour un double-puits, et où la constante $\mathcal{C} \simeq 0.03$ pF est déterminée par l'ajustement de la dépendance mesurée sur la Figure 3.5 page 61 au-dessous de T_{rev} avec la loi énoncée ci dessus.

Puisque à la fois Δ et $\mathcal{C}$ [9] sont indépendants de H, *nous interprétons la dépendance* $\delta\epsilon_r'(H)$ *comme provenant de celle* $\Delta_{0,max}$ avec H, ce qui amène :

$$\frac{2\delta C_{int.}(H)}{\mathcal{C}} = \frac{\delta\Delta_{0,max}(H)}{\Delta_{0,max}(0)} = \ln\left(\frac{\Delta_{0,max}(H)}{\Delta_{0,max}(0)}\right) \tag{3.10}$$

[9] Dans le régime linéaire, on montre en résolvant les équations de Bloch de la section 3.2 perturbativement, que $\mathcal{C}$ est proportionnelle au dipôle élémentaire p et au pré facteur $\bar{P}$ de la densité d'états, c'est à dire à des grandeurs indépendantes de H.

où l'hypothèse usuelle $\Delta_{max} = \Delta_{0,max}$ est responsable du facteur 2 dans le membre de gauche de l'équation précédente.

3.1.3.2 Modèle microscopique donnant $\delta\Delta_{0,max}(H)$

Dire que $\Delta_{0,max}$ dépend de H revient à dire que la transparence tunnel est affectée par H. Ceci est bien connu dans les isolants d'Anderson (tels que ceux étudiés au chapitre 2) qui finalement sont une autre forme d'isolants désordonnés. Comme nous l'avons expliqué au chapitre 2, le transport dans ces systèmes se fait par saut à portée variable [10].

On rend compte des effets de H dans ces systèmes [29], [31] en étudiant la dépendance en H de la transparence tunnel Δ_0 entre deux sites *séparés par une barrière désordonnée* comme celle décrite en encart de la Figure 3.8. L'effet tunnel entre les deux sites du double-puits (quasi-symétrique, c'est à dire que $\Delta \simeq 0$) séparés par une taille a est fortement affecté par le désordre de potentiel provenant du désordre structural présent dans la barrière. On modélise ceci par un réseau tridimensionnel "d'impuretés" (dont la longueur fondamentale est le libre parcours moyen élastique λ_{el}). La valeur de Δ_0 résulte de la somme cohérente de toutes les amplitudes de transmission le long des chemins reliant les deux sites. A $H = 0$ un chemin est affecté d'un facteur -1 dans son amplitude de transmission à chaque fois qu'il rencontre une impureté dont l'énergie e_i est inférieure à celle des niveaux du double-puits. Bien sûr, du fait que les e_i sont tirés au hasard, Δ_0 doit d'abord être moyenné sur le désordre, ce que nous noterons dans cette section par des crochets ($< >$). Le résultat hautement non trivial est que $< \ln \Delta_0 >$ *augmente* avec H du fait du terme de phase quantique supplémentaire introduit par H. Ceci est montré sur la Figure 3.8 dont les courbes proviennent des calculs de E. Medina et M. Kardar (dans ces calculs $H_c = \frac{\hbar}{e\lambda_{el}^2}$).

3.1.3.3 Le modèle des barrières désordonnées et les mesures de $\delta\epsilon_r'(H)$

Nous allons voir que, en dépit de la modélisation effectuée et de l'absence d'informations précise sur la nature microscopique des double-puits, le modèle de l'effet tunnel à travers les barrières désordonnées permet de rendre compte des principales caractéristiques mesurées pour $\delta\epsilon_r'(H)$ aux plus basses T.

En utilisant l'équation 3.10 avec $\mathcal{C} = 0.03$ pF et $\lambda_{el} = 0.2$ nm, la dépendance $\delta\epsilon_r'(H)$ observée à 100 mK sur la Figure 3.7 page 64 peut être reportée sur la Figure 3.8 page 3.8. La comparaison avec le modèle de l'effet tunnel dans une barrière fortement désordonné révèle que :

- ce modèle permet de rendre compte du signe positif de $\delta\epsilon_r'(H)$, alors que sans désordre, nous avions vu en introduction de la section 3.1.2 qu'on attendait un signe négatif.
- ce modèle permet de rendre compte de la dépendance sous-linéaire $\delta\epsilon_r'(H) \sim H^{0.6\pm0.2}$ observée, alors que sans désordre nous attendions une dépendance quadratique en fonction de H. C'est cette dépendance sous-linéaire qui a accru de 6 ordres de grandeurs l'effet $\delta\epsilon_r'(H)/\epsilon_r'$, par rapport au cas sans désordre vu en introduction.
- par extrapolation du comportement $< \delta \ln(\Delta_0(H)) > \propto a/\lambda_{el}$ calculé à fortes valeurs de a/λ_{el}, on trouve que nos données sont quantitativement compatibles avec ce modèle pourvu que l'on prenne $a \simeq 5\lambda_{el} \simeq 1$ nm, ce qui correspond à un dipôle élémentaire $p \simeq 10$ D dont l'ordre de grandeur est en accord avec les mesures de p faites par écho de dipôles où l'on trouve $p \simeq 4$ D [113].

Pour résumer, ce modèle, en dépit de sa simplicité, *rend compte de l'essentiel de nos données*. Plus généralement, il explique aussi *pourquoi la thermométrie capacitive n'est pas plus avantageuse vis à vis de la dépendance en H que la thermométrie basée sur le transport dans les isolants d'Anderson*. En effet, pour ce qui concerne la dépendance en H, ces deux systèmes pourraient être régis par la *même physique*.

[10] Et le long d'un chemin de percolation traversant tout le système tant que la fréquence du champ de mesure F est assez basse. A plus haute fréquence, ce chemin se brise en morceaux disjoints, car seuls les sauts plus rapides que la fréquence de F subsistent : à la limite des hautes fréquences, les sauts sont totalement disjoints entre eux, et on a alors *une collection de systèmes à deux niveaux (indépendants ?) pour lesquels il serait intéressant d'appliquer les méthodes décrites en sections 3.2 et 3.3.*

Soulignons pour finir les limites de notre modèle : il ne peut prédire qu'une augmentation monotone sous linéaire avec H et en aucun cas rendre compte du pic mesuré [102]-[103] par le groupe de Strehlow *et al.* pour $\delta\epsilon_r'(H)$ vers $H \simeq 0.05$ Teslas. Ces auteurs proposent d'ailleurs une interprétation en termes d'interactions entre double-puits [102], [104], [107]. Même si leur modèle initial a été contesté, au profit d'un modèle semblable à celui que nous présenterons dans la prochaine section [108], ce pic de $\delta\epsilon_r'(H)$ invite à prendre ses distances avec le modèle à deux niveaux sans interactions mutuelles, y compris dans la version quelque peu raffinée que nous venons de présenter en incluant le désordre de potentiel à l'intérieur même des barrières tunnel. Passons donc aux effets d'interactions entre double-puits.

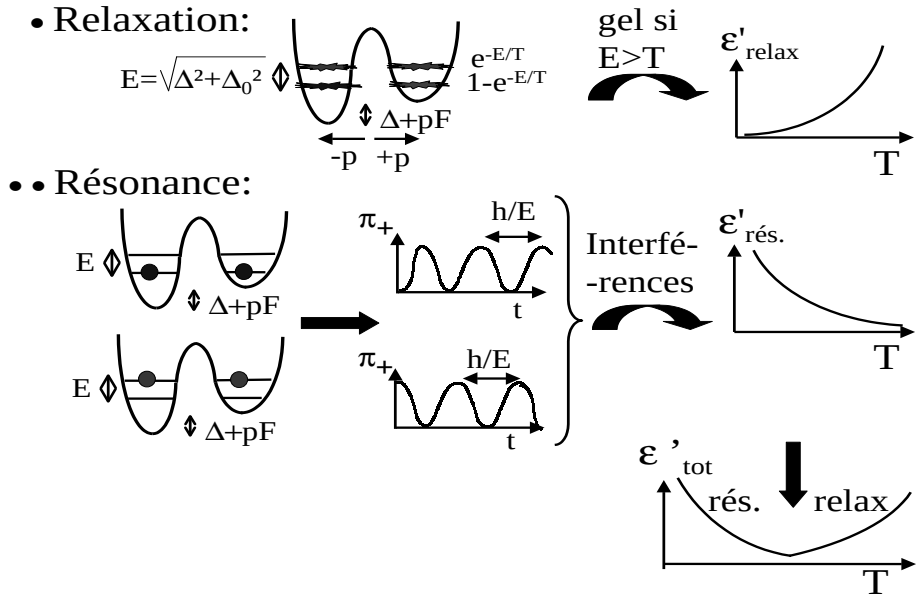

FIG. 3.9 – Explication schématique des deux composantes de ϵ_r' : *i)* la composante de relaxation est un simple déplacement (produit par F) de l'équilibre thermodynamique entre les deux niveaux. Cette contribution diminue donc avec T puisque aucun des double-puits dont le gap E est très grand devant k_BT ne contribue à cette composante de la réponse. *ii)* la composante de relaxation provient de ce que, même si le double-puits est dans un état pur à l'instant $t = 0$ où $F = 0$, ultérieurement son état est forcément une superposition cohérente avec l'autre état, du fait de la déformation que le champ F impose au relief d'énergie du double-puits. Cependant, cette contribution dite "résonante" n'est notable que si le nombre de puits excités est nettement inférieur au nombre de puits dans l'état fondamental. Dans le cas contraire, en effet, les contributions des deux types de puits s'annulent par interférences destructives. C'est ainsi que le modèle des double-puits sans interactions rend compte de l'existence d'un minimum pour ϵ_r' se produisant à une température $T_{rev} \simeq 50$ mK, avec une variation en $\pm \ln T$ de part et d'autre de T_{rev}.

3.2 Non-linéarités et faillite du modèle à deux niveaux quasi-indépendants

Nous retrouvons ici une de nos deux idées clefs : à savoir que l'étude des non-linéarités est très riche d'enseignements dans les verres isolants car elle fournit des informations sur la nature des fluctuations, parmi toutes celles possibles, que ces systèmes utilisent pour le transport. En effet, nous présentons ici une étude numérique des non linéarités produites par le champ de mesure F sur $\epsilon'_r(T)$. En premier lieu, nous présentons un argument intuitif suggérant que le sens de l'effet observé est contraire à ce que l'on serait en droit d'attendre pour un système de double-puits sans interactions mutuelles. En second lieu nous mettons en place les équations de Bloch des double-puits et montrons comment on peut les résoudre non perturbativement. Ceci aboutit à montrer quantitativement que le modèle des double-puits quasi indépendants ne peut pas rendre compte des non-linéarités observées. Enfin, nous étudions l'effet produit par la prise en compte des "dipolitons", qui sont les quasi-particules correspondant à la délocalisation des excitations entre double-puits "suffisamment semblables". Nous montrerons que ce mécanisme, imaginé récemment par Burin *et al.* [99], permet effectivement de rendre compte, au moins qualitativement, des non-linéarités observées.

3.2.1 Argument intuitif : la "saturation quantique".

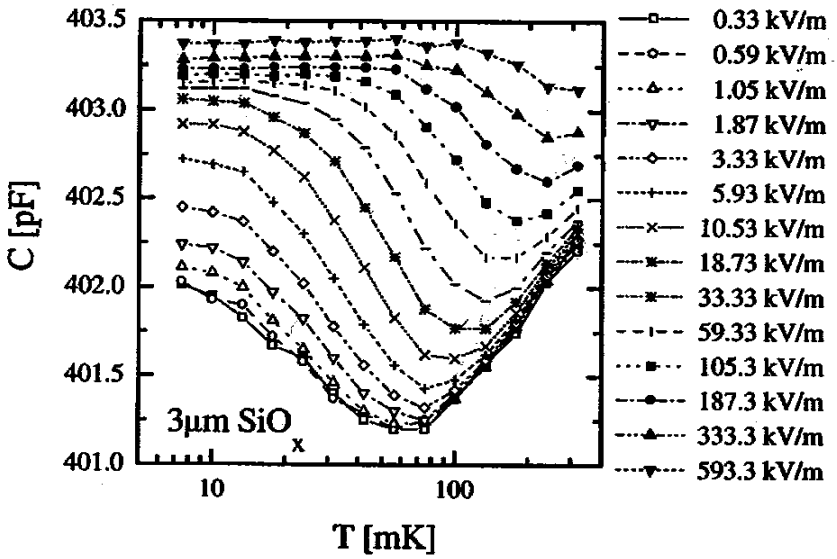

FIG. 3.10 – Effets non linéaires que le champ de mesure F exerce sur ϵ'_r à une fréquence $\omega \simeq 2$ kHz. On a choisi de montrer ces données extraites du travail de Rogge *et al.* [110] car elles présentent en une seule fois tous les effets intéressants : *i)* à T fixée ϵ'_r *augmente avec* F et cette augmentation a surtout lieu pour $T \leq T_{rev}$; *ii)* les effets non linéaires débutent pour environ $F \simeq 1$ kV/m ; *iii)* la pente $|\partial\epsilon'_r/\partial \ln T|$ *augmente avec* F pour $T \leq T_{rev}$, sa valeur étant sensiblement la même de part et d'autre de T_{rev} ; *iv)* ϵ'_r devient insensible à T pour $T \leq T_{plat} \simeq 5$ mK et la valeur de la susceptibilité associée $\epsilon'_{r,plat}$ *augmente avec* F même lorsque T_{plat} est insensible à F. Nous verrons qu'aucun de ces quatre effets n'est susceptible d'être expliqué par le modèle des double-puits quasi-indépendants, pas plus que par un quelconque effet de chauffage de l'échantillon par la puissance électrique dissipée par F.

La Figure 3.9 page 67 résume les deux composantes dites "de relaxation" et "de résonance" qui constituent la constante diélectrique ϵ'_r, comme nous l'avons expliqué en section 3.1.1.3. Etant donné que l'amplitude π_+ des transitions induites par F augmente comme F^2, on s'attend à ce que les effets non linéaires de F apportent un surcroît de puits excités

pour une température donnée. Comme nous avons expliqué que les puits excités diminuent (par interférences destructives) la réponse résonnante, on s'attend à ce que les effets non linéaires de F consistent en une diminution de ϵ'_r, surtout pour $T \leq T_{rev}$ où la contribution "résonante" domine la réponse globale, selon le modèle des double-puits sans interactions. Or sur la Figure 3.10, extraite de la référence [110] (voir aussi [109]), nous constatons que les mesures donnent exactement *le comportement inverse*. Il y a là une étonnante contradiction entre les mesures et le fait que, dans le modèle des double-puits sans interactions, augmenter F revient à augmenter T, c'est à dire à peupler les niveaux excités.

Comme cela est extrêmement bien expliqué par Rogge *et al.* [110], l'essentiel du comportement de la Figure 3.10 ne peut pas trouver son explication dans un hypothétique chauffage de l'échantillon du fait de la dissipation de la puissance électrique liée au champ F. En effet, si F_{lin} est le champ maximal pour lequel ϵ'_r est encore indépendant de F, on s'attend à ce que les effets de chauffage soient plus forts, pour F donné, lorsque T diminue : c'est à dire que le chauffage est censé étirer la courbe $\epsilon'_r(T)$ d'une quantité croissante à mesure que T baisse et donc on attend comme effet pour la susceptibilité diélectrique ϵ'_r :

$$\left|\frac{\partial \epsilon'_r}{\partial T}\right|_{F \geq F_{lin}} < \left|\frac{\partial \epsilon'_r}{\partial T}\right|_{F \leq F_{lin}} \tag{3.11}$$

à basse T, c'est à dire surtout pour $T \leq T_{rev.}$. Les données de la Figure 3.10 présentent exactement le comportement inverse.

A plus basse T, dans la région du plateau de ϵ'_r pour $T \leq T_{plat} \simeq 5$ mK, il est plus délicat d'exclure totalement les effets de chauffage. Comme cela est expliqué par Rogge *et al.* il est possible que le chauffage soit responsable de l'augmentation de T_{plat} avec F que l'on observe pour $F \geq 10 \times F_{lin}$. En revanche, le chauffage ne peut pas expliquer ce qu'il se passe à "champs plus modérés" $F \leq 10 \times F_{lin}$ puisque $\epsilon'_{r,plat}$ *augmente* avec F alors que T_{plat} lui reste insensible à F. Puisque nous nous concentrerons dans cette section sur ce domaine des champs "modérés" $F \leq 10 \times F_{lin}$ (pour des raisons qui apparaîtront plus tard), nous pouvons totalement exclure de notre esprit tout effet de chauffage, même au-dessous de T_{plat}.

Il s'en suit que le fait que ϵ'_r augmente avec F à basse T est contre intuitif du point de vue du modèle des double-puits quasi-indépendants. Cependant, ceci n'avait jamais été noté avant nos travaux [111], du fait de l'existence de "l'approximation adiabatique", approximation qui avait prédit [112] que ϵ'_r augmente avec F à T fixée, ce qui était qualitativement en accord avec les mesures. Nous verrons que cette prédiction *est une conséquence du fait que l'approximation adiabatique néglige les effets de cohérence quantique* au sens où elle supprime purement et simplement l'échelle de temps τ_2 qui exprime le temps de "survie" des effets de cohérence quantique : cette échelle de temps est justement celle qui est mesurée par les expériences célèbres "d'écho de dipôles" [113]-[116] qui sont l'analogue des expériences "d'écho de spin" bien connues en Résonance Magnétique Nucléaire. De plus, dans le cas particulier de ϵ'_r la cohérence interne de l'approximation adiabatique n'est pas assurée puisque d'une part elle ne peut pas décrire la dynamique des puits à trop faible Δ_0 [11] ; et d'autre part il apparaît que les effets non linéaires dans ϵ'_r sont dominés par les faibles Δ_0. Enfin, certaines des prédictions de l'approximation adiabatique ne sont pas observées, comme par exemple le fait qu'au lieu de $T_{rev} \propto F^\gamma$ avec $\gamma > 1$, les mesures donnent $\gamma \leq 1/2$; ou encore le fait que $\epsilon'_{r,plat}$ ne devrait pas du tout dépendre de F, contrairement à la Figure 3.10.

C'est pourquoi nous allons aller "au-delà de l'approximation adiabatique", même si quelques hypothèses simplificatrices nous empêcheront de prétendre avoir fait un calcul "à partir des seuls premiers principes".

[11] Précisément ceux [112] pour lesquels $\Delta_0 \leq \sqrt{pF\hbar\omega}$ ce qui pour $F \simeq F_{lin} \simeq 1$ kV/m et $\omega = 1$ kHz donne, avec $p = 1$ D, $\Delta_{0,min} \simeq 3$ μK alors que les effets instationnaires [124] montrent que des valeurs nettement inférieures existent pour Δ_0 dans les verres.

