



# Supraconducteurs mésoscopiques étudiés par microscopie tunnel à très basse température

Norbert Moussy

## ► To cite this version:

Norbert Moussy. Supraconducteurs mésoscopiques étudiés par microscopie tunnel à très basse température. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2000. Français. NNT: . tel-00111222

**HAL Id: tel-00111222**

**<https://theses.hal.science/tel-00111222>**

Submitted on 4 Nov 2006

**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 JOSEPH FOURIER - GRENOBLE 1  
SCIENCES ET GÉOGRAPHIE

# THÈSE

pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER  
en physique

Présentée et soutenue publiquement par :

Norbert MOUSSY

## Supraconducteurs mésoscopiques étudiés par microscopie tunnel à très basse température

Soutenue le 23 octobre 2000

Composition du Jury :

J. CHEVRIER, Président  
D. ESTÈVE, Rapporteur  
D. RODITCHEV, Rapporteur  
V. CHANDRASEKHAR  
B. PANNETIER  
H. COURTOIS

Thèse préparée au sein du  
**Centre de Recherches sur les Très Basses Températures,**  
laboratoire associé à l'Université Joseph Fourier  
CRTBT-CNRS, 25 av. des Martyrs, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9  
[http : \www-crtbt.polycnrs-gre.fr](http://www-crtbt.polycnrs-gre.fr)



# Remerciements

J'ai eu le très grand plaisir d'effectuer ce travail au laboratoire de recherche sur les très Basses Températures à Grenoble. Je remercie Bernard Hébral et tous les chercheurs du laboratoire de m'avoir accueilli parmi eux.

Je tiens à exprimer ici toute ma gratitude envers Hervé Courtois qui a encadré ces recherches avec beaucoup d'attentions. Merci pour sa présence, sa disponibilité. La démarche scientifique et la recherche de la précision dont il fait preuve à chacune de nos discussions sont pour moi une très grande source d'enrichissement.

Merci à Bernard Pannetier de m'avoir accueilli et pour avoir supervisé le développement du microscope et des expériences.

Merci à tous les membres du jury pour leur lecture attentive et l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

Ces trois années de thèse ont été pour moi extrêmement riches, tant par la diversité des techniques utilisées que par le côté humain de ce projet d'équipe. Le développement du microscope tunnel à très basse température a fait appel à une somme de compétences et de savoir faire considérable. Ce succès est le fruit de l'expertise et des qualités de dialogue des différents services du CRTBT :

Tout d'abord, je veux remercier les différentes personnes des services de mécanique et de cryogénie qui ont réalisé les nombreuses pièces du microscope et sont restées disponibles à chaque évolution du projet. Merci à chacun des électroniciens dont les interventions furent rapides et éclairées.

Ensuite, un merci particulier à Thierry Crozes et Thierry Fournier qui m'ont initié aux techniques de salle blanche. Leur présence constante et leur engagement face aux difficultés rencontrées pour la fabrication des échantillons ont constitué un appui essentiel.

Je voudrais aussi remercier toutes les personnes qui de près ou de loin m'ont conseillé et m'ont aiguillé pour les choix techniques et l'analyse théorique. Un grand merci à Klaus Hasselbach et à Cécile Veauvy avec lesquels j'ai partagé cette aventure de la microscopie de champ proche naissante au laboratoire. Un merci général à toute l'équipe mésoscopie, Benedetta, Emmanuelle, Franck, Laurent, Monique, Olivier, Pascal, Wilfried, pour leur ouverture et leur bonne humeur qui, au jour le jour, m'ont donné le plaisir et la force de mener ce travail à bien.

Je remercie enfin ma femme Élise pour son soutien et ma fille Léa qui a l'âge de cette

thèse et restera certainement influencée par ces trois années.

# Table des matières

|          |                                                               |           |
|----------|---------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>1</b> | <b>Introduction</b>                                           | <b>5</b>  |
| 1.1      | Microscopie tunnel . . . . .                                  | 5         |
| 1.1.1    | Principes du STM . . . . .                                    | 5         |
| 1.1.2    | Courant tunnel et densité d'états locale (LDOS) . . . . .     | 7         |
| 1.1.3    | Systèmes STM à très basse température . . . . .               | 9         |
| 1.2      | Supraconductivité et effets de proximité . . . . .            | 11        |
| 1.2.1    | Densité d'états supraconductrice et bande interdite . . . . . | 12        |
| 1.2.2    | Longueur de cohérence et métaux diffusifs . . . . .           | 13        |
| 1.2.3    | Portée des effets de proximité . . . . .                      | 14        |
| 1.2.4    | Réflexion d'Andreev . . . . .                                 | 15        |
| 1.3      | Exemples d'effets de proximité . . . . .                      | 18        |
| 1.3.1    | Propriétés à l'équilibre . . . . .                            | 18        |
| 1.3.2    | Propriétés hors équilibre . . . . .                           | 19        |
| 1.4      | Mesures de densités d'états . . . . .                         | 20        |
| 1.4.1    | Mesures par jonctions planaires solides . . . . .             | 20        |
| 1.4.2    | Mesures par STM . . . . .                                     | 22        |
| <b>2</b> | <b>Microscope tunnel à très basse température</b>             | <b>27</b> |
| 2.1      | Cryogénie . . . . .                                           | 28        |
| 2.1.1    | Le Sionludi . . . . .                                         | 28        |

|          |                                                           |           |
|----------|-----------------------------------------------------------|-----------|
| 2.1.2    | Thermalisation des amenées de tension . . . . .           | 31        |
| 2.1.3    | Calorimètre, vanne à froid et passages étanches . . . . . | 32        |
| 2.2      | Description du STM . . . . .                              | 33        |
| 2.2.1    | Déplacements piézo-électriques . . . . .                  | 34        |
| 2.2.2    | Montage de la tête tunnel . . . . .                       | 37        |
| 2.2.3    | Isolation du circuit bas niveau . . . . .                 | 38        |
| 2.2.4    | Les déplacements inertiels . . . . .                      | 38        |
| 2.2.5    | Suspension et amortissement du bruit mécanique . . . . .  | 43        |
| 2.2.6    | Fixation de la pointe . . . . .                           | 45        |
| 2.2.7    | Thermalisation du microscope . . . . .                    | 45        |
| <b>3</b> | <b>Électronique et sensibilité de mesure</b>              | <b>49</b> |
| 3.1      | Aspects généraux du dispositif électronique . . . . .     | 49        |
| 3.2      | Électronique d'asservissement tunnel . . . . .            | 51        |
| 3.2.1    | Polarisation de la pointe . . . . .                       | 51        |
| 3.2.2    | Préamplificateur tunnel . . . . .                         | 51        |
| 3.2.3    | Amplificateurs haute tension . . . . .                    | 53        |
| 3.2.4    | Régulateur de courant tunnel . . . . .                    | 53        |
| 3.3      | Informatique de contrôle . . . . .                        | 56        |
| 3.3.1    | Interface avec l'ordinateur . . . . .                     | 56        |
| 3.3.2    | Carte d'acquisition synchrone 3D . . . . .                | 57        |
| 3.3.3    | Logiciel . . . . .                                        | 57        |
| 3.4      | Mesures topographiques . . . . .                          | 59        |
| 3.4.1    | Imagerie . . . . .                                        | 59        |
| 3.4.2    | Topographie d'une ligne . . . . .                         | 61        |
| 3.5      | Mesures spectroscopiques . . . . .                        | 62        |

|          |                                                               |           |
|----------|---------------------------------------------------------------|-----------|
| 3.5.1    | Sensibilité au bruit mécanique . . . . .                      | 62        |
| 3.5.2    | Acquisition spectroscopique . . . . .                         | 64        |
| 3.5.3    | Résolution des spectroscopies . . . . .                       | 64        |
| 3.5.4    | Artefacts de mesure . . . . .                                 | 68        |
| <b>4</b> | <b>Fabrication des pointes et des échantillons</b>            | <b>73</b> |
| 4.1      | Fabrication des pointes . . . . .                             | 73        |
| 4.2      | Qualité des échantillons . . . . .                            | 76        |
| 4.2.1    | État de surface . . . . .                                     | 76        |
| 4.2.2    | Échantillons à motifs répétés . . . . .                       | 78        |
| 4.2.3    | Dépôt sous ultravide et qualité des métaux déposés . . . . .  | 78        |
| 4.2.4    | Qualité de l'interface NS . . . . .                           | 79        |
| 4.3      | Types d'échantillons . . . . .                                | 80        |
| 4.3.1    | Échantillons lithographiés . . . . .                          | 80        |
| 4.3.2    | Dépôt sous angle . . . . .                                    | 82        |
| 4.3.3    | Dépôt au travers d'un masque en silicium . . . . .            | 83        |
| 4.4      | Conclusion . . . . .                                          | 88        |
| <b>5</b> | <b>Calculs quasiclassiques de densités d'états locales</b>    | <b>89</b> |
| 5.1      | Introduction aux équations d'Usadel . . . . .                 | 89        |
| 5.1.1    | Fonctions de Green . . . . .                                  | 89        |
| 5.1.2    | Équations d'Usadel . . . . .                                  | 91        |
| 5.1.3    | Densité d'états à une particule . . . . .                     | 93        |
| 5.1.4    | Densité de paires et largeur du gap supraconducteur . . . . . | 93        |
| 5.2      | Jonction NS . . . . .                                         | 94        |
| 5.2.1    | Conditions de raccordement à l'interface . . . . .            | 95        |
| 5.2.2    | Limites des tailles infinies . . . . .                        | 95        |



|          |                                                            |            |
|----------|------------------------------------------------------------|------------|
| 5.2.3    | Métaux de dimension finie . . . . .                        | 98         |
| 5.2.4    | Barrière résistive . . . . .                               | 100        |
| <b>6</b> | <b>Structures NS mesurées par STM</b>                      | <b>103</b> |
| 6.1      | Échantillons lithographiés . . . . .                       | 104        |
| 6.2      | Effets d'une gravure argon sur l'interface Nb/Au . . . . . | 107        |
| 6.3      | Échantillons évaporés sous angle . . . . .                 | 110        |
| 6.4      | Échantillons évaporés avec un masque mécanique . . . . .   | 113        |
| 6.4.1    | Interprétation des mesures . . . . .                       | 115        |
| 6.4.2    | Modèle bicouche . . . . .                                  | 118        |
| 6.4.3    | Proximité à grande distance . . . . .                      | 119        |
|          | <b>Conclusion</b>                                          | <b>125</b> |
|          | <b>Bibliographie</b>                                       | <b>127</b> |

Depuis sa première réalisation en 1981 par Binnig et Rohrer [1], le microscope à effet tunnel (en anglais STM : Scanning Tunneling Microscope) a connu un développement considérable au niveau de ses performances et de ses applications. Il a donné naissance à toute une panoplie de microscopies de champ proche destinées à l'étude des différentes propriétés de la matière, à l'échelle nanoscopique [2] : topographie, manipulation d'atomes et rigidité de surface, spectroscopies électroniques, propriétés magnétiques, conductance et potentiométrie, analyse chimique, etc.

Par là même, la microscopie de champ proche à basse température permet d'accéder à certaines propriétés, notamment quantiques, qui sont brouillées voire inexistantes à température ambiante. Ces propriétés concernent aussi bien les effets physiques tels le magnétisme ou la supraconductivité que les aspects mécaniques de réarrangement atomique de surface. Aujourd'hui, la plupart des dispositifs à basse température travaillent à 4 Kelvin avec des cryostats à  $^4\text{He}$  liquide ou à 1,5 K en pompant sur le bain d'hélium. Ces systèmes sont généralement manipulés entièrement sous ultravide de manière à contrôler la qualité des échantillons à observer. Seuls quelques instruments fonctionnant au-dessous de 1K commencent à apparaître avec des cryostats à  $^3\text{He}$  pompé ( $T \approx 300$  mK) [3, 4] ou avec des systèmes à dilution ( $T < 100$  mK) [5, 6, 7]. La complexité du développement ainsi que la difficulté à concilier thermalisation par des écrans thermiques et facilité d'accès (changement de pointe et d'échantillon, clivage) sont à l'origine du retard de ces systèmes à très basse température par rapport aux systèmes à hélium liquide.

Parallèlement au développement des microscopies de champ proche, les technologies de la microélectronique permettent la confection de structures métalliques toujours plus petites, aujourd'hui sur des tailles inférieures à 100 nm. Ces structures sont directement observables par la sonde locale des microscopes. Il est ainsi possible d'accéder à la physique de la matière à l'intérieur de ces échelles.

La physique mésoscopique se place à la frontière de la physique classique et de la mécanique quantique [8]. Elle s'attache à relever les effets de cohérence quantique de systèmes avec un très grand nombre de particules, soit sur des tailles importantes limitées essentiellement par la longueur de mémoire de phase des particules. La supraconductivité, la superfluidité, l'effet laser sont autant d'exemples de cette cohérence à grande distance. Cette thèse a pour objet la réalisation d'un microscope à effet tunnel à très basse température et son utilisation dans l'étude de ces propriétés dans des structures supraconductrices.

La supraconductivité se traduit par la cohérence sur des tailles macroscopiques des électrons condensés dans un même état quantique [9]. Lorsqu'un métal normal (N) est en contact avec un métal supraconducteur (S), il acquiert lui aussi des propriétés de cohérence qui se traduisent par des effets dits de "proximité". Depuis une quarantaine d'années, de

nombreuses techniques ont été mises en œuvre pour observer, sous différents aspects, les effets de la supraconductivité se propageant dans le métal normal. On peut regrouper ces techniques en plusieurs catégories : mesures de conductance dans des jonctions NS et SNS [10], mesures de bruit [11], mesures magnétiques [12] et mesures de densité d'états [13].

Nous allons nous intéresser au comportement de la densité d'états électronique (DOS : Density Of States) dans des structures de métal supraconducteur en contact avec un métal normal. Cette DOS présente une signature spécifique de l'état supraconducteur qui se propage dans le métal normal. Elle a été généralement observée avec des jonctions tunnel fixes permettant d'obtenir des informations dans une configuration donnée. Comme son nom l'indique, le microscope à effet tunnel permet de réaliser lui aussi une jonction tunnel à la surface d'un échantillon. Cependant, comparée aux jonctions planaires, la mesure obtenue est très localisée (de l'ordre de l'angström). On parle alors de densité d'états locale (LDOS). La sonde du STM peut de plus être déplacée continûment sur la surface, ce qui lui confère une très grande souplesse vis à vis du type de structure mesurée. Il est alors possible d'étudier les effets de proximité sur des échelles 1000 fois plus petites que toutes les mesures réalisées par les autres techniques. Le principe de fonctionnement du STM est abordé en première partie du chapitre 1, avec notamment les aspects théoriques de la mesure de densité d'états. Nous introduirons ensuite les mécanismes des effets de proximité avec quelques exemples montrant la diversité des approches employées pour leur étude.

La nécessité de descendre à très basse température pour l'observation de ces effets n'est pas uniquement imposée par la présence de supraconducteurs. La résolution en énergie des mesures de densité est en effet directement liée à la température de travail. Pour pouvoir mesurer des effets de proximité sur des échelles les plus grandes possibles avec des signatures physiques de faible énergie, il est nécessaire de porter le microscope à très basse température. Les STM commerciaux ne descendant pas au-dessous de 4 Kelvins, nous avons conçu et réalisé un microscope fonctionnant dans un réfrigérateur à dilution à une température de 60 mK. Pour des raisons liées à la fabrication des échantillons ainsi que pour éviter un trop lourd développement technique, nous avons choisi de ne pas réaliser un dispositif entièrement sous ultravide. L'accès à la tête du microscope est effectué à l'air libre et des précautions sont prises pour éviter la contamination de surface pendant le refroidissement. La mise au point du microscope a constitué une part importante de ce travail de thèse et les améliorations et ajouts au système sont toujours d'actualité. La description des différentes composantes du microscope et les aspects cryogéniques sont présentés au chapitre 2. Nous avons alors travaillé à augmenter la sensibilité et la stabilité du microscope. La mise au point de certaines parties électroniques spécifiques ainsi que l'amélioration des méthodes de mesure, présentées au chapitre 3, ont conduit à une

excellente résolution des spectroscopies du STM.

Ceci étant acquis, nous avons effectué des mesures STM à très basse température sur des hétérostructures normales/supraconductrices. Nous avons certainement sous estimé au départ la difficulté de confection de ces échantillons. Les contraintes de la mesure STM ainsi que la qualité d'interface NS nécessaire pour observer des effets de proximité imposent des conditions sévères sur les méthodes de fabrication. Le chapitre 4 présente les solutions trouvées pour l'élaboration de ces hétérostructures NS, notamment avec des procédés de fabrication in situ comme le dépôt sous angle. Nous avons aussi mis au point une technique de masquage mécanique sous ultravide parfaitement adaptée à la mesure par STM. Avant de décrire les mesures elles-mêmes, nous dégagerons au chapitre 5 les principales caractéristiques théoriques des densités d'états électroniques évoluant en régime de proximité. Ceci passera par une brève introduction à la théorie quasiclassique décrivant cette physique et sera suivi de quelques simulations de densité d'états dans plusieurs configurations géométriques. Nous présenterons enfin au chapitre 6 les effets de proximité observés par STM à très basse température. Différents comportements de la supraconductivité sont mis en évidence suivant le type d'échantillon étudié. La grande sensibilité du microscope permet d'observer ces effets sur des distances importantes avec une grande précision sur les détails de la densité d'états locale. Les résultats seront mis en perspective avec les évolutions de la LDOS prévues par la théorie dans une géométrie relativement simplifiée par rapport à la configuration réelle des échantillons.



# Chapitre 1

## Introduction

Nous présentons en premier lieu le principe de base du microscope à effet tunnel qui permet à la fois de réaliser une image de la topographie des échantillons et de mesurer une densité d'états électronique localisée en tout point de la surface. Ces mesures de densités électroniques sont réalisées depuis les années 50 par des jonctions planaires fixes. L'approche théorique de cette mesure par jonctions tunnel date de cette époque et les spectroscopies réalisées par le STM reposent sur les mêmes principes. Nous introduirons ensuite les mécanismes de base des effets de proximité. Nous travaillerons essentiellement dans la limite des métaux diffusifs en raison de la méthode de fabrication de nos échantillons. Les mécanismes de proximité sont généraux, mais certains effets physiques et leurs portées sont caractéristiques du déplacement aléatoire des électrons dans ce type de métal. Quelques aspects phénoménologiques qui montrent la compréhension actuelle de ces effets seront présentés. Nous terminerons par une revue succincte d'expériences de mesures de densité d'états résolues spatialement.

### 1.1 Microscopie tunnel

#### 1.1.1 Principes du STM

Avec la technique de microscopie tunnel, les surfaces observées doivent être entièrement conductrices. C'est à priori, la seule contrainte sur la qualité des échantillons et leur géométrie.

Le principe est d'approcher une pointe métallique à la surface de l'échantillon à observer en appliquant une différence de potentiel entre elles [2, 14]. Lorsque la pointe est

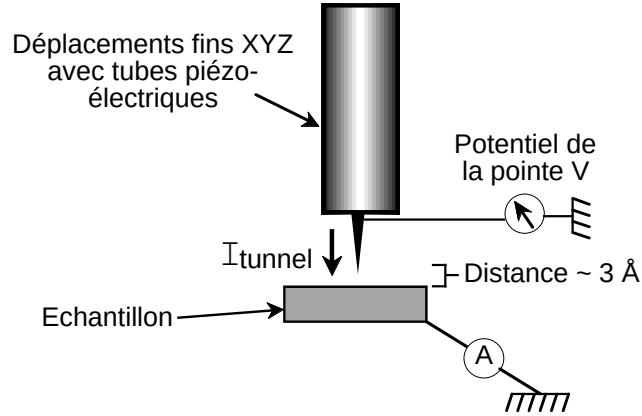


FIG. 1.1 – Schéma de principe du STM.

assez proche, typiquement à moins de  $10 \text{ \AA}$  de l'échantillon, un courant tunnel s'établit à travers le vide ou l'air suivant l'atmosphère ambiante (Fig. 1.1). Les déplacements doivent être contrôlés de manière très précise. Ils sont réalisés par des éléments piézo-électriques permettant une résolution meilleure qu'une fraction d'angström. Le courant tunnel dépend exponentiellement la distance pointe-échantillon ( $z$ ). Il est régulé afin de maintenir stable cette distance  $z$ . Le comportement du courant tunnel avec  $z$  est directement relié au travail de sortie pour arracher les électrons de la surface métallique. Il est possible d'évaluer ce travail en faisant varier la distance  $z$  et en enregistrant les variations de courant correspondantes. Cette mesure informe sur la qualité locale de la surface de l'échantillon et de la jonction tunnel.

Pour effectuer une mesure topographique de l'échantillon, les piézo-électriques de déplacements latéraux XY sont actionnés de manière à balayer la surface avec la pointe. On enregistre alors les déplacements verticaux fournis par la régulation pour maintenir un courant tunnel constant. La résolution spatiale du STM atteint  $\Delta x \simeq 0,1 \text{ \AA}$  sur les distances latérales et  $\Delta z \simeq 0,01 \text{ \AA}$  en résolution verticale. Ce microscope est ainsi bien adapté à l'imagerie atomique. La pointe se déplaçant à quelques angströms de la surface, les images avec de grands balayages sur des reliefs importants sont relativement difficiles à obtenir.

Le STM donne une image des surfaces de même densité électronique ce qui peut être différent de la topographie réelle de l'échantillon. Ceci permet d'observer l'évolution spatiale d'un phénomène physique se traduisant par une variation de la densité électronique à une énergie donnée. Il est ainsi possible de réaliser des images de vortex sur un supraconducteur en se plaçant à la polarisation correspondant au pic de densité d'états caractéristique

du supraconducteur [15, 16].

Pour effectuer une mesure spectroscopique de densité d'états, la régulation du courant tunnel doit être suspendue pendant toute l'acquisition de manière à obtenir une jonction tunnel stable. Deux méthodes sont alors disponibles. La LDOS peut être obtenue par dérivation numérique d'une mesure du courant tunnel en fonction de la polarisation. Une seconde solution consiste à mesurer directement la conductance différentielle  $\frac{dI}{dV}$  avec une détection synchrone pendant le balayage de la polarisation.

### 1.1.2 Courant tunnel et densité d'états locale (LDOS)

La méthode classique de mesure tunnel d'une densité d'états est de réaliser une couche isolante, généralement une couche d'aluminium oxydé, entre une électrode et l'échantillon métallique [17]. En microscopie tunnel, la jonction est réalisée par les quelques angströms de distance entre la pointe et l'échantillon.

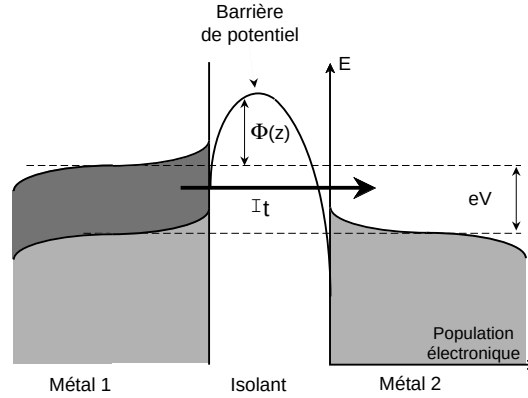


FIG. 1.2 – Passage d'un courant tunnel entre deux électrodes métalliques. Les parties grises représentent le remplissage électronique à la température  $T$ . La partie plus foncée correspond à la différence de population des deux métaux à laquelle est proportionnel le tunnel.