3.2.2 Equations de Bloch pour les double-puits quasi-indépendants.

Considérons un double-puits de moment dipolaire $\mathbf{p}$. Du fait de son couplage tunnel Δ_0, ses états propres sont délocalisés entre les deux côtés du double-puits, ce qui fait que l'opérateur position $\mathbf{r}$ n'est pas diagonal dans la base propre. Il en résulte que, lorsqu'un champ électrique $\mathbf{F}$ est appliqué au double-puits, le Hamiltonien de couplage $q\mathbf{E}.\mathbf{r}$ n'est pas, lui non plus, diagonal dans la base propre [124] (sur laquelle tous les opérateurs seront exprimés). Le Hamiltonien total vaut :

$$H = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{\Delta}{E} & \frac{\Delta_0}{E} \\ \frac{\Delta_0}{E} & -\frac{\Delta}{E} \end{pmatrix} \mathbf{p}.\mathbf{F}\cos\omega t,$$

c'est à dire sous forme vectorielle $H = -\mathbf{s}.\mathbf{\Omega}$, où $\mathbf{s} = \frac{\hbar}{2}\mathbf{\Sigma}$ (avec $\mathbf{\Sigma}$ désignant les trois matrices de Pauli), et où $\mathbf{\Omega}$ représente un champ "magnétique" externe dont les composantes seront données plus loin. Ceci montre qu'un opérateur "effectif" de "spin" $\mathbf{s}$ est associé au double-puits. L'usage systématique d'un langage de "spin" vient du fait que les trois matrices de Pauli (combinées avec l'Identité) forment une base générale pour la physique de tous les systèmes à deux niveaux, quelle que soit leur origine physique. Pour tous les systèmes à deux niveaux, par exemple, on peut toujours exprimer l'opérateur densité associé ρ par : $\rho = (1/2)I + (1/\hbar)\mathbf{S}.\mathbf{\Sigma}$, où $\mathbf{S}$ est la valeur quantique de l'opérateur de spin $\mathbf{s}$. Ceci montre que S_x et S_y décrivent les effets de cohérence contenus dans les termes hors diagonaux de ρ, tandis que S_z est proportionnel à la différence de population entre les niveaux (dont les probabilités d'occupation sont données par les termes diagonaux de ρ).

La dynamique de $\mathbf{p}$, et donc la susceptibilité diélectrique, découle des propriétés dynamiques de $\mathbf{S}$. Pour un double-puits parfaitement isolé (ce qui implique en particulier que $T = 0$), l'évolution de $\mathbf{S}$ dans le champ "magnétique externe" $\mathbf{\Omega}$ est tout simplement une précession autour de l'axe du champ effectif $\mathbf{\Omega}$. Ceci se déduit de l'équation de Schrödinger dont on montre [124] qu'elle aboutit à $\partial\mathbf{S}/\partial t = \mathbf{S} \times \mathbf{\Omega}$.

3.2.2.1 Structure des équations de Bloch à champ F "modéré".

A T finie, il faut inclure dans la dynamique des double-puits leur relaxation vers leur valeur d'équilibre thermodynamique, puisque chaque double-puits interagit avec son environnement, constitué soit par le bain de phonons soit par les autres double-puits environnants (dont on supposera qu'ils interagissent très faiblement entre eux, d'où le qualificatif de double-puits "*quasi*-indépendants"). Ces interactions avec l'environnement étant, par définition même, aléatoires pour un double-puits donné, l'équation dynamique doit évidemment porter sur des propriétés *moyennées sur un ensemble de double-puits semblables* (de même valeurs de Δ et Δ_0) que nous noterons $\bar{\mathbf{S}}$. Les équations d'évolution correspondantes [117] sont dites "de Bloch" et s'écrivent :

$$\frac{\partial\bar{\mathbf{S}}}{\partial t} = \bar{\mathbf{S}} \times \mathbf{\Omega} + \frac{\bar{\mathbf{S}} - <\bar{\mathbf{S}}>_{relax}}{\tau_{relax}} \tag{3.12}$$

où le dernier terme exprime justement qu'un terme de relaxation de $\bar{\mathbf{S}}$ vers les valeurs "dictées par l'environnement" $<\bar{\mathbf{S}}>_{relax}$ doit être ajouté à la dynamique hamiltonienne quantique. Dans l'équation 3.12, on a supposé que la relaxation d'une composante donnée de $\bar{\mathbf{S}}$, disons $\bar{S}_x$, se produit avec une échelle de temps bien définie, disons τ_x [118]-[121]. Lorsque l'on veut rendre très précisément rendre compte des signaux "d'écho de dipôles", il est nécessaire d'aller plus loin que cette approximation car ces signaux ne décroissent pas comme une simple exponentielle ([122], [123]). Cependant, l'important ici est que ces signaux finissent bel et bien par s'annuler, sur une échelle de temps courte que nous appellerons τ_2 (voir plus loin). En effet, nous ne nous intéressons [124] qu'à *la solution à temps longs* de l'équation 3.12, puisque nous calculons $\epsilon_r'(1\text{kHz})$, ce qui nous permet de nous focaliser sur le cas $\omega\tau_2 \ll 1$ (voir plus loin). De façon similaire, on peut se demander si d'éventuels termes de relaxation plus généraux, tels qu'un terme $\bar{S}_y/\tau_{x,y}$, ou la dépendance éventuelle de τ_2 avec F [127], devraient ou pas être pris en compte dans la relaxation de $\bar{S}_x$ [125],[126]. Nous expliquons dans la référence [111] (voir l'Appendice **B**) que de tels termes

ne devraient voir le jour que dans le régime des "champs forts" $F \gg F_{lin}$, et c'est pourquoi nous nous restreindrons aux champs "modérés" en nous concentrant sur le *"démarrage"* des effets non linéaires (pF n'excèdera pas beaucoup k_BT).

3.2.2.1.1 Relaxation liée au bain de phonons. Penchons nous d'abord sur la relaxation liée au bain de phonons. Les probabilités d'occupation étant modifiées par l'absorption ou l'émission de phonons, on trouve [85] que $\bar{S}_z$ relaxe avec un temps $\tau_1 = \kappa_1/(E\Delta_0^2)\tanh\frac{E}{2k_BT}$, où κ_1 est une constante, légèrement dépendante de l'échantillon, dont on peut déduire l'ordre de grandeur des expériences. Par ailleurs, ces processus d'émission/absorption de phonons survenant aléatoirement et indépendamment pour chaque double-puits, ils brisent la cohérence de phase de l'ensemble formé par les double-puits semblables : ceci produit une relaxation avec un temps $2\tau_1$ pour $\bar{S}_x$ et $\bar{S}_y$ [85].

Quelles sont les valeurs thermodynamiques $< \bar{S}_{x,y,z} >$ vers lesquelles relaxent $\bar{S}_{x,y,z}$? C'est une question difficile qui s'étudie en développant au second ordre les fonctions de corrélation dynamiques du problème, et Abragam a montré [117] que cette relaxation se produit vers les valeurs dites "d'équilibre instantané" données par $< \bar{S}_{x,y,z}(t) >= Tr(< \rho(t) > \bar{S}_{x,y,z})$ où $< \rho(t) >= \exp(-H(t)/(k_BT))/Tr(\exp(-H(t)/(k_BT))$ est justement l'opérateur densité instantané. Pour que ceci soit exact, plusieurs conditions sont requises, dont la plus restrictive est, de loin, : $|\mathbf{p}.\mathbf{F}|\,\tau_c \leq \hbar$ où τ_c est le temps de corrélation du petit champ électrique aléatoire agissant sur un double-puits donné du fait des ses *faibles* interactions avec ses voisins (voir prochain paragraphe et [128]).

Pour résumer, les phonons produisent dans les équations de Bloch un terme $(\bar{S}_z(t) - < \bar{S}_z(t) >)/\tau_1$ pour la relaxation des populations, et $(\bar{S}_{x,y}(t) - < \bar{S}_{x,y}(t) >)/(2\tau_1)$ pour la relaxation des termes cohérents. Ici, τ_1 ne dépend pas du temps, pour des raisons expliquées en note [12].

Avec les relations ci dessus on obtient pour $< \rho_{1,1}(t) >$ et $< \rho_{2,2}(t) >$:

$$< \rho_{1,1}(t) >= \frac{1}{2} + \frac{\Omega_z}{2\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}\tanh\frac{\hbar\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}{2k_BT} \tag{3.13}$$

$$< \rho_{2,2}(t) >= \frac{1}{2} - \frac{\Omega_z}{2\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}\tanh\frac{\hbar\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}{2k_BT} \tag{3.14}$$

Pour les éléments hors diagonaux on obtient :

$$< \rho_{1,2}(t) >=< \rho_{2,1}(t) >= \frac{\Omega_x}{2\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}\tanh\frac{\hbar\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}{2k_BT} \tag{3.15}$$

où

[12] La question de la dépendance temporelle de τ_1 est assez délicate. Par un côté, des arguments ont été construits pour dire que τ_1 ne dépend pas du temps du moment que la fameuse condition $|\mathbf{p}.\mathbf{F}|\,\tau_c \leq \hbar$, évoquée plus haut, est respectée [117]. Cependant, les tenants de l'approximation adiabatique [112] affirment que, puisque F module l'énergie Δ, il faut écrire $\tau_1(t) = \kappa_1/(E_{eff}\Delta_0^2)\tanh\frac{E_{eff}}{2k_BT}$, où $\Delta_{eff} = \Delta + pF\cos\omega t$ et $E_{eff} = \sqrt{\Delta_{eff}^2+\Delta_0^2}$ proviennent de la diagonalisation du Hamiltonien total H, en dépit du fait qu'il dépend de t. Bien sûr l'utilisation de $\tau_1(t)$ est naturelle dans le cadre de l'approximation adiabatique [112] puisque cette dernière consiste justement "à diagonaliser en temps réel" H. Dans notre approche pleinement quantique, la question est plus délicate, elle relève sûrement d'une théorie soignée de la décohérence. Cependant, en ce qui concerne notre cas particulier, à savoir l'étude de $\epsilon_r'(1\ kHz)$, il est facile d'expliquer que les résultats sont extrêmement proches que l'on utilise τ_1 ou bien $\tau_1(t)$. En effet, $\tau_1(t)$ et τ_1 ne diffèrent que pour les double-puits dont l'écart entre niveaux se situent dans l'intervalle $E \leq pF$. Mais ainsi que le montrent les encarts des Figures 3.12 et 3.16 pages 76 et 84, les double-puits amenés en régime non linéaire par F sont bien plus nombreux : ceci est un des résultats principaux de notre approche quantique. Ainsi on ne s'attend pas à un changement détectable selon que l'on utilise τ_1 ou $\tau_1(t)$. Nous avons vérifié numériquement que cette différence était bien négligeable, en effectuant tous les calculs reportés ici dans chacune des deux hypothèses. Par simplicité nous considèrerons que τ_1 ne dépend pas du temps. Ceci s'appuie aussi sur des résultats expérimentaux favorisant l'hypothèse usuelle que la distribution est bien à l'équilibre thermique dans les verres et qu'il n' y a *pas* de goulot d'étranglement pour la thermalisation des phonons émis par les double-puits [129].

$$\Omega_x(t) = -2\frac{\Delta_0}{E}\frac{\mathbf{p}.\mathbf{F}}{\hbar}\cos\omega t \tag{3.16}$$

$$\Omega_z(t) = -\frac{E}{\hbar} - 2\frac{\Delta}{E}\frac{\mathbf{p}.\mathbf{F}}{\hbar}\cos\omega t \tag{3.17}$$

Finalement, on trouve pour la contribution des phonons :

$$< \bar{S}_x >= \frac{\hbar\Omega_x}{2\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}\tanh\frac{\hbar\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}{2k_BT} \tag{3.18}$$

$$< \bar{S}_z >= \frac{\hbar\Omega_z}{2\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}\tanh\frac{\hbar\sqrt{\Omega_x^2+\Omega_z^2}}{2k_BT} \tag{3.19}$$

sans oublier que $< \bar{S}_y >= 0$.

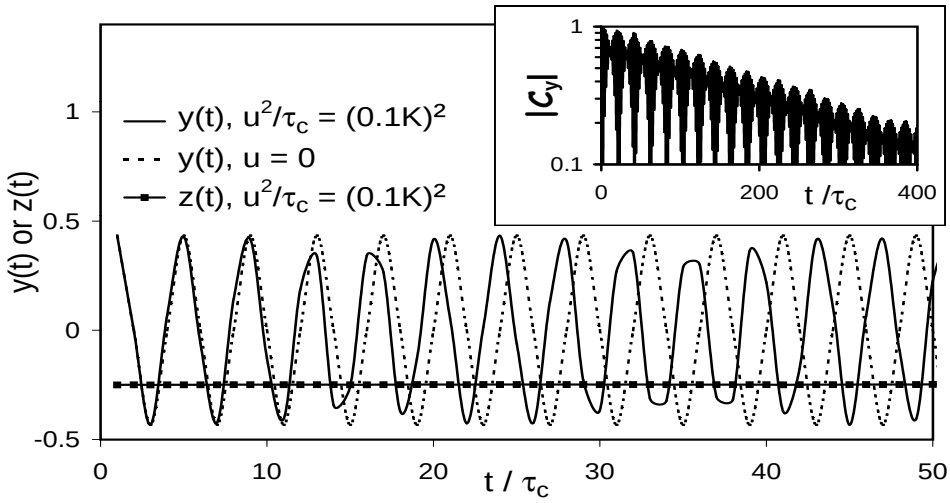

FIG. 3.11 – Dynamique d'un double-puits ($\Delta = 1$ K, $\Delta_0 = 0.01$ K) soumis à un champ électrique aléatoire en temps correspondant à une énergie de couplage aléatoire de $u/\sqrt{\tau_c} = 0.1$ K où le temps de corrélation du champ aléatoire τ_c a été choisi valant le quart de la période de Bohr $h/\sqrt{\Delta^2+\Delta_0^2}$). z, la valeur quantique de S_z, n'évolue quasiment pas (ligne pleine avec les symboles carrés), c'est à dire que cette quantité est "insensible" aux champs aléatoires. En revanche, y, qui est la valeur moyenne quantique de S_y, est fortement affectée par le champ électrique aléatoire : les oscillations de Bohr ne sont plus périodiques comme elles l'étaient en l'absence de champ aléatoire (ligne pointillée). Au cours du temps ces oscillations sont "tordues" de plus en plus par le petit champ électrique aléatoire. C'est pourquoi la fonction d'auto corrélation normalisée $\mathcal{C}_y$ de $y(t)$ décroît exponentiellement avec le temps sur une échelle de temps τ_2 (voir encart).

3.2.2.1.2 Relaxation liée aux très faibles interactions entre double-puits. Passons maintenant aux effets d'interactions entre double-puits. Pour un double-puits donné, l'effet des transitions thermiques des double-puits voisins est supposé très faible. Ainsi, on le modélise par un petit champ électrique aléatoire en temps, c'est à dire comme des petits termes fluctuants $\delta H(t) \ll E, k_BT$. Du fait de cette hypothèse de double-puits "quasi-indépendants", on s'attend à ce que la relaxation des populations, c'est à dire $\bar{S}_z$, ne soit pas affectée par $\delta H(t)$. Comme le montre la Figure 3.11 page 72, que nous avons obtenue par intégration numérique de l'équation de Schrödinger, les oscillations de $S_{x,y}(t)$, pour un double-puits donné, ne sont plus périodiques mais progressivement déformées par le terme

aléatoire $\delta\Pi(t)$. Du fait de l'absence de corrélations entre les séries temporelles $\delta\Pi(t)$ vues par divers double-puits, *la moyenne d'ensemble* produit, par interférences destructives entre les divers double-puits semblables [120], une décroissance de $\bar{S}_{x,y}$ vers *zéro* (alors que $S_{x,y}$ reste fini pour un double-puits donné). Autrement dit, les interactions entre double-puits, tant qu'elles sont supposées faibles, produisent l'effet d'un "bain de double-puits", différent du bain de phonons, dont l'effet global est de "tuer" les termes hors diagonaux sur un temps caractéristique τ_2. Ceci produit un terme supplémentaire $\bar{S}_{x,y}/\tau_2$ pour la relaxation des termes de cohérence.

Ces termes $\bar{S}_{x,y}/\tau_2$ sont la principale différence entre notre travail et "l'approximation adiabatique" [112]. En effet, cette approximation diagonalise en temps réel H et de ce fait peut "absorber l'effet d'un champ aléatoire" par une simple redéfinition de Δ où $\Delta(t) = \Delta + \delta\Delta(t)$. Du fait que $\delta\Delta(t) \ll \Delta$, aucun effet physique n'est attendu pour le champ aléatoire. C'est pourquoi dans l'hypothèse adiabatique, *les interactions double-puits/double-puits, ainsi que τ_2, disparaissent purement et simplement.* La Figure 3.14 page 79 montrera à quel point cette approximation change les effets non linéaires sur ϵ'_τ.

Rappelons que dans les expériences d'écho de dipôles, faites sur différents verres structuraux [113]-[116], on mesure que τ_2 vaut typiquement $10 - 100\mu$s pour $T = 15$mK. On en déduit que, pour ω dans la gamme du kHz, on a $\tau_2\omega \ll 1$: ceci permettra une simplification tout à fait décisive du problème. Mentionnons que, même si τ_2 a toujours le même ordre de grandeur, sa dépendance en T ne semble pas être universelle : certains travaux [114], [115] donnent $\tau_2 \propto T^{-1}$ et d'autres $\tau_2 \propto T^{-2}$ [116]. Ces différences peuvent provenir aussi bien du fait que l'interprétation détaillée des signaux d'écho demande des considérations extrêmement subtiles [122], que du fait que plusieurs mécanismes microscopiques participent à τ_2. En effet, selon les premiers travaux théoriques [119], on devait avoir $\tau_2 \propto T^{-2}$, mais des travaux récents soulignent qu'il est possible [121] que $\tau_2 \propto T^{-1}$ aux plus basses T. Comme ces travaux récents sont fondés sur des considérations similaires à celles que nous utiliserons à la fin de la section 3.2, nous prendrons ici $\tau_2 = \kappa_2/T$, et nous varierons largement la constante κ_2 pour tenter de couvrir le plus large spectre possible de mécanismes microscopiques sous jacents [13].

3.2.2.1.3 Forme finale des équations de Bloch. En insérant les termes de relaxation que nous venons d'établir dans l'équation 3.12 page 70, nous obtenons les équations de Bloch de notre problème :

$$\frac{d\bar{S}_x}{dt} - \Omega_z(t)\,\bar{S}_y + \frac{\bar{S}_x - <\bar{S}_x>}{2\tau_1} + \frac{\bar{S}_x}{\tau_2} = 0 \tag{3.20}$$

$$\frac{d\bar{S}_y}{dt} - \Omega_x(t)\,\bar{S}_z + \Omega_z(t)\,\bar{S}_x + \frac{\bar{S}_y}{2\tau_1} + \frac{\bar{S}_y}{\tau_2} = 0 \tag{3.21}$$

$$\frac{d\bar{S}_z}{dt} + \Omega_x(t)\,\bar{S}_y + \frac{\bar{S}_z - <\bar{S}_z>}{\tau_1} = 0 \tag{3.22}$$

où tous les termes du type $\bar{S}/\tau$ proviennent des processus de relaxation, tandis que tous ceux de la forme $\Omega\bar{S}$ proviennent de la dynamique quantique, c'est à dire du fait que H et $\mathbf{s}$ ne commutent pas.