Dans un métal à température  $T$ , la distribution de Fermi  $f(E)$  donne la probabilité d'occupation électronique d'un état d'énergie  $E$  donnée. La probabilité de passage d'un courant tunnel dépend alors de la différence des populations électroniques entre les deux électrodes (Fig. 1.2), l'une étant au potentiel  $V$ , l'autre à potentiel nul :  $f(E - eV) - f(E)$ . Le courant tunnel s'exprime en fonction des densités d'états électroniques de l'échantillon  $\rho_E$  et de l'électrode  $\rho_P$  :

$$I = \frac{4\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} [f(E_F - eV + \varepsilon) - f(E_F + \varepsilon)] \times \rho_E(E_F - eV + \varepsilon) \rho_P(E_F + \varepsilon) |M|^2 d\varepsilon \quad (1.1)$$



L'énergie  $\varepsilon$  est prise par rapport à l'énergie de Fermi  $E_F$ . La matrice tunnel  $M$  est exprimée par J. Bardeen [18]. Elle représente le recouvrement des fonctions d'onde de la pointe et de l'échantillon sur toute la surface de la jonction tunnel.

$$M = \frac{\hbar}{2m} \int_S \left( \chi^* \frac{\delta \psi}{\delta z} - \psi \frac{\delta \chi^*}{\delta z} \right) dS, \quad (1.2)$$

avec  $\psi$  et  $\chi$  les fonctions d'onde des deux électrodes. L'axe  $z$  est dirigé suivant l'épaisseur  $z$  de la jonction tunnel et  $S$  représente la surface à une distance quelconque  $z_o$  à travers laquelle s'établit le courant tunnel. Dans l'équation 1.1, le coefficient  $|M|^2$  est supposé ne dépendre que de l'énergie. Il peut être assimilé à un coefficient de transmission  $t$ .

En appliquant l'équation de Schrödinger sur une onde plane se propageant vers une barrière de potentiel carré, on montre simplement que la probabilité de transmission tunnel  $t$  est proportionnelle à  $e^{-2kz}$ , avec  $k = \frac{\sqrt{2m\phi}}{\hbar}$ . Cette expression est valable pour des énergies  $\varepsilon$  petites devant le travail de sortie  $\phi$ . En première approximation, en supposant notamment que la transmission ne dépend pas du vecteur d'onde des électrons incidents et que  $k$  ne dépend pas de la distance  $z$ , la matrice  $|M|^2$  est proportionnelle à cette exponentielle. Le travail de sortie de métaux comme l'or est typiquement de  $\phi \approx 4$  eV. Cependant les mesures STM sur des surfaces plus ou moins propres donnent un travail de sortie autour de 1 eV pour un facteur exponentiel  $2k \approx 1 \text{ \AA}^{-1}$ .

Dans un intervalle d'énergie petit devant le travail de sortie,  $|M|^2$  peut être considérée comme constante. À partir de l'équation 1.1, on montre que la conductance différentielle de la jonction tunnel est proportionnelle à :

$$\frac{\delta I}{\delta V} \propto |M|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} g(\varepsilon, V) \rho_E(E_F - eV + \varepsilon) \rho_P(E_F + \varepsilon) d\varepsilon \quad (1.3)$$

La dérivée de la distribution de Fermi  $g(\varepsilon, V) = -\frac{\delta f(\varepsilon - eV)}{\delta \varepsilon}$  est une fonction piquée à l'énergie  $\varepsilon = eV$  avec une largeur à mi-hauteur  $4k_B T$ . Si l'on considère que la densité d'états de l'électrode est uniforme autour de  $E_F$ , la conductance différentielle de la jonction s'exprime alors :

$$\frac{dI}{dV} \propto \rho_E^T(E_F + eV) e^{-2kz}. \quad (1.4)$$

$\rho_E^T$  est la DOS de l'échantillon convoluée par la dérivée de la distribution de Fermi  $g(\varepsilon, V)$  et représente une densité d'état arrondie par la température. Cette équation montre que si l'on maintient stable la jonction tunnel ( $k = \text{cst}$ ,  $z = \text{cst}$ ), la conductance différentielle est directement proportionnelle à cette densité. À température nulle, on retrouve la densité d'états de l'échantillon. Il est intéressant de noter que lorsque le courant tunnel est établi entre deux métaux normaux (densité  $\rho$  constante) et avec une faible polarisation, la jonction tunnel devient simplement ohmique.

On considère qu'il est possible de distinguer deux pics de densité d'états lorsque le sommet du premier pic se trouve à l'énergie à mi-hauteur du second pic. La résolution en énergie des spectroscopies est ainsi donnée par  $2k_B T$ . À  $T=100$  mK, on obtient une résolution de  $17 \mu\text{V}$  contre  $170 \mu\text{V}$  à 1K. Avec les supraconducteurs conventionnels que nous utilisons comme le niobium et l'aluminium dont les énergies caractéristiques sont de l'ordre du milliélectronvolt, il est primordial de descendre à des températures bien inférieures au Kelvin.

La résolution spatiale du microscope dépend de la géométrie de la pointe et notamment de l'orbitale atomique des électrons de conduction du dernier atome au bout de la pointe. Elle est directement liée au recouvrement des fonctions d'onde exprimé par la matrice  $M$ . De nombreux calculs ont montré que les orbitales atomiques type  $p_z$  et  $d_{z^2}$  sont susceptibles [2] d'expliquer la résolution observée des imageries atomiques par STM. L'imagerie atomique à différentes polarisations [19] suggère que la résolution spatiale des spectroscopies est aussi de cet ordre. Les images-spectroscopiques qui se sont développées grâce à la très grande stabilité des microscopes ainsi que la possibilité de traiter un grand nombre de données [20], montrent aussi une évolution des densités d'états à l'échelle atomique. Ce fait reste déroutant lorsqu'on sait que la longueur d'onde des électrons traversant la jonction tunnel est d'environ 10 Angström, i.e. bien supérieure à la résolution de  $1/10^{\text{eme}}$  Angström effectivement obtenue.

Dans une jonction planaire, le courant tunnel est essentiellement composé des électrons possédant un fort vecteur d'onde perpendiculaire à l'interface. La surface réduite de la pointe dans les mesures par STM permettent, elles, de sonder plus uniformément la surface de Fermi, ce qui fait apparaître les états localisés en surface avec des vecteurs d'onde  $k_z \rightarrow 0$ . Ainsi, le STM est sensible aux variations de densité créées par les impuretés, notamment magnétiques, déposées sur la surface [21, 22] et aux ondes de densité de charge [23, 24, 3].

### 1.1.3 Systèmes STM à très basse température

À notre connaissance, assez peu de microscopes travaillent à très basse température ( $T < 1\text{K}$ ). La résolution atomique du STM permet généralement d'avoir accès à des phénomènes physiques dont les énergies caractéristiques augmentent avec les petites échelles. Par exemple, l'énergie des états d'une boîte quantique sera d'autant plus grande que la boîte est petite. L'intérêt de descendre au-dessous de 4 Kelvins reste pourtant lié au gain de résolution en énergie des spectroscopies. Les basses températures peuvent permettre de résoudre des états d'énergies très proches, c'est-à-dire de se rapprocher de la densité

d'états électroniques réelle. C'est pour cette raison que M. Kugler et al. [4] développent un microscope à 300 mK entre autres pour étudier en détail les comportements de supraconducteurs exotiques. D'autres propriétés comme l'arrangement des atomes dans des films monoatomiques d'hélium [7] n'apparaissent qu'à très basse température. Pour le cas des effets de proximité, les très basses températures sont justifiées par les supraconducteurs conventionnels utilisés. En outre, nous verrons que plus les distances sur lesquelles on observe ces effets sont grandes, plus les signatures physiques ont une énergie faible.

Il faut noter que résolution atomique et très basses températures sont difficiles à associer. En effet, l'imagerie atomique n'est généralement possible que sur des surfaces très propres, dans des systèmes sous ultravide. Le découplage électron-phonon intervenant autour de 300 mK dans les métaux, l'énergie du bain électronique de la pointe et de l'échantillon devient difficile à diminuer au-dessous de cette température. Il est alors nécessaire de découpler le microscope de l'environnement électromagnétique par des écrans. Ceci complique largement la mise en place d'un système ultravide.

Deux expériences réalisées par H. F. Hess, R. B. Robinson et J. V. Waszczak [16] ainsi que S. H. Pan, E. W. Hudson et J. C. Davis [3] ont réellement montré la résolution spectroscopique accessible autour de 300 mK (Fig. 1.3). H. F. Hess et al. (1990) présentent

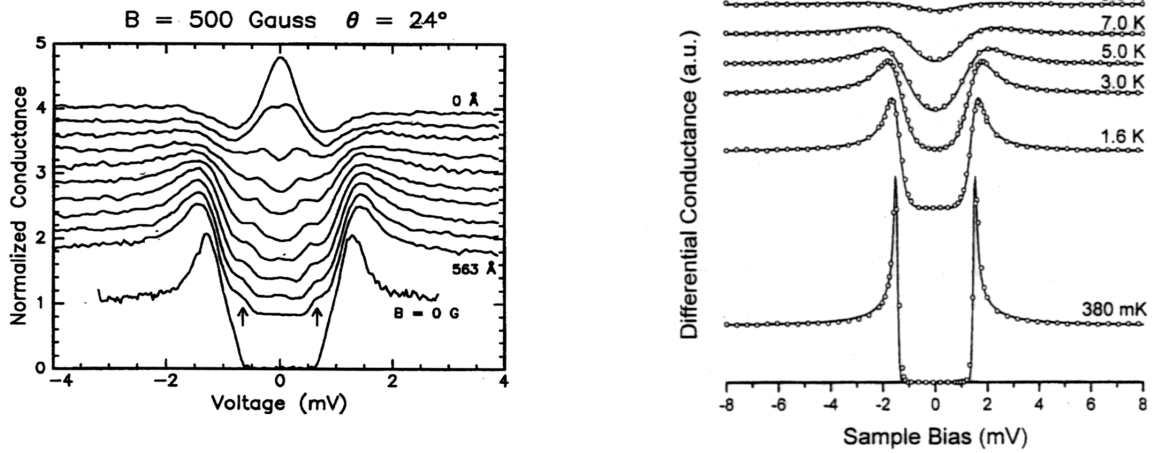


FIG. 1.3 – (Gauche) (H. F. Hess et al.) Spectroscopies à 300 mK d'un échantillon de 2H-NbSe<sub>2</sub> sous un champ magnétique de 500 Gauss. Les densités d'états décalées pour plus de clarté sont réalisées en se déplaçant progressivement vers le centre d'un vortex sur une distance de 563 Å. (Droite) (S. H. Pan et al.) Spectroscopies effectuées entre 380 mK et 8,6 K avec une pointe STM de niobium sur une surface d'or.

sur la figure de gauche l'évolution de la densité d'états à différentes distance du centre d'un vortex sur un échantillon de NbSe<sub>2</sub>. L'année d'après (1991), ils mesurent cette densité à

une température de 50 mK. Les structures assez arrondies qu'ils obtiennent proviennent certainement de la densité du NbSe<sub>2</sub> qui n'est pas un supraconducteur conventionnel.

En ce qui concerne les mesures de S.H. Pan et al., il est important de noter que leur système est entièrement sous vide, ce qui permet d'obtenir des surfaces d'échantillons très propres et une faible oxydation des métaux comme le niobium. Le courant tunnel présente ainsi une très bonne stabilité. La belle spectroscopie à 380 mK (figure de droite) réalisée avec une pointe de niobium sur une surface d'or est à comparer aux tests de sensibilité de notre microscope sur un bicouche Nb/Au présentés au chapitre 3.

## 1.2 Supraconductivité et effets de proximité

La capacité du microscope à effet tunnel à mesurer une densité d'états locale le dédie tout naturellement à l'étude de l'évolution spatiale de cette densité. Les effets de proximité entre un métal normal et un métal supraconducteur sont de parfaits candidats pour ce types de mesures. De plus, ils ont été étudiés sous différentes approches mais finalement relativement peu en terme de densité d'états.

La découverte des supraconducteurs par H. Kamerlingh Onnes date de 1911, mais il faudra attendre la théorie Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) dans les années 50 pour avoir une description complète de la supraconductivité par les phénomènes mis en jeu au niveau microscopique [9]. Au début des années 60, plusieurs expériences montrent que la présence d'un métal normal en contact avec le supraconducteur change les propriétés des deux métaux : la température de transition supraconductrice du système est modifiée [25] et, sur des distances assez courtes, le métal normal peut transporter un supercourant [26, 27]. La théorie de Ginzburg-Landau décrit cet effet de manière phénoménologique, mais c'est Andreev, en 1964 [28], qui explique véritablement le mécanisme de passage des charges entre le métal supraconducteur et le métal normal. Au niveau microscopique, tous les effets de proximité sont alors décrits par la "réflexion d'Andreev".

Plusieurs théories apparaissent dans les années 60 pour expliquer les observations sur les hétérostructures Normal/Supraconducteur. La théorie de Bogoliubov - De Gennes [29] s'attache à décrire la conductance d'un circuit NS ainsi que les variations de la température critique d'un bicouche NS par rapport à la  $T_c$  du supraconducteur massif. Elle est cependant adaptée essentiellement pour les cas où les libres parcours électroniques sont grands devant la taille caractéristique des structures métalliques (limite balistique), c'est-à-dire lorsque la supraconductivité évolue peu sur la taille des échantillons. Dans les mêmes limites, la théorie de McMillan [30] permet de calculer la densité d'états dans les bicouches

NS avec une forte résistance de barrière à l'interface des deux métaux.

Une autre approche très puissante pour la description de structures non homogènes (NS) en limite diffusive est la théorie dite "quasiclassique". Elle repose sur le formalisme de Keldysh (1964) des fonctions de Green hors équilibre [31]. À partir des équations générales de transport dans les métaux [32], K. D. Usadel [33] a décrit l'évolution des paramètres supraconducteurs dans des hétérostructures N/S de métaux diffusifs. La théorie a ensuite été menée à maturité par différents groupes [34, 35, 36]. C'est essentiellement celle que nous utiliserons pour interpréter nos mesures grâce aux études récentes réalisées par A.A. Golubov et al. [37] et par W. Belzig et al. [38]. Les équations d'Usadel ne sont pas solvables analytiquement dans leur formulation complète. Il est ainsi nécessaire de passer par une résolution numérique. Une introduction à la théorie et son application à une géométrie simple seront données au chapitre 5.

Nous allons revenir ici, aux propriétés de bases de la supraconductivité. Dans le cas qui nous intéresse, nous définirons les longueurs pertinentes pour la description de la physique des métaux diffusifs. Les mécanismes de proximité et leur portée dans chaque métal permettra d'aborder simplement quelques effets observés relativement récemment.

### 1.2.1 Densité d'états supraconductrice et bande interdite

Dans un supraconducteur, la théorie BCS postule la présence d'un potentiel  $V_{eff}$  d'interaction entre les électrons supraconducteurs via le réseau atomique du métal. Cette interaction attractive couple les électrons deux à deux (paires de Cooper) et les condense dans un état de cohérence macroscopique de phase  $\varphi$ . On définit l'amplitude de paires  $F(x, \varepsilon) = \langle \psi_{\downarrow}^{\dagger} \psi_{\uparrow}^{\dagger} \rangle$  comme la fonction d'onde décrivant la corrélation entre deux particules de vecteur d'onde et de spin opposés.  $\psi_{\sigma}^{\dagger}$  est l'opérateur de création d'une particule de spin  $\sigma$ . L'interaction attractive  $V_{eff}$  conduit à l'ouverture d'une bande interdite d'énergie  $\Delta$  autour de l'énergie de Fermi ( $E_F$ ). Ainsi, dans S, la densité d'états électronique tombe à zéro à l'intérieur de la bande interdite nommée aussi gap supraconducteur. Deux pics de densité caractéristiques de l'état supraconducteur apparaissent de part et d'autre (Fig. 1.4).

Lorsque la supraconductivité n'est pas homogène, par exemple avec un contact NS, le potentiel de paires  $\Delta$  est défini localement par  $\Delta(x) = V_{eff} \mathbf{F}(x)$ .  $F(x, \varepsilon)$  est ici intégrée sur l'énergie de tous les états occupés. Dans un métal normal,  $\Delta$  est nul car il n'y a pas de potentiel attractif ( $V_{eff} = 0$ ). C'est alors l'amplitude de paire  $F$  qui fournira l'information sur les propriétés supraconductrices dans N.

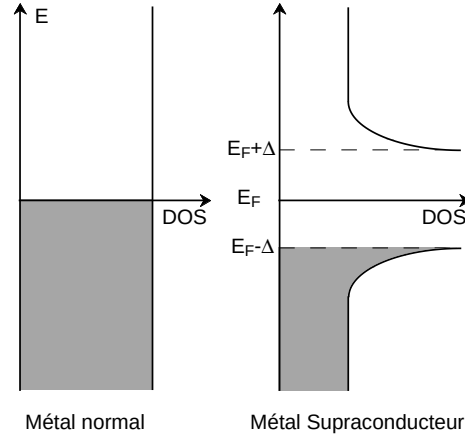


FIG. 1.4 – Schéma de la densité d'états dans  $S$  et dans  $N$  ainsi que les états occupés (en grisé) à  $T=0$ .

### 1.2.2 Longueur de cohérence et métaux diffusifs

Dans un métal, les électrons de conduction peuvent subir différents processus qui brisent leur cohérence. Les impuretés et les phonons sont susceptibles d'échanger de l'énergie avec le gaz électronique par des processus dits inélastiques. Le résultat de ces différentes interactions est une longueur de mémoire de phase moyenne  $L_\varphi$ . De façon générale, c'est elle qui définit la portée maximum des effets de cohérence. Les impuretés magnétiques peuvent de plus retourner le spin des électrons de manière élastique. Ce processus nommé "spin-flip" brise la supraconductivité qui est basée sur la symétrie de spin. On peut définir une longueur moyenne de décohérence spin-flip  $L_{sf}$  entre deux retournements de spin.

Lorsqu'un métal présente des défauts dans le réseau cristallin, les électrons subissent de nombreuses réflexions élastiques avant de perdre leur phase. On parle alors de conducteurs diffusifs. Ils sont généralement obtenus par des dépôts métalliques réalisés à température ambiante et sans recuit. On définit le libre parcours moyen  $l_p$  entre deux chocs élastiques. Les trajectoires des électrons étant diffusives, les distances effectives parcourues s'expriment en fonction d'un coefficient  $D$ . Après une durée  $t$ , les électrons ont parcouru en moyenne une longueur  $L = \sqrt{Dt}$  dans chaque direction de l'espace. Le coefficient de diffusion est donné par  $D = \frac{1}{3}v_F l_p$  où  $v_F$  représente la vitesse des électrons au niveau de Fermi.

Lorsque le bain électronique subit une interaction avec une impureté ou le réseau cristallin, la taille sur laquelle prend effet ce couplage dépend de son temps de vie. Il est directement donné par l'énergie  $E$  de l'interaction à travers la relation de Heisenberg

$t = \hbar/E$ . Sa portée dans le métal diffusif s'exprime alors

$$L = \sqrt{Dt} \sim \sqrt{\frac{\hbar D}{E}}. \quad (1.5)$$

Dans un supraconducteur diffusif, les électrons sont liés entre eux par une interaction d'énergie  $\Delta$ . La portée de l'interaction supraconductrice est alors définie à partir de l'équation 1.5 par la longueur de cohérence :

$$\xi_{S_{diff}} = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\Delta}}. \quad (1.6)$$

Cette longueur représente en quelque sorte la taille moyenne d'une paire électronique supraconductrice. Elle est l'unité de longueur de l'évolution des propriétés supraconductrices dans S.

### 1.2.3 Portée des effets de proximité

Lorsqu'un contact est établi entre un métal supraconducteur et un métal normal, les électrons de N ayant une énergie inférieure à  $\Delta$  par rapport à  $E_F$  ne peuvent entrer dans S puisqu'il n'y a pas d'états disponibles (Fig. 1.4). Inversement, les électrons d'une paire de Cooper qui entrent dans le métal normal ne subissent plus le potentiel attractif qui les lie entre eux. P. G. de Gennes [29] a montré en 1964 que ces électrons qui entrent dans un métal normal perdent leur cohérence en raison des excitations d'origine thermique. L'énergie moyenne de ces excitations à la température T est  $k_B T$ . On en déduit directement, avec la discussion précédente sur la limite diffusive, une longueur de pénétration de la supraconductivité dans N :

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}}. \quad (1.7)$$

Ainsi la taille moyenne sur laquelle se déploient les effets de proximité est très fortement limitée par la température. Le libre parcours élastique des métaux que nous utilisons est typiquement de 100 Å. La longueur de cohérence thermique est alors  $L_T \approx 0,1 \mu\text{m}$  à 1 Kelvin et  $0,5 \mu\text{m}$  à 50 mK. La figure 1.5 représente l'évolution de la supraconductivité à l'aide de la densité d'électrons supraconducteurs  $|\Psi|^2$  qui dépend du carré de l'amplitude de paire  $\mathbf{F}(\mathbf{x})$ .

La théorie de de Gennes décrit ainsi la décroissance exponentielle sur une longueur  $L_T$  de la densité d'électrons supraconducteurs dans le métal normal.

$$|\Psi|^2 \propto e^{-x/L_T}. \quad (1.8)$$

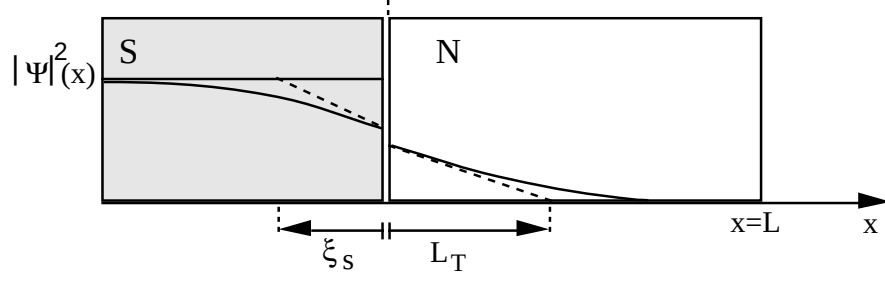


FIG. 1.5 – Évolution de la densité de paires  $|\psi|^2$  dans une hétérostructure constituée d'un métal normal (N) en contact métallique avec un métal supraconducteur (S).

Inversement, le métal N influence le métal S sur la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi_S$  sur laquelle s'établissent les différentes réflexions à l'interface. Lorsque le métal supraconducteur est de faible épaisseur, de l'ordre de la longueur de cohérence  $\xi_S$ , sa température de transition  $T_c$  peut être affaiblie par la présence d'électrons normaux. La longueur  $L_T$  est en fait une longueur moyenne intégrée sur les énergies. Certains effets de proximité ne peuvent être décrits par cette seule longueur et il est nécessaire de passer à une définition spectrale des longueurs de proximité grâce à la réflexion d'Andreev.

#### 1.2.4 Réflexion d'Andreev

Dans un métal, en raison notamment des interactions électron-électron, les excitations du gaz électronique ne peuvent être représentées par de simples électrons dans les bandes d'énergie disponibles au-dessus de  $E_F$ . Ces excitations sont définies par Landau comme des quasiparticules habillées d'interactions et décrites par une superposition d'états constitués d'électrons et de trous.