Remarquons que les équations 3.20 et 3.21 peuvent aussi s'écrire :

$$\frac{d\bar{S}_+}{dt} + i\Omega_z(t)\,\bar{S}_+ + \frac{\bar{S}_+}{\tau_2^*} = i\Omega_x(t)\,\bar{S}_z + \frac{<\bar{S}_x>}{2\tau_1} \tag{3.23}$$

où $\bar{S}_+ = \bar{S}_x + i\bar{S}_y$ et $\tau_2^* = \frac{2\tau_1\tau_2}{2\tau_1+\tau_2}$.

Soulignons que l'apparition de l'échelle de temps τ_2^* est liée aux deux termes $\bar{S}_{x,y}/(2\tau_1)$ dans les équations 3.20-3.21. Ces termes sont bien sûr nécessaires (sans eux il n'y aurait pas relaxation vers $<\bar{S}_{x,y}>$), cependant ils ne sont pas présents dans les équations de Bloch

[13] Enfin, rappelons que pour des raisons exposées dans l'Appendice **B** de [111], nous négligeons, vu notre hypothèse de champs F "modérés", toute dépendance de τ_2 avec F.

les plus simples ayant servi soit à interpréter la plupart des mesures d'écho de dipoles ([114], [115], [116]), soit à interpréter les effets d'instationnarités sur ϵ'_r [124] . En fait ces deux termes jouent un rôle *négligeable* dans la susceptibilité non linéaire (voir note [14] où l'on montre que les effets non linéaires sont tous à l'intérieur du domaine des double-puits vérifiant $\tau_1 > \tau_2$).

3.2.2.2 Résolution non perturbative des équations de Bloch.

Les trois équations de Bloch 3.20-3.22 ne peuvent pas se résoudre analytiquement, et même leur résolution numérique, dans le cas le plus général, semble extrêmement délicate. Cependant, du fait des basses fréquences ω qui nous intéressent, nous pouvons mettre en place une méthode non perturbative efficace [130]. En effet, puisque τ_2^* est bien inférieur au temps typique ($\sim \frac{0.1}{\omega}$) nécessaire pour modifier les populations, on peut considérer que $\bar{S}_z$ est constant [130] dans le membre de droite de l'équation 3.23. Autrement dit, il est raisonnable de penser que les termes de cohérence vont suivre "continûment" les évolutions des populations. Autrement dit encore, les termes de cohérence atteignent si vite leur état stationnaire que cet état peut se calculer avec des termes de populations "gelés". Soulignons la différence entre cette approche et l'hypothèse adiabatique [112] : ici on prend en compte τ_2.

Ainsi l'équation 3.23 peut se résoudre indépendamment de l'équation 3.22 :

$$\bar{S}_+ = \frac{i\Omega_x \bar{S}_z + < \bar{S}_x > /2\tau_1}{i\Omega_z + 1/\tau_2^*} \tag{3.24}$$

ce qui, après insertion dans l'équation 3.22 amène une équation différentielle *ne dépendant plus que de* $\bar{S}_z$:

$$\frac{d\bar{S}_z}{dt} + \frac{\Omega_x^2/\tau_2^*}{\Omega_x^2 + 1/\tau_2^{*2}}\bar{S}_z + \frac{\bar{S}_z - < \bar{S}_z >}{\tau_1} = \frac{\Omega_x \Omega_z}{\Omega_x^2 + 1/\tau_2^{*2}} \frac{< \bar{S}_x >}{2\tau_1} \tag{3.25}$$

Pour résoudre cette équation, on développe $\bar{S}_z(t)$ en série de Fourier (puisque cette grandeur est forcément ω périodique) et l'on cherche l'état stationnaire. Bien sûr, on se limite à un nombre fini d'harmoniques, mais ce nombre (~ 10) n'est fixé qu'*a posteriori*, lorsque l'on a trouvé une solution stable et précise. Ainsi, on a un système de n équations linéaires à résoudre par rapport aux harmoniques de Fourier $\bar{S}_z^n$.

Ensuite, on trouve $\bar{S}_z(t)$ par transformée de Fourier inverse. Les termes de cohérence $\bar{S}_x$ et $\bar{S}_y$ se déduisent alors de l'équation 3.24 où l'on insère $\bar{S}_z(t)$, c'est à dire la solution de l'équation 3.25. Enfin, on cherche le premier harmonique $\bar{S}_x^1$ de $\bar{S}_x(t)$ qui est nécessaire à la détermination de la susceptibilité diélectrique χ' comme nous allons le voir maintenant.

Rappelons en effet que la susceptibilité [124] d'un double-puits unique s'écrit :

$$\bar{\chi} = \frac{-2\,|\mathbf{p}|}{|\mathbf{F}|} \cos\theta \left(\frac{\Delta}{E}\frac{\bar{S}_z^1}{\hbar} + \frac{\Delta_0}{E}\frac{\bar{S}_x^1}{\hbar} \right) \tag{3.26}$$

et que cette susceptibilité doit être moyennée sur la distribution $\bar{P}(\Delta, \Delta_0)$ [124] ainsi que sur l'angle θ existant entre l'axe du double-puits et le champ F. On obtient ainsi la susceptibilité dipolaire totale de l'échantillon :

$$\chi = \overline{P} \int_0^{\Delta_{max}} d\Delta \int_{\Delta_{0min}}^{\Delta_{0max}} \frac{d\Delta_0}{\Delta_0} \int_{-1}^{1} d(\cos\theta)\, \bar{\chi}(\Delta, \Delta_0, \theta) \tag{3.27}$$

[14] Notons d'abord que tant que $\tau_1 > \tau_2$, on a $\tau_2^* \simeq \tau_2$, c'est à dire que nos équations de Bloch sont alors identiques à la version la plus simple si souvent utilisée. Le point important est que, dans le plan (Δ, Δ_0), ce domaine où $\tau_1 > \tau_2$ est *grand* : avec $\tau_2 = \kappa_2/T$ et $\tau_1 = \kappa_1/(E\Delta_0^2)\tanh\frac{E}{2k_BT}$, on montre facilement que ce domaine contient au moins tous les double-puits tels que $E \leq e_{1,2} = (\kappa_1 T/\kappa_2)^{1/3}$. Comme cela est montré en encart de la Figure 3.12 page 76, $e_{1,2} \simeq 0.2$ K , ce qui est très supérieur aux valeurs de pF étudiées ici. Ainsi, les double-puits qui se situent *en dehors* du domaine $\tau_1 > \tau_2$ ne devraient pas être affectés par F, et devraient rester en régime linéaire (où les développements perturbatifs suffisent). Bref, les effets non linéaires ne devraient physiquement provenir que du domaine $\tau_1 > \tau_2$ où les deux termes $\bar{S}_{x,y}/(2\tau_1)$ sont négligeables. Nous montrerons ceci analytiquement plus loin.

Dans toute la suite des calculs, nous nous restreignons à la partie réelle χ' de χ car elle est reliée linéairement à la capacité C de l'échantillon via la constante diélectrique ϵ'_r :

$$\epsilon'_r - 1 = \frac{\chi'}{\epsilon_0} \tag{3.28}$$

3.2.3 Résultats numériques : prééminence de la saturation quantique des niveaux.

3.2.3.1 Résultats obtenus par la méthode non perturbative

Nous avons utilisé les valeurs standards [85] pour $a - SiO_2$: $p = 1$ D, $\overline{P} = 3 \times 10^{44}$ Jm^{-3}, $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3 (toutes les énergies dans le pré facteurs de τ_1 sont prises en Kelvins), $\Delta_{0min} = 10^{-6}$ K, $\Delta_{0max} = 10$ K, $\Delta_{max} = 10$ K. comme nous l'avons expliqué plus haut, nous avons pris $\tau_2 = \kappa_2/T$, et l'on a largement varié κ_2 (entre 3.10^{-11} sK et 10^{-7} sK). Ainsi notre hypothèse simplificatrice principale, à savoir $\omega\tau_2 \ll 1$ est vérifiée quelle que soit $T \geq 0.5$ mK. Enfin, nous avons pris grand soin d'obtenir une précision relative qui dans tous les cas est meilleure que 10^{-3} . Ceci a été vérifié très soigneusement, à la fois en augmentant le nombre d'harmoniques dans la résolution de l'équation 3.25, et en même temps en laissant les procédures successives d'intégration converger jusqu'à mieux que 10^{-4}. Pour chaque ensemble de paramètres $E, T, \kappa_1, \kappa_2, \Delta_{0,min}$ au moins 4×10^4 couples de valeurs de (Δ, Δ_0) ont été calculées.

La Figure 3.12 montre les résultats de nos simulations. La réponse résonante (celle à basse T) est fortement réduite par l'augmentation de F, alors que la contribution de relaxation (haute T) n'est presque pas affectée. Ceci va parfaitement *à l'encontre des résultats expérimentaux* tels que ceux exposés sur la Figure 3.10 puisque, expérimentalement l'augmentation de F produit à la fois une augmentation de la réponse résonante et en même temps une augmentation de la pente $|\partial\epsilon'_r/\partial T|$ pour $T \leq T_{rev}$. Il est important de souligner que la courbe appelée "réponse linéaire" sur la Figure 3.12 a été obtenue *indépendamment* par un développement perturbatif des équations de Bloch [124], et que nos calculs non linéaires convergent tout à fait précisément vers cette courbe de référence lorsque $F \to 0$.

La dépendance extrême de la résonance vis à vis de F est tout à fait frappante puisqu'elle survient alors que $|\mathbf{p}.\mathbf{F}| << k_B T$. Il semble que la réponse cohérente à basse T soit "détruite par l'environnement" (c'est à dire par F) alors que la perturbation liée à F est bien plus faible que toute quantité thermodynamique. Ainsi, on suspecte fortement que cet effet est d'origine quantique. Pour s'en convaincre, considérons l'encart de la Figure 3.13 montrant l'influence de variations de T et de τ_2 sur $\delta\chi'(F,T) = 1 - \chi'(F,T)/\chi'(0,T)$: à F donné, plus T est basse, plus l'effet $\delta\chi'$ est grand, ce qui se comprend puisque les effets quantiques augmentent généralement à mesure que T diminue. De même, $\delta\chi'$ augmente lorsque κ_2 devient plus petit, c'est à dire lorsque la cohérence quantique est plus "fragile". Enfin, la quantité sans dimension $\delta\chi'$ dépend non seulement de F, T, κ_2 mais aussi de κ_1. On montre sur la partie principale de la Figure 3.13 que ces dépendances se synthétisent en une fonction universelle de la variable sans dimension η :

$$\delta\chi' = \begin{cases} 0.1 \times \sqrt{\eta} & if \quad \eta \leq 1 \\ 0.1 \times \ln(\eta) & if \quad \eta \gg 1 \end{cases} \quad \text{avec } \eta = \frac{pF}{k_B T}\left(\frac{\kappa_1}{T^2\kappa_2}\right)^{\alpha} \tag{3.29}$$

où $\alpha \simeq 0.45 \pm .05$ et où le $\ln(\eta)$ pourrait laisser la place à une loi de puissance de η dont l'exposant serait inférieur à 0.1. Ce comportement universel de $\delta\chi'(\eta)$ n'est valide que lorsque la partie relaxationnelle de χ' peut être négligée, c'est à dire à suffisamment basse T. Ainsi, dans la Figure 3.13, on a représenté seulement les données correspondant à $T \leq 10$ mK. Pour ces basses T, $\delta\chi'(\eta)$ reste universel même lorsque l'on varie (κ_1, κ_2, E) sur des ordres et des ordres de grandeur. Finalement, le terme $\kappa_1/(T^2\kappa_2)$ dans η devient si grand à basse T que les effets non linéaires se produisent à des champs F toujours plus petits à très basse T.

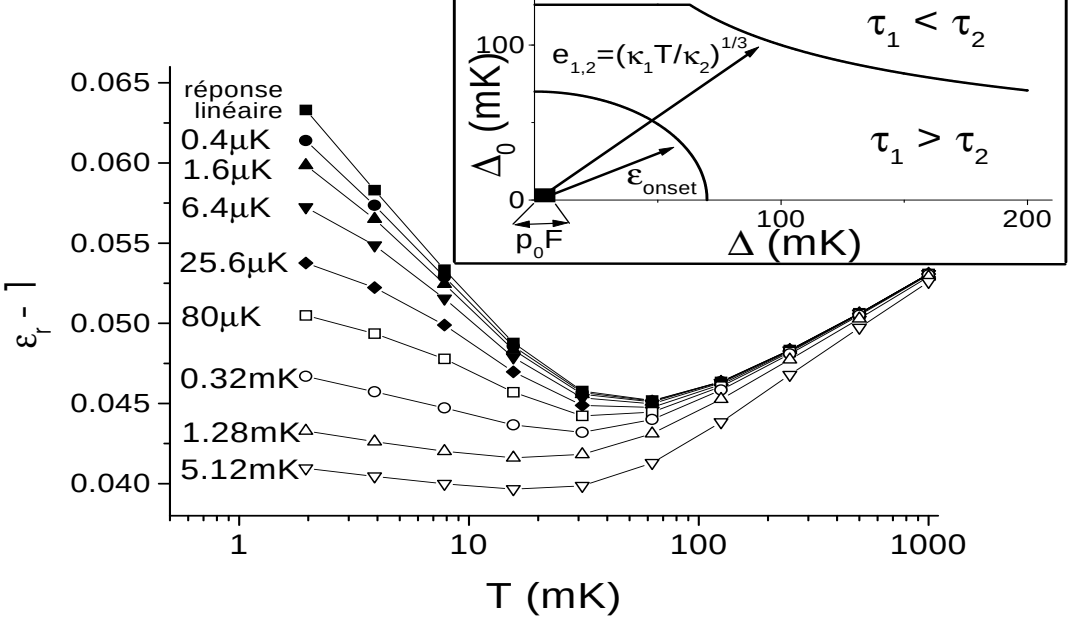

FIG. 3.12 – Encart : A $T = 10$ mK, $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3, et $\kappa_2 = 10^{-8}$ sK, le domaine des double-puits tels que $\tau_2 < \tau_1$ est un domaine grand qui contient tous les double-puits dont le gap E est inférieur à $e_{1,2} = (\kappa_1 T/\kappa_2)^{1/3}$, voir note en bas de page de la section 3.2.2.2. Même pour le plus fort des F étudiés, c'est à dire $pF = 5.12mK$, ce domaine est plus grand que celui contenant les double-puits qui sont amenés en régime non linéaire par le champ F considéré, puisque ce domaine est défini par $E \leq E_{onset} \simeq 70$ mK (voir texte). Soulignons que $E_{onset} \gg pF$ (pF est la toute petite zone noire à l'origine) : ceci explique pourquoi les effets non linéaires sont notables même pour des champs extrêmement petits, comme le montre la Figure principale. Figure principale : Susceptibilité diélectrique de $a - SiO_2$ à 1 kHz en fonction de T. Les calculs sont faits à différents champs F, les valeurs de pF correspondantes étant indiquées sur les courbes. Les paramètres utilisés sont : $p = 1$ D, $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3, $\kappa_2 = 10^{-9}$ sK, $\Delta_{0,min} = 10^{-6}$ K, $\Delta_{max} = \Delta_{0max} = 10$ K, $\overline{P} = 3 \times 10^{44}$ Jm^{-3}. La susceptibilité à basse T s'écroule rapidement lorsque F augmente, du fait du phénomène de "saturation quantique" exposé en section 3.2.1. Il est à noter que la courbe "réponse linéaire" a été obtenue *indépendamment* par un développement perturbatif des équations de Bloch.

3.2.3.2 Interprétation physique.

Pour comprendre plus physiquement le comportement universel de $\delta\chi'(\eta)$ et établir son origine quantique, nous entreprenons de retrouver sa trace au sein même des équations de Bloch. En utilisant l'identité $\Omega_x < \bar{S}_z >= \Omega_z < \bar{S}_x >$, l'équation 3.25 peut être réécrite :

$$\frac{d\bar{S}_z}{dt} + \frac{\bar{S}_z}{\tau_z} = \frac{< \bar{S}_z >}{\tau_{z,1}}, \left\{ \begin{array}{rcl} \frac{1}{\tau_{z,1}} & = & \frac{1}{\tau_1}\left(1 + \frac{1}{2}\frac{(\Omega_x\tau_2^*)^2}{1+(\Omega_z\tau_2^*)^2}\right) \\ \frac{1}{\tau_z} & = & \frac{1}{\tau_1}\left(1 + \frac{\tau_1}{\tau_2^*}\frac{(\Omega_x\tau_2^*)^2}{1+(\Omega_z\tau_2^*)^2}\right) \end{array} \right. \tag{3.30}$$

Dans cette équation, nous obtenons lorsque $F \to 0$: $\tau_z = \tau_{z,1} = \tau_1$. Nous avons expliqué plus haut que les effets non linéaires devraient provenir des double-puits tels que $\tau_1 > \tau_2$. En nous restreignant à de tels double-puits, nous constatons que, dans l'équation 3.30, une augmentation de F réduit τ_z *beaucoup plus vite* qu'il ne réduit $\tau_{z,1}$. Nous allons montrer que ceci réduit fortement la réponse hors diagonale. Mais auparavant, calculons les caractéristiques des double-puits qui sont amenés en régime non linéaire par F.

3.2.3.2.1 Calcul de E_{onset}. Calculons d'abord, à partir de l'équation 3.30, la valeur critique F^* pour laquelle $1/\tau_z$ devient plus grand que $1/\tau_{z,1}$. En nous restreignant aux double-puits dont l'écart entre niveaux E appartient au domaine $\tau_1 > \tau_2$ (pour lesquels on a donc $\tau_2^* \simeq \tau_2$), F^* se détermine par la condition $\tau_1\tau_2\Omega_x^2 \simeq 1 + \Omega_z^2\tau_2^2$, c'est à dire :

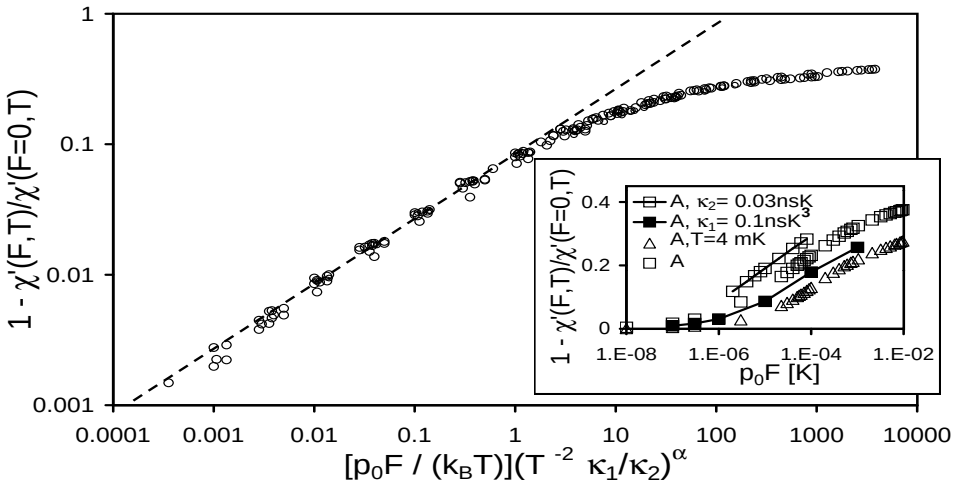

FIG. 3.13 – Encart : $\delta\chi' = 1 - \chi'(F,T)/\chi'(0,T)$ en fonction de pF (en Kelvins). La courbe A correspond à $p = 1$ D, $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3, $\kappa_2 = 10^{-9}$ sK, $\Delta_{0,min} = 10^{-6}$ K, $\Delta_{max} = \Delta_{0max} = 10$ K, $\overline{P} = 3\times10^{44}$ Jm^{-3} et $T = 2$ mK. Les trois autres courbes montrent l'effet sur le phénomène de "saturation quantique" du changement d'un paramètre (dont la nouvelle valeur sert d'étiquette à la nouvelle courbe) : le fait d'augmenter T, ou de diminuer κ_1, diminue $\delta\chi'$; tandis que le fait de diminuer κ_2 augmente $\delta\chi'$. Ceci se comprend bien du fait de la nature "totalement quantique" de $\delta\chi'$. Figure principale : L'influence des divers paramètres peut se synthétiser en une fonction universelle de la variable sans dimension $\eta = \frac{pF}{k_BT}(\frac{\kappa_1}{T^2\kappa_2})^\alpha$ avec $\alpha = 0.45 \pm .05$ d'après nos résultats numériques. La droite en tirets montre que $\delta\chi' \propto \sqrt{\eta}$ lorsque $\eta \leq 1$. Les divers paramètres ont été variés sur des ordres de grandeurs : 2mK$\leq T \leq$ 10mK, 10^{-10} sK$^3 \leq \kappa_1 \leq 10^{-8}$ sK^3 ; 3×10^{-11} sK$\leq \kappa_2 \leq 10^{-7}$ sK ; 10^{-6} K$\leq \Delta_{0,min} \leq 10^{-4}$ K ; 10^{-8} K$\leq pF \leq 3$ mK. Les données de la Figure ont été obtenues dans le cas particulier $\theta = 0$.

$$\begin{cases} \frac{pF^*}{E} = \frac{\hbar T}{k_B\sqrt{\kappa_1\kappa_2}} & \text{si } k_BE\tau_2 \leq \hbar \\ \frac{pF^*}{E} = E\sqrt{\frac{\kappa_2}{\kappa_1}} & \text{si } k_BE\tau_2 \geq \hbar \end{cases} \tag{3.31}$$

où toutes les énergies sont exprimées en Kelvins. Avec les valeurs usuelles $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3 et $\kappa_2 = 10^{-9}$ sK, nous constatons que pF^* est *beaucoup plus petit* que E. Par exemple, pour $T = 10$ mK on trouve $pF^*/E = 2.10^{-5}$ pour les plus faibles E suivant "le haut" de l'équation 3.31, et, $pF^*/E \leq 3.10^{-3}$ pour les double-puits $E \simeq k_BT$ qui sont régis par l'autre partie de l'équation 3.31. En inversant, pour ces double-puits là, l'équation 3.31 par rapport à E, on trouve qu'un champ donné F correspond à un écart entre niveaux caractéristique :

$$E_{onset} = \sqrt{pF}\left(\frac{\kappa_1}{\kappa_2}\right)^{1/4} \tag{3.32}$$

où toutes les énergies sont en Kelvin. Pour les valeurs les plus fortes étudiées ici $pF \simeq 5.12$ mK, nous obtenons $E_{onset} \simeq 70$ mK. Comme le montre l'encart de la Figure 3.12 page 76, E_{onset} est à la fois bien plus grand que pF et en même temps plus faible que $e_{1,2}$ ce qui assure que notre hypothèse de départ $\tau_1 > \tau_2$ n'est pas pénalisante.

3.2.3.2.2 Diminution de la réponse hors diagonale induite par F. Pour montrer que F^*, dans l'équation 3.31, est effectivement le champ critique qui déclenche les non linéarités des Figures 3.12-3.13, nous comparons maintenant $\chi'(F \ll F^*)$ et $\chi'(F^*)$.

Si $E \ll E^*$ Nous obtenons alors, à partir de l'équation 3.30, $\tau_z \simeq \tau_{z,1} \simeq \tau_1$. La résolution de l'équation 3.30 est alors facile et donne pour l'harmonique n de $\bar{S}_z(t)$:

$$\bar{S}_z^n = \frac{< \bar{S}_z^n >}{1 + n^2\omega^2\tau_1^2} \tag{3.33}$$

où $< \bar{S}_z^n >$ est l'harmonique n de $< \bar{S}_z(t) >$. Puisque notre région d'intérêt est $E < E_{onset}$, il est facile de vérifier que $\omega\tau_1 \gg 1$ pour à peu près tous les double-puits considérés. On déduit donc de l'équation 3.33 que $\bar{S}_z(t) \simeq < \bar{S}_z^0 >$. De plus, comme $pF \ll E$ du fait des équations 3.31, nous obtenons $< \bar{S}_z(t) > \simeq < \bar{S}_z^0 >$. Ceci, une fois combiné avec l'identité $\Omega_x < \bar{S}_z(t) > = \Omega_z < \bar{S}_x(t) >$, amène $\bar{S}_z(t) \simeq \Omega_z < \bar{S}_x(t) > /\Omega_x$. Une fois reporté dans l'équation 3.24, on obtient :

$$\bar{S}_x(t) \simeq \frac{< \bar{S}_x(t) >}{1 + \Omega_z^2\tau_2^2}(\Omega_z^2\tau_2^2) \tag{3.34}$$

où dans le dernier facteur on a utilisé le fait que $\Omega_z^2\tau_2^2 \gg \tau_2/(2\tau_1)$ [15], pour négliger $\tau_2/(2\tau_1)$.

Si $F = F^*$ Nous obtenons, à partir de l'équation 3.30, $\tau_{z,1} \simeq \tau_1$ et $\tau_1/2 \leq \tau_z(t) \leq \tau_1$. Le fait que τ_z est désormais plus petit que $\tau_{z,1}$ est responsable de l'irruption des effets non linéaires. On peut s'en apercevoir en faisant $\tau_z = \tau_1/2$ à chaque instant de la période électrique. Avec cette simplification, on obtient, avec la même méthode que ci dessus :

$$\bar{S}_x(t) \simeq \frac{< \bar{S}_x(t) >}{1 + \Omega_z^2\tau_2^2}(\frac{1}{2}\Omega_z^2\tau_2^2) \tag{3.35}$$

La partie hors diagonale de la réponse, en phase avec F, vaut $\bar{\chi}'_x \propto \bar{S}_x^1/F$. Elle se lit directement sur les équations 3.34-3.35 pour peu que l'on rappelle que $< \bar{S}_x > \propto F\cos\omega t$. Ainsi, on obtient $\bar{\chi}'_x(F = F^*) \simeq \frac{1}{2}\bar{\chi}'_x(F \ll F^*)$, où le facteur $1/2$ provient de la simplification du cas $F = F^*$ pour lequel on a fait $\tau_z = \frac{1}{2}\tau_{z,1}$. Ainsi, même si la comparaison ne peut être que semi-quantitative, on retrouve les deux aspects majeurs du phénomène de "saturation quantique" :

- $\bar{\chi}'(E^*) < \bar{\chi}'(E \ll E^*)$,
- cet effet provient de la partie hors diagonale de la susceptibilité, il est donc purement d'origine quantique. En effet, notre raisonnement étant fait à très basse T, nous sommes fondés à négliger la partie relaxante de la réponse puisque les double-puits qui pourraient contribuer à cette partie là sont tels que $E \leq k_BT$, et leurs τ_1 sont tellement grands que l'on voit sur l'équation 3.33 que $\bar{S}_z^1$ est négligeable du fait de sa division par $(\omega\tau_1)^2$.

Pour résumer, nous avons ici un effet de décohérence quantique [131] induit par le champ F. Il n'est pas surprenant que ceci n'ait pas été accessible dans le cadre de l'hypothèse adiabatique puisque dans cette approche τ_2 disparaît, ce qui ne laisse, pour le démarrage des effets non linéaires, pas d'autre possibilité que $|\mathbf{p}.\mathbf{F}| \sim k_BT$. De plus, nous avons montré que la saturation quantique dépend précisément du couplage entre les trois équations de Bloch, c'est à dire du fait que τ_z varie plus vite avec F que $\tau_{z,1}$: ceci est bien sûr hors d'atteinte de l'approximation adiabatique puisque cette approche ne contient plus qu'une seule équation différentielle [112] au lieu des équations 3.20-3.22. Pour finir, soulignons que les non-linéarités des Figures 3.12- 3.13 ne dépendent pas du mécanisme microscopique précis dominant τ_2 mais seulement du fait, expérimentalement bien établi, qu'il existe un vaste ensemble de double-puits pour lesquels $\tau_2 \ll \tau_1$: ceci est la raison principale des non linéarités de χ' constatées sur nos simulations.

3.2.3.3 Effet de la densité d'états.

Puisque quelques modifications de la densité d'états usuelle $\bar{P}/\Delta_0$ ont été proposées ([89], [90]), nous présentons ici un argument analytique permettant de tester si la saturation

[15] ceci reste vrai pour n'importe quel couple physiquement raisonnable des paramètres κ_1 et κ_2

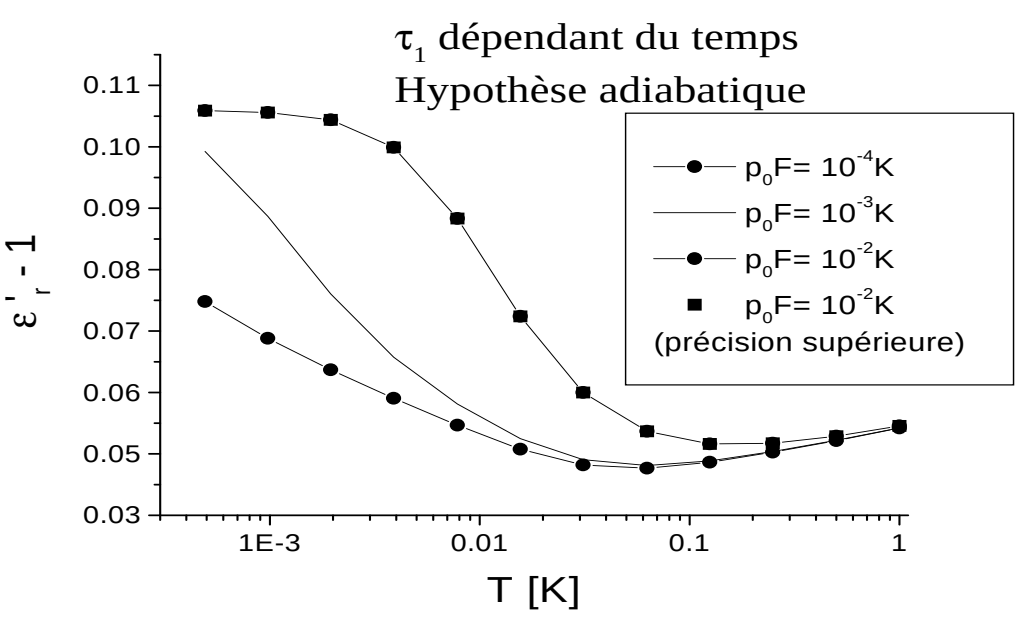

FIG. 3.14 – Non-linéarités calculées dans le cadre de l'hypothèse adiabatique, dont le cadre est tel que τ_2 ne peut pas être pris en compte : le sens des non-linéarités est l'inverse de celui des Figures 3.12-3.13, car on est en quelque sorte ici dans le cas $\tau_2 \to \infty$ ce qui fait disparaître l'essentiel de la saturation quantique. C'est la dépendance temporelle de τ_1, c'est à dire son remplacement par $\tau_1(t) = \kappa_1/(E_{eff}\Delta_0^2)\tanh\frac{E_{eff}}{2k_BT}$, où $\Delta_{eff} = \Delta + pF\cos\omega t$ et $E_{eff} = \sqrt{\Delta_{eff}^2 + \Delta_0^2}$ qui augmente la réponse des double-puits lorsque F augmente. En effet, même si Δ_0 est arbitrairement petit (et donc $\tau_1(t)$ arbitrairement grand quel que soit t), le premier harmonique $(1/\tau_1)^{n=1}$ est non nul, ce qui produit une participation à χ' via le terme $(1/\tau_1)^{n=1}\bar{S}_z^0$. La signification physique de ce terme reste cependant peu claire.

quantique est robuste vis à vis de changements de la densité d'états.

A partir de l'équation 3.31 du "bas", qui est celle qui concerne la grande majorité des double-puits amenés en régime linéaire par F, notons d'abord que le champ seuil F^* augmente comme $\sqrt{\kappa_2/\kappa_1}$. Ceci suggère que la dépression induite par F sur χ' dépend de $F\sqrt{\kappa_1/\kappa_2}$, ce qui, en rappelant que κ_1/κ_2 est homogène à T^2, conduit naturellement à la variable sans dimension $pF/(k_BT)\sqrt{\kappa_1/(T^2\kappa_2)}$ comme paramètre mesurant l'intensité du phénomène de saturation quantique. Cette définition de η correspond exactement à celle que nous avions forgée à partir de nos simulations.

Par ailleurs, d'après la discussion précédente des équations 3.34-3.35, les double-puits $E \leq E_{onset}$ sont tous déjà dans le régime non linéaire, tandis que les autres double-puits sont encore en régime linéaire. Il est donc naturel de considérer que le nombre de double-puits en régime non linéaire est un bon estimateur du phénomène de saturation quantique mesuré par $1 - \chi'(F,T)/\chi'(0,T)$, ce qui amène à :

$$1 - \chi'(F,T)/\chi'(0,T) \propto \int_{E_{min}}^{E_{onset}} P(E)dE \propto \sqrt{F} \propto \sqrt{\eta} \qquad (3.36)$$

où la dernière égalité est obtenue en utilisant la relation mentionnée ci dessus $F \propto \eta$; tandis que la seconde relation utilise la définition établie plus haut pour E_{onset} ainsi que le fait que la densité d'états usuelle correspond à $P(E)$ =constante. Soulignons que l'équation 3.36 redonne exactement celle que nous avions établie d'après nos simulations.

Cet argument nous permet d'estimer *a priori* que les petites corrections proposées à la densité d'états usuelle seront de faible importance en ce qui concerne la saturation quantique : il suffit pour s'en convaincre d'injecter dans l'équation 3.36 les modifications proposées aussi bien par la référence [89] que par [90].

Pour résumer, en résolvant les équations de Bloch, nous avons mis en évidence que

l'augmentation de F diminue fortement la réponse hors-diagonale des double-puits, phénomène que nous avons appelé "saturation quantique". Cet effet subsiste pour une très large gamme des paramètres principaux que sont κ_1 et κ_2, et il provient des double-puits tels que $E \leq E_{onset} < e_{1,2}$. Pour un ensemble de double-puits de densité d'états standard $\bar{P}/\Delta_0$, l'effet de saturation quantique croît comme $F^{0.5}$, ce qui justifie *a posteriori* le fait que nous ayons employé une méthode non perturbative. Enfin, cette saturation quantique débute pour des champs $F^* \ll k_B T/p$, ce qui en fait une prédiction incontournable pour les expériences, puisque, dans les mesures, F est décru bien au dessous de $k_B T/p$. Le fait que toutes les non-linéarités reportées dans la littérature aillent systématiquement dans le sens inverse de celui de la saturation quantique nous amène à remettre très sérieusement en question le modèle des double-puits quasi-indépendants. Nous allons voir dans la prochaine section que si l'on injecte les interactions, on retrouve des non linéarités conformes à l'expérience.

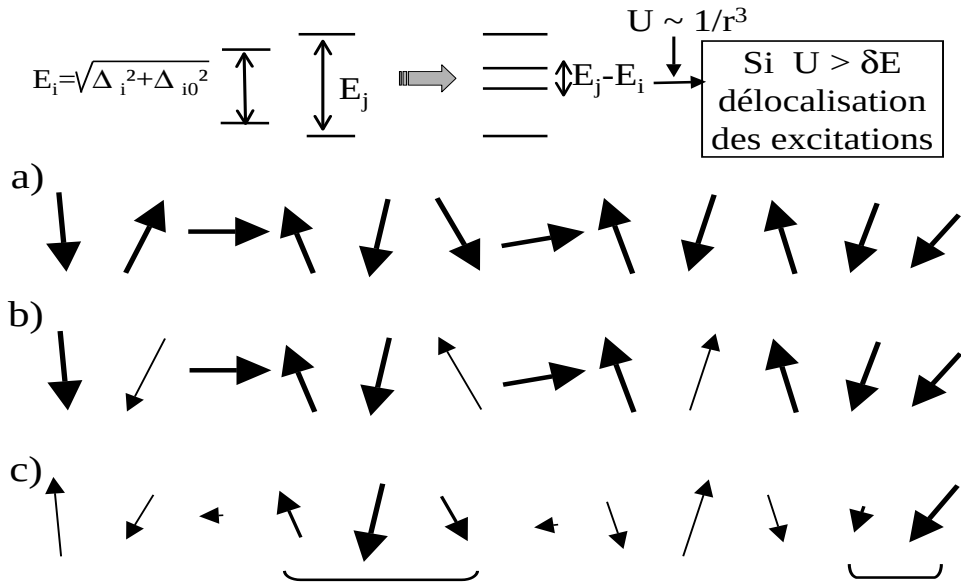

FIG. 3.15 – En haut : Deux double-puits i et j, verront leurs niveaux excités être délocalisés si leurs écarts entre niveaux originels E_i, E_j diffèrent de moins que leur interaction mutuelle U. Ainsi, on montre que tous les double-puits dont les écarts entre niveaux diffèrent de moins de $e_{dip} = pF$ forment un ensemble infini de double-puits couplés sur lequel il y a délocalisation des excitations (si F n'est pas trop petit). Cette délocalisation survient malgré le désordre, grâce à l'intervention du champ F qui module les E_i et les rend périodiquement égaux, fut-ce pendant un laps de temps petit devant la période électrique. Pour illustrer cette délocalisation on a représenté en *a,b,c* un ensemble de double-puits dont les valeurs de E sont toutes les mêmes à e_{dip} près, condition qui n'empêche par leur désordre orientationnel : *a)* tous les double-puits sont dans leur état fondamental ; *b)* cas à $F \to 0$ où il n'y a pas délocalisation des excitations, les puits numéro $2, 6, 9$ (en partant de la gauche) s'excitent indépendamment ; *c)* Délocalisation des excitations à F non négligeable, les double-puits soulignés sont des "noeuds d'excitation", les autres participent de façon notable à l'excitation collective.