La figure de dispersion (Fig. 1.6) montre les états propres dans un métal normal et dans un supraconducteur en fonction du vecteur d'onde  $k$ . Deux axes d'énergie pour les trous et pour les électrons sont représentés. En effet, l'énergie d'une quasiparticule "électron" ( $e^-$ ) à une valeur  $\varepsilon$  au-dessus de  $E_F$  est la même qu'une quasiparticule "trou" ( $h^+$ ) à  $\varepsilon$  au-dessous de  $E_F$ . Dans le métal normal, les excitations "électron" apparaissent en dehors de la sphère de Fermi ( $k > k_F$ ) puisque tous les états "électron" sont occupés à l'intérieur. De même, les excitations "trou" sont comprises dans la surface de Fermi. Ainsi, au-dessus du vecteur d'onde  $k_F$ , la branche d'excitation correspond à des particules essentiellement électroniques, tandis qu'au-dessous de  $k_F$  la branche est composée de trous. On retrouve la même configuration dans le supraconducteur bien que cette fois, les quasiparticules des deux types peuvent être créées à l'intérieur ou l'extérieur de la surface de Fermi. L'énergie



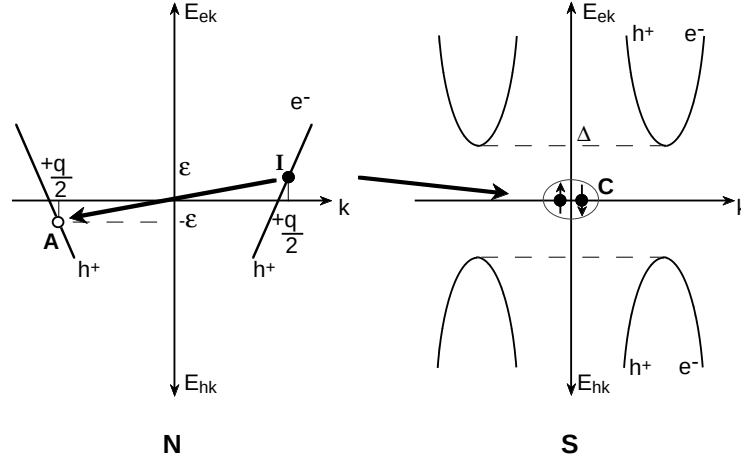


FIG. 1.6 – *Figure de dispersion dans un métal normal et dans un supraconducteur. Les états d'excitations se situent sur une droite près de l'énergie de Fermi dans N et sur une parabole dans S. On représente sur cette figure le mécanisme de la réflexion d'Andreev. L'électron incident (I) est rétro-diffusé en un trou (A) et une paire de Cooper entre dans S (C).*

des excitations est parabolique avec un minimum égal à  $\Delta$  et s'exprime  $\varepsilon = \sqrt{\frac{(\hbar k)^2}{2m} + \Delta^2}$ .

Lorsqu'un contact NS est réalisé, plusieurs mécanismes sont possibles pour les particules venant frapper l'interface. Blonder-Tinkham-Klapwijk (BTK) [39] ont calculé la probabilité des différents processus en fonction de la qualité de cette interface. Tout d'abord, les particules peuvent être réfléchies de manière habituelle, réflexion dite "spéculaire". Tout comme l'écrantage d'une onde électromagnétique dans un métal, les particules pénètrent dans S comme une onde évanescente sur une distance typique  $\xi_S$  avant d'être réfléchies spéculairement. Cette distance diverge pour les électrons d'énergie proche de  $\Delta$ . De manière générale, tous les processus à l'interface prennent effet dans le supraconducteur sur cette distance  $\xi_S$ . Pour des énergies  $|\varepsilon| > \Delta$ , les particules peuvent être transmises soit normalement dans S sous forme d'électron soit sous forme de trou en changeant de branche à la même énergie. Enfin, un électron incident avec une énergie  $|\varepsilon| < \Delta$  peut être réfléchi sous forme d'un trou. Ce processus nommé réflexion d'Andreev permet de transférer une charge  $2e$  en créant une paire de Cooper dans S. Le mécanisme est représenté sur la figure 1.6.

Le trou est rétro-diffusé de manière cohérente avec l'électron incident, avec la même énergie  $\varepsilon$  et une phase additionnelle  $\phi + \frac{\pi}{2}$ ,  $\phi$  étant la phase du supraconducteur. Le trou de vecteur d'onde  $-k_F + q/2$  peut être assimilé à un électron évoluant dans l'autre sens

avec un vecteur d'onde  $k_F - q/2$ . On peut alors parler de paire électronique dans le métal normal avec un vecteur d'onde  $(+q/2, -q/2)$  par rapport au vecteur d'onde  $k_F$  à l'énergie de Fermi.

Cependant, la différence de vecteur d'onde  $q$  fait évoluer la différence de phase entre les deux particules. La paire perd ainsi sa cohérence au bout d'un parcours  $x$  tel que  $qx \sim 2\pi$ , ce qui correspond dans un métal diffusif à une longueur typique :

$$L_\epsilon = \sqrt{\frac{\hbar D}{\epsilon}}. \quad (1.9)$$

Ainsi, plus les électrons ont une faible énergie, plus la paire réfléchie diffuse loin dans le métal normal. La cohérence de la paire est limitée en moyenne à la longueur d'excitation thermique  $L_T$ , mais pour des électrons de faible énergie elle peut atteindre de très longues distances. La limite pour ces électrons de basse énergie est alors la longueur de mémoire de phase électronique  $L_\varphi$ .

À partir de l'équation 1.9, on voit qu'à une distance  $L$  de l'interface NS, toutes les paires ayant une énergie supérieure à

$$\epsilon_c = \frac{\hbar D}{L^2} \quad (1.10)$$

auront perdu leur cohérence. Autrement dit, seules les paires dans une fenêtre d'énergie  $\epsilon_c$  autour de  $E_F$  peuvent atteindre la distance  $L$  dans le métal normal. Cette énergie est nommée "énergie de Thouless" [40] lorsque  $L$  est la taille (finie) du métal normal.

La réflexion d'Andreev est un processus du second ordre puisqu'elle fait intervenir la probabilité de présence de deux particules. Si  $t$  est la transparence d'interface, la probabilité de réflexion d'Andreev est d'ordre deux en  $t$  ( $t^2$ ). Pour le cas d'une interface parfaitement transparente,  $t=1$  et la réflexion d'Andreev domine tous les autres processus de réflexion. Lorsqu'il existe une barrière résistive à l'interface NS, la réflexion d'Andreev n'est plus totale et la probabilité de réflexion spéculaire augmente.

### 1.3 Exemples d'effets de proximité

Nous allons à présent évoquer quelques expériences qui illustrent l'existence de paires électroniques dans un métal normal en contact avec un supraconducteur et certains phénomènes propres au mécanisme de la réflexion d'Andreev. Nous distinguerons deux cas : les propriétés avec des populations électroniques à l'équilibre thermique et les propriétés hors équilibre, où il est nécessaire d'appliquer une tension comme pour une mesure de conductance.

#### 1.3.1 Propriétés à l'équilibre

- Supercourant Josephson dans une jonction SNS

Dans une jonction Josephson classique, lorsque deux supraconducteurs sont mis en contact par un lien faible avec un isolant SIS ou un micropont SS'S, un supercourant  $I = I_c \sin \phi$  apparaît dans la jonction. Le paramètre  $\phi$  indique ici la différence de phase supraconductrice entre les deux métaux S. Le courant critique  $I_c$  est proportionnel au paramètre d'ordre supraconducteur  $eR_N I_c \propto \Delta$  [41] où  $R_N$  est la résistance de la jonction à l'état normal.

Dans une double jonction SNS avec un métal normal de grande longueur  $L$  et des interfaces transparentes, un courant supraconducteur peut s'établir dans le métal normal  $N$  grâce aux électrons corrélés d'énergie inférieure à l'énergie de Thouless  $\varepsilon_c$ . Le courant critique est cette fois plus petit et proportionnel à  $\varepsilon_c$  [42, 43]. En fonction de la température, ce courant critique décroît comme la densité d'électrons supraconducteurs en  $e^{-L/L_T} \propto e^{-\alpha\sqrt{T}}$  comme attendu avec les équations de P. G. de Gennes.

- Diamagnétisme de proximité

À très basse température, la supraconductivité induite dans un métal normal se traduit par un effet Meissner identique au diamagnétisme parfait observé dans un supraconducteur. L'écrantage total du champ magnétique dans le métal normal est observé à différentes températures suivant l'épaisseur et la qualité de ce métal [44, 45]. Cependant, lorsque la température est fortement diminuée, le diamagnétisme est totalement détruit par un effet de réentrance et le système peut même devenir paramagnétique à ultra basse température [12]. Cet effet de réentrance n'est pas compris à l'heure actuelle et plusieurs approches théoriques sont avancées [46, 47].

### 1.3.2 Propriétés hors équilibre

- Transparence et confinement électronique à l'interface.

La conductance d'une jonction NS est gouvernée à faible énergie par la réflexion d'Andreev. Comme nous l'avons dit, le modèle BTK prévoit une probabilité de réflexion d'Andreev du second ordre avec la transparence d'interface  $t$ . Lorsque l'on confine les électrons proches de l'interface en réduisant l'épaisseur de métal normal, la distance que parcourent ces électrons entre deux réflexions peut devenir petite. Les électrons gardent alors leur phase entre deux chocs et les réflexions multiples deviennent cohérentes entre elles. La probabilité de réflexion d'Andreev devient du premier ordre avec  $t$ , ce qui a pour effet d'augmenter la conductivité de la jonction [48, 49, 50].

- Proximité sur des tailles supérieures à  $L_T$

Dans un anneau de métal normal, le champ magnétique  $\vec{B}$  influence la phase des électrons qui diffusent autour de la boucle et ainsi sur la résistance de la boucle. Lorsque l'anneau est en contact avec un métal supraconducteur [51], cette magnétorésistance présente une oscillation de période  $\frac{h}{2e}$  en fonction du champ magnétique. La période de cette oscillation est la signature de l'existence de paires électroniques dans N qui restent corrélées sur toute la taille de la boucle. Pour une interface NS très transparente, les oscillations persistent jusqu'à la température de transition du supraconducteur [52], c'est-à-dire pour des longueurs  $L_T$  très inférieures à la taille de la boucle. L'amplitude de ces oscillations décroît en  $1/T$  et non en  $e^{-L\sqrt{T}}$  comme attendu naïvement. Ce résultat montre que la longueur  $L_T$  est une longueur moyenne sur laquelle se détruisent les effets de proximité, mais que les électrons de basse énergie ont une cohérence à beaucoup plus longue portée, cette portée étant limitée par la longueur de phase  $L_\varphi$ .

- Réentrance de la conductance

Nous avons vu dans le paragraphe sur la réflexion d'Andreev que la fonction d'onde d'une paire de Cooper entrant dans le métal normal acquiert une phase  $e^{\pm iqx}$ . Dans un métal normal balistique, on montre que l'amplitude de paires est alors proportionnelle à  $F \propto \sin(qx) = \sin(\frac{-2\varepsilon}{\hbar v_F}x)$  pour les faibles énergies  $\varepsilon \ll \Delta$ .  $x$  est la distance à l'interface dans N. La distance  $\frac{\hbar v_F}{2\varepsilon}$  correspond à la longueur de pénétration des paires  $L_\varepsilon$  (équation 1.9) en limite balistique. Le cas diffusif est plus complexe, mais l'amplitude de paires présente là aussi un comportement oscillant. À une énergie  $\varepsilon$  donnée, la densité d'électrons supraconducteurs présente donc un maximum à la distance de l'ordre de  $L_\varepsilon$ . De plus, pour ces électrons de basse énergie l'amplitude de paire est nulle à l'interface. Cet effet vient directement du mécanisme de la réflexion d'Andreev et notamment de la phase  $\frac{\pi}{2}$  que le

trou acquiert pendant la réflexion.

La conductivité du métal normal à une énergie donnée est liée à l'amplitude de paire  $F$ . Elle présente elle aussi un maximum à une distance  $L_\varepsilon$ . Ainsi, dans un métal N de taille finie, la conductivité à petite énergie ( $\varepsilon < \varepsilon_c$ ) n'atteint pas de maximum. La conductance spectrale de N,  $G(V) = \frac{dI}{dV}|_V$ , est alors non monotone. Elle diminue à faible énergie pour retrouver sa valeur de l'état normal à énergie nulle [53, 54, 55, 56, 57].

## 1.4 Mesures de densités d'états

### 1.4.1 Mesures par jonctions planaires solides

Dans un métal normal de faible épaisseur  $L$ , les électrons appariés d'énergie inférieure à  $\varepsilon_c$  peuvent traverser tout le métal et sondent régulièrement l'interface supraconductrice. Un minigap uniforme quelle que soit la distance à l'interface s'ouvre alors dans le métal normal. On appelle minigap une bande interdite dans la LDOS d'une largeur inférieure au gap supraconducteur  $\Delta$  massif.

Pour le cas d'un métal N très long devant la longueur de cohérence supraconductrice, il n'y a pas d'ouverture de gap dans le métal normal. Seul un affaiblissement de la densité d'états, ou pseudo-gap, à l'énergie de Fermi peut être observé.

- Cas des faibles épaisseurs de métal normal

Les premières mesures de densité d'états de structures NS se sont situées dans cette limite de faible épaisseur de N par rapport à la profondeur de pénétration des paires. Elles ont été réalisées vers la fin des années 60 par des mesures tunnel notamment sur des bicouches Pb/Cu [58, 59]. Par un traitement perturbatif de l'Hamiltonien tunnel décrivant la pénétration des électrons à travers une interface résistive, W. L. McMillan [30] a décrit en 1969 les structures du gap mesuré par ces techniques.

Une expérience de D. H. Prothero [60] se rapproche notamment de certaines de nos observations par STM. Il a mesuré la densité d'états du métal normal (Cu) dans des échantillons Mg-oxyde-Cu-Pb en introduisant une barrière résistive d'aluminium de différentes épaisseurs à l'interface Cu-Pb. La sonde tunnel est ici le magnésium et le plomb fait office de supraconducteur. Avec les épaisseurs de métaux utilisées, ces mesures se placent à la frontière du cas balistique et de la limite diffusive. Il est ainsi possible de négliger la dépendance spatiale du paramètre d'ordre supraconducteur  $F$  et d'appliquer la théorie de McMillan. Les spectroscopies réalisées à 100 mK montrent une réduction du minigap avec

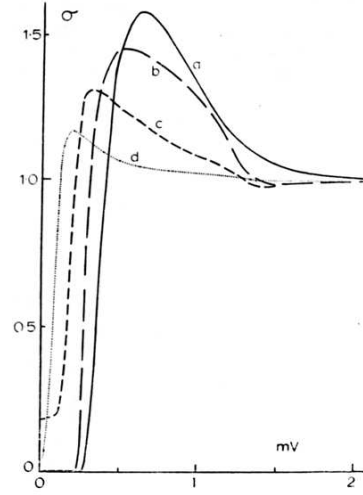


FIG. 1.7 – (D. H. Prothero [60]) Conductance différentielle à 100 mK d'échantillons *Mg/oxide/Cu(350 Å)/Al oxydé/Pb (600 Å)* avec une barrière résistive réalisée par différentes épaisseurs d'aluminium : a) 0 Å, b) 22 Å, c) 25 Å, d) 30 Å.

l'épaisseur croissante d'aluminium et une cassure dans la pente des pics de densité. On observe aussi l'apparition d'un minimum local de la densité d'états à une énergie correspondant au gap du supraconducteur massif pour des interfaces moyennement transparentes (Fig. 1.7). Pour une épaisseur de barrière d'environ 25 Å d'aluminium, un plateau de densité non nulle est observé au voisinage de l'énergie de Fermi. Les densités calculées par la théorie de McMillan retracent assez bien la fermeture du gap avec l'épaisseur d'aluminium. Cette géométrie en bicouche avec une barrière résistive est discutée au chapitre 5 dans le cadre de la théorie quasiclassique ainsi qu'au chapitre 6 avec des mesures STM sur des bicouches Nb/Au.

- Proximité sur de grandes distances

La dépendance de la densité d'états dans N en fonction de la distance à l'interface NS a été mesurée par S. Guéron et al. [13]. Avec une méthode de masque suspendu en germanium, ils ont évaporé un fil d'aluminium (S) venant se contacter à un fil de cuivre (N) (Fig 1.8 Gauche) par deux dépôts successifs dans le même vide. L'absence de température de transition du même bicouche Al/Cu jusqu'à 18 mK montre que la supraconductivité est fortement influencée par le métal normal et par conséquent que la transparence d'interface est excellente. Des jonctions tunnel sont ensuite réalisées sur le fil de cuivre (N) à différentes distances de l'interface NS : 200 nm, 300 nm et 800 nm.

Les mesures de densité d'états à 20 mK sur chaque jonction tunnel montrent une évolution en très bon accord avec la théorie (Fig. 1.8 Droite). Ces mesures constituent une

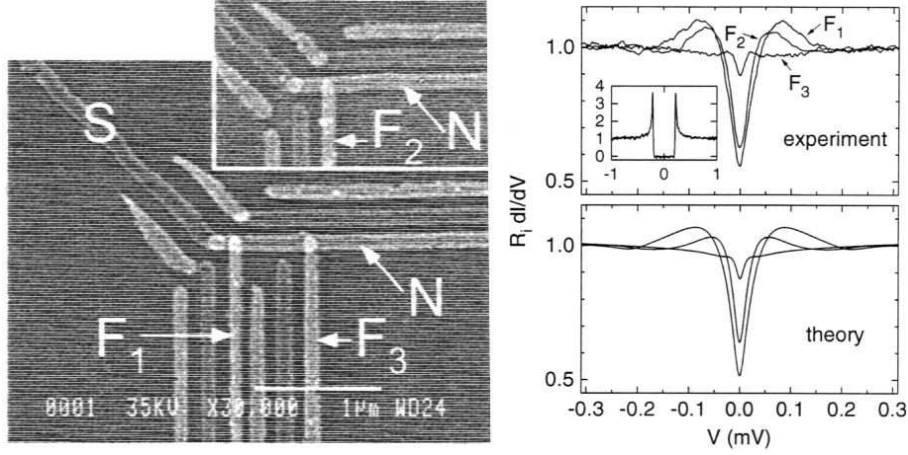


FIG. 1.8 – (*S. Guéron et al. [13]*) (Gauche) Image MEB montrant un fil d'aluminium (*S*) en contact avec un fil de cuivre (*N*) ainsi que trois électrodes de mesure par jonction tunnel *F1*, *F2*, *F3* placés à 200, 300 et 800 nm de l'interface *NS* respectivement. (Droite) Mesure à 20 mK des densités d'états correspondantes complétées au-dessous par les prédictions de la théorie quasiclassique.

solide vérification de la théorie quasiclassique. Les distances à l'interface accessibles par la lithographie électronique et le dépôt sous angle ne permettent cependant pas de descendre au-dessous de 200 nm. De plus, la mesure tunnel moyenne la densité d'états sur la surface totale de jonction qui est relativement importante devant les distances à l'interface. Les comportements prévus de la LDOS à l'interface ainsi qu'à l'intérieur du supraconducteur restent à confirmer.

### 1.4.2 Mesures par STM

La technique STM permet d'aborder les phénomènes de proximité aussi bien à l'échelle nanométrique qu'à l'échelle mésoscopique. Dans une limite de très faible taille d'échantillon devant toutes les longueurs de cohérence  $\xi$  et de libre parcours  $l_p$ , D. J. Van Harlingen et al. [61, 62] ont mesuré la densité d'états à la surface d'îlots d'or déposés sur une surface de  $NbSe_2$ . Ce supraconducteur a été souvent étudié par STM, car il présente une grande richesse de comportements (ondes de densité de charge, vortex anisotropes, états liés) [3, 16]. Ces observations par STM (Fig. 1.9 (Gauche)) à une température de 1,6 K montrent une évolution de la densité d'états avec l'épaisseur d'or (de 0 à 35 Å) sur de très petites échelles. À partir des équations de Bogoliubov - De Gennes, Van Harlingen et al. en déduisent l'existence d'états liés dus au confinement des électrons dans l'île de métal normal. Cette expérience montre la résolution spatiale accessible par la spectroscopie STM.

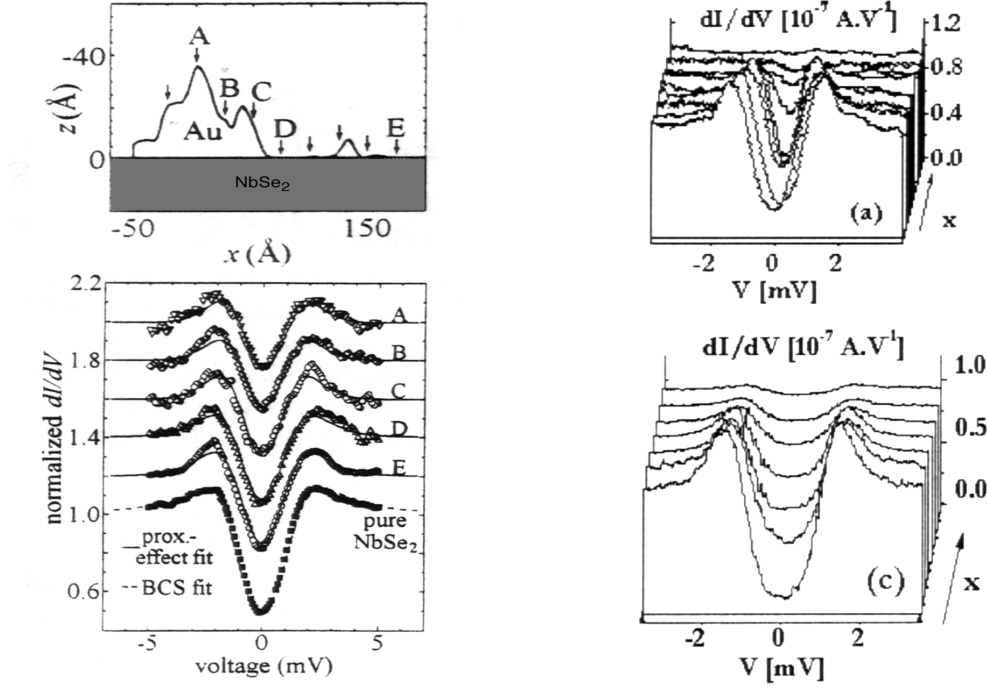


FIG. 1.9 – (Gauche : Van Harlingen et al. [61]) (en haut) Profil STM d'un échantillon de  $\text{NbSe}_2$  recouvert d'un îlot d'or. (en bas) Spectroscopies réalisées à 1,6 K aux positions indiquées sur le profil. (Droite : M. Vinet et al. [63]) Mesures STM à 1,5 K, sur une structure Nb/Au. (en haut) Évolution de la densité d'états en s'éloignant de l'interface sur une longueur totale de  $x=200$  nm. (en bas) Évolution sur 20 nm dans un métal normal de petite taille.

À la température de 1,6 K, l'évolution de la densité d'états expliquée en terme d'états liés reste cependant de l'ordre de l'interprétation.

Dernièrement, des mesures d'effets de proximité par STM à 1,5 K ont été réalisées sur des tailles mésoscopiques par M. Vinet et al. [63] ( Fig 1.9 (Droite)). Dans une géométrie très proche de nos échantillons, ils montrent deux types de comportements de la densité d'états suivant la taille du métal normal (Au) en contact avec le supraconducteur (Nb). Pour de grandes distances, le gap supraconducteur se referme progressivement dans le métal normal en s'éloignant de l'interface (en haut). Avec un métal de taille finie, le gap se remplit mais les pics de densité restent à la même énergie (en bas). D'autres mesures de moindre résolution ont été réalisées auparavant [64].

La physique des effets de proximité avec un métal ferromagnétique (F) connaît actuellement un regain d'intérêt. La présence du champ d'échange du ferromagnétique déséquilibre les deux populations de spin. Les effets de proximité FS [65] présentent alors des carac-



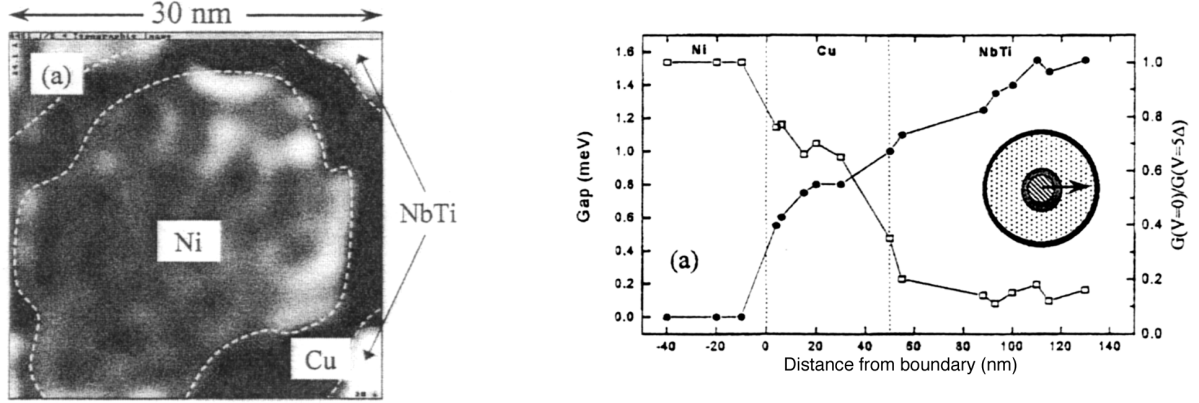


FIG. 1.10 – (Y. Levi, O. Millo et al.) (Droite) Image STM à 4,2 K d'un échantillon multifilamentaire (NbTi/Cu/Ni) présentant les zones des trois métaux et leur interface en lignes pointillées. (Gauche) Amplitude du gap et de la conductance différentielle à énergie nulle en fonction de la distance à l'interface Ni/Cu.

téristiques intéressantes car la réflexion d'Andreev nécessite la présence de deux électrons de spins opposés. En raison du champ d'échange, la pénétration de la supraconductivité est beaucoup plus courte qu'avec un système N-S. Il devient possible avec le STM d'envisager une mesure résolue spatialement de l'évolution de la LDOS dans le ferromagnétique. Une expérience réalisée par A. Yazdani et al. [66, 67] par microscopie tunnel a montré l'évolution de la densité d'états électronique à l'échelle atomique aux abords d'un atome magnétique. Les niveaux d'énergie autour de cet atome ne sont pas identiques pour un électron de spin up et un électron de spin down. Il est alors à vérifier que les mesures de densité d'états montrent une asymétrie des pics de densité supraconducteurs.

Récemment, Y. Levi, O. Millo et al. [68] ont observé par STM la dépendance du gap de manière continue avec la distance à l'interface. Cette mesure est effectuée sur un échantillon multifilamentaire NbTi-Cu-Ni poli dans la section du fil. L'expérience est réalisée à 4,2 K. Les interfaces sont repérées à froid par la différence de hauteur de chaque zone due à la différence de vitesse de polissage de chaque métal (Fig. 1.10 (Gauche)). Les variations de l'amplitude du gap supraconducteur ainsi que le niveau de conductance à l'énergie de Fermi (Fig. 1.10 (Droite)) montrent la pénétration de la supraconductivité (NbTi) sur toute l'épaisseur du métal normal (Cu : 50 nm) et la disparition rapide de la signature supraconductrice dans le métal magnétique (Ni). La longueur moyenne de pénétration dans le cuivre observée est d'environ 100 nm, contre une longueur typique de l'ordre du nanomètre dans le nickel.

Les effets de proximité N-S ont été étudiés depuis plus de 30 ans et ces études sont à l'heure actuelle bien comprises. La résolution spatiale offerte par la microscopie tunnel permettra d'étudier ces effets à des échelles auparavant inaccessibles. Pour cela, nous avons vu qu'il est nécessaire de descendre très bas en température pour chercher des signatures physiques de faible énergie. Les premières expériences avec le STM à très basse température ont été destinées à des mesures de structures N-S en se rapprochant de manière continue de l'interface et en observant les effets de proximité inverse dans le supraconducteur.



## Chapitre 2

# Microscope tunnel à très basse température

Nous nous sommes fixés l'objectif de réaliser un microscope à effet tunnel fonctionnant à la température de notre dilution, environ 60 mK. Ce STM doit pouvoir effectuer des images de grande taille ( $> 5\mu\text{m}$ ) tout en gardant une parfaite stabilité, à la hauteur de la résolution en énergie attendue pour cette température :  $10\text{ }\mu\text{eV}$ . La microscopie de champ proche est un développement relativement récent au laboratoire. A. Bezryadin avait effectué quelques tests de microscopie tunnel à 4 K et jeté ainsi quelques bases d'un système STM. L'expérience en la matière restant assez faible, le développement d'un microscope à très basse température était audacieux. Le laboratoire recèle de nombreuses compétences de mesure bas niveau, de basse température et de fabrication de pièces métalliques de grande précision. La conception, le dessin et la réalisation du microscope se sont faits cependant par tâtonnements successifs.

Pour réduire la complexité technique, la mise en place de l'échantillon et de la pointe dans le microscope est effectuée à l'air libre ou sous atmosphère inerte d'azote et non sous ultravide. Ce choix est influencé par le fait que les échantillons observés doivent généralement être mis à l'air pour être structurés par des procédés standards de micro-électronique. Avant de discuter des différentes composantes techniques du microscope réalisé, nous allons décrire dans un premier temps le type de cryostat utilisé pour mieux rendre compte des contraintes géométriques et thermiques avec lesquelles nous avons travaillé.

## 2.1 Cryogénie

### 2.1.1 Le Sionludi

Le cryostat dont nous disposons a été développé au laboratoire [69]. Sa dénomination vient de sa disposition renversée par rapport à une dilution normale. La platine froide est ainsi placée au sommet du réfrigérateur. Cette inversion est rendue possible grâce à un système de circulation à fort débit du mélange  $^3\text{He}/^4\text{He}$  permettant de refroidir rapidement les étages supérieurs entre 300 K et 1 K. Il n'y a donc pas de garde d'azote comme sur un cryostat à dilution standard. Cinq étages de thermalisation sont disposés de bas en haut avec des températures décroissantes, ce qui permet de poser simplement le dispositif à refroidir sur la platine de cuivre du dernier étage à 50 mK (Fig. 2.1). Celle-ci offre un volume de 13 cm de diamètre sur 13 cm de hauteur, ce qui est relativement important pour ce type de cryostat. Cinq écrans thermiques dorés sont vissés en poupées russes sur les étages afin de diminuer le rayonnement. Le sixième écran extérieur est une cloche à température ambiante dans laquelle est réalisé un vide secondaire. Le même vide est donc utilisé entre tous les écrans ce qui facilite le montage-démontage et permet d'envisager assez simplement l'ouverture d'un accès mécanique direct entre l'extérieur et l'étage de dilution.

Le cryostat comporte un circuit d' $^4\text{He}$  liquide séparé du circuit  $^4\text{He}/^3\text{He}$  (Fig. 2.2). Il est utilisé pour refroidir les étages inférieurs du cryostat ainsi que pour pré-refroidir le mélange  $^4\text{He}/^3\text{He}$ . La circulation d' $^4\text{He}$  est assurée par un vase de 100 l d'hélium liquide porté à une pression de 400 g. L'hélium liquide est injecté directement sur l'étage à 4 K puis redescend à travers un échangeur auquel viennent se thermaliser les deux étages inférieurs à 20 K et 80 K. Le débit est régulé en aval à température et pression normales à une valeur nominale de 1 ml/s (valeur 25 indiquée sur le débitmètre). La chaleur latente de l' $^4\text{He}$  étant de 21 J/g, ce débit assure une puissance frigorifique d'environ 4 mW sur l'étage à 4 K.

Le refroidissement jusqu'à la température de base de la dilution se déroule en trois étapes. A chaque étape, le mélange  $^4\text{He}/^3\text{He}$  est dirigé suivant différents chemins ce qui fait la spécificité du sionludi.

Tout d'abord le refroidissement des deux étages supérieurs entre la température ambiante et 4 K est réalisé par une circulation à fort débit (1 ml/s gaz) du mélange  $^4\text{He}/^3\text{He}$ . Le mélange est thermalisé dans l'échangeur à flux inversé du circuit  $^4\text{He}$ . Il est ensuite injecté au niveau du bouilleur numéro 2, passe à travers la boîte à mélange et le bouilleur numéro 1, puis ressort de la dilution pour être cyclé à nouveau à l'aide d'un compresseur.

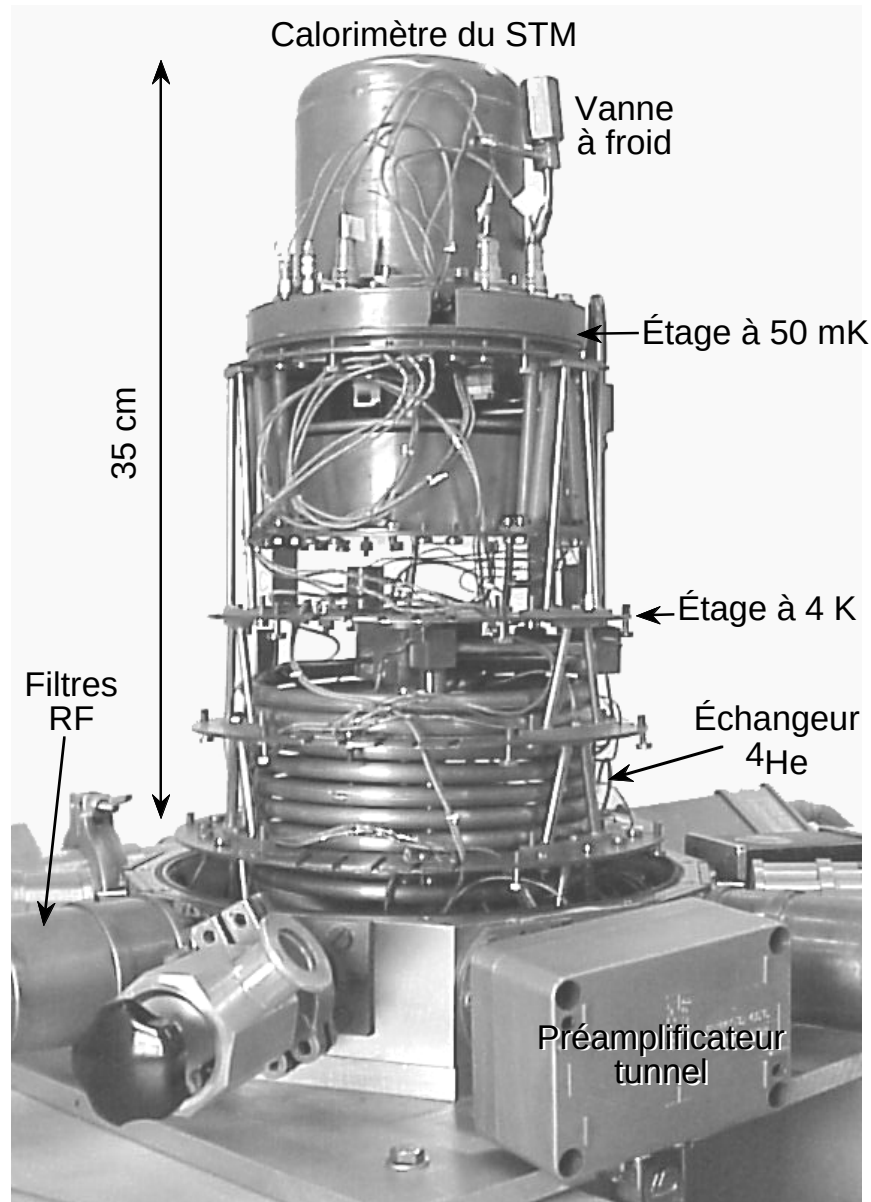


FIG. 2.1 – Photographie du Sionludi avec le calorimètre du STM en place à son sommet.

La masse de cuivre du sionludi étant assez faible, le temps de refroidissement dépend essentiellement du dispositif fixé sur l'étage dilution. À vide, la descente en température jusqu'à 4 K prend environ 4 heures. Avec les deux kilogrammes de cuivre du STM et du calorimètre associé, il faut compter 10 heures.

La seconde étape consiste à refroidir la dilution jusqu'à environ 1,3 K pour condenser le gaz et entamer le remplissage de la boîte à mélange. Le mélange comprimé à 3 Bars à l'entrée du circuit 4K – >1K subit une détente Joule-Thomson juste avant l'injection dans le bouilleur n°2. Cette détente le porte à une température d'environ 1,3 K. Il thermalise

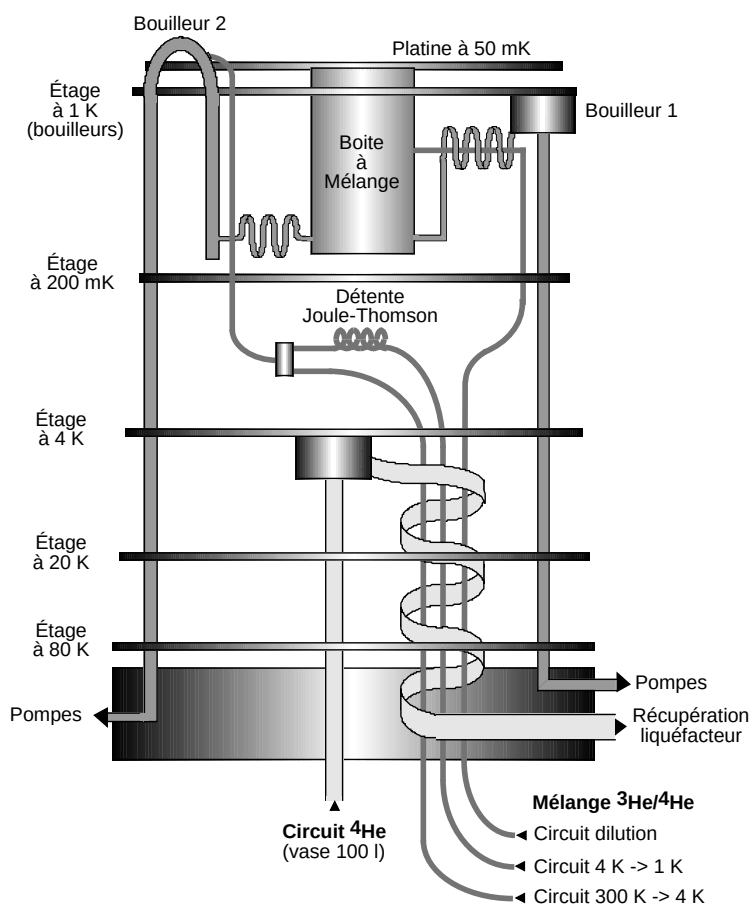


FIG. 2.2 – Schéma du système représentant les différents circuits empruntés par l' $^4\text{He}$  et le mélange  $^3\text{He} / ^4\text{He}$ . Pour gagner en compacité et réaliser un écran thermique entre l'étage 4 K et la boîte à mélange, l'étage à 200 mK est placé au-dessous de l'étage des bouilleurs à 1 K.

ensuite la boîte à mélange et le bouilleur n°1 en empruntant le même chemin que précédemment. Un vide primaire est réalisé à la sortie du bouilleur 1 par une pompe roots et une pompe à palettes. Cette étape est nécessaire car le circuit dilution a un débit trop faible pour thermaliser les étages avec une simple détente. Le débit autour de  $40 \mu\text{l/s}$  (valeur 1 sur le débitmètre) est au moins 10 fois supérieur au débit en mode dilution.

Après 15 minutes, lorsque la moitié du mélange est condensée,  $T \simeq 1,3\text{K}$ , la circulation au niveau du bouilleur 2 est coupée et l'injection se fait alors directement dans la boîte à mélange pour obtenir un régime de dilution standard. Le liquide ne circulant plus dans le bouilleur 2, celui-ci se réchauffe jusqu'à 4 K puis redescend progressivement. Après environ deux heures d'injection, le bouilleur principal n° 1 est rempli. Le système de dilution devient opérationnel et la température tombe à 300 mK en quelques minutes. Le pompage derrière

le bouilleur 2 est alors activé pour gagner en puissance et descendre jusqu'à 50 mK.

Une des astuces du sionludi réside dans l'ajout du second bouilleur. Sans bain d'hélium, un fort débit de mélange est nécessaire pour thermaliser l'étage de dilution entre 300 K et 1 K. Un simple tuyau ferait l'affaire, cependant à basse température, il constituerait une fuite thermique par le gaz qu'il contient. Le transformer en bouilleur permet alors d'esquiver ce problème tout en gagnant en puissance de pompage.

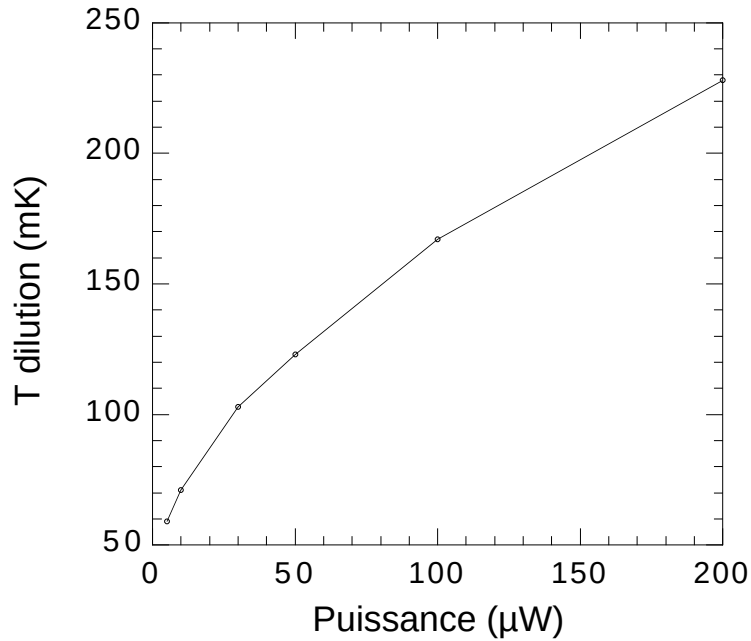


FIG. 2.3 – *Mesure de la puissance frigorifique du sionludi avec le câblage du STM en place.*

La figure 2.3 montre la puissance frigorifique du cryostat mesurée à différentes températures. Cette puissance est linéaire avec le carré de la température.

### 2.1.2 Thermalisation des amenées de tension

Les câbles de connexion entre la température ambiante et l'étage de dilution sont des fils de 1/10 mm en constantan isolés par une gaine plastique et enrobés d'une tresse de 7\*16 fils de constantan 5/100. La tresse est thermalisée tous les 10 à 30 cm sur chaque étage du cryostat. On peut ainsi calculer la chaleur apportée par chaque câble (Tab. 2.1).

Au-dessus de 4 K l'âme centrale se thermalise assez bien sur la tresse extérieure. De plus, la boîte à 4 K est capable de supporter un fort apport de chaleur. Mais à basse



| Étages         | Longueurs | Puissance de conduction |
|----------------|-----------|-------------------------|
| 300 K – > 80 K | 20 cm     | 2,5 W                   |
| 80 K – > 20 K  | 10 cm     | 3,5 mW                  |
| 20 K – > 4 K   | 10 cm     | 0,2 mW                  |
| 4 K – > 1 K    | 30 cm     | 3,5 $\mu$ W             |
| 1 K – > 50 mK  | 30 cm     | 0,2 $\mu$ W             |

TAB. 2.1 – Conduction thermique d’un câble 12 fils avec tresse en constantan thermalisé à chaque étage du sionludi avec les longueurs indiquées.

température, le découplage entre l’âme et la gaine devient important et les fils sont plus difficiles à thermaliser. Nous avons donc laissé une longueur de câble importante de 30 cm entre 1 K et 50 mK. Les câbles sont de plus thermalisés sur l’étage intermédiaire à 200 mK (Fig. 2.2).

La température minimale atteinte par la dilution est de 38 mK avec deux amenées de courants 12 fils et deux câbles coaxiaux pour le courant tunnel et la polarisation. Nous avons eu depuis une petite perte de mélange et avec l’ajout d’un câble 12 fils la température de base est actuellement de 55 mK.

### 2.1.3 Calorimètre, vanne à froid et passages étanches

Pour assurer un refroidissement uniforme et thermaliser les parties qui ne sont pas directement connectées thermiquement à la dilution, le microscope est fermé dans un calorimètre avec un gaz d’échange (Fig. 2.1). Ce calorimètre est une cloche de cuivre scellée par un joint indium sur une embase où sont thermalisés tous les connecteurs du microscope et des thermomètres. Placée sur la cloche, une micro-vanne pointeau fabriquée au laboratoire [70] permet de faire le vide et d’insérer la pression d’hélium désirée pour le gaz d’échange (environ  $10^{-2}$  mbar). Le laiton utilisé pour la vis de serrage présente un coefficient de contraction thermique supérieur à l’incox du pointeau et de la masse de la micro-vanne. Ceci a pour effet de resserrer le pointeau à basse température et assure une étanchéité parfaite. Le refroidissement jusqu’à 4 K serait impossible si une pression d’hélium même très faible était perdue dans le vide d’isolement du cryostat.

Des connecteurs Microtech pour toutes les amenées de tension sont disposés autour de la cloche, sur la base de cuivre du calorimètre. Chaque fil est soudé sous le socle sur un relais en Kapton pour une bonne thermalisation. Les fils passent ensuite au travers d’un passage étanche pour entrer à l’intérieur du calorimètre.

Ces passages nous ont donné du "fil à retordre" car ils doivent être parfaitement étanches même à l' $^4\text{He}$  superfluide. Ils se présentent sous l'aspect d'une vis inox percée de part en part avec une gorge fraisée dans la tête de vis. Un capillaire soudé de manière étanche sur la partie inférieure de la vis remonte à mi-hauteur dans la gorge (Fig. 2.4). Les fils passent au travers du capillaire et l'étanchéité est assurée par le remplissage du capillaire et de la gorge par une colle Stycast [71]. Cette colle est préalablement mise sous vide pour supprimer les bulles d'air présentes dans la pâte d'origine. Le capillaire d'inox est noyé dans la colle dont la contraction à basse température assure une parfaite adhérence sur le métal. L'étanchéité avec la paroi du calorimètre est assurée par un joint indium. La vis utilisée est elle aussi réalisée en inox. En effet, les vis réalisées à partir de

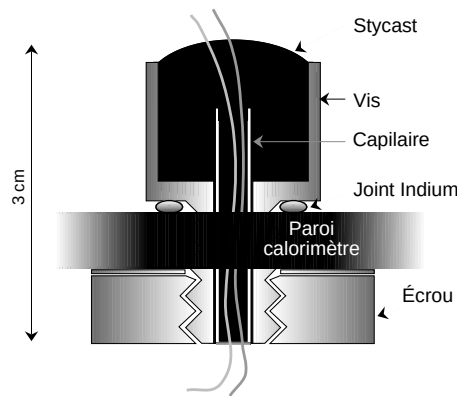


FIG. 2.4 – *Schéma des passages étanches.*

ronds de laiton laminés dans la longueur laissent passer l'hélium superfluide à travers la masse elle-même.