3.3 Preuves de l'importance des interactions dipolaires entre double-puits.

La section 3.2 nous a montré les lacunes du modèle standard des double-puits quasi-indépendants. Deux possibilités apparaissent : soit tenter de construire un modèle profondément différent du modèle des double-puits [94], soit tenter d'améliorer le modèle standard en y incluant, par exemple, des effets d'interactions entre double-puits. Cette dernière voie est spécialement difficile du fait du manque d'informations microscopiques sur les double-puits : certains auteurs prétendent que les interactions entre double-puits sont très fortes ([91], [92], [97], [97], [104], [103], [107]), d'autres qu'elles sont faibles ([90], [95], [98], [100]), d'autres qu'elles sont renormalisées à zéro pour cause de "frustration" [93]. C'est pourtant cette voie d'inclure les interactions dans le modèle des double-puits que nous choisissons : d'abord parce qu'elle est moins démesurée que l'autre, puisqu'elle vise "seulement" à renouveler notre compréhension des verres, sans pour autant la changer du tout au tout ; ensuite parce que le mécanisme de délocalisation cohérente des excitations, construit récemment par Burin *et al* [99], nous permettra de prévoir et d'expliquer deux faits nouveaux, (l'un numérique, l'autre expérimental) incompatibles avec la version standard du modèle sans interactions. Nous commençons donc par exposer l'idée de Burin avant de montrer ses conséquences sur la simulation de χ' ainsi qu'une prédiction expérimentale nouvelle sur les effets que l'épaisseur h du diélectrique a sur ϵ'_r.

3.3.1 La délocalisation dynamique des excitations entre double-puits semblables.

Nous présentons ici le mécanisme de délocalisation cohérente des excitations entre double-puits, mécanisme fortement médié par le champ de mesure F appliqué au système. Si l'idée de la "délocalisation cohérente des excitations du fait des interactions" a déjà été émise au milieu des années 90 [90], il a fallu attendre Juin 2001 [99] pour que le rôle tout à fait moteur du champ F dans cette délocalisation soit imaginé.

L'idée est de considérer un double-puits excité d'écart entre niveaux E_0 et de chercher la probabilité ρ pour qu'une telle excitation se délocalise en "sautant" sur un autre double-puits, d'écart entre niveaux E', situé à une distance λ du premier double-puits. La probabilité ρ ne sera importante que si $|E_0 - E'| \leq U(\lambda)$ où $U(\lambda)$ est l'interaction qui couple ces deux double-puits. En prenant la densité d'états usuelle $\bar{P}$ (indépendante de E) d'écarts entre niveaux pour les double-puits dans les verres, on trouve que ρ est extrêmement petite lorsque $F = 0$, mais qu'une valeur finie de F augmente très considérablement ρ. Ceci provient du fait qu'un champ F fini module périodiquement l'écart entre niveaux, d'une quantité $e_{dip} = pF/\epsilon_g$ où $p \simeq 1$ D est le dipôle des double-puits et $\epsilon_g \simeq 5$ est la constante diélectrique du verre [16] [124], [110]. Ainsi, selon Burin *et al.*, tous les double-puits dont l'écart entre niveaux se situent dans l'intervalle $[E_0 - e_{dip}; E_0 + e_{dip}]$ appartiennent au même "amas infini" sur lequel les excitations des double-puits sont délocalisés. Ceci, répétons le, provient de la modulation par F de Δ (et donc de E) : deux quelconques double-puits appartenant à cet intervalle voient la différence $E - E'$ s'annuler durant une brève fraction de la période électrique ω, ce qui est suffisant pour que la délocalisation des excitations ait lieu.

La fréquence ω doit donc être suffisamment basse pour que cette modulation ait effectivement lieu, sans que des questions d'éventuelles "non adiabaticités" ne se posent. Ceci n'ajoute pas de restriction supplémentaire au regard de notre hypothèse fondamentale $\omega\tau_2 \ll 1$ qui cantonne nos résultats au domaine des fréquences de quelques kHz au maximum. Par ailleurs, le travail de Burin *et al.* suppose que $pF \ll k_B T$, ce qui, là aussi n'est pas plus contraignant que notre hypothèse de "champs modérés" $F \leq 10 \times F_{lin}$.

L'idée principale est qu'une augmentation de F accroît la probabilité de délocalisation cohérente (dite encore de "saut cohérent") d'une excitation. Du point de vue du double-puits qui vient ainsi de "perdre" son excitation, ceci revient à une relaxation vers l'état fondamental. Ainsi, un canal de relaxation de l'énergie supplémentaire apparaît il, en concurrence du canal "phonique" usuel. Burin *et al.* montrent que la fréquence de ce canal de relaxation croît comme $\sqrt{F}$. Pour prendre en compte ce mécanisme, nous insérons donc dans nos équations de Bloch 3.20-3.22 une nouvelle définition du temps de relaxation diagonal τ_1 qui vaut désormais $\tau_1^{-1} = \tau_{1,ph.}^{-1} + \tau_{1B}^{-1}$ où $\tau_{1,ph}$ est le temps de relaxation usuel associé aux phonons et où :

$$\tau_{1B} = \frac{\mathcal{B}}{\sqrt{|\mathbf{p}.\mathbf{F}|}} \tag{3.37}$$

, la constante $\mathcal{B}$ valant $\mathcal{B} = 10^{-5}$ sK$^{1/2}$ pour des valeurs raisonnables des paramètres physiques dans les verres [99].

En utilisant l'équation précédente, nous avons constaté qu'en augmentant F à T fixée on obtenait toujours *une augmentation* de χ'. Cela montre déjà que le mécanisme de Burin est suffisant pour contrebalancer les effets de la "saturation quantique" des Figures 3.12-3.13. Ceci n'est pas surprenant puisque, avec les valeurs *standard* $\kappa_1 = 10^{-8}$ sK^3 et $\mathcal{B} = 10^{-5}$ sK$^{1/2}$, pour les double-puits symétriques ($E = \Delta_0$), on trouve (pour $pF = 1$mK, $E = 10$mK et $T \simeq T_{rev} \simeq 50$mK) que $\tau_{1B} \simeq 0.2\text{ms} \ll \tau_{1,ph.} \simeq 10\text{ms}$. Autrement dit, le mécanisme de Burin *et al.* augmente notablement l'efficacité de la relaxation. Cependant, les courbes obtenues (non rapportées) sont en très mauvais accord avec les mesures typiques (comme

[16] La constante ϵ_g dont il s'agit ici est celle du matériau entier, comportant donc à la fois la "matrice" et les double-puits, ces derniers ne contribuant à ϵ_g que par la petite quantité que nous avons appelée ϵ_r. C'est ϵ_r que nous étudions dans ce chapitre, car c'est la seule partie de la constante diélectrique globale ϵ_g ($\epsilon_g \gg \epsilon_r$) qui varie en T.

celles de la Figure 3.10). En effet, tel qu'exprimé par l'équation 3.37, l'effet de délocalisation est *trop fort* puisque l'augmentation globale de $\chi'(T)$, lorsque F augmente, est *d'autant plus forte* que T est élevée. Ceci est dû aux très nombreux double-puits dont la transparence tunnel est très faible $\Delta_0 \ll E$: dans la section 3.2, de tels puits ne participaient pas du tout à la réponse de "relaxation" du fait de la très grande valeur de leur $\tau_{1,ph.}$. Avec l'équation 3.37 ils donnent tous une contribution relaxante du moment que leur écart entre niveaux E est inférieur à k_BT : le nombre de ces double-puits "participant brutalement" à χ'_z augmente avec T, et donc leur contribution supplémentaire fait de même.

Puisque les comportements précédents et ceux de la Figure 3.12 "encadrent" le comportement non linéaire expérimental, il est naturel de se demander si l'on ne pourrait pas interpoler entre ces deux comportements. A ce sujet, on constate que l'équation 3.37 ne comporte pas d'effet de T. Or, d'une part les effets des interactions disparaissent, généralement, à haute T ; d'autre part pour obtenir l'équation 3.37 on a supposé que la cohérence quantique était préservée durant le processus de délocalisation. Intuitivement, on aurait envie de requérir que $\tau_{1,B}$ devienne négligeable (c'est à dire infini) lorsque T augmente, par exemple au-dessus de 100 mK -voir [100]-. Cependant, le développement de cette idée est difficile, comme le montrent les travaux de Burin lui-même : dans les articles les plus anciens, [98], les effets de T sur la délocalisation sont pris en compte, mais ceux de $F \neq 0$ ne le sont pas ; inversement, dans l'article le plus récent traitant de la délocalisation induite par F [99] et aboutissant à l'équation 3.37, les effets de T ne sont pas abordés.

Or il apparaît certain, d'après la Figure 3.12 qu'il faut que le mécanisme que l'on ajoute aux équations de Bloch : *i)* soit d'autant plus efficace que F augmente ; *ii)* concerne la réponse diagonale puisqu'on a montré que la réponse hors diagonale s'écroule lorsque F augmente un tant soit peu. Ainsi, il semble physiquement raisonnable de privilégier le travail de Burin qui traite de l'effet de F, et ensuite de le modifier *heuristiquement*, en y incluant l'idée intuitive que ce mécanisme devient négligeable lorsque T augmente. Tous les essais que nous avons fait en ce sens ayant fourni le même genre de résultat pour χ', nous ne présentons ici que ceux obtenus avec la loi la plus simple :

$$\tau_{1B}(T) = \frac{\tau_{1B}}{1 - e^{-T_B/T}} \quad \text{avec } T_B = 15 \text{ mK} \tag{3.38}$$

où τ_{1B} est donné par l'équation 3.37 et l'exponentielle d'activation thermique est censée modéliser une constante de couplage entre dipôles valant $T_B = 15$ mK : cette dernière échelle d'énergie peut être déduite de la Figure 3.10 page 68 puisque c'est la température T_{plat} où χ' devient indépendante de T, et que cette température ne change pas, même lorsqu'on est à des champs F dix fois supérieurs à F_{lin}. Bien sûr cette échelle T_B peut être ajustée empiriquement puisque la valeur de T_{plat} dépend du matériau. Notons, enfin, que puisque $U = g/\lambda^3$ et que [124] pour $a - SiO_2$, on trouve $g \sim 10$ Knm^3, $T_B \simeq 15$mK correspond à une distance λ_B entre plus proches voisins sur "l'amas infini" de typiquement 10 nm.

3.3.2 "Retournement" des effets non linéaires

Nous présentons ici les résultats numériques obtenus en insérant l'équation 3.38 dans nos équations de Bloch, en plus du couplage usuel aux phonons. Nous donnons une explication du comportement simulé et ensuite comparons en détail les simulations aux expériences.

3.3.2.1 Résultats numériques.

La Figure 3.16 montre les résultats obtenus avec l'équation 3.38. On a limité les valeurs de $|\mathbf{p}.\mathbf{F}|$ à 10 mK du fait de notre hypothèse "de champs modérés" qui, rappelons le, est nécessaire pour l'écriture des équations de Bloch. Par rapport à la Figure 3.12, on observe sur la Figure 3.13 une tendance inversée : χ' augmente avec F à $T \leq T_{rev}$, ce qui est qualitativement compatible avec les mesures de la Figure 3.10.

En calculant séparément les composantes χ'_x et χ'_z, nous avons vérifié que ce "nouveau" comportement de la Figure 3.16 provenait de χ'_z. Ceci n'est pas surprenant puisque les arguments développés en section 3.2 pour expliquer la saturation quantique sont toujours

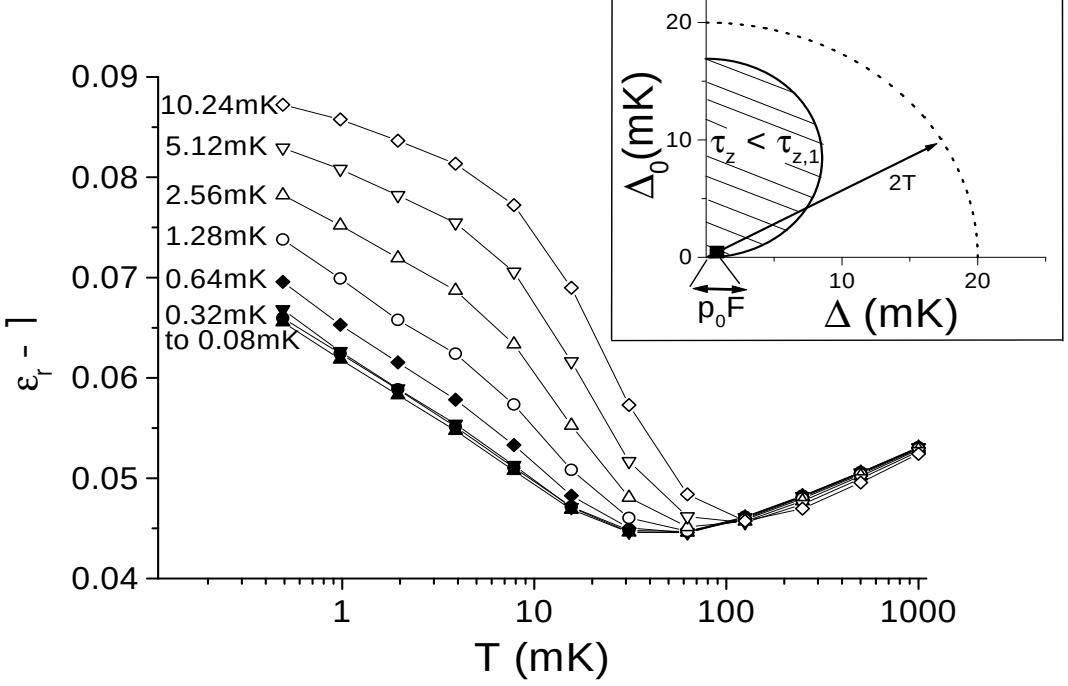

FIG. 3.16 – Figure principale : Simulation de la susceptibilité à 1 kHz de $a-SiO_2$ en fonction de T en incluant le temps de relaxation supplémentaire de Burin lié à la délocalisation des excitations. Les autres paramètres sont les mêmes que dans la partie principale de la Figure 3.12. Le sens des effets non linéaires s'est renversé par rapport à la Figure 3.12, redevenant compatible avec les expériences. Les simulations montrent un régime linéaire qui persiste jusqu'à des valeurs de pF bien plus fortes que sur la Figure 3.12, ces nouvelles valeurs étant bien en accord avec l'expérience. De même, l'évolution de T_{rev} avec F est proche de ce qui est mesuré. En revanche la pente $|\partial\chi'/\partial \ln T|$ au-dessous de T_{rev} est toujours presque deux fois trop forte, puisqu'elle est 1.7 fois plus forte qu'au-dessus de T_{rev} ; de plus, on ne constate pas un plateau de χ' aux plus basses T mais seulement un net ralentissement de la dépendance de χ' avec T. En encart : pour $pF \ll k_B T$, dans le plan (Δ, Δ_0), $< \bar{S}_z^1 >$ est non négligeable seulement dans le domaine $E < 2T$. Même pour $pF = 0.8$ mK, le sous domaine hachuré où $\tau_z < \tau_{z,1}$ est de taille non négligeable par rapport à ce domaine $E < 2T$: ceci produit une contribution supplémentaire dépendante de T à la susceptibilité diagonale χ'_z. Cette contribution compense la décroissance de χ'_x induite par F (la "saturation quantique" de la Figure 3.12) et donne une augmentation de χ' avec F à T fixée, enfin compatible avec les mesures.

valables ici, la nouvelle valeur de τ_1 ne faisant que diminuer un peu, sans le changer, l'effet de diminution de χ_x induit par l'augmentation de F. Voyons, brièvement, pourquoi χ'_z change de comportement.

3.3.2.1.1 Comportement au-dessus de T_{rev}. Signalons d'abord que $\tau_{1B}(T)$ est désormais la valeur maximale possible de τ_1, même pour les double-puits qui ont des valeurs extrêmement faibles de Δ_0 et donc une très forte valeur de $\tau_{1,ph.}$. Constatant que $\omega\tau_{1B}(T \leq T_B) \leq 1$, la coupure en $1/(\omega^2\tau_1^2)$ de $\bar{S}_z$ de l'équation 3.33 a désormais disparu, ce qui permet de négliger le terme $d\bar{S}_z/dt$ dans l'équation 3.25 et d'obtenir :

$$\bar{S}_z(t) \simeq \frac{\tau_z}{\tau_{z,1}} \left\langle \bar{S}_z(t) \right\rangle \tag{3.39}$$

où $\tau_z, \tau_{z,1}$ sont définis dans l'équation 3.30 page 76. Lorsque $F \to 0$, on a $\tau_z \simeq \tau_{z,1} \simeq \tau_1$, ce qui avec l'équation 3.39 amène $\bar{S}_z(t) \simeq \left\langle \bar{S}_z(t) \right\rangle$. En remarquant de plus que $\left\langle \bar{S}_z^1(E < 2T) \right\rangle \simeq \hbar pF/(4k_B T)$ tandis que $\left\langle \bar{S}_z^1(E > 2T) \right\rangle \simeq 0$, on obtient, avec la densité usuelle $\bar{P}/\Delta_0$, que $\chi'_z(T) \propto +\ln T$: ceci est bien la tendance au-dessus de T_{rev}.

3.3.2.1.2 Comportement au-dessous de T_{rev}. Pour expliquer le comportement au-dessous de T_{rev}, le point important est que, pour un grand domaine du plan (Δ, Δ_0) on trouve $\tau_z/\tau_{z,1} < 1$: du fait de la dépendance de ce facteur vis à vis de T, le comportement que nous venons juste de déduire pour $\chi'_z(T \geq T_{rev})$ va être changé. En effet, en exprimant la condition $\tau_z/\tau_{z,1} < 1$, on montre qu'elle équivaut à :

$$E \leq 2pF \left(\sqrt{\tau_{1B}(T)/\tau_2} \ \sin\phi + \cos\phi \right) \ \text{avec} \ \phi = \arctan \frac{\Delta_0}{\Delta} \tag{3.40}$$

ce qui se traduit par le domaine hachuré dans l'encart de la Figure 3.16 page 84. Même pour la plus faible valeur de F étudiée sur la Figure 3.16, ce domaine hachuré n'est pas négligeable par rapport au domaine dont provient χ'_z à savoir le domaine $E < 2T$. Soulignons que dans le domaine hachuré $\tau_z/\tau_{z,1} \simeq \tau_2\Omega_z^2/(\tau_1\Omega_x^2)$: *ce facteur reste donc dépendant de T même au-dessous de T_B*, c'est à dire même lorsque $\tau_{1B}(T)$ a atteint sa valeur minimale.

Avec $\left\langle \bar{S}_z^1(E < 2T) \right\rangle \simeq \hbar pF/(4k_BT)$, en intégrant l'équation 3.39 sur le domaine hachuré on obtient une contribution $\delta\chi'_z \propto F^{3/4}/T^{1/2}$. Ainsi :

- ce terme augmente lorsque T décroît ;
- $\delta\chi'_z$ augmente avec F, il peut donc compenser et retourner la tendance liée à la décroissance de χ'_x induite par F.