Le système du calorimètre et des micro-connecteurs permet de transporter le microscope très simplement pour le placer dans une boîte à gants par exemple. Il s'installe très rapidement sur l'étage à dilution, ce qui permet de fermer le cryostat en moins de 20 minutes.

## 2.2 Description du STM

Un premier microscope monté dans la dilution a fonctionné pendant un an et a permis de comprendre les points sensibles du montage à très basse température. Il a notamment mis en évidence la nécessité du système compact et rigide du second microscope qui a de suite montré des performances bien supérieures. Afin de capitaliser notre expérience, nous avons conservé les caractéristiques générales de ce système. Le mode de déplacements piézo-

électriques a été gardé, notamment les déplacements inertiels. Les améliorations apportées ont visé essentiellement à obtenir de meilleures stabilité et fiabilité mais aussi une plus grande facilité de mise en œuvre.

### 2.2.1 Déplacements piézo-électriques

Les tubes piézo-électriques utilisés sont des tubes métallisés à l'argent type EBL#2 de Staveley Sensors INC équivalent au type PZT5A. Deux tubes placés de manière concentrique réalisent tous les déplacements nécessaires (Fig. 2.5).

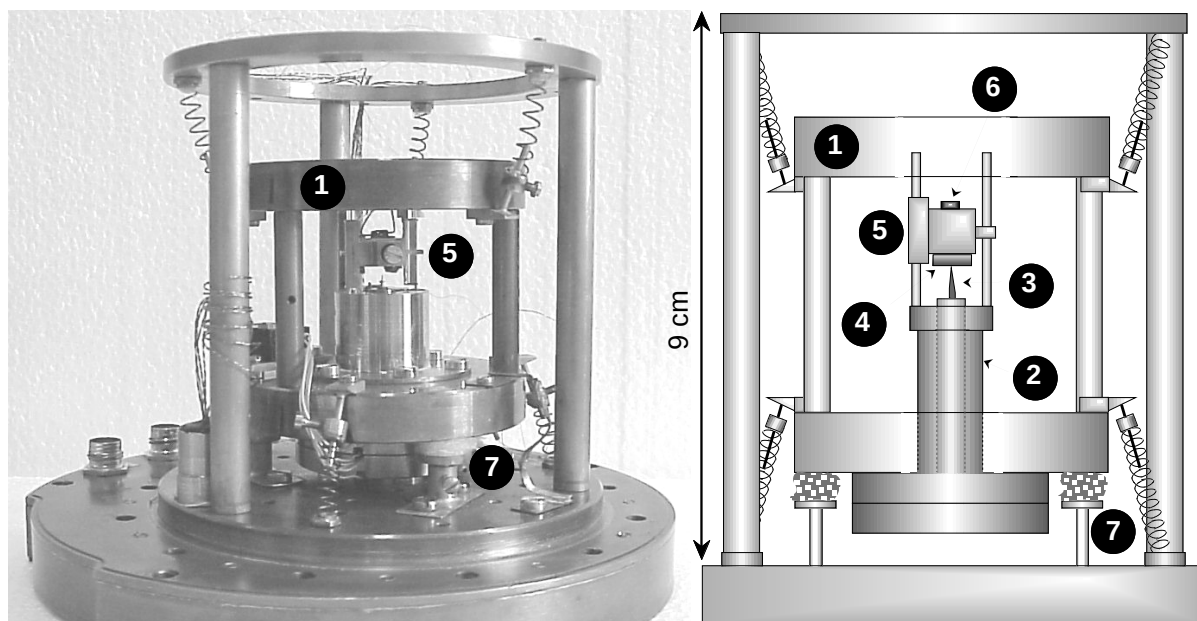


FIG. 2.5 – *Système STM avec suspension. 1 - Étage de suspension, 2 - Deux tubes piézo-électriques concentriques, 3 - Pointe, 4 - Échantillon, 5 - Chariot, 6 - Thermomètre, 7 - Amortisseurs.*

Le tube intérieur [72] est polarisé suivant 4 quadrants de manière à effectuer les mouvements latéraux XY pour l'imagerie. La pointe du microscope est fixée sur ce tube. La cinquième électrode intérieure est utilisée pour approcher ou reculer la pointe à volonté. Cela permet notamment de la retirer lors des pas d'approche rapide, ou d'ajuster le niveau de la régulation.

Le tube extérieur est utilisé pour la régulation z de la distance pointe-échantillon et pour le mécanisme d'approche rapide inertielle. Les rails du chariot inertielle sont solidaires de ce tube.

Les tubes piezo-électriques ont un diamètre de 0,25 et 0,5 pouces avec une épaisseur

de paroi de 0,2 et 0,4 pouces. Avec une longueur de 2 pouces, le premier microscope permettait d'avoir de très grands déplacements ( $20\ \mu\text{m}$ ) à basse température. Cependant les fréquences de résonance assez basses et les problèmes de compacité nous ont conduit à réduire à 1 pouce la taille des piézo-électriques du second microscope. Le balayage est alors réduit d'un facteur 4 ( $5\ \mu\text{m}$ ).

|                                            | 300 K | 4 K   |
|--------------------------------------------|-------|-------|
| $\Delta X/\Delta V$ (nm/V)                 | 70    | 11.9  |
| $\Delta Z_{\text{regul}}/\Delta V$ (nm/V)  | 4     | 1.426 |
| $\Delta Z_{\text{offset}}/\Delta V$ (nm/V) | 7.7   | 2.746 |

TAB. 2.2 – Sensibilités mesurées des déplacements piézo-électriques suivant les différentes directions à 60 mK et à température ambiante.

Le piézo-électrique de balayage est très fragile et sa sensibilité varie avec les contraintes mécaniques subies. Nous l'avons étalonné en réalisant une image d'un échantillon avec des structures de taille connues. Ces sensibilités sont mesurées pour de grands déplacements avec de fortes tensions appliquées aux électrodes, typiquement 200V (Tab. 2.2). Elles peuvent varier de quelques pourcents suivant la longueur de la pointe utilisée. Les sensibilités calculées à partir des données du fabricant donnent à température ambiante  $\Delta X/\Delta V=33,8\ \text{nm/V}$  au niveau du sommet du piézo-électrique. Le déplacement XY étant proportionnel au carré de la longueur du piezo-électrique  $\Delta X \propto L^2$ , l'angle de déviation obtenu au sommet est donné par  $\frac{2\Delta X}{L} \approx 2,7 \cdot 10^{-6}$  rad avec une longueur de piézo-électrique de  $L=2,54\ \text{cm}$  et un déplacement  $\Delta X=33,8\ \text{nm}$ . Pour une longueur de pointe de 1 cm avec son système de fixation, la correction au déplacement est alors de 27 nm pour un déplacement total de 61 nm, proche de la sensibilité mesurée à 70 nm/V. Le calcul de la sensibilité verticale du piézo-électrique de régulation de la distance pointe/échantillon donne  $\Delta Z_{\text{regul}}/\Delta V=4.3\ \text{nm/V}$  très proche de la valeur mesurée à température ambiante, 4 nm/V.

Les piézo-électriques restent cependant des composants peu linéaires pour de grands déplacements avec de fortes tensions. On ne peut notamment pas balayer une image alternativement dans les deux sens, l'aller et le retour étant décalés parfois d'une fraction de micron. Ces effets d'hystérésis doivent être pris en compte pour avoir un positionnement reproductible au cours d'une même expérience. Les images présentent aussi fréquemment d'importants défauts de symétrie sur les bords là où les tensions appliquées sont les plus

fortes. Ces déviations au comportement linéaire sont reproductibles et peuvent être étalonnées avec précision [73, 74].

Les images grand champ doivent s'acquérir en général très lentement, la fréquence de lecture de chaque point ne dépassant généralement pas 500 Hz. Une image large champ implique en général un fort relief et donc aussi un fort gain de la boucle de régulation. Les images atomiques quant à elles doivent être prises en quelques secondes à plusieurs kiloHertz. Dans les deux cas, les résonances des piézo-électriques doivent être repoussées vers les hautes fréquences. Pour l'imagerie large champ, le gain est si important que la moindre vibration s'amplifie rapidement. Pour l'imagerie atomique, les degrés de liberté du système sont directement excités par la vitesse du balayage. Avec les tubes de 1 pouce, des fréquences de 5 kHz sont généralement observées, parfois 1,7 kHz. De manière générale ces oscillations apparaissent lorsque les conditions de courant tunnel sont mauvaises. Contrairement aux tubes 2 pouces du premier prototype, ces fréquences disparaissent assez rapidement s'il n'y a pas de bruit extérieur pour les entretenir.

Les fréquences de vibration des tubes piézo-électriques peuvent être calculées [75] pour les modes de flexion et d'élongation. Pour le mode flexion, la fréquence de résonance sans masse fixée sur le tube est donnée par

$$w_x \sim \left(\frac{1,88}{l}\right)^2 \frac{a}{\sqrt{2\rho S_{11}}} \quad (2.1)$$

où  $a$  et  $l$  sont le rayon et la longueur du tube,  $\rho$  la masse volumique de la céramique et  $S_{11} = \frac{1}{Y_{11}}$  la compliance qui est l'inverse du module de Young  $Y_{11}$ . Avec une masse  $m$  sur le tube, l'expression devient

$$w_x \approx \sqrt{\frac{3a^2 A}{2mS_{11}l^3}} \quad (2.2)$$

avec  $A$  la surface du tube dans la section. La fréquence de résonance d'élongation en l'absence de masse s'écrit

$$w_z = \frac{\pi}{2}(l\sqrt{\rho S_{11}}) \quad (2.3)$$

et

$$w_z \sim \sqrt{\frac{A}{mS_{11}l}} \quad (2.4)$$

avec une masse fixée au sommet. Le tableau 2.3 indique les valeurs calculées pour notre configuration ainsi que les fréquences mesurées à basse température. La vibration observée à 5 kHz semble provenir du mode de flexion du petit tube intérieur dont la masse peut être légèrement inférieure à 1 gramme. La vibration à 1,7 kHz visible essentiellement à basse température, peut provenir du mode flexion du tube extérieur. Ce tube est en effet surmonté des rails de saphir et du chariot de déplacement inertiel d'une masse totale de 18 gr. Si l'on considère que la longueur totale du piézo-électrique est supérieure à 1 pouce

(4 cm) pour tenir compte de la position de la masse, on retrouve la fréquence observée à 1,7 kHz. À basse température, la contraction des matériaux peut libérer certains degrés de liberté et engendrer des vibrations imperceptibles à température ambiante.

| Type de résonance    | Piézo intérieur<br>$m \approx 1$ gr | Piézo extérieur<br>$m \approx 18$ gr | Fréquences<br>observées |
|----------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|-------------------------|
| Flexion $m=0$        | 5,7 kHz                             | 11 kHz                               | 5 kHz                   |
| Flexion masse $m$    | 3,7 kHz                             | 3,5 kHz                              | 1,7 kHz                 |
| Élongation $m=0$     | 28 kHz                              | 28 kHz                               |                         |
| Élongation masse $m$ | 24 kHz                              | 11,4 kHz                             |                         |

TAB. 2.3 – Fréquences de résonance calculées et mesurées pour les deux tubes piézo-électriques.

### 2.2.2 Montage de la tête tunnel

Chaque tube piézo-électrique est collé au Stycast sur un support ayant la même géométrie pour le tube intérieur et pour le tube extérieur. En symétrisant ainsi les chemins mécaniques, les contractions thermiques pendant le refroidissement évoluent dans le même sens et gardent la même amplitude pour chaque tube.

Malgré ces précautions, les refroidissements en maintenant un contact tunnel ne sont pas possibles. Les vitesses de dilatations différentielles observées atteignent  $1 \mu\text{m}/\text{minute}$  pour une descente en température de  $0,4^\circ/\text{minutes}$ . Un gradient thermique dans les tubes peut expliquer de tels déplacements. Nous avons en effet observé que ces effets étaient réduits par la présence d'un gaz d'échange utilisé pour refroidir les parties du microscope mal thermalisées.

Les pièces en contact avec les piézo-électriques ont été réalisées en titane. Ce métal possède les mêmes coefficients de dilatation thermique que les céramiques, ce qui permet de diminuer les contraintes mécaniques au cours des cyclages en température [76]. Les contacts électriques sur les électrodes d'argent des piézo-électriques sont réalisés avec une colle époxy argent. Le vieillissement de la colle et les fortes tensions appliquées font que des particules d'argent migrent aux interfaces entre deux électrodes et créent parfois un court circuit. Il est alors nécessaire de nettoyer régulièrement les piézo-électriques. Il est possible de faire les contacts avec une soudure étain saturée à l'argent en évitant de chauffer le piézo-électrique trop longtemps.

Le montage doit être soigné tout particulièrement pour un STM monté dans une dilution car la moindre fuite électrique, engendrée par une poussière par exemple, peut empêcher le refroidissement jusqu'à la température de base du réfrigérateur. Une tension de 100V dans une résistance de fuite de 10 M $\Omega$  donne 1 mW de puissance ce qui correspond à la puissance frigorifique de la dilution à 500 mK. Les contacts à la masse et entre les électrodes sont donc régulièrement testés à des polarisations allant jusqu'à 200 V.

Avec les fortes rampes de tension appliquées notamment pour les impulsions d'approche inertielle, les piézo-électriques ont tendance à se dépolariser et à se détériorer. Le problème a été rencontré et nous a obligé à changer le tube extérieur qui affichait une résistance nulle entre l'électrode intérieure et extérieure.

### 2.2.3 Isolation du circuit bas niveau

Pour les connections du circuit bas niveau du courant tunnel, nous avons essayé d'éviter les perturbations créées par les fortes variations de tension sur la surface des électrodes piézo-électriques.

La pointe est ainsi isolée d'un vis-à-vis direct avec les tubes par une pièce de titane à l'intérieur de laquelle elle est enfichée. Une garde de cuivre entoure quasi entièrement les tubes piézo-électriques. Seule une ouverture laisse dépasser la pointe et le système de déplacement rapide inertiel. Les fils de connexion de l'échantillon et de la pointe arrivent par le côté et voient donc au minimum les surfaces polarisées. Malgré ces précautions la trace des impulsions d'approche rapide est visible sur le courant tunnel. C'est le chariot de déplacement inertiel qui capte par capacité les signaux piézo-électriques. Les variations de charges induites par ces signaux se traduisent par un courant tunnel proportionnel à la dérivée des impulsions. Cependant, pour les spectroscopies avec une barrière tunnel statique et pendant une image où les déplacements sont relativement lents, les variations de potentiel sur les piézo-électriques ne sont pas assez fortes pour influencer la mesure. En fait, la signature des impulsions d'approche rapide est un bon test à basse température de la qualité du contact électrique sur le piézo-électrique ainsi que sur l'échantillon.

### 2.2.4 Les déplacements inertiels

Ce mode de déplacement sur de grandes distances est considéré en général comme peu reproductible. Il est vrai que la mise au point et l'ajustement des paramètres sont délicats, mais les mauvais fonctionnements rencontrés ont toujours pu être compris, voire rationalisés, puis solutionnés. Ce système de déplacement est de plus très compact et sa

simplicité et sa rapidité de mise en œuvre assurent une très grande stabilité sur le long terme avec un minimum d'entretien.

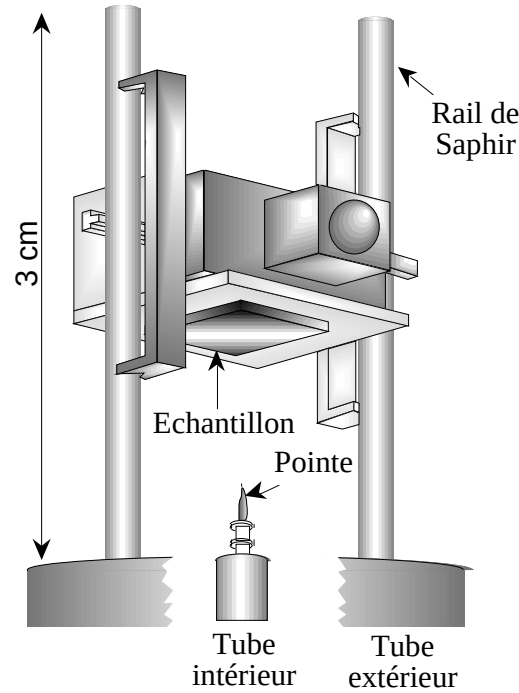


FIG. 2.6 – Schéma détaillé du chariot de déplacement inertiel.

- Principe

Le principe du déplacement inertiel est de faire glisser un chariot en secouant de manière adéquate le tube piézo-électrique auquel il est maintenu (Fig. 2.6). La surface sur laquelle se déplace le chariot doit être lisse et uniforme pour assurer un glissement régulier. Le frottement se traduit essentiellement par deux quantités : la force de décrochement qu'il faut dépasser pour faire glisser le chariot et la force de glissement qui peut être prise comme constante aux vitesses considérées.

Le déplacement se déroule en deux phases. Tout d'abord le piézo-électrique donne une accélération ( $a_{ec}$ ) inférieure à l'accélération de décrochement ( $a_{decroch}$ ) pour communiquer une énergie cinétique au chariot. Puis une forte accélération en sens contraire permet de dépasser la force de décrochement pour faire glisser le chariot et opérer ainsi le déplacement.

- Géométrie du système

Notre système de déplacement inertiel utilise deux rails de saphirs collés sur le piézo-électrique extérieur. Le chariot peut glisser sur ces rails avec un frottement réglable. Ce chariot reprend le modèle imaginé par Ch. Renner et al. [77]. Il est composé de deux pièces



tenues entre elles par un ressort et qui mordent les rails de saphirs. La force de friction est contrôlée par la compression du ressort maintenu à l'intérieur de l'une des pièces. Le saphir est utilisé pour sa qualité de surface et sa faible abrasion. Le chariot est en laiton, métal autolubrifiant qui adhère peu au saphir.

Chaque pièce possède trois pieds en contact avec les tubes de saphir. Avec cette configuration, chaque pied a un contact bien défini et le système ne risque pas de vibrer. Pour éviter que chaque partie ne tourne autour de l'axe du ressort, deux pieds sur trois sont formés en V de manière à guider le déplacement. Le troisième reste plat pour accepter les dilatations thermiques de la distance entre les deux tubes.

- Impulsions d'approches rapides

Les impulsions utilisées sont des doubles paraboles de manière à imposer des accélérations constantes pendant la quasi-totalité de l'impulsion (Fig. 2.7). Le point de décrochement est ainsi bien caractérisé et le piézo-électrique n'est pas trop perturbé. La forme des impulsions est contrôlée par un générateur de fonctions arbitraires sur 4096 points échantillonnés à une fréquence allant jusqu'à 2 MHz.

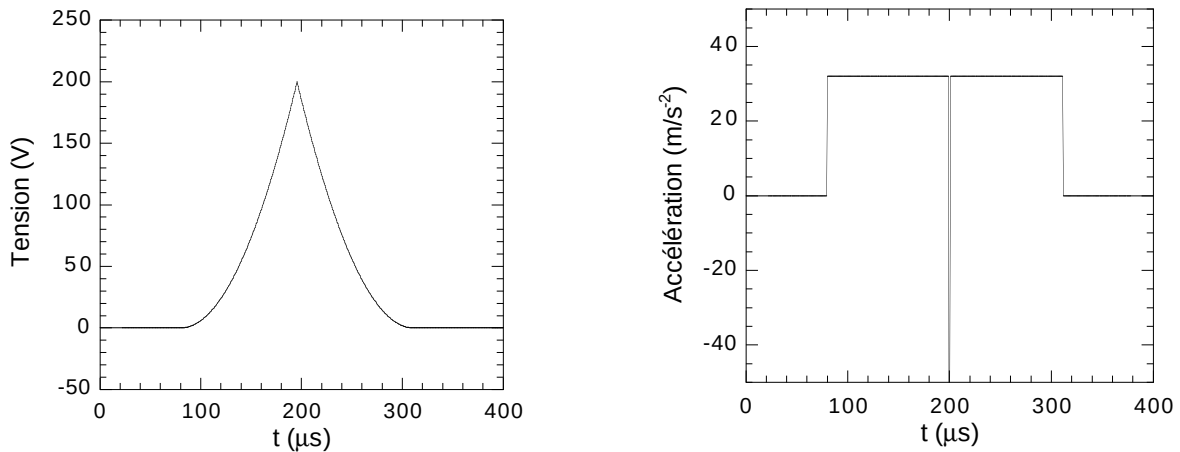


FIG. 2.7 – (Gauche) Forme de l'impulsion envoyée au piézo-électrique extérieur pour un pas d'approche inertiel. (Droite) Profil d'accélération imposé au chariot de déplacement inertiel avec la forme d'impulsion ci-contre.

Si au lieu de la seconde parabole on impose un retour immédiat en position de départ, le piézo-électrique subit deux fortes accélérations de sens opposé quasiment au même instant. Les fréquences de résonances sont alors fortement excitées, la réponse du piézo-électrique est moins linéaire et les déplacements inertiels chaotiques.

- Déplacements verticaux et réglages

La masse du chariot est critique si l'on veut se déplacer verticalement. En effet les piézo-

électriques génèrent des accélérations limitées. Le domaine de validité des accélérations et forces de frottement s'exprime :

$$\text{vers le bas : } a_{ec} < F/m + g \text{ et } a_{decroch} > F/m - g$$

$$\text{vers le haut : } a_{ec} < F/m - g \text{ et } a_{decroch} > F/m + g$$

Ainsi, l'énergie cinétique ( $a_{ec}$ ) que l'on peut communiquer au chariot se déplaçant vers le haut est plus faible que vers le bas. De plus, vers le haut, l'accélération qu'il faut communiquer pour faire glisser le chariot est plus importante. Un chariot mal réglé, s'il ne reste pas bloqué, a tendance à tomber vers le bas quelles que soient les impulsions. Notamment avec un chariot très léger, le frottement devant être réglé avec beaucoup de finesse, il est difficile d'ajuster correctement le rapport  $F/m$ . Il est cependant intéressant d'alléger le chariot de manière à équilibrer l'amplitude des pas suivant les deux directions de déplacement.

Si la surface de contact du métal a été écrasée, la force de décrochement augmente et le chariot se déplace par à-coup lorsqu'on lui applique une force. Un nettoyage régulier des surfaces de saphir et le passage d'un papier de verre fin sur les pattes du chariot améliorent grandement la reproductibilité des déplacements.

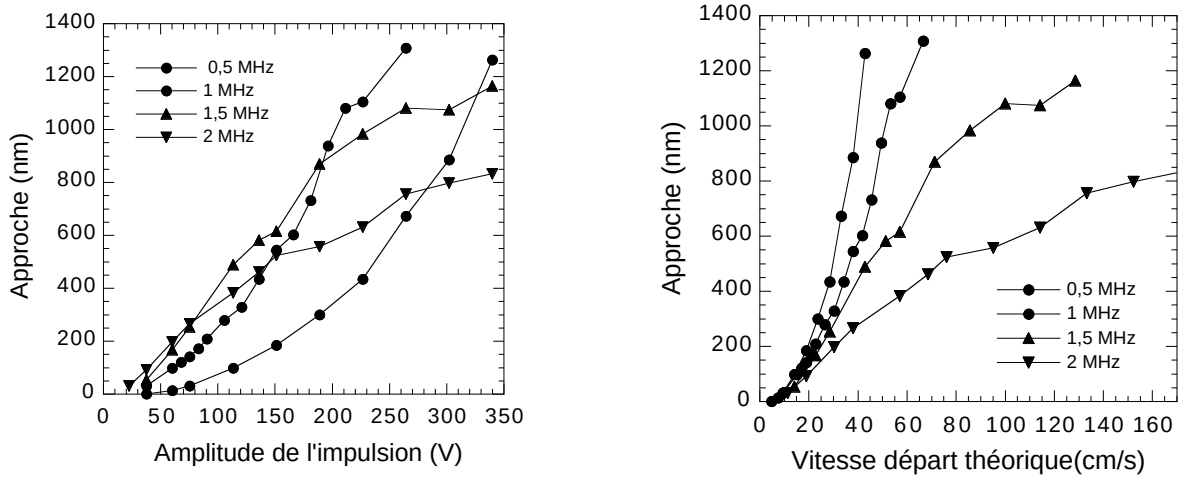


FIG. 2.8 – (Gauche) Comportement à température ambiante des déplacements en fonction l'amplitude d'impulsion pour différentes vitesses de rampe. Une fréquence d'échantillonnage de 2 MHz correspond à une rampe de tension de 120  $\mu$ s. (Droite) Même données que la figure de gauche représentées par rapport à la vitesse théorique acquise par le chariot au point de rebroussement.

La dernière version du chariot pèse 12 g et le réglage du frottement est fixé à 40 g vers le bas et 55 g vers le haut. Les forces de décrochement ne sont pas isotropes. La différence de frottement devrait être en effet de 24 g. Avec ces paramètres, l'accélération de décroche-

ment est de  $33 \text{ m/s}^2$  vers le bas et  $46 \text{ m/s}^2$  vers le haut. Un réglage de frottement un peu plus fort permet un déplacement plus important mais moins fiable à basse température. En effet, les constantes piézo-électriques sont divisées d'un facteur 4 à 5 à 4 K. À tension égale, les vitesses mises en jeu ainsi que l'amplitude des déplacements sont donc elles aussi divisées du même facteur. L'amplitude des impulsions doit être alors augmentée à basse température. Il est de plus possible de jouer sur la vitesse des impulsions.

- Effets de la vitesse des impulsions

Si l'on réduit la vitesse de la rampe de tension (fréquences plus faibles), l'amplitude des pas se rapproche d'un comportement parabolique. Le déplacement attendu est en effet fonction de l'énergie cinétique du chariot (Fig. 2.8). La figure de droite montre les déplacements du chariot en fonction de la vitesse qu'il devrait avoir au point de décrochement. Cette figure montre que plus on augmente la fréquence d'impulsion, moins cette vitesse théorique est atteinte. Le chariot semble donc glisser avant le point de décrochement. Afin de réaliser des déplacements contrôlés, il serait nécessaire de fixer la fréquence à 0,5 MHz. Cependant à 4 Kelvins, pour une même énergie cinétique communiquée, l'amplitude de tension à appliquer en diminuant la fréquence à cette valeur devient très importante. De plus le chariot peut rester bloqué à basse température, l'accélération de décrochement variant avec les impuretés gelées sur la surface des rails de saphir. Par mesure de précaution, nous avons fixé la durée de la rampe à  $120 \mu\text{s}$  soit une fréquence de 2 MHz.

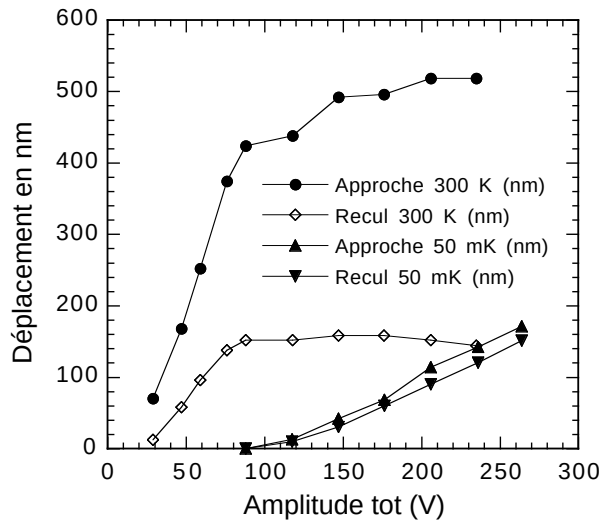


FIG. 2.9 – Déplacements d'approche et de recul en fonction de l'amplitude de l'impulsion envoyée sur les piézo-électriques à température ambiante et à 50 mK.

- Amplitudes d'impulsions et température

À chaud, les impulsions ont une amplitude d'environ 60 V, ce qui donne une accélération

$a_{ec}=32 \text{ m/s}^2$ . L'amplitude des signaux est augmentée linéairement avec la température décroissante pour avoir une amplitude de 305 V à 4K avec une accélération  $a_{ec}= 30 \text{ m/s}^2$ . Ces paramètres sont ajustés très proches de l'accélération  $a_{decroch}=33 \text{ m/s}^2$  pour avoir des déplacements effectifs importants. La figure 2.9 montre l'amplitude des pas à 300 K et à 50 mK. A température ambiante, la longueur des pas présente une saturation avec l'amplitude des impulsions. Cet effet est relié lui aussi au glissement du chariot avant le point de décrochement.

Avec les réglages mentionnés et les précautions sur la qualité des surfaces de glissement, les déplacements observés sont reproductibles. A basse température, les pas sont en moyenne de 100 nm. En raison des dérives thermiques, le contact tunnel n'est établi qu'à basse température. La distance pointe/échantillon est ajustée à l'oeil à environ 1 mm à température ambiante. Lorsque le cryostat atteint 60 K, il faut entre 2000 et 5000 pas d'approche pour accéder au contact tunnel.

### 2.2.5 Suspension et amortissement du bruit mécanique

Le courant dans la jonction tunnel du STM varie exponentiellement avec la distance pointe/échantillon. La moindre perturbation mécanique est alors fortement amplifiée dans une gamme de fréquence de 0 à  $\approx 10 \text{ kHz}$ , suivant la bande passante de la boucle de régulation. Il est parfois nécessaire d'introduire un filtre électronique pour échapper à certaines vibrations propres au système. Il n'est cependant pas possible de filtrer chaque fréquence individuellement et la seule règle efficace est de réaliser le dispositif le plus stable possible. Les oscillations mécaniques provenant de l'extérieur doivent être filtrées jusqu'aux fréquences les plus faibles pour qu'elles n'excitent pas les fréquences de la tête tunnel qui elles, doivent être repoussées vers les hautes fréquences.

Malgré un espace important en terme de volume sur l'étage dilution, la place disponible en hauteur est faible et une suspension pendulaire avec un ressort unique n'est pas adéquate. L'expérience du premier microscope utilisant une suspension réalisée par trois ressorts, a montré que le point d'attache des ressorts doit être placé bien au-dessus du centre de gravité de la suspension, de manière à minimiser l'amplitude des modes de rotation. Ceci laisse une longueur maximum de ressort d'environ 4 cm. De plus, le cryostat entier se trouve sur vérins hydrauliques et de par la disposition du système, ce premier étage engendre des oscillations latérales d'environ 2 Hz. Le système de ressorts pour la tête tunnel doit alors s'écarter de cette fréquence de résonance.

Le second système mis en place a été fortement influencé par cette première expérience et des choix ont été faits, notamment en terme d'alourdissement de la tête, qui peuvent

apparaître contradictoires dans un cryostat à dilution à refroidissement rapide. Le socle et les pièces de la tête tunnel du second microscope ont été alourdies de manière à réaliser un système compact et très rigide de 500g. Deux anneaux de cuivre sont disposés de manière à placer la pointe et l'échantillon au centre de gravité du dispositif. Ceci permet de diminuer l'amplitude des oscillations de rotation au niveau de la pointe. Afin de ne pas laisser de mouvements libres, six ressorts étirés, trois en haut et trois en bas, couplent les six degrés de liberté de rotation et de translation de la suspension. Là aussi, la pointe est au centre des points d'attache des ressorts. Les fréquences de résonance dans les différents modes sont observés autour de 10 Hz et sont amortis par frottement avec une mousse polyester placée en contact léger. Les amortissements par courant de Foucault utilisés pour le premier prototype, nécessiteraient ici des champs magnétiques très importants, difficiles à réaliser et susceptibles de perturber la mesure de supraconducteurs.

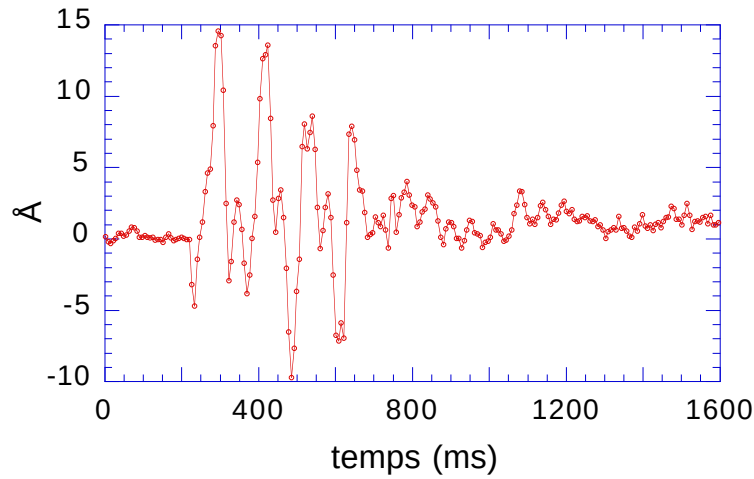


FIG. 2.10 – Oscillations à 8,25 Hz enregistrées sur la régulation après un choc important sur l'étage de suspension de la dilution.

Des mesures d'oscillations engendrées par un choc important sur la suspension du sionludi ont montré l'existence de plusieurs fréquences de résonances correspondant aux différents modes de vibration de la tête suspendue. La figure 2.10 présente une mesure typique aux plus basses fréquences. Le coefficient d'amortissement exponentiel mesuré est de  $\gamma = 4,3s^{-1}$  avec une oscillation  $f_1=8,25$  Hz ce qui donne un facteur de qualité de 12.

Le cryostat lui-même ne génère pas beaucoup de vibrations. Des mesures avec un accéléromètre placé sur la dilution à température ambiante n'ont pas permis d'observer de vibrations générées par les pompes en fonctionnement. En observant le bruit du courant tunnel, nous avons cependant pu remarquer des impulsions chaotiques provenant de l'ébullition du mélange  $^3\text{He}/^4\text{He}$  dans une zone de température entre 1 K et 500 mK. Cette zone de température correspond à la mise en route du circuit dilution, alors que la circulation

au niveau du bouilleur n°2 est interrompue. Ceci peut conduire en effet à l'ébullition du mélange présent dans ce bouilleur.

Deux phénomènes restent susceptibles de créer des perturbations. Le vase avec le circuit d' $^4\text{He}$  en ébullition ainsi que l'injection du mélange pulsé par le compresseur. Ce dernier peut être court-circuité et arrêté lorsque le cryostat atteint sa température de base, mais aucun changement significatif n'est observé en terme de vibration.

Quelques améliorations au niveau de la suspension comme un allègement substantiel des anneaux de cuivre et un abaissement de la fréquence de résonance peuvent être apportées. Cependant le dispositif reste très stable ce qui pousse nos investigations plutôt vers l'élimination des fréquences de résonances plus élevées engendrées par les différentes pièces rapportées à la tête tunnel.

### 2.2.6 Fixation de la pointe

La pointe est collée à la laque d'argent dans la partie mâle d'un micro-connecteur doré percé dans la longueur. Cette partie mâle s'enfiche dans le connecteur femelle placé sur la pièce de titane collée sur le tube piézo-électrique intérieur. Le changement de pointe est ainsi facilité. Cependant le connecteur ne doit pas vibrer. La partie femelle est donc rigidifiée en soudant les pièces mobiles intérieures. La lame souple qui permet de plaquer le connecteur mâle est en partie soudée dans cette opération si bien que le contact des deux pièces est assez dur. Ces précautions sont nécessaires car la plupart des connecteurs commerciaux permettent des déplacements de quelques dixièmes de millimètre.

### 2.2.7 Thermalisation du microscope

Jusqu'à 4 K, la tête tunnel est refroidie par le gaz d'échange du calorimètre. Pour piéger les impuretés contenues dans le gaz, des charbons actifs sont thermalisés sur les parois du calorimètre. A 4 K, l'hélium se condense dans ces charbons et le refroidissement du microscope se fait alors par une tresse de cuivre reliant le bloc de suspension et les pièces de titane au calorimètre. L'échantillon avec le chariot de déplacement inertiel sont également thermalisés par le fil du courant tunnel lui-même. Pour obtenir un bon contact thermique, ce fil est soudé à l'argent sur le porte échantillon de cuivre fixé sous le chariot.

Trois thermomètres assurent le suivi de la température du système et un chauffage placé sur le chariot permet le dégazage de la surface de l'échantillon. Pendant le pompage du calorimètre avant l'insertion du gaz d'échange, le chariot est chauffé à 70°C pour éli-

miner l'eau condensée avant la fermeture. Ensuite, pendant le refroidissement jusqu'à 60 K, le chariot est maintenu à 30° au-dessus de la température du cryostat de manière à cryopomper les gaz sur les surfaces froides.

Un thermomètre de platine placé sur le calorimètre permet de suivre la température du cryostat avec un ohmmètre connecté par bus GPIB à l'ordinateur. Une détection synchrone mesure la température d'un second thermomètre platine placé sur le côté du chariot. Elle régule la température de celui-ci par le chauffage placé sur le coté opposé avec la consigne indiquée par l'ordinateur. Le chauffage est une résistance de jauge de contrainte de 350  $\Omega$  isolée électriquement du chariot par un substrat de saphir. Cet isolement est nécessaire car la masse entière du chariot est au potentiel de l'échantillon et les colles époxy d'une fraction de millimètre d'épaisseur n'ont qu'une résistance de quelques dizaines de M $\Omega$ . Sans cette précaution, les 40V appliqués pour chauffer le chariot suffisent à saturer le courant tunnel.

Un dernier thermomètre de carbone est collé sur la face supérieure du chariot, à l'opposé de l'échantillon, pour la mesure des températures inférieures à 1 K. Tous les fils de mesure des thermomètres arrivant sur le chariot sont en constantan, mauvais conducteur thermique et de faible diamètre (5/100 mm). La puissance apportée entre 50 mK et 1 K par ces 10 fils est calculée à 1,7 nW contre 31  $\mu$ W pour le seul fil de cuivre de mesure tunnel (de 1/10 mm de diamètre) arrivant sur l'échantillon. La température mesurée par la résistance de carbone est donc peu perturbée par la présence des fils de constantan. Elle indique donc une valeur très proche de la température de l'échantillon.

Les pas d'approche rapide sont directement détectables à très basse température sur ce thermomètre de carbone. Un seul pas fait remonter la température du chariot instantanément vers 100 mK. La température d'équilibre de 60 mK est alors retrouvée en 5 minutes environ. Des pas inertiels en continu à un rythme de 10 pas par seconde font remonter la température de la dilution à 350 mK et le chariot à environ 1 K. Ceci correspond à une puissance injectée d'environ 250  $\mu$ W (Fig. 2.3). Il y a deux contributions à cette énergie dissipée. Tout d'abord, les pertes mécaniques du piézo-électrique qui correspondent à 1/100<sup>eme</sup> de la puissance injectée (facteur de qualité  $\approx$  100). De plus, sachant que la capacité du piézo-électrique est d'environ 3 nF, une seconde puissance est dissipée par le courant dans la résistance des câbles haute tension au niveau de la dilution (environ 5% de la résistance totale des amenées de tension). La perte totale est donnée par  $W=(1/100+5/100) C V^2 \approx 16 \mu$ W par rampe de tension de 300 V. Avec deux rampes par pas inertiel et 10 pas par secondes, on retrouve l'ordre de grandeur de la puissance dissipée mesurée sur la dilution.

Comme nous venons de le voir, la microscopie à très basse température demande quelques soins particuliers au niveau des puissances dissipées. Les très fortes tensions

qu'il est nécessaire d'appliquer pour obtenir de grands déplacements piézo-électriques impliquent de bons contacts électriques sans aucune fuite à la masse. Les matériaux utilisés doivent être correctement choisis pour assurer une bonne thermalisation ou pour assurer l'étanchéité à l' $^4\text{He}$  superfluide. Par rapport à un système à 4 K, ce sont essentiellement ces deux contraintes auxquelles nous avons porté une attention particulière. Le système dans son ensemble reste très stable et reproductible. Sa rapidité de mise en œuvre nous a permis d'effectuer environ 40 refroidissements sur 8 mois avec seulement 5 échecs dus à des erreurs de manipulations.

Des extensions sont déjà prévues ou testées sous forme de prototypes pour étendre les possibilités du microscope. Un système de déplacements XY sur de grandes distances est prêt à être incorporé au STM avec un minimum de modifications. Ceci permettra de déplacer la zone de travail sur une surface totale d'environ  $1\text{ mm}^2$ . De même, une bobine de champ magnétique placée sur la pièce de titane servant de socle à la pointe tunnel permettra d'appliquer un champ d'environ 50 mT au niveau de l'échantillon. Nous avons cependant repoussé ces étapes à plus tard afin de garder un microscope le plus stable possible pour la mesure d'effets de proximité.





# Chapitre 3

## Électronique et sensibilité de mesure

Tout l'appareillage électronique a été réalisé au service électronique du laboratoire, ce qui a permis de faire évoluer facilement le système en fonction des besoins. Le logiciel de contrôle du STM et de la thermométrie a été entièrement programmé en langage C ce qui a permis là-aussi de rajouter progressivement des fonctions en interaction avec les évolutions du cryostat et du STM. Nous aborderons dans un premier temps le système électronique réalisé ainsi que quelques éléments de l'interfaçage informatique. La seconde partie de ce chapitre est réservée à l'acquisition des images et des spectroscopies. Nous présentons quelques images réalisées à basse température montrant les difficultés rencontrées pour le balayage de grandes surfaces. Les tests de performances et de stabilité des spectroscopies seront ensuite exposés, suivis de certains phénomènes liés à la mesures très localisée du STM.

### 3.1 Aspects généraux du dispositif électronique

La boucle de régulation de la distance pointe échantillon est le dispositif électronique de base du microscope. Il comprend un préamplificateur pour détecter le courant tunnel, un régulateur intégrateur et un amplificateur haute tension qui actionne les piézo-électriques. Cette boucle de régulation analogique est indépendante de l'ordinateur de contrôle. Parallèlement, une carte synchrone et un générateur de fonctions arbitraires pilotés par l'ordinateur permettent de réaliser les déplacements piézo-électriques, de contrôler la polarisation de la pointe et d'effectuer les mesures. La figure 3.1 présente les principaux éléments de ce dispositif.

Le potentiel de référence du système électronique dans son ensemble est donné par

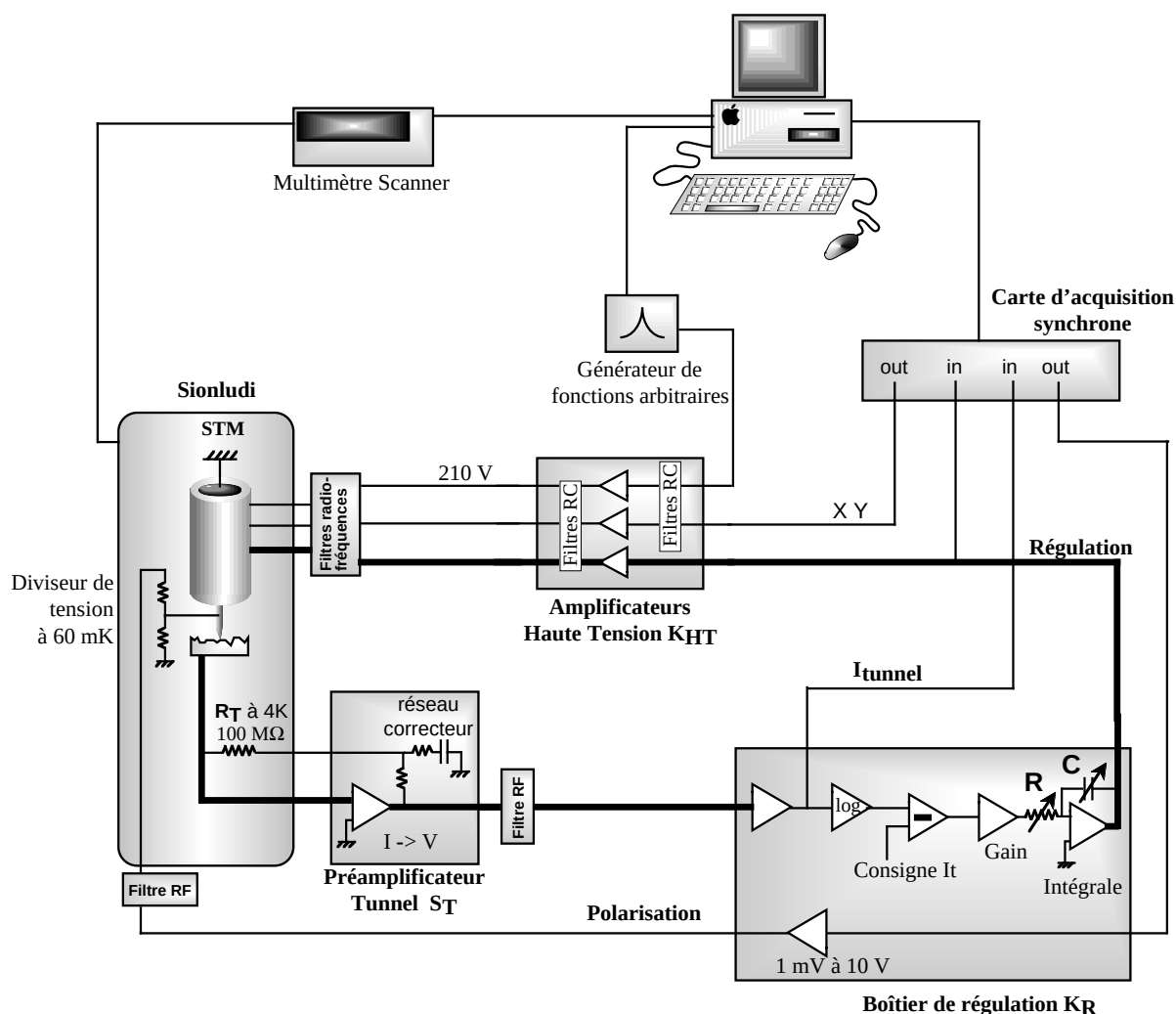


FIG. 3.1 – Schéma général du dispositif électronique de contrôle du microscope.

le sionludi. Toutes les masses ont été découplées de la terre du secteur avec un simple adaptateur sur les prises secteur ou une diode Zener. Les boucles de masse ont été éliminées notamment autour du circuit bas niveau du courant tunnel et de la polarisation.

Tous les câbles entrant dans le cryostat sont filtrés aux fréquences supérieures à 100 kHz. Des filtres spécifiques ont été construits pour les commandes haute tension des piézo-électriques. Des filtres  $\pi$  avec une fréquence de coupure vers 1 GHz sont installés à l'entrée de la polarisation ainsi qu'à l'entrée de l'amplificateur tunnel. Ce dispositif réduit fortement le bruit électromagnétique ambiant. Un filtrage à très basse température serait nécessaire afin d'éliminer le bruit thermique susceptible de perturber les spectroscopies tunnel. Ceci demande cependant un fort développement technique et surtout une place importante pour les 24 câbles arrivant sur l'étage dilution. Ceci n'a pas encore été mis en œuvre.