En négligeant la petite différence entre l'exposant de $\delta\chi'_x \propto -F^{1/2}$ pour la saturation quantique et celui de $\delta\chi'_z \propto +F^{3/4}$, on peut donc considérer le régime "linéaire" de la Figure 3.16 comme la compensation de ces deux effets opposés. A plus fortes valeurs de F, l'augmentation de $\delta\chi'_z$ l'emporte sur la décroissance de χ'_x induite par F, ce qui produit un effet global d'augmentation de χ' avec F. Signalons que $\chi'_z(F)$ devient indépendant de T lorsque $T \leq pF/k_B$: en effet, dans ce cas, $\left\langle \bar{S}_z^1(E < 2T) \right\rangle$ ne dépend plus de T. On constate alors une forte diminution de la dépendance en T de χ' (cf. les deux plus fortes valeurs de F sur la Figure 3.16 page 84.

Enfin, la susceptibilité hors diagonale $\chi'_x \propto \bar{S}_x^1$ se comporte principalement comme dans la section 3.2 : la "saturation quantique" est toujours présente, bien qu'un peu moins forte du fait de la diminution de τ_1. Soulignons que les variations avec T de χ'_x sont toujours plus faibles que celles de χ'_z, sauf dans le cas que l'on vient d'évoquer où $T < pF/k_B$. La faible dépendance en T de $\chi'(T < T_B; pF \geq 5 \text{ mK})$ est donc le seul cas où χ'_x domine le comportement en T de χ'.

Pour résumer, plus F est grand, plus le temps associé à la délocalisation des excitations est petit, ce qui renforce la réponse de relaxation à basse T lorsque F augmente. Pour F fixé, la remontée de $\chi'(T \leq T_{rev})$ est liée au fait que τ_2 reste dépendant de la température, y compris au-dessous de T_B. Tout ceci est donc parfaitement hors d'atteinte de l'hypothèse adiabatique dans laquelle, répétons le, τ_2 a disparu. Nous avons, grâce au mécanisme de Burin, retrouvé un comportement non linéaire conforme, au moins qualitativement, aux expériences. Cependant, c'est au prix d'une ré interprétation sévère de χ' puisque cette quantité est désormais presque toujours dominée par sa partie diagonale, laquelle se renforce à mesure que F augmente.

3.3.2.2 Comparaison aux expériences.

Sur la Figure 3.16 page 84, on constate que le régime pseudo-linéaire (où χ' est indépendant de F) persiste jusqu'à $pF \simeq 0.05k_BT$. Ceci concorde avec les expériences telles que celle de la Figure 3.10 page 68, et plus globalement, suivant les matériaux, on constate que le régime linéaire s'étend jusqu'à ce que $pF/(k_BT)$ atteigne $[0.02; 0.12]$ (voir [110]). Nous avons vérifié numériquement que l'extension de ce régime linéaire est très sensible à l'exposant β, défini par $\tau_{1,B}(T) \propto E^{-\beta}$:

- si $\beta < 1/2$, par exemple si $\beta = 0.1$, alors la "saturation quantique" domine et l'on se retrouve avec les mêmes problèmes qu'en section 3.2, Figures 3.12-3.13.
- si $\beta > 1/2$, par exemple $\beta = 1$, alors le comportement qualitatif est celui de la Figure 3.16 mais le régime linéaire ne s'étend que jusqu'à $pF/(k_BT) < 0.01$.

La valeur hautement non triviale $\beta = 1/2$ apparaît donc "irremplaçable" en ce qui concerne le régime linéaire. Il en va de même en ce qui concerne l'évolution de T_{rev} avec F. En notant F_{rev} le champ électrique auquel les non linéarités apparaissent à $T = T_{rev}$, on trouve que T_{rev} augmente d'un facteur 3 lorsque $F = 30 \times F_{rev}$, ce qui est en accord avec la Figure 3.10 page 68. En revanche, avec $\beta = 1$, T_{rev} augmente beaucoup trop vite avec F : $T_{rev}(F = 30 \times E_{rev}) = 30 \times T_{rev}(F = 0)$. Nous n'avons pas trouvé d'argument analytique au sujet de cette valeur clef constituée par $\beta = 1/2$.

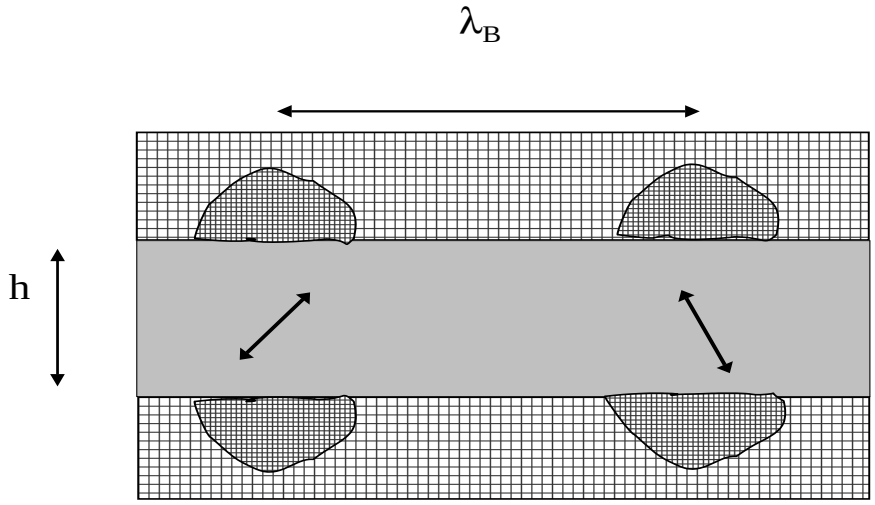

FIG. 3.17 – Diélectrique d'épaisseur h entouré par ses deux électrodes (zones grillagées). Deux dipôles dont les écarts entre niveaux sont égaux, à $e_{dip} = pF$ près, sont représentés. Lorsque l'un ou l'autre se retourne, le potentiel électrostatique ne change que dans un domaine d'extension h au voisinage, du fait de l'effet d'écran produit par les nombreux électrons libres des électrodes (zones grillagées denses) : la concentration des électrons intercepte et annule le champ, ce qui annule l'interaction dipolaire aux distances supérieures à h. On s'attend à ce que cet effet d'écran supprime peu ou prou la remontée de $\chi'(T \leq T_{rev})$, si le mécanisme de Burin est véritablement responsable du comportement au-dessous de T_{rev}, comme on l'a évoqué plus haut.

Le principal désaccord entre les simulations et les mesures est la valeur du rapport des deux pentes $\partial\chi'/\partial \ln T$ de part et d'autre de T_{rev}. Dans nos simulations ce rapport vaut -1.7 :1 au lieu de sa valeur proche de -1 :1 constatée dans toutes les expériences [110]. Par ailleurs nos simulations ne présentent pas de plateau pour χ' au dessous de $T_{plat} = 10$ mK, mais seulement une forte réduction de la dépendance en T de χ' lorsque F n'est pas trop petit. Il est probable qu'à ces températures si basses, l'importance des interactions soit si forte que le modèle des double-puits n'est plus théorisable par les équations de Bloch, fût-ce en y incluant les interactions par le biais de $\tau_{1,B}(T)$. On peut penser alors qu'une transition vers un authentique "verre de dipôles" a lieu [91],[96], et que dans cet état la susceptibilité χ' est gelée : par continuité, ceci pourrait affaiblir la pente au-dessous de T_{rev} jusqu'à la valeur expérimentale proche de -1 :1. Signalons pour finir que certains matériaux ne présentent pas le moindre signe d'une telle "transition vers un verre de dipôles", et ce même à des températures aussi basses que $T = 0.6$ mK.

Pour résumer, le modèle de délocalisation cohérente des excitations entre double-puits "suffisamment semblables" a permis de retrouver des non-linéarités calculées dont la tendance est compatible avec les mesures. L'accord n'est cependant pas complet, c'est pourquoi il est important de voir si l'on peut tester certains effets nouveaux, intrinsèquement liés à ce nouveau mécanisme de délocalisation cohérente dont on vient de prétendre qu'il est la principale cause du comportement de ϵ'_r au-dessous de T_{rev}.

3.3.3 Effets d'épaisseur.

Nous montrons ici tout d'abord que le mécanisme de Burin *et al.* permet de prédire un fort effet de l'épaisseur h du diélectrique sur le comportement de $\epsilon_r'(T \leq T_{Rev})$, effet qui n'est pas prédit par le modèle standard des double-puits quasi indépendants. Nous examinons ensuite des résultats expérimentaux à ce sujet.

3.3.3.1 Prédiction de l'effet.

Dans les échantillons dont l'épaisseur h est inférieure à la distance λ_B séparant deux plus proches voisins appartenant "à l'amas infini de Burin", le canal de relaxation $\tau_{1B}(T)$ doit être purement et simplement supprimé. En effet, comme l'illustre la Figure 3.17 page 86, lorsqu'un dipôle se retourne, la modification de potentiel électrostatique que produit ce retournement ne s'étend pas sur des distances supérieures à h. Ceci provient de l'effet d'écran des très nombreux électrons libres des deux électrodes, lesquels électrons interceptent et annulent tout champ incident, au point, pourrait-on dire, "d'enfermer chaque double-puits dans une cage de Faraday" de volume h^3.

Ainsi dans la situation $h \leq \lambda_B$, on peut prédire que l'on devrait supprimer la délocalisation cohérente des excitations, et donc se retrouver dans le cas des double-puits quasi indépendants de la section 3.2. Autrement dit, on attend que la remontée de la constante diélectrique pour $T \leq T_{rev}$ soit supprimée, puisque le mécanisme de Burin est jugé responsable du comportement au-dessous de T_{rev}. En revanche, à mesure que l'on augmente h, à F fixé, on s'attend à retrouver un comportement "usuel" tel que celui de la Figure 3.10.

Estimons l'ordre de grandeur de λ_B. Puisque tous les double-puits dont l'écart entre niveaux diffère de moins de $e_{dip} = pF$ appartiennent au même "amas infini de Burin", la distance entre plus proches voisins sur cet amas vaut donc :

$$\lambda_B = (\frac{1}{e_{dip}\bar{P}})^{1/3} \tag{3.41}$$

ce qui avec $F \simeq 10$ kV/m et la valeur usuelle de $\bar{P}$ produit $\lambda_B \simeq 60$ nm. Cette échelle de longueur est bien sûr beaucoup plus grande que la distance entre double-puits plus proches voisins. Ceci provient du fait que E est *a priori* réparti sur une vaste échelle d'énergie. Ainsi, deux double-puits voisins ont des E a priori très différents et il faut "passer en revue" un très grand nombre de tels voisins avant d'en trouver un qui satisfasse la condition d'avoir un écart entre niveaux identique à celui du double-puits de départ, à e_{dip} près.

3.3.3.2 Effets d'épaisseur mesurés.

Nous présentons ici les résultats obtenus sur une série d'échantillons d'épaisseurs h variables. Soulignons qu'on a gardé toutes les conditions de "synthèse plasma" rigoureusement identiques pour tous les échantillons, et que l'on a varié h en variant le temps de dépôt. L'effet de ce temps de dépôt sur la valeur de h a été vérifié de trois façons supplémentaires : *i)* nous avons pratiqué une interférométrie laser (visible) sur un substrat de Silicium voisin du substrat de verre, durant le plasma, afin de suivre en temps réel l'épaisseur déposée ; *ii)* le dépôt de verre sur Silicium a été ensuite bombardé par des deutérons de 910 keV, ce qui par spectrométrie de l'He_3 émis par la réaction nucléaire "deutéron+O_{16}" permet un contrôle de h ; *iii)* la valeur de la capacité diélectrique C donne une indication de h. Ainsi, la valeur de h a t elle été très bien connue.

Sur la Figure 3.18, $\delta C(T) = C(T) - C(0.5\text{ K})$ et $\delta C_{max} = C(0.5\text{ K}) - C_{min}$ où C_{min} est la valeur minimale de C constatée sur notre gamme expérimentale de température, à savoir [14 mK; 0.5 K] : cette Figure montre, pour un champ $F = 40$ kV/m, que lorsque h diminue au-dessous de 100 nm, la remontée de C pour $T \leq T_{rev}$ devient de plus en plus faible. T_{rev} diminue même au point qu'elle disparaît purement et simplement pour l'échantillon le plus fin.

La Figure 3.19 montre que cette tendance à la diminution de T_{rev} avec h est observée pour tous les champs $F \geq F_{lin}$. Rappelons que $F_{lin} \simeq 5$ kV/m est le champ en deçà duquel

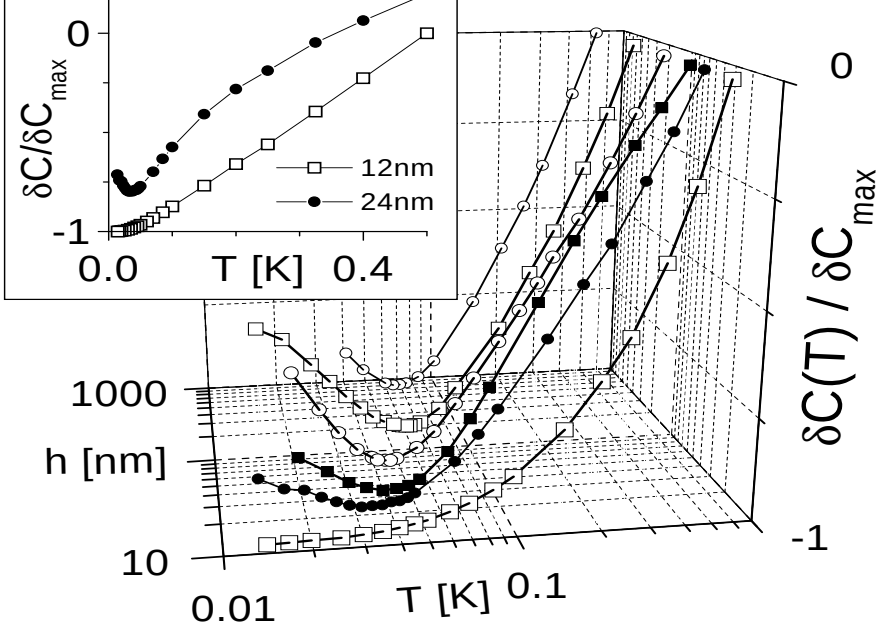

FIG. 3.18 – Pour $F = 40$ kV/m, effet de l'épaisseur h du diélectrique sur $C(T)$. A mesure que h diminue, la remontée de $C(T \leq T_{rev})$ s'affaiblit, jusqu'à ce que T_{rev} disparaisse pour l'échantillon le plus fin $h = 12$ nm. En encart : Même représentation mais avec l'échelle de T linéaire (on a décalé verticalement de $+0.2$ la courbe $h = 22$ nm pour plus de clarté) : l'échantillon $h = 12$ nm ne suit pas la loi usuelle $\delta C(T) \propto \pm \ln T$, mais suit une loi de puissance de T (voir texte).

$\chi'(T)$ ne dépend pas de F (en particulier T_{rev} est insensible à F) et au-delà duquel les non-linéarités apparaissent.

Enfin, la Figure 3.20 montre que lorsque F augmente on retrouve une valeur de T_{rev} mesurable, même dans l'échantillon le plus fin.

Ces comportements sont tout à fait ceux prédits par le modèle de délocalisation cohérente des excitations puisque l'on s'attend dans un tel modèle à ce que l'effet d'écran des électrodes affaiblisse la remontée de C au dessous de T_{rev} dès que h décroît au-dessous de 60 nm environ [17]. De plus lorsque F augmente, la décroissance de $\lambda_B \propto F^{-1/3}$ autorise à ce que l'on retrouve une valeur mesurable pour T_{rev} pour l'échantillon le plus fin, comme le montre la Figure 3.20.

Il est intéressant de montrer que les quatre autres explications simples que l'on pourrait évoquer pour expliquer ces comportements sont, en fait, contredits par les mesures :

•(1) La question de chauffage éventuel de l'échantillon par la dissipation de la puis-

[17] Signalons qu'une transition entre les deux états d'un double-puits change le champ de contraintes du matériau en déformant la "matrice" voisine du double-puits : ceci constitue ce que l'on appelle la déformation "élastique" et existe même si le double-puits n'est pas chargé (ne porte aucun dipôle élémentaire p). Rappelons que les deux types d'interactions (élastiques ou bien dipolaires) produisent des interactions entre double-puits qui ont la même dépendance fonctionnelle, soit $U \propto 1/\lambda^3$, les pré facteurs exprimant la différence de nature entre ces deux parties de l'interaction U.

Montrons maintenant que la partie élastique de U n'est pas responsable de l'effet d'épaisseur constaté sur les Figures 3.18-3.20. Etant donné une énergie w séparant deux écarts entre niveaux $|E - E'| \leq w$, la distance λ séparant typiquement les deux double-puits correspondants varie comme $\lambda \propto w^{-1/3}$ tant que $\lambda < h$, mais comme $\lambda \propto w^{-1/2}$ dès que $\lambda > h$. Ce "simple effet géométrique" augmente quelque peu λ et donc diminue U *aussi bien en ce qui concerne sa partie dipolaire qu'en ce qui concerne sa partie élastique.* Dans l'expérience de friction interne à quelques kHz de [132], aucun effet d'épaisseur n'a été détecté, y compris jusqu'à $h = 2$ nm : même en imaginant que dans cet échantillon la plupart des double-puits n'étaient pas chargés (auquel cas seule subsiste la partie élastique de U), dans cette expérience la partie élastique était bel et bien réduite par "l'effet géométrique" décrit ci dessus. Nous concluons donc soit que cet effet géométrique est trop faible pour changer le comportement vitreux, soit que la partie élastique de U est trop faible pour jouer un rôle physique (soit les deux). Il est donc certain que l'effet d'épaisseur des Figures 3.18-3.20 est lié à la suppression de la partie *dipolaire* de U et que cette suppression est due à *l'effet d'écran* des électrodes.