## 3.2 Électronique d'asservissement tunnel

### 3.2.1 Polarisation de la pointe

La polarisation est contrôlée par un convertisseur digital/analogique (DAC) via le boîtier régulateur de courant tunnel. Ce dernier utilise le signe de la polarisation pour calculer la valeur absolue du courant tunnel. De plus, le régulateur permet de fixer la gamme de polarisation à 10 V, 1 V, 100 mV ou 10 mV. La résolution du DAC  $\pm 10$  V (18 Bits) est de  $76 \mu\text{V}$ . Avec la gamme de 100 mV généralement utilisée, la résolution en sortie boîtier régulateur est de 760 nV avec un bruit de l'ordre du  $\text{nV}/\sqrt{Hz}$ . Afin de réduire encore le bruit, un second étage est placé à 50 mK sous le calorimètre du microscope. Deux résistances de carbone de  $1\text{M}\Omega$  au total réalisent une division d'un facteur 10. Avec une gamme de 10 mV, la résolution de la polarisation est de 76 nV. Les résistances du pont diviseur évoluant beaucoup à basse température, il a été nécessaire de les cycler plusieurs fois en température et de calibrer régulièrement la division de potentiel.

Ce pont diviseur engendre une asymétrie des fils de polarisation et de mesure du courant tunnel. Ainsi, les effets thermoélectriques induits dans chaque câble ne se compensent plus et l'on voit apparaître alors un décalage de polarisation sur les spectroscopies. Cet effet peut induire des variations de polarisation allant jusqu'à 4 mV. Ce décalage n'est pas exactement reproductible entre chaque refroidissement. Les spectroscopies doivent alors être systématiquement décalées de la même valeur à chaque refroidissement. Nous avons installé un offset réglable sur le régulateur pour compenser cet effet.

### 3.2.2 Préamplificateur tunnel

La préamplification du courant tunnel doit permettre de mesurer des courants avec une précision meilleure qu'un pico-Ampère et d'avoir une bande passante d'environ 10 kHz pour l'imagerie rapide. La mesure du courant tunnel est réalisée par un amplificateur opérationnel [78] avec une résistance de contre réaction de  $R_T=100 \text{ M}\Omega$ . La sensibilité de l'étage d'amplification est alors de  $S_T = R_T = 100 \text{ mV/nA}$ .

La fréquence de coupure de ce système est donnée par le produit de la résistance de contre réaction  $R_T$  par sa capacité parasite  $C_T$ . Elle a été mesurée environ à 2 kHz. Nous avons allongé un peu cette gamme de fréquence en ajoutant un réseau correcteur en sortie de l'amplificateur opérationnel (Fig. 3.1) [24]. La première fréquence de coupure est ainsi rattrapée jusqu'à 15 kHz par ce réseau correcteur. Ce réseau n'ajoute aucun bruit au système.

L'amplificateur opérationnel doit être choisi avec un faible bruit en courant d'entrée par rapport au courant tunnel. Ce bruit se traduit à basse fréquence par un plafond minimum, typiquement  $\Delta I_{AO}=2 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Le bruit en tension d'entrée ( $\Delta V_{AO}$ ) de l'amplificateur opérationnel induit pour sa part un courant qui est absorbé par les différentes capacités sur la ligne de mesure tunnel : la capacité de la résistance de contre-réaction, la capacité d'entrée de l'ampli. op. et essentiellement la capacité linéique du câble. Ce bruit en tension engendre alors une remontée linéaire du bruit avec la fréquence  $\omega$  :  $\Delta I = C \cdot \omega \cdot \Delta V_{AO} + \Delta I_{AO}$ . Nous avons donc choisi un câble coaxial de faible capacité linéique (30 pF/m) et avons réduit sa longueur totale à environ un mètre de manière à conserver une bande passante raisonnable. Pour cette raison, il n'est pas possible d'envisager introduire un filtre RC classique sur cette ligne pour évacuer le bruit thermique haute fréquence arrivant sur la jonction tunnel. Le câble est par ailleurs traité antibruit par une gaine de téflon recouverte de carbone, en contact avec la tresse extérieure. Ceci permet de s'affranchir du bruit des charges électrostatiques engendrées par les frottements de la gaine.

Le bruit mesuré est de  $13 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  ( $130 \text{ } \mu\text{V}/\sqrt{\text{Hz}}$ ) jusqu'à 300 Hz puis augmente linéairement avec la fréquence jusqu'à  $50 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  à 10 kHz et  $80 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  à 20 kHz. Le

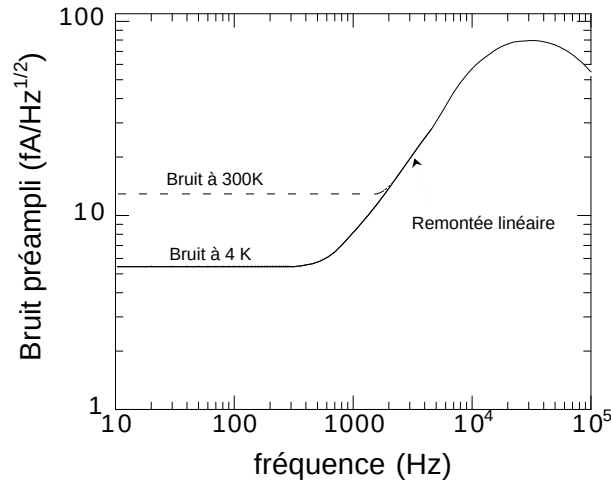


FIG. 3.2 – Schéma du bruit mesuré à la sortie du préamplificateur avec la résistance de contre réaction placée sur l'étage 4K du sionludi. Les valeurs de bruit indiquées correspondent à une mesure sur une résistance tunnel infinie.

bruit Johnson en courant d'une résistance  $R_T$  à la température T est donné par

$$\Delta I_{Johnson} = \sqrt{\frac{4k_B T \Delta f}{R}} \quad (3.1)$$

ce qui donne un bruit de  $12,8 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  à 300 K et  $1,5 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  à 4 K. Le bruit basse fréquence mesuré correspond ainsi en grande partie au bruit de la résistance placée à

température ambiante. Pour diminuer cet effet ainsi que les autres bruits sur l'ampli. op., nous avons testé plusieurs dispositifs d'amplification placés sur l'étage à 4 K de la dilution. Les FET utilisés ne présentent pas tous les mêmes comportements à basse température. Il faut de plus trouver un juste milieu entre deux caractéristiques antagonistes que sont le faible bruit en courant d'entrée du FET et sa faible capacité d'entrée.

Nous avons alors opté pour une solution intermédiaire. L'amplificateur opérationnel est laissé à température ambiante, mais la résistance de contre-réaction tunnel est placée sur l'étage à 4 K afin de diminuer son bruit Johnson (Fig. 3.1). Les résistances métalliques de forte valeur que nous avons mesurées divergent au-dessous de 2 K. Il n'a donc pas été possible de placer cette résistance de contre réaction sur l'étage de dilution. Néanmoins, les performances sur le bruit ont été améliorées d'un facteur 2 à basse fréquence avec un bruit de  $5,5 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  (Fig. 3.2) composé du bruit de la résistance tunnel et du bruit de courant d'entrée de l'amplificateur opérationnel.

### 3.2.3 Amplificateurs haute tension

Les tensions piézo-électriques sont réalisées par 7 amplificateurs  $\pm 220 \text{ V}$  actionnables par des relais. De manière à stabiliser la jonction tunnel pendant les spectroscopies, des filtres haute tension avec une fréquence de coupure de  $0,5 \text{ Hz}$  ont été placés à la sortie de chaque amplificateur. Le bruit en sortie est en effet de quelques millivolts sur  $100 \text{ Hz}$ , ce qui induit des vibrations d'une fraction d'angström, notamment sur le balayage XY. Ces filtres RC sont commandés par des relais et sont laissés actifs durant toute la durée de la mesure spectroscopique. Lorsque les filtres sont inactifs, une capacité se charge en permanence de manière à pouvoir commuter les filtres instantanément. Cette capacité peut atténuer les fortes variations de tensions en sortie des amplificateurs. La valeur des composants doit être ajustée de manière à ce que le courant absorbé pendant une rampe de tension rapide (impulsions d'approche inertielle) ne dépasse pas le courant de sortie maximum (de  $25 \text{ mA}$ ) des amplificateurs.

### 3.2.4 Régulateur de courant tunnel

À l'entrée du régulateur, le logarithme du courant tunnel mesuré est comparé à un courant de consigne. Le courant tunnel dépendant exponentiellement de la distance pointe-échantillon, ceci permet de linéariser la boucle de contre réaction. Le signal d'erreur est intégré avec une capacité de  $C=1 \text{ }\mu\text{F}$  et une résistance ajustable entre  $R=100 \text{ }\Omega$  et  $10 \text{ M}\Omega$ . Un relais permet notamment de commuter automatiquement entre deux résistances

adaptées à l'imagerie ou à une mesure spectroscopique.

- Réponse en fréquence

Le temps de réponse de la régulation dépend du gain total  $G$  du système de régulation en boucle ouverte. On définit le gain  $G_o$  de la boucle sans l'intégrateur, tel que  $G = \frac{G_o}{RC\omega}$ . Lorsque la constante de temps de la régulation  $RC$  est importante (supérieure à 1 ms), la réponse à une variation instantanée  $\Delta z$  de la distance pointe échantillon est exponentielle :  $\Delta z(t) = \Delta z_o e^{-\frac{G_o}{RC}t}$  [14]. Le gain  $G_o$  est le produit des différents gains de la boucle : le facteur décrivant l'évolution du courant tunnel avec la distance pointe-échantillon (2k) (Équation 1.4), le gain logarithmique de la régulation ( $K_{log}$ ), le gain des amplis haute tension ( $K_{HT}$ ) et la sensibilité des piézo-électriques ( $S_P$ ). On a alors

$$G_o = 2k \cdot K_{log} \cdot K_{HT} \cdot S_P. \quad (3.2)$$

Le gain  $K_{log}$  est défini par la réponse à une variation de courant tunnel à la sortie de l'amplificateur logarithmique  $V_{log} = K_{log} \ln(I)$ . Le courant tunnel de consigne ( $I_o$ ) et la sensibilité du préamplificateur tunnel n'interviennent que par un décalage logarithmique. Le gain a été spécifié à  $K_{log}=0,68$  V. On peut retrouver ce gain en mesurant la fonction de transfert de la régulation. Pour cela, on envoie sur l'entrée "courant tunnel" de la régulation une petite modulation ajoutée à une tension DC correspondant à 30 pA qui est une valeur typique de la consigne pendant une imagerie. La réponse à la sortie de la régulation en fonction de la fréquence de modulation est présentée sur la figure 3.3. La fonction de transfert pour un courant de 30 pA est alors donnée par  $\frac{K_R}{RC\omega}$  avec un gain  $K_R = 200$ . On retrouve alors le gain logarithmique avec la sensibilité  $S_T$  du préamplificateur par  $K_{log} = K_R * S_T * I_o \approx 0,6$ .

À basse température, avec un gain  $K_{HT}=4$  sur l'amplificateur HT de la contre réaction, une sensibilité piézo-électrique de  $S_P=14,3$  Å/V et un coefficient exponentiel du courant tunnel de  $2k=1$  Å<sup>-1</sup>, le gain de la boucle est estimé à  $G_o \approx 39$ . Avec la résistance de régulation de 100 kΩ généralement utilisée, la fréquence de coupure est alors de  $f_c = \frac{G_o}{2\pi RC} \approx 620$  Hz. Une fréquence de coupure aussi basse est utilisée pour réaliser des images avec un gain relativement fort sur les amplificateurs haute tension.

Le comportement en fréquence de la boucle entière peut-être mesurée en appliquant une modulation sur la polarisation de la pointe. On mesure alors des oscillations de quelques angströms dans les mêmes conditions qu'une imagerie atomique. La figure 3.4 montre que ce type d'image peut être capturé jusqu'à environ 5 kHz avec une résistance de contre-réaction  $R=3,3$  kΩ.

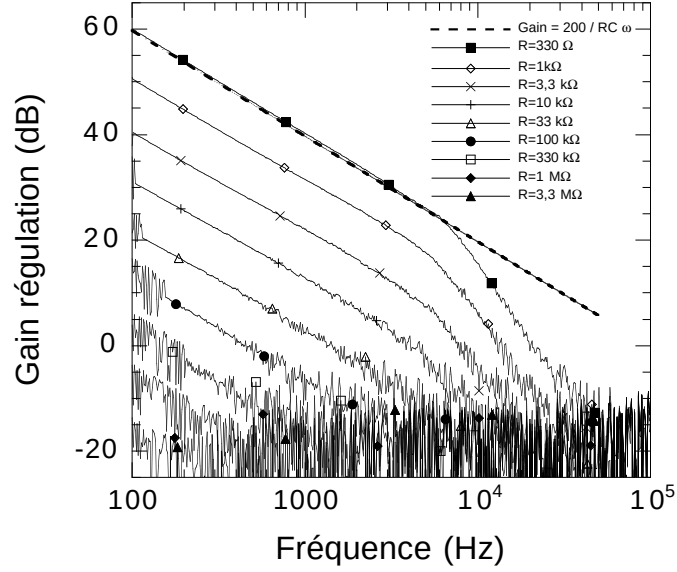


FIG. 3.3 – Mesure de la fonction de transfert de la régulation avec un courant de consigne de 30 pA.

- Vitesse de réaction

Pour les images de large champ avec des reliefs abrupts, il faut s'assurer que la pointe ait le temps de se retirer à l'approche d'une structure. Lorsqu'on approche instantanément la pointe de la surface de l'échantillon, le courant tunnel sature à la tension de sortie maximum de l'amplificateur. La régulation se déplace alors linéairement avec une vitesse maximum dépendant de la résistance  $R$  de régulation et du courant tunnel de consigne  $I_o$ . Cette vitesse maximum est calculée en considérant le signal d'erreur obtenu à la sortie de l'amplificateur logarithmique. Elle a été mesurée et s'exprime :

$$v_{réaction} \propto \frac{K_{log} \cdot K_{HT} \cdot S_P}{RC} \ln \left( \frac{I_{sat.}}{I_o} \right) \approx \frac{K_{HT} \cdot S_P}{RC} \cdot [8,5 - K_{log} \ln(I_o)] \text{ (/s)} \quad (3.3)$$

avec le courant tunnel exprimé en pico-Ampères. Les paramètres d'imagerie sont donc réglés à l'aide de cette contrainte. Il faut estimer notamment la vitesse de déplacement latéral de la pointe. Il est nécessaire pour des échantillons réalisés par gravure plasma avec des flancs de structures quasiment verticaux de fixer cette vitesse  $v_{réaction}$  à une valeur bien supérieure à la hauteur des motifs divisée par le temps de déplacement entre deux pixels.

Les déplacements sont discrétisés par l'ordinateur à la sortie des convertisseurs digital/analogique (DAC) et le temps de déplacement est inférieur à 10  $\mu$ s. Pour adoucir ces rampes de déplacement, des filtres RC à l'entrée des amplificateurs HT sont réglés à environ  $1/5^{ème}$  du temps passé sur chaque pixel.



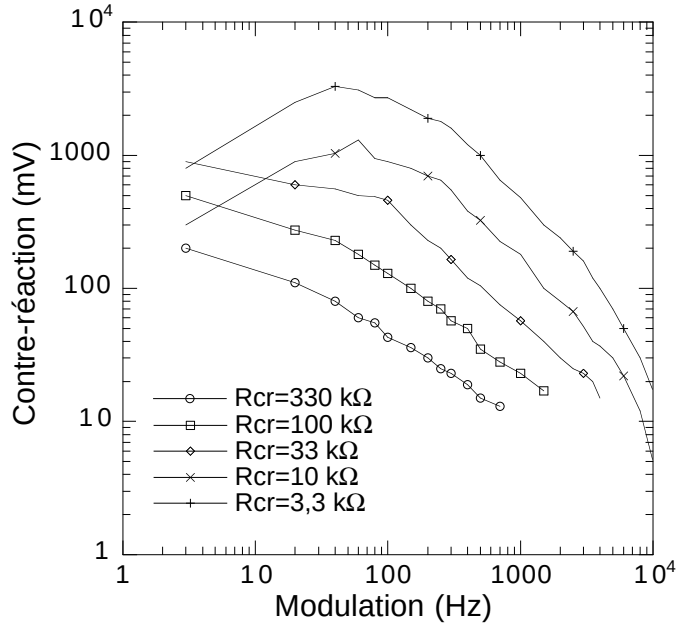


FIG. 3.4 – Amplitude de la réponse de la régulation à une modulation de 40 mV appliquée sur la polarisation de la pointe tunnel en fonction de la fréquence. Mesure à température ambiante avec un gain 1 sur l'ampli HT et un courant de consigne de 50 pA sur un échantillon de HOPG.

### 3.3 Informatique de contrôle

#### 3.3.1 Interface avec l'ordinateur

Les appareils commerciaux, tel le générateur de fonctions arbitraires Wavetek et le multimètre scanner Keithley, sont commandés par GPIB. Les relais utilisés pour l'activation des déplacements inertiels ou des filtres basse fréquence au niveau des amplificateurs HT sont contrôlés par une carte DIO 96 voies. Les convertisseurs digital/analogique (DAC) pour la consigne de courant tunnel entre autres sont commandés via une interface série en RS232. Toutes les mesures, imagerie et spectroscopies, sont réalisées par une carte synchrone développée au laboratoire. Cette carte pilote les déplacements X et Y ainsi que la polarisation de la pointe. Elle gère aussi des relais, notamment la coupure de la régulation pendant les spectroscopies.

### 3.3.2 Carte d'acquisition synchrone 3D

Cette carte contient par un EPLD programmable capable d'opérer une dizaine de macro-instructions. La routine de base implémentée dans la PROM correspond à un déplacement sur les DAC X, Y et Polarisation, suivi d'un temps d'attente  $t_{att}$  et d'une lecture sur le convertisseur Analogique/Digital moyennée sur un temps de mesure  $t_{mes}$ . Les temps sont comptés en unité de  $6,4 \mu s$  avec un maximum de  $6,55 ms$  pour  $t_{mes}$  et de  $655 ms$  pour  $t_{att}$ . Les DAC sont adressés sur 18 bits et la lecture se fait sur 16 bits. Une seconde routine permet de réaliser  $n$  déplacements avec une mesure à chaque pas.

Les instructions venant de l'ordinateur peuvent soit être traitées directement, soit être stockées dans la FIFO de la carte 3D avec une limite de 3276 commandes, puis exécutées séquentiellement. Les mesures sont renvoyées à l'ordinateur par l'intermédiaire d'un bus PCI avec des informations sur l'état de remplissage de la FIFO de la carte 3D. Cela permet notamment de stopper ou relancer l'envoi d'instructions pendant l'exécution d'une grande quantité de commandes.

### 3.3.3 Logiciel

Le logiciel de contrôle a été écrit en langage C avec une librairie d'interfaces graphiques développée au laboratoire et nommée "Manip". Cependant pour le traitement des images, affichage, correction de pente et limitation des sauts de pointes, nous avons développé une interface spécifique plus rapide que celle proposée par Manip.

Le tableau de bord (Fig. 3.5) est structuré essentiellement en 4 fenêtres. La fenêtre "Paramètres Imagerie" contrôle tous les déplacements piézo-électriques ainsi que les vitesses de balayage. La fenêtre "Paramètres Tunnel" permet de régler la consigne tunnel, la polarisation et les paramètres de spectroscopies  $I(V)$  ou  $\frac{dI}{dV}(V)$  avec la détection synchrone. La fenêtre "Paramètres thermométrie et Approche rapide" gère la mesure et la régulation de température, les paramètres d'approche inertielle et de mesure de travail de sortie. Enfin la fenêtre "Correction d'image" permet de traiter rapidement les images avec certaines fonctions qui ne sont pas disponibles dans les logiciels de traitement standards.

Fichier

Edition

Manip

Paramètres

Imagerie

Spectroscopie

Déplacements

Fenêtre

Aide

9:36

Paramètres imagerie

Gain HT

21

Gain CR (tours)

8

Repos

Balayage de

à

X

0

-100

-5333 nm

100

5333 nm

Y

0

-100

-5333 nm

100

5333 nm

Tps attente (ms)

10

Tps mesure

10

Vitesse imagerie

3984.4 nm/s

32.8 min./image

Nb. de points

256

Retrait

Off

N° image

1

Régulation

On

N° ligne en cours

1

Lit regul.

On

Nb. lignes Diag.

1

T° 4 K

☐

Vit. d'approche

100

nm/sec

Δx

2

○ Déplacement

Nb. Sp.

10

Δy

0

Offset régulation

←

+

près

+

loin

→

0

V

Retrait

Approche

Seuil

5

V

Mes. Hauteur

Paramètres tunnel

DÉTECTION SYNCHRONE

Filtres

BPF Q30

Fréquence de mesure

333

Hz

Amplitude de modulation

0

mV

Cste de tps

0.1

Sensibilité

1

mV

Tps rétablissement DS

1

s

Nb. pts de moyennage

100

s

POLARISATION DE LA POINTE

R tunnel = 3333 MΩ

I tunnel

30

pA

R spectro

☐

I déplacement

30

pA

Gamme

100

Valeur courante

100

mV

Vmin

-100

mV

Vmax

100.000

mV

MESURE

Nombre de pts

128

Tps d'attente

0.5

ms

Tps mesure

10

ms

Cste de tps réguli.

0.5

et

3

s

Nombre de moyennes

10

N° du dernier fichier

1

Filtres

☒

Al efface

15

A

Paramètres expérimentaux :

Courant tunnel

30.0

POLARISATION DE LA POINTE

Gamme de tension

10.000 mV

MESURE

Gamme de résistance du therm.

100.000 KΩhm

HAUTE TENSION

Valeur courant de la rés. du therm.

11.328 KΩhm

gain

21.000

Balayeage x, valeur min.

-208.000 U

Vol. max.

208.000 U

Balayeage y, valeur min.

-208.000 U

Vol. max.

208.000 U

gain courant-tension

10000000000.000 U/R

Attente entre chq point :

40.000 ms

temps de mesure f

Nb. de pixels

180

Gain CR

8.000

Polar

Temperature

<4K

Image Mar30/00à15h28-Essai-7

Effacer

Vx

-42.99

V

-511.63

nm

Fermer

Vy

112.72

V

1377.38

nm

Zoom balay

Vz

11.37

V

85.06

nm

Δh=-425.54 Å

Δx=-8020 Å

Δy=-5112 Å

ΔL=9511 Å

Bobine

Gamme

10 mA

Délai (s)

2

Courant (A)

0.00

Envoi

☐

CC

Contraste

0

Luminosité

0

Correction de pente :

Auto

selon x

0

0°

selon y

0

0°

Saut chariot

0

Moyenne sur

1

points

Ecriture dans mémoire vive :

Ecriture

+ optim. contraste

Paramètres therm. et appr.

Type :

sinus doux + paraboles

Recul/Approche

1

Nombre de pas

25000

Amplitude (V)

4.80

Tdrl = ??

-10

CR: seuil d'arrêt (V)

2000

Fréquence Wavetek (kHz)

2000

Approche très rapide

☐

THERMOMETRIE CHARIOT

Mesure

1

Gamme (KΩ)

0.012

KΩ

Valeur courante

Pt100

20.5

K

Température

30

K

Consigne AT chauffage

Essai

Nom de manip

TRAVAIL SORTIE

Gain voie 5 HT3 affiché

600

Balayage Max (V)

0.01

9.7 Å

Initialisations GPIB et IMPCI faites

DS initialisée

Mar103/000a09h32

print

FIG. 3.5 – Tableau de bord du programme de contrôle du microscope.