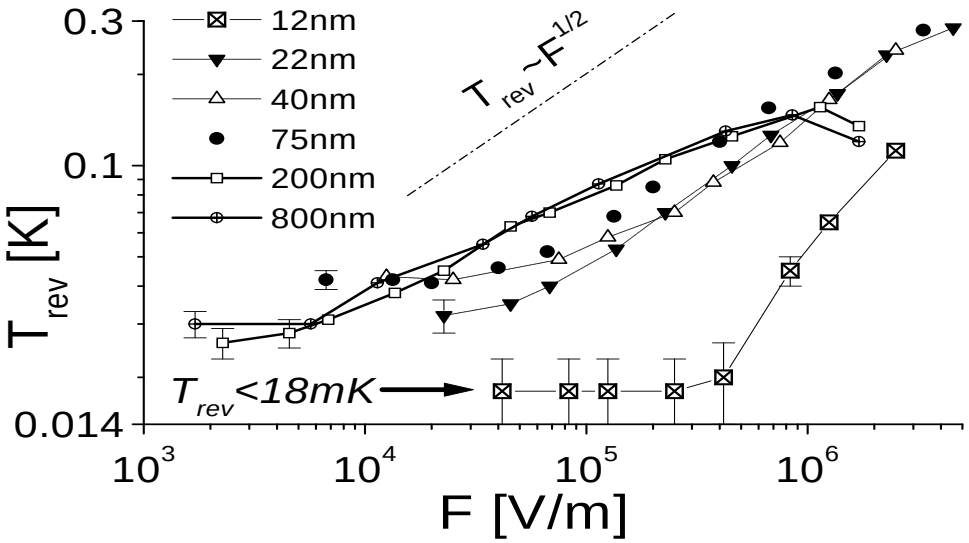

FIG. 3.19 – Effet de l'épaisseur h du diélectrique sur T_{rev}. Le point majeur est qu'en régime non linéaire ($F \geq 5-10$ kV/m), on observe que T_{rev} diminue avec h dès que $h < 100$ nm. Ceci n'est pas compatible avec modèle des double-puits quasi-indépendants, pas plus qu'avec un effet de chauffage, ni un effet de couche interfaciale, ni un effet de rugosité (voir texte). En revanche, nous avions prédit cet effet dans le cadre du modèle de Burin *et al.* où la remontée de C pour $T \leq T_{rev}$ est liée à la mise en place d'une délocalisation cohérente des excitations entre double-puits suffisamment voisins. Cette délocalisation est de plus en plus gênée par l'effet d'écran des électrodes lorsque h diminue : cet effet d'écran annule le champ électrique propageant les interactions entre double-puits responsables de la délocalisation des excitations.

sance électrique $\mathcal{P}$ liée à la mesure peut elle être tenue pour responsable des effets d'épaisseur observés ? La réponse est clairement non, puisque les mesures de la Figure 3.18 sont faites à F constant et que $\mathcal{P} \propto F^2 h$. Donc $\mathcal{P}$ *augmente avec* h, ce qui signifie qu'un effet de chauffage devrait être d'autant plus fort que l'échantillon est épais. Or les effets de chauffage augmentent lorsque T diminue, ce qui revient à étirer la courbe $C(T)$ d'une grandeur croissante à mesure que T baisse. Un effet de chauffage diminue donc T_{rev} par rapport à sa valeur nominale. En regroupant les deux idées précédentes on aboutit à la conclusion que les effets de chauffage devraient donner une décroissance de T_{rev} lorsque h *augmente*, ce qui est l'exact contraire du comportement des Figures 3.18-3.19. Pour être complet, signalons que les effets de chauffage ne jouent un rôle que pour les échantillons les plus épais *et les champs F les plus forts*. En effet dans la gamme $F \geq 1$ MV/m, T_{rev} diminue lorsque F augmente, pour les $h > 100$ nm. Pour vérifier que ceci provient d'un effet de chauffage, il faut estimer l'ordre de grandeur de la résistance thermique $\mathcal{R}$ entre un échantillon et le cryostat, ce que l'on peut faire de la façon suivante :

- on suppose que pour un échantillon parfaitement thermalisé la loi $T_{rev} \propto \sqrt{F}$ est valide pour $F \geq F_{lin} \simeq 5$ kV/m. Cette loi peut en effet se déduire de l'équation 3.38 page 83 donnant $\tau_{1,B}(T)$. En effet, le mécanisme de Burin ne commence à avoir un effet notable sur la réponse diagonale χ'_z que lorsque $\omega\tau_{1,B}(T) \leq 1$, ce qui amène à prédire que T_{rev} est donnée par $\omega\tau_{1,B}(T_{rev}) = 1$.
- on attribue alors au chauffage le faible écart entre cette loi pour T_{rev} et la valeur mesurée, ce qui permet de déduire $\mathcal{R}(T)$.
- on constate alors d'une part que $\mathcal{R} \propto T^{-3}$, ce qui est bien la dépendance attendue pour une résistance d'interface entre matériaux (dite de "Kapitza") ; et d'autre part que $\mathcal{R}(T = 100\text{ mK}) \simeq 50$ MK/W, ce qui est le bon ordre de grandeur pour rendre compte de la diminution de T_{rev} constatée vers 1 MV/m.

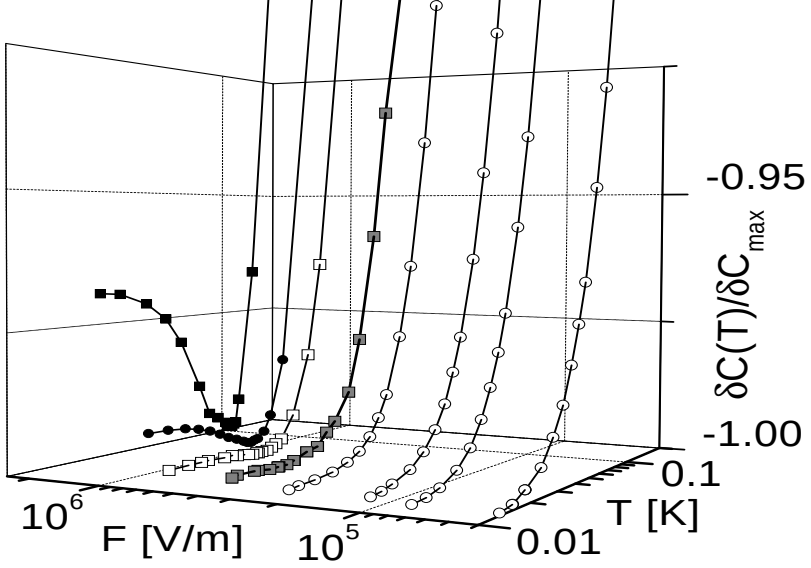

FIG. 3.20 – Comportement non linéaire pour l'échantillon $h = 12$ nm. Pour les 4 plus faibles champs F, $C(T)$ ne présente aucun minimum, y compris jusqu'à 14 mK. Pour les trois plus forts F, en revanche $T_{rev} \geq 35$ mK. La courbe en gris $F \simeq 0.4$ MV/m présente peut être un minimum pour $T_{rev} \simeq 19$ mK. Dans le cadre de la délocalisation des excitations induites par F, la distance entre voisins sur "l'amas infini de Burin" varie comme $\lambda_B \propto F^{-1/3}$, ce qui permet d'expliquer que l'on retrouve à forts F une situation $\lambda_B < h$ et donc un minimum pour C.

- on peut donc conclure que les effets de chauffage n'ont qu'une influence marginale sur le comportement des échantillons $h > 100$ nm et pas d'influence détectable sur les échantillons $h < 100$ nm.

•(2) Par ailleurs, on pourrait imaginer que le comportement des Figures 3.18-3.20 provient d'une variation de la composition du verre avec h, en dépit du fait que le mode de synthèse plasma a été gardé rigoureusement constant pour tous les échantillons. En effet, un mélange entre les espèces réactives du plasma et le Cuivre de la première électrodes est susceptible de créer une couche "interfaciale" d'épaisseur b_0 dont la composition chimique (et donc les propriétés vitreuses) serait très différente du reste du verre "normal" (d'épaisseur $h - b_0$). La question est donc de savoir si une telle couche "interfaciale" peut ou pas rendre compte des données des Figures 3.18-3.20. La réponse est clairement non, comme le montrent les deux arguments suivants :

- Supposons que les propriétés de la "couche interfaciale" soient données par l'échantillon $h = 12$ nm. Celles du verre "normal" sont données par les échantillons $h > 100$ nm (les deux échantillons les plus épais se conduisent de façon identique comme le montre la Figure 3.19). On teste alors le modèle de "la couche interfaciale" en extrayant des données les susceptibilités de chacun des deux diélectriques et en les ajoutant en série. Pour l'échantillon de $h = 22$ nm par exemple, on trouve que le comportement devrait être majoritairement piloté par la couche interfaciale de 12 nm et peu par le "verre normal" de 10 nm. En effet, pour l'échantillon de 12 nm, on n'a plus la dépendance usuelle $\delta C(T) \propto \pm \ln T$, mais au contraire $\delta C(T) \propto T^{\alpha}$ où $\alpha(T \geq 70 \text{ mK}) = 1.35 \pm 0.05$ et $\alpha(T \leq 70 \text{ mK}) = 2.7 \pm 0.05$. Quel que soit F fixé, cette loi de puissance en T devrait dominer de loin le comportement de l'échantillon $h = 22$ nm, ce qui n'est pas le cas puisque ce dernier montre le comportement usuel $\delta C(T) \propto \pm \ln T$, comportement constaté pour tous les échantillons $h \geq 22$ nm, ainsi que pour tous ceux étudiés précédemment dans la littérature [110].
- Même si l'échantillon $h = 12$ nm est écarté de l'analyse, pour cause de compor-

tellement trop "exotique", on peut reprendre l'analyse en supposant que la couche "interfaciale" est constituée de l'échantillon $h = 22$ nm qui, lui, a un comportement en $\pm \ln T$. On trouve alors que l'échantillon $h = 75$ nm devrait être quasi indistingable des échantillons $h \geq 200$ nm : par exemple, T_{rev} ne devrait, pour $h = 75$ nm, n'être inférieure que de 5 mK par rapport à la valeur que cette grandeur prend pour les échantillons épais $h \geq 200$ nm. Ceci est contredit par la Figure 3.19.

- (3) On pourrait songer à un effet de rugosité faisant que les échantillons fins auraient une épaisseur localement très fluctuante, et donc qu'ils subiraient des valeurs de F en parallèle très différentes, contrairement aux échantillons épais qui eux subiraient des variations relatives de h (et donc de F) très faibles. Il est facile de voir qu'un tel scénario, où l'on supposerait que T_{rev} ne dépend que de F et pas du tout de h, est contredit par les Figures 3.18-3.19. En effet, il mènerait à une augmentation de T_{rev} lorsque h diminue, puisque T_{rev} ne fait qu'augmenter avec F.
- (4) Enfin, rappelons que le modèle à deux niveaux quasi indépendants ne peut pas rendre compte d'effets de h dans la gamme h de quelques dizaines de nm. La raison principale en est que "tout se passe à l'échelle de chaque double-puits", et que cette échelle est sub-nanométrique. Pour être plus précis, le modèle standard inclut l'effet des interactions entre double-puits via le temps de relaxation hors diagonal τ_2. Mais ce temps est si long $\tau_2(T = 15 \text{ mK}) \simeq 20$ μs, que l'énergie quantique associée $\propto 1/\tau_2$ ne vaut que 1 μK, ce qui est tellement faible que cela n'a aucune influence sur $\chi'(T)$. D'ailleurs, même si influence il y avait, en diminuant h, on réduit les interactions et donc on allonge τ_2 ce qui, dans le modèle standard, devrait renforcer un peu χ'_x et rendre donc plus vigoureuse la remontée au-dessous de T_{rev}.

Nous concluons donc à la fois que le modèle de délocalisation cohérente des excitations entre double-puits "semblables" permet de rendre compte de toutes nos données, et en même temps que les quatre modèles concurrents (chauffage, couche "interfaciale", rugosité, modèle standard) ne le peuvent pas. Nous sommes donc fondés à conclure que l'effet d'épaisseur est une *très forte confirmation* du modèle de Burin *et al.*.

Conclusion

Au terme de ce chapitre 3 nous voudrions rappeler que le modèle standard des double-puits quasi indépendants a permis un énorme bond dans la compréhension des verres, et ce dès le début des années 70 [86], [85]. Grâce à ce modèle on est passé d'un ensemble épars de mesures de propriétés vitreuses [84] (manifestement "non cristallines") sur la chaleur spécifique, la conductivité thermique, les propriétés ultra-sonores ou diélectriques ... à une compréhension unifiée par un seul concept : celui d'espèces fluctuant entre deux positions métastables formant un double-puits de potentiel. La force de ce modèle réside en partie dans le fait que la moyenne sur toutes les valeurs possibles pour les deux énergies paramétrant chaque double-puits rend les prédictions insensibles aux innombrables paramètres supplémentaires que l'on serait en droit d'exiger pour résoudre le problème "ab-initio" : forme exacte des double-puits, nature de l'espèce qui tunnelle, influence des niveaux supérieurs, ... rien de tout ça n'est pertinent lorsque l'on utilise les deux outils puissants que sont la moyenne sur le désordre et les basses températures.

Les innombrables succès de ce modèle standard ont posé un *problème de droit*. En effet, en extrayant du modèle les paramètres tels que le moment dipolaire élémentaire et la densité d'écart entre niveaux $\bar{P}$, on s'aperçoit vite que l'interaction dipolaire entre deux double-puits voisins (distants de 1 nm) est de 10 K. Comment était il donc possible qu'un modèle de double-puits quasi-indépendants soit si efficace aux températures sub-Kelvin ? Il s'agissait donc de prendre le modèle standard "en flagrant délit d'insuffisance". L'exemple de la sensibilité au champ magnétique, développé en fin de section 3.1, montre que ceci n'est pas facile : l'essentiel du comportement observé peut, en effet, être expliqué par une modification somme toute marginale du modèle standard consistant à imaginer que le relief de potentiel des barrières tunnel est fortement désordonné.

Les sections 3.2 et 3.3 présentent deux types de "prise en flagrant délit" du modèle

standard : l'un numérique au sujet du comportement non linéaire, l'autre expérimental au sujet des effets d'épaisseur. On peut voir dans ces résultats :

- une confirmation des deux idées clefs exprimées dans le titre de ce document. A savoir, que le transport est si difficile dans les verres isolants que, d'une part, il est dominé par un ensemble restreint de fluctuations spatio-temporelles parmi toutes celles possibles dans l'échantillon ; et que, d'autre part, les phénomènes non linéaires sont un bon révélateur de ce sous-ensemble dominant le transport. C'est effectivement bel et bien le comportement non linéaire qui nous a permis de désigner le rôle majeur du "dipoliton", nom que nous proposons de donner aux quasi-particules provenant de la délocalisation, induite par le champ F, des excitations entre double-puits chargés suffisamment semblables. En retour, les réflexions sur le fait que le dipoliton soit lié aux interactions dipolaires a permis de prédire l'effet d'épaisseur ... que nous avons nous-mêmes observé.
- une confirmation du rôle de la *chance* dans la recherche des lois de la nature. Sans le travail de Burin, l'impossibilité à rendre compte des effets non linéaires par le modèle standard aurait fortement été suspecté d'être lié à des problèmes numériques. Si la distance entre voisins "sur l'amas infini de double-puits semblables" (où se constitue le dipoliton) avait été dix fois plus faible, nous n'aurions observé aucun effet d'épaisseur puisque notre synthèse ne permet pas de diminuer h au-dessous de 6 nm. Sans le travail de White et Pohl [132] et leur résultat *négatif* (absence d'effet de h sur la friction interne de verres nanométriques), nous n'aurions pas pu exclure, lors de l'interprétation de notre effet d'épaisseur (voir note de bas de page en section 3.3.3.2), le rôle des interactions élastiques ni celui de "l'effet géométrique simple" lié à la raréfaction de la quantité de double-puits disponibles à distance donnée, dans un échantillon fin.

Soulignons que dans notre esprit ces deux idées sont compatibles entre elles, et que nous avons la faiblesse de les tenir toutes deux pour vraies.

Conclusion générale.

Malgré la grande diversité des problèmes abordés dans les trois chapitres de ce document, nous avons à chaque fois retrouvé les deux idées que nous avions annoncées dès l'Introduction Générale.

En premier lieu, nous avons montré que le transport dans les verres était, dans tous les cas étudiés ici, dominé par ce que nous avons appelé "quelques fluctuations" : ainsi les fluctuations *temporelles* d'intensité des microfaisceaux produisent ils la "température de bruit" qui joue un rôle majeur dans l'importance des effets thermiques induits par l'irradiation sur l'échantillon. Pour le transport par sauts entre états localisés "d'Anderson", les "convulsions spatiales" du chemin portant l'essentiel de l'intensité jouent un rôle profond. Pour la constante diélectrique des verres, "la délocalisation dynamique des excitations entre double puits semblables couplés par interaction dipolaire", que nous appelons "dipolitons" (pour être brefs), indique que ce sont certaines "fluctuations spatio temporelles" qui jouent un rôle majeur.

En second lieu, l'étude systématique du régime non linéaire a, à chaque fois, fourni nombre de précisions sur la nature de ces "fluctuations dominantes" : non linéarités des effets thermiques avec l'intensité du microfaisceau incident ; non linéarités courant tension dans les isolants d'Anderson faisant apparaitre la transition de percolation ; apparition du "dipoliton" au travers de l'effet que l'épaisseur h du diélectrique produit sur le comportement non linéaire de la constante diélectrique des verres. Nous voyons là une seconde facette de l'idée selon laquelle le transport est "si difficile" dans les verres.

Nous terminerons en soulignant que, dans nos activités futures, nous continuerons, autant qu'il sera possible, à nous tenir *à l'intersection* de la théorie et de l'expérience. En effet, aucune des recherches que nous venons d'exposer n'aurait abouti si nous ne nous étions pas efforcés de nous tenir à ce carrefour.

Bibliographie

[1] par exemple : A.A.Maznev, J.Hartmann, M.Reichling, J. Appl. Phys., **78** (9), 5266, (1995) ; Y.Talmon, E.L.Thomas, Journal of Microscopy, **111**, 151, (1977) ; D.W.McColm, T.A.Cahill, Nucl.Instr. and Meth. B, **54**, 91, (1991) ; M.Cholewa, G.J.F Legge, Nucl.Instr. and Meth. B, **40-41**, 651, (1989) ; J.A.Cookson, Nucl.Instr. and Meth. B, **30**, 324, (1988) ; T.A. Cahill, D.W.McColm, B.H.Kusko, Nucl.Instr. and Meth. B, **14**, 38, (1986) ; W.B.Jackson, N.M.Amer, A.C.Boccara, D.Fournier, Applied Optics, **20** (8), 1333, (1981) ; L.C.Aamodt, J.C.Murphy, J. Appl. Phys., **52** (8), 4903, (1981).

[2] F.Seitz, J.S.Koeller, Solid-State Physics, F.Seitz, J.S.Koeller editors, *Academic Press, Inc., New York*, (1956), **2**, p. 351.

[3] M.Toulemonde, C.Dufour, Z.Wang, E.Paumier, Nucl. Instr. and Meth. B, **112**, 26, (1996) ; G.Szenes, Nucl. Instr. and Meth. B, **116**, 141, (1996) ; M.Toulemonde, J.M.Constantini, C.Dufour, A.Meftah, E.Paumier, F.Studer, Nucl. Instr. and Meth. B, **116**, 37, (1996).

[4] M. Toulemonde *et al*, Nucl. Instr. and Methods, B**166**, 903 (2000).

[5] G. Plumereau "Statistiques des échauffements sous microfaisceau d'ions légers : Mesures, théorie et effets physiques", thèse de doctorat de l'université Paris XI-Orsay, obtenue le 26 Oct 1998 avec les félicitations du Jury ; G. Plumereau *et al.*, Journ. Appl. Phys., **85**, 134 (1999) ; G. Plumereau *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **149**, 153 (1999) ; G. Plumereau *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **158**, 190 (1999) ; G. Plumerau *et al.* page 345 de [7] ; F. Ladieu *et al.*, Appl. Phys. Lett. , **81**, 957 (2002)..

[6] par exemple : Proceedings of the Fourth International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications Oct.10-14 (1994), F.Yang, J.Tang, J.Zhu eds., *North-Holland* ; P.Berger, G.Moulin, M.Viennot, Nucl. Instr. and Meth. B, **130**, 717, (1997) ; B.Berthier, E.Berthoumieux, J.P.Gallien, C.Moreau, A.C.Raoux, Nucl. Instr. and Meth. B, **130**, 224, (1997) ; G.Revel, M.Mosbah, N.Boscher-Barre, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **217** (2), 229, (1997) ; J.A.Cookson, Nucl.Instr. and Meth. B, **30**, 324, (1988) ; T.A. Cahill, D.W.McColm, B.H.Kusko, Nucl.Instr. and Meth. B, **14**, 38, (1986).

[7] C. Gobbé, J.-P. Caltagirone, *Thermique et matériaux*, (Elsevier editions Paris, 1999) (ISSN : 1258-164X), see p. 348.

[8] Ce-Wen Nan, R. Birringer, Phys. Rev. B, **57**, 8264, (1998) ; J. J. Salgon, O. Quemener, M. Belghali, J. Bransier, Rev. Gén. Therm., **37**, 284 (1998).

[9] L.Landau, E.Lifchitz, Physique Statistique I, *Editions Mir*, p.407 .

[10] par exemple : J.P.Bouchaud, A.Georges, Phys. Rep., **195**, 127, (1990) ; Appendice 1 de J.Phys. II France, **1**, 1465, (1991).

[11] J.Bertoin, Levy Processes, *Cambridge Tracts in Mathematics, Cambridge University Press*, (1996).

[12] F. Quéré *et al.*, Europhys.Lett., **56**, 138 (2001).

[13] C. Quoix *et al.*, Europhys. JAP, **5**, 163 (1999).

[14] S.C. Jones *et al.*, Opt.Eng. **28**, 1039 (1989).

[15] D. Ashkenasi *et al.* Appl. Surf. Sci.**120,** 65 (1997).

[16] C. Cornaggia, Molecules and Clusters in Intense laser Fields, Cambridge univ press, J. Posthumus ed. (2001)

[17] H. Strehlow, Appl. Phys. A, **72**, 45, (2001).

[18] R. F. Bunshah *et al.*, *Deposition technology for films and coatings*, (Noyes Publications, Park Ridge, New Jersey, 1989).

[19] P.W. Anderson, Phys. Rev. **109**, 1492 (1958).

[20] N.F. Mott, Phil.Mag. **19**, 835 (1969) ; N.F.Mott, J.Non-Crystal. Solids, **1**, 1, (1968).

[21] B.I. Shklovskii, A.L. Efros, *Electronic properties of doped Semiconductors*, Springer series in Solid-State Science Vol. 45 (Springer, New-York, 1984)

[22] V.Ambegaokar, B.I.Halperin, J.S.Langer, Phys.Rev.B, **4**, 2612, (1971) ; M.Pollak, J. Non-Cryst. Solids, **11**, 1, (1972) ; B.I.Shklovskii, A.L.Efros, Zh. Eksp. Teor. Fiz., **60**, 867, (1971) [Sov. Phys. JETP, **33**, 468, (1971)].

[23] M.Kardar, G.Parisi, Y.C.Zhang, Phys.Rev.Lett., **56**, 889, (1986) ; A.Maritan, J.R.Banavar, Phys.Rev.Lett., **72**, 1451 (1994) ; voir aussi A.A.Middleton, N.S.Wingreen, Phys.Rev.Lett., **71**, 3198, (1993), et les références contenues.

[24] A.S.Skal, B.I.Shklovskii, Fiz. Tekh. Poluprovodn., **8**, 1586, (1974) [Sov. Phys. Semicond., **8**, 1029, (1975)] ; H.E.Stanley, J.Phys., **A 10**, C221, (1977) ; A.Coniglio, Phys.Rev.Lett., **46**, 250, (1981).

[25] B.I. Shklovskii, A.L. Efros, Usp. Fiz. Nauk. **117**, 401 (1975).

[26] S. Feng, J.L. Pichard, Phys. Rev. Lett. **67**, 753 (1991).

[27] M. Sanquer, R. Tourbot, B. Boucher, Europhys. Lett. **7**, 635 (1988).

[28] J.L. Pichard, M. Sanquer, K. Slevin, P. Debray, Phys. Rev. Lett. **65**, 1812 (1990).

[29] P. Hernandez, M. Sanquer, Phys. Rev. Lett. **68**, 1402 (1992) ; P. Hernandez (1993) Ph.D. Thesis, Paris XI-Orsay.

[30] P. Hernandez, F. Ladieu, M. Sanquer, D. Mailly, Physica B **194-196**, 1141 (1994).

[31] M. Specht, L.P. Levy, F. Ladieu, M. Sanquer, Phys. Rev. Lett.**75**, 3902 (1995).

[32] F. Ladieu, M. Sanquer, J.P. Bouchaud, Phys. Rev. B **53**, No 3, 973 (1996).

[33] B.I. Shklovskii, Sov. Phys. Semicond. **6**, 1964 (1973).

[34] N. Apsley, H.P. Hughes, Phil. Mag. **30**, 963 (1974) ; N. Apsley, H.P. Hughes, Phil. Mag. **31**, 1327 (1975).

[35] R.M. Hill, Phil. Mag. **24**, 1307 (1971).

[36] M. Pollak, I. Riess, J. Phys. C **9**, 2339 (1976).

[37] B. I. Shklovskii, Sov. Phys. Semicond. **10**, 855 (1976).

[38] R. Rentzsch, I. S. Shlimak, H. Berger, Phys. Stat. Sol. (a) **54**, 487 (1979).

[39] M. Van Der Meer, R. Schuchardt, R. Keiper, Phys. Stat. Sol. B **110**, 571 (1982).

[40] J. Talamantes, M. Pollak, R. Baron, J. Non Cryst. Sol.**97-98**, 555 (1987).

[41] E. I. Levin, B. I. Shklovskii, Sov. Phys. Semicond. **18**, 534 (1984).

[42] H. Böttger, V.V. Bryksin, Phil. Mag. B **42**, No 2, 297 (1980) ; H. Böttger, V.V. Bryksin, Phys. Stat. Sol. B **96**, 219 (1979).

[43] H. Böttger, V.V. Bryksin, Phys. Stat. Sol. B **113**, 9 (1982).

[44] H. Böttger, D. Wegener, Phys. Stat. Sol. B **121**, 413 (1984) ; H. Böttger, V.V. Bryksin in *Hopping Conduction in Solids*, pp. 236-259, VCH Publishers (USA), ISBN 0-89573-481-8 ; H. Böttger, D. Wegener, in *Hopping and Related Phenomena*, p. 317, H. Fritzsche, M. Pollak eds., World Scientific Publishing Company, (1990).

[45] H. Böttger, P. Szyler, D. Wegener, Phys. Stat. Sol. B **128**, K179 (1985).

[46] H. Böttger, P. Szyler, D. Wegener, Phys. Stat. Sol. B**133**, K143 (1986).

[47] M. Morgan, P. A. Walley, Phil. Mag. **27**, 1151 (1971).

[48] M. Telnic, L. Vescan, N. Croitoru, C. Popescu, Phys. Stat. Sol. (b) **59**, 699 (1973).

[49] J.M. Marshall, G.R. Miller, Phil. Mag. **27**, 1151 (1972).

[50] P.J. Elliott, A.D. Yoffe, E.A. Davis, American Institute of Physics Conf.Proc. **20**, 311 (1974).

[51] K. Nair, S.S. Mitra, J. Non-Crystalline Solids **24**, 1 (1977).

[52] A. N. Aleshin, I. S. Shlimak, Sov. Phys. Semicond. **21**, 289 (1987).

[53] A. V. Dvurechenskii, V. A. Dravin, A. I. Yakimov, JETP Lett. **48**, 156 (1988).

[54] C. E. Nebel, R. A. Street, N. M. Johnson, C. C. Tsai, Phys. Rev. B **46**, 6803 (1992).

[55] B. Popescu, T. Wright, C. J. Adkins, S. Iovan, Phys. Stat. Sol. B **205**, 77 (1998).

[56] D. Redfield, Adv. Phys. **24**, 463 (1975).

[57] A.G. Zabrodskii, I.S. Shlimak, Sov. Phys. Semicond. **11**, 430 (1980).

[58] T. F. Rosenbaum, K. Andres, G. A. Thomas, Solid State Comm. **35**, 663 (1980).

[59] A. N. Ionov, M. N. Matveev, I. S. Shlimak, R. Rentch, JETP Lett. **45**, 311 (1987).

[60] D. I. Aladashvili, Z. A. Adamiya, K. G. Lavdovskii, E. I. Levin, B. I. Shklovskii, in *Hopping and Related Phenomena*, H. Fritzsche, M. Pollak eds., (1990) pp. 283-297, World Scientific Publishing Company, (1990).

[61] T. W. Kenny, P. L. Richards, I. S. Park, E. E. Haller, J. W. Beeman, Phys. Rev. **39**, 8476 (1989).

[62] Chen Gang, H. D. Koppen, R. W. van der Heijden, A. T. A. M. de Waele, H. M. Gijsman, Solid State Comm. **72**, 173 (1989).

[63] I. N. Timchenko, V. A. Kasiyan, D. D. Nedeoglo, A. V. Simashkevich, Sov. Phys. Semicond. **23**, 148 (1989).

[64] F. Tremblay, M. Pepper, R. Newbury, D. Ritchie, D. C. Peacock, J. E. F. Frost, G. A. C. Jones, Phys. Rev. B **40**, 3387 (1989).

[65] N. Wang, F.C. Wellstood, B. Sadoulet, E. E. Haller, J. Beeman, Phys. Rev. B **41**, 3761 (1990).

[66] S. M. Grannan, A. E. Lange, E. E. Haller, J. W. Beeman, Phys. Rev. B **45**, 4516 (1992).

[67] R. W. Van der Heijden, G. Chen, A. T. A. M. de Waele, H. M. Gijsman, F. P. B. Tielen, Phil. Mag. B **65**, 849 (1992).

[68] P. Stephanyi, C. C. Zammit, P. Fozooni, M. J. Lea, G. Ensell, J. Phys. : Condens. Matter **9**, 881 (1997).

[69] A. Alessandrello *et al.*, in *Proceedings of the 5th Int. Workshop on Low TemperatureDetectors*, S. E. Labov, B. A. Young eds. (Berkeley, July 29 - August 3 1993) ; J. Low Temperature Physics **93** (3/4) (1993) pp. 207-212 et pp. 337-342 ; M. Frank *et al. ibid.*, pp. 213-218 ; E. Aubourg *et al. ibid.*, pp. 289-294 ; L. Dumoulin *et al. ibid.*, pp. 301-306 ; N. Perrin *et al. ibid.*, pp. 313-317 ; J. Soudee *et al. ibid.*, pp. 319-324 ; K. Djotni *et al. ibid.*, pp. 325-329 ; X. X. Wang *et al. ibid.*, pp. 349-354.

[70] A. Alessandrello *et al.*, in *Proceedings of the 6th Int. Workshop on Low Temperature Detectors*, H.R. Ott, A. Zehnder eds. (Beatenberg, Switzerland 28 August - 1 September 1995), Nucl. Inst. and Meth. **A** 370 (1995), pp. 244 - 246.

[71] A. Alessandrello *et al.*, in *Proceedings of the 7th Int. Workshop on Low TemperatureDetectors*, edited by S. Cooper (Munich, 27 July - 2 August 1997) pp. 138-141 ; S. M. Grannan, P. L. Richards *ibid.*, pp. 160-161.

[72] D. Yvon, L. Bergé, L. Dumoulin, P. De Marcillac, S. Marnieros, P. Pari, G. Chardin, Nucl. Inst. and Meth. A **370**, 201 (1996).

[73] L. Dumoulin, L. Bergé, S. Marnieros, J. Lesueur, Nucl. Inst. and Meth. A **370**, 211 (1996).

[74] N. Perrin, J. Appl. Phys. **82**, 3341 (1997).

[75] E.T. Schwartz, R.O. Pohl, Rev. Mod. Phys. **61**, 605 (1989).

[76] J. R. Cooper, W. P. Beyermann, S. W. Cheong, G. Gruner, Phys. Rev. B **36**, 7748 (1987).

[77] S. Marnieros, L. Bergé, A. Juillard, L. Dumoulin, Phys. Rev. Lett., **84**, 2649 (2000).

[78] A. Prez-Garrido, M. Ortuno, E. Cuevas, J. Ruiz, M. Pollak, Phys. Rev. B **55**, R8630 (1997) ; J. Talamantes, A. Moebius, Phys. Stat. Sol. B **205**, 45 (1998).

[79] F. Ladieu, D. L'Hôte, R. Tourbot, Phys. Rev. B, **61**, 8108, (2000).

[80] Y. Imry, Y. Gefen, D.J. Bergman, Phys. Rev. B **26**, 3436 (1982).

[81] E. Abrahams, P.A. Lee, Phys. Rev. B **33**, 683, (1986).

[82] S.M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, (Wiley, New York, 1981), p. 403.

[83] D. Boutard-Gabillet, P. Aranda, F. Ladieu, P. Pari, M. Rotter, J. Non-Cryst. Solids **245**, 27 (1999).

[84] R. C. Zeller, R. O. Pohl, Phys. Rev. B **4**, 2029 (1971).

[85] W. A. Philipps, Rep. Prog. Phys **50**, 1657 (1987) ; *Amorphous Solids*, W. A. Philipps editor (Springer, Berlin, 1981).

[86] P. W. Anderson, B. I. Halperin, C. M. Varma, Phil. Mag. **25**, 1 (1972) ; W.A. Phillips, J. Low Temp. Phys. **7**, 351 (1972).

[87] A. J. Lock, T. M. Creemers, S. Völker, J. Chem. Phys. **110**, 7467 (1999).

[88] M. P. Solf, M. W. Klein, Phys. Rev. B **49**, 12703 (1994).

[89] G. Frossati, J le G. Gilchrist, W. Meyer, J. Phys. C : Solid State Phys., **10**, L515 (1977).

[90] A. L. Burin, J. Low Temp. Phys., **100**, 309 (1995).

[91] C. Enss, S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. , **79**, 2831 (1997).

[92] E. Thompson, G. Lawes, J. M. Parpia, R. O. Pohl, Phys. Rev. Lett. , **84**, 4601 (2000).

[93] S. N. Coppersmith, Phys. Rev. Lett. **67**, 2315 (1991).

[94] C. C. Yu, A. J. Leggett, Comments Condens. Matter Phys. **14**, 231 (1988).

[95] A. L. Burin, Y. Kagan, JETP **82**, 159 (1996) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. **109**, 299 (1996)].

[96] A. Wurger, Physica B **263**, 253 (1999).

[97] A. Wurger, *From coherent tunneling to relaxation, dissipative quantum dynamics of interacting defects* (Springer, Berlin, 1997).

[98] A. L. Burin, Yu. Kagan, J.E.T.P. , **79**, 347 (1994).

[99] A. L. Burin, Y. Kagan, I. Y. Polishchuk, Phys. Rev. Lett., **86**, 5616 (2001).

[100] P. Neu, D. R. Reichman, R. J. Silbey, Phys. Rev. B, **56**, 5250 (1997).

[101] J. Le Cochec, F. Ladieu, P. Pari, Phys. Rev. B. **66**, 64203 (2002), voir la référence CondMat citée dans l'article pour avoir accès aux appendices.

[102] P. Strehlow, C. Enss, S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **80**, 5361 (1998).

[103] P. Strehlow *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 1938 (2000).

[104] K-H Ahn, P. Fulde, Phys. Rev. B **62**, R4813 (2000).

[105] P. J. Reijntjes, W. van Rijswijk, G. A. Vermeulen, G. Frossati, Rev. Sci. Instrum. **57**, 141 (1986) ; S. A. Wiegers, R. Jochemsen, C. C. Kranenburg, G. Frossati, *ibid.* **58**, 2274 (1987).

[106] E. Medina, M. Kardar, Phys. Rev. B, **46**, 9984, (1992).

[107] S. Kettemann, P. Fulde, P. Strehlow, Phys. Rev. Lett. **83**, 4325 (1999).

[108] A. Wurger, Phys. Rev. Lett. **8**8, 075502 (2002).

[109] G. Frossati, R. Maynard, R. Rammal, D. Thoulouze, J. Phys. (Paris) , **38**, L153 (1977).

[110] S. Rogge, D. Natelson, B. Tigner, D. D. Osheroff, Phys. Rev. B , **55**, 11256 (1997).

[111] J. Le Cochec, F. Ladieu, cond-mat/0206230 v2, 24 Sept 2002 , soumis à Eur. Phys. Journ. B.

[112] J. T. Stockburger, M. Grifoni, M. Sassetti, Phys. Rev. B, **51**, 2835 (1995).

[113] G. Baier, M. v. Schickfus, Phys. Rev. B **38**, 9952 (1988).

[114] L. Piche, J. Phys. (Paris), **39**, (C6)1545 (1978).

[115] L. Bernard, L. Piche, G. Schumacher, J. Joffrin, J. Low Temp. Phys. , **45**, 411 (1979).

[116] J. E. Graebner, B. Golding, Phys. Rev. B, **19**, 964 (1979).

[117] A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford University Press, London, 1961).

[118] J. Joffrin, A. Levelut, J. Phys. (Paris) , **36**, 811 (1976).

[119] J. L. Black, B. I. Halperin, Phys. Rev. B, **16**, 2879 (1977).

[120] Y.-K. Yu, Phys. Rev. Lett., **85**, 4199 (2000).

[121] A. L. Burin, Y. Kagan, L. A. Maksimov, I. Y. Polishchuk, Phys. Rev. Lett., **80**, 2945 (1998).

[122] B. D. Laikhtman, Phys. Rev. B, **31**, 490 (1985).

[123] Yu. M. Galperin, V. L. Gurevich, D. A. Parshin, Phys. Rev. B, **37**, 10339 (1988).

[124] H. M. Carruzzo, E. R. Grannan, C. C. Yu, Phys. Rev. B **50**, 6685 (1994).

[125] R. G. DeVoe, R. G. Brewer, Phys. Rev. Lett., **50**, 1269 (1983).

[126] E. Geva, R. Kosloff, J. Chem. Phys. , **102**, 8541 (1995).

[127] K. Wòdkiewicz, J. H. Eberly, Phys. Rev. A, **32**, 992 (1985).

[128] M. Devaud, J.-Y. Prieur, Europhys. Lett., **6**, 523 (1988).

[129] P. L. Scott, C. D. Jeffries, Phys. Rev. , **127**, 32 (1962).

[130] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions* (John Wiley and Sons, New York, 1992).

[131] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg, W. Zwerger, Rev. Mod. Phys., **59**, 1 (1987).

[132] B. E. White, R. O. Pohl, Physica B **219-220**, 267 (1996).