## 3.4 Mesures topographiques

### 3.4.1 Imagerie

Les images grand champ sont réalisées avec des temps de balayages très lents, typiquement  $t_{att}=6,4$  ms et  $t_{mes}=6,4$  ms. Pour des reliefs supérieurs à 100 nm, le temps d'attente peut être réglé jusqu'à 100 ms. Les filtres RC à l'entrée des amplificateurs haute tension sont ajustés en conséquence. Le gain sur les amplificateurs haute tension devant être important pour ce type d'imagerie, la constante de temps de régulation doit être assez élevée, avec typiquement  $R=100$  k $\Omega$  pour couper les oscillations de haute fréquence. Nous nous sommes fixés une limite maximum de vitesse de balayage de 500 nm/s. Ces précautions limitent le contact de la pointe avec la surface. La contre-partie est le temps d'acquisition qui ne peut généralement pas descendre au-dessous de 30 minutes (Fig. 3.6 (Gauche)).

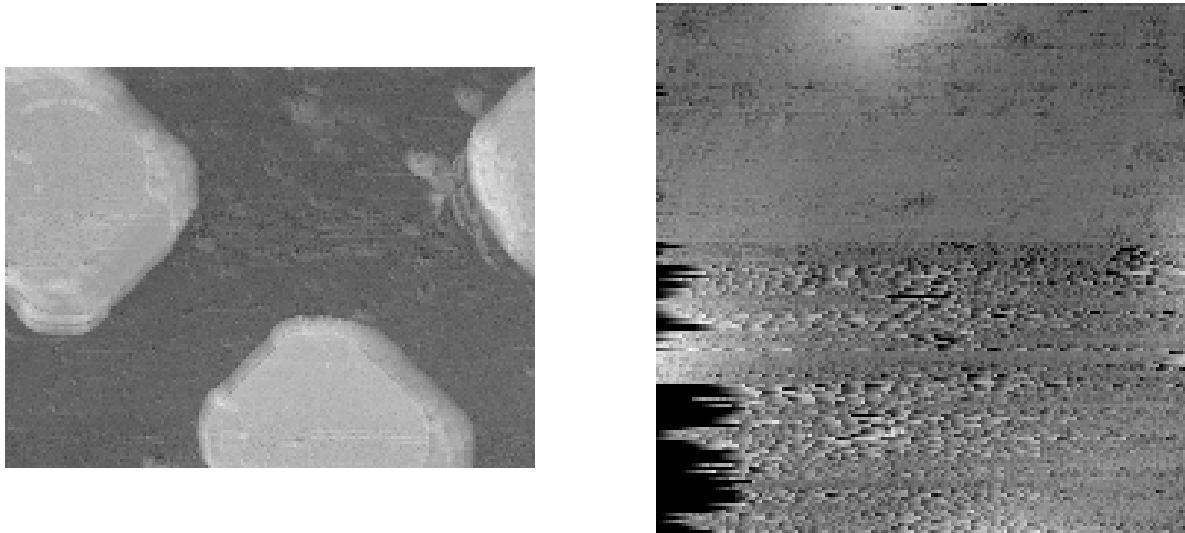


FIG. 3.6 – (Gauche) Image STM à 60 mK d'un réseau de plots de niobium de  $2 \times 2$   $\mu\text{m}$  et 400 Å de hauteur, recouverts d'une couche uniforme d'or. On reconnaît l'effet de la taille de la pointe par un élargissement des bords de plots. (Droite) Image STM à 60 mK d'une surface de plots de niobium aux reliefs très arrondis recouverts d'une couche de cuivre et de 30 Å d'or. Le cuivre a diffusé au travers de l'or et s'est oxydé. On distingue bien la première partie de l'image qui a été balayée préalablement.

À basse température, les images de surfaces importantes sont difficiles à obtenir. Les petites impuretés ou zones oxydées localement engendrent des changements de géométrie de la pointe ce qui se traduit par un "saut de pointe" qu'il est possible parfois de rattrapper avec le traitement d'image. Une épaisseur d'or continue en surface limite généralement les accidents à basse température. Lorsque les surfaces d'échantillons sont très oxydées, le

premier balayage nettoie les premières couches atomiques et la seconde image est souvent de meilleure qualité (Fig. 3.6 Droite).

Les pointes utilisées sont formées électrochimiquement. L'avantage de ces pointes est que même endommagées, elles restent généralement assez fines pour ne pas créer d'effet multi-pointes à grande distance que l'on observe souvent sur des structures de fort relief avec une pointe coupée (Fig. 3.7 (Gauche)).

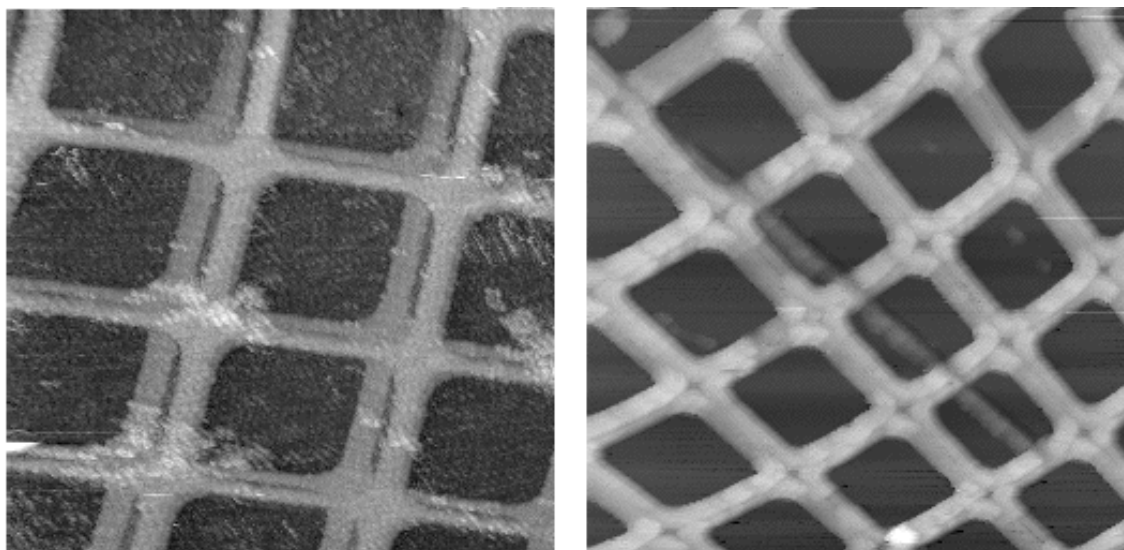


FIG. 3.7 – Images STM à température ambiante d'un réseau carré ( $3,5\ \mu\text{m}$  de maille) de lignes de niobium (épaisseur  $400\ \text{\AA}$ ) recouvertes d'une couche uniforme d'or. (Gauche) Effet multi-pointe d'une pointe coupée. (Droite) Image grand champ montrant les hystérésis piézo-électriques ainsi que les dérives thermiques qui déforment l'image à température ambiante.

À froid, les hystérésis sur des images grand champ sont relativement faibles. À température ambiante par contre, le balayage de zones beaucoup plus larges montrent des déformations qui peuvent aussi être engendrées par des dérives thermiques (Fig. 3.7 (Droite)).

Nous avons obtenu la résolution atomique sur un échantillon de HOPG à 60 mK (Fig. 3.8). Nous ne sommes pas intéressés directement par ce type de mesure, mais l'imagerie atomique constitue un bon test de stabilité du STM ainsi que de propreté de la surface à basse température. Le temps d'acquisition de cette image de  $128 \times 128$  pixels est de  $t_{att}=0,064\ \text{ms}$  et  $t_{mes}=1,9\ \text{ms}$  ce qui est trop lent pour obtenir une image à température ambiante. En effet, la laque d'argent utilisée pour coller la pointe et l'échantillon évolue pendant plusieurs dizaines d'heures, ce qui entraîne des dérives très importantes. À chaud

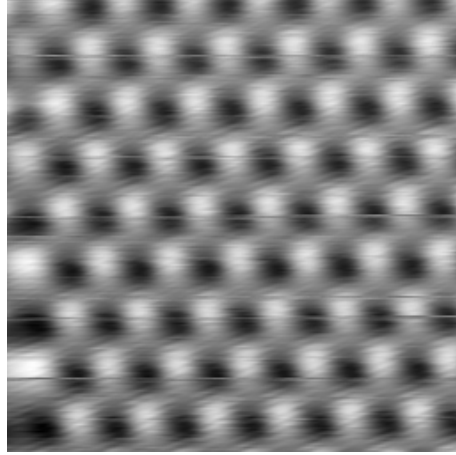


FIG. 3.8 – Image atomique ( $17 \times 17 \text{ \AA}^2$ ) à 60 mK d'un échantillon de HOPG. Lorsque la vitesse de balayage devient importante, les débuts de lignes sont déformés par les hystérésis piézo-électriques. On remarque de plus sur l'image une oscillation assez rapide due à une résonance excitée par le balayage.

nous avons obtenu la résolution atomique en augmentant la vitesse de balayage à  $t_{att} = 50 \mu s$  et  $t_{mes} = 80 \mu s$ .

### 3.4.2 Topographie d'une ligne

Un autre type de mesure topographique consiste à balayer une seule ligne en enregistrant le signal de régulation. C'est un moyen rapide de repérer une structure simple avec un balayage très lent pour ne pas endommager la pointe (Fig. 3.9).

Malgré un balayage très lent, 200 ms entre chaque point pour une vitesse de 6 nm/s, l'acquisition à l'aller et au retour montre un décalage d'environ 15 nm. Ce décalage provenant des hystérésis piézo-électriques s'accroît avec la vitesse de déplacement. Pour effectuer un positionnement régulier notamment pour les spectroscopies, il est donc nécessaire après chaque déplacement à grande distance de revenir à une position de départ fixée. On remarque de plus que certaines zones présentent un bruit important non reproductible d'une ligne à l'autre. Cela correspond à des zones de surfaces relativement sales où les poussières mal connectées à l'échantillon sont repoussées par la pointe.

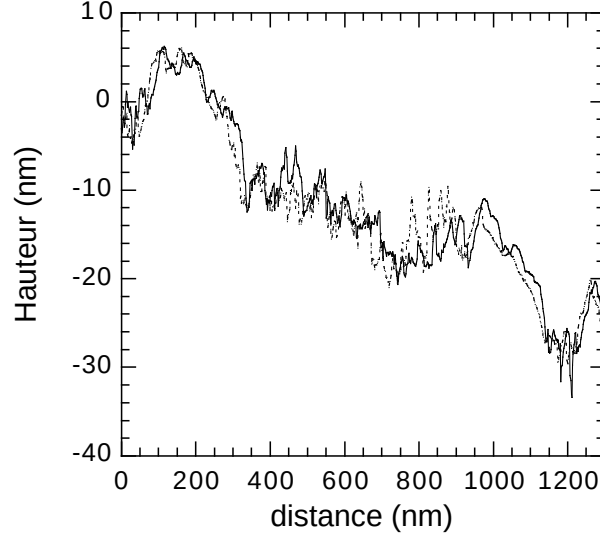


FIG. 3.9 – *Mesure topographique d'une ligne à l'aller et au retour (en pointillés) montrant un décalage de 15 nm dû aux hystérésis piézo-électriques.*

### 3.5 Mesures spectroscopiques

Le choix entre une mesure de densité d'état par détection synchrone ou par dérivation numérique d'une mesure  $I(V)$  n'est pas fixé. Nous avons testé les deux méthodes et avons remarqué qu'il est difficile avec la détection synchrone de mesurer un signal correct en diminuant l'amplitude de l'oscillation de mesure au-dessous de  $80 \mu\text{V}$ . Une telle amplitude correspondant à un arrondissement en température de 300 mK, ce qui nous a conduit assez naturellement à opter jusqu'à présent pour une mesure  $I(V)$ . Les oscillations et les artefacts de mesures sont directement observés et par conséquent plus faciles à interpréter.

#### 3.5.1 Sensibilité au bruit mécanique

La jonction tunnel doit être extrêmement stable pendant les quelques secondes du balayage de tension. Le bruit sur le courant engendré par une oscillation d'amplitude  $\Delta d$  est donné par  $\frac{\Delta I}{I} = 2k\Delta d = \frac{2\sqrt{2m\phi}}{\hbar}\Delta d \simeq 10^{10}\Delta d$  pour un travail de sortie de  $\phi=1 \text{ eV}$ .

1 % de précision demande donc une stabilité de  $10^{-2} \text{ \AA}$ . Ainsi, le pourcentage de bruit sur la mesure  $I$ - $V$  donne directement l'amplitude de vibration  $\Delta d$  exprimée en  $\text{\AA}$ . Le bruit mécanique est proportionnel au courant tunnel. La jonction tunnel ayant un comportement quasi ohmique, ce type de bruit se traduit par une amplification des oscillations à forte polarisation. Un fuseau observé sur une courbe  $I$ - $V$  est caractéristique d'une oscillation mécanique (Fig. 3.10).

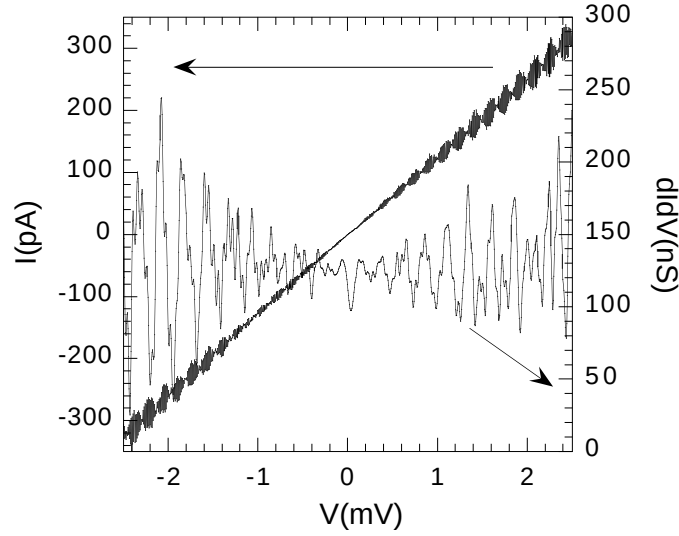


FIG. 3.10 – *Spectroscopie à 60 mK sur or en proximité avec du niobium montrant une oscillation mécanique importante. La mesure a été moyennée 5 fois et la dérivation effectuée sur une fenêtre gaussienne de 8 points. On remarque néanmoins un pseudo-gap à faible polarisation.*

Typiquement, les spectroscopies sont réalisées avec une jonction tunnel d'environ  $R_t=10$  M $\Omega$  soit une conductance  $G=100$  nS pour une polarisation de 5 mV et un courant tunnel de 500 pA. Avec un balayage de 1000 points entre -2,5 mV et +2,5 mV, soit 5  $\mu$ V par point, et un bruit mécanique de  $\Delta d=10^{-2}$  Å soit  $\delta I=1\%$  du courant tunnel, le bruit sur la conductance différentielle est donné par

$$\Delta\left(\frac{dI}{dV}\right) = \frac{\delta I}{\Delta V} = \frac{2k \cdot \Delta d \cdot G \cdot V}{\Delta V} = \frac{1.0, 01 \cdot 10^{-7} V}{5 \cdot 10^{-6}} = 2 \cdot 10^{-4} \cdot V (S) \quad (3.4)$$

avec  $V$  exprimé en Volts. Avec les paramètres ci-dessus, le bruit est de 500 nS à une polarisation de 2,5 mV soit 5 fois supérieur à la conductance tunnel. Il est donc nécessaire de moyennner la mesure par plusieurs balayages spectroscopiques successifs et d'opérer la différenciation numérique sur plusieurs points.

Plus la résolution requise en énergie est grande ou  $\Delta V$  petit, plus les effets du bruit mécanique sont perceptibles. Un niveau de vibration de la distance pointe échantillon de l'ordre de  $10^{-2}$  Å reste acceptable dans notre cas. Ce niveau est généralement atteint dans nos mesures lorsque les conditions de courant tunnel sont correctes. Le bruit sur les courbes I-V est en effet généralement inférieur à 1 % et les moyennages successifs permettent de descendre bien au-dessous. Le bruit électronique, notamment du préamplificateur tunnel doit être faible. Hors moyennage, 1 pA de bruit pour  $\Delta V=5$   $\mu$ V correspond à 20 nS de bruit sur la conductance différentielle ce qui est loin d'être négligeable.



### 3.5.2 Acquisition spectroscopique

Les séquences de mesures spectroscopiques ont été programmées de la manière suivante : une fois la position de la pointe choisie et le courant tunnel stabilisé, la résistance de contre réaction  $R_{CR}$  de la régulation est fixée par un relais à  $1\text{ M}\Omega$  pour évacuer toute résonance. La polarisation courante est choisie au-dessus de l'énergie du gap supraconducteur ( $5\text{ mV}$ ) et la consigne de courant tunnel est augmentée pour atteindre une jonction d'environ  $10\text{ M}\Omega$ . Les filtres RC à  $0,5\text{ Hz}$  à la sortie de tous les amplificateurs haute tension des piézo-électriques sont alors activés afin de minimiser le bruit mécanique. Ils sont laissés actifs pendant toute la durée de la mesure I-V.

Commence ensuite le cycle qui sera répété à chaque balayage en tension. Un temps d'attente fixé à quelques secondes permet le réajustement de la distance pointe-échantillon avant la coupure de la contre-réaction. La polarisation de départ est ensuite appliquée. Un temps d'attente d'une centaine de millisecondes avant la première mesure permet d'éviter les éventuelles perturbations de la coupure de la régulation ainsi que les effets de traînage dus au brutal changement de polarisation. Le balayage en tension est alors effectué avec typiquement 1024 points de mesure, un temps d'attente de  $0,3\text{ ms}$  entre chaque point et un temps de mesure maximal de  $6,4\text{ ms}$  pour une durée totale de balayage d'environ 7 secondes. La polarisation courante est alors rétablie et la contre-réaction réactivée afin de rattraper la dérive éventuelle avant un nouveau cycle.

A chaque balayage, la courbe  $I(V)$  est affichée avec le bruit moyen observé sur le courant tunnel. Il est possible de supprimer en temps réel les courbes qui ne se superposent pas aux autres. Il arrive au cours d'un grand nombre de moyennage, qu'une perturbation mécanique ou qu'un réarrangement atomique au niveau de la jonction tunnel intervienne pendant un balayage avec pour conséquence un saut sur la mesure du courant tunnel. Dans la plupart des cas, cet évènement ne modifie les balayages ultérieurs et il est pratique de pouvoir continuer le moyennage en supprimant la courbe affectée.

La conductance différentielle est dérivée en attribuant un poids gaussien à chaque point sur une largeur de 10 points environ.

### 3.5.3 Résolution des spectroscopies

En général, les grosses structures visibles sur la densité d'état sont reproductibles d'une spectroscopie à l'autre et il est assez simple de discriminer le bruit d'une véritable mesure physique.

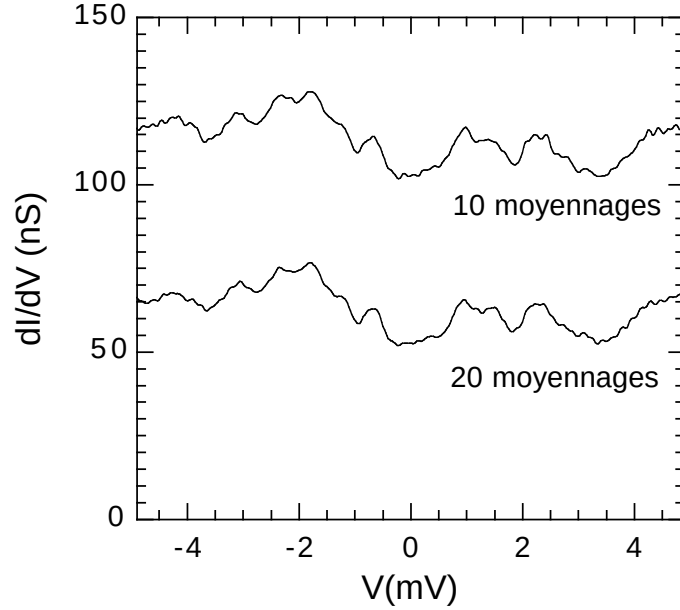


FIG. 3.11 – Deux spectroscopies à 60 mK montrant une densité d'état chaotique mais très reproductible.

En cas de doute, il suffit de répéter la mesure dans des conditions légèrement différentes (plus de points de mesures, temps d'attente différents...)(Fig. 3.11). Ces structures annexes à la densité d'état attendue viennent directement de la configuration locale des atomes au niveau de la jonction tunnel. Nous avons remarqué assez souvent que ces phénomènes de rétrodiffusion, blocage de Coulomb, excitation mécanique moléculaire et autres, sont diminués en augmentant la consigne de courant tunnel. Les spectroscopies avec un fort courant tunnel de consigne sont souvent de meilleure stabilité.

Le courant tunnel se dégrade peu à peu au cours des observations malgré toutes les précautions pour éviter le contact pointe-échantillon. Le système a tendance à entrer en oscillation plus facilement. Un simple déplacement de quelques angströms permet parfois de retrouver la stabilité requise.

Nous avons testé la résolution en énergie des spectroscopies à 60 mK sur différents métaux supraconducteurs. Un premier test réalisé sur une couche de 500 Å de niobium recouverte de 100 Å d'or a montré des spectroscopies très stables avec une résolution rarement atteinte dans la littérature. La densité d'états est néanmoins plus arrondie que ce que l'on attend pour un échantillon à 60 mK. La comparaison des densités obtenues avec une densité d'états BCS arrondie en température suggère une température effective d'environ 210 mK (Fig. 3.12).

Cependant, le niobium n'est pas un "bon" supraconducteur BCS et les pics de densité

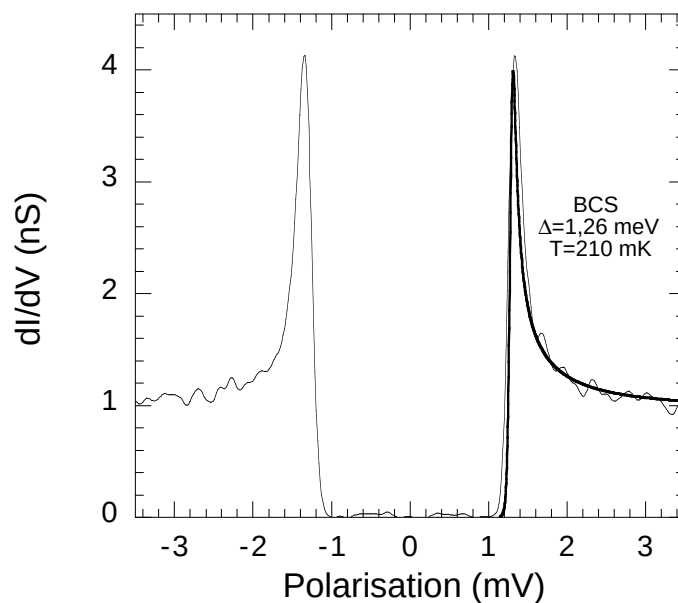


FIG. 3.12 – Spectroscopie réalisée sur un bicouche Nb (500 Å)/Au (100 Å) à 60 mK montrant un gap de 3 meV dans la densité d'état. La courbe superposée en trait épais correspond à une densité d'états BCS arrondie par une distribution de Fermi à 210 mK.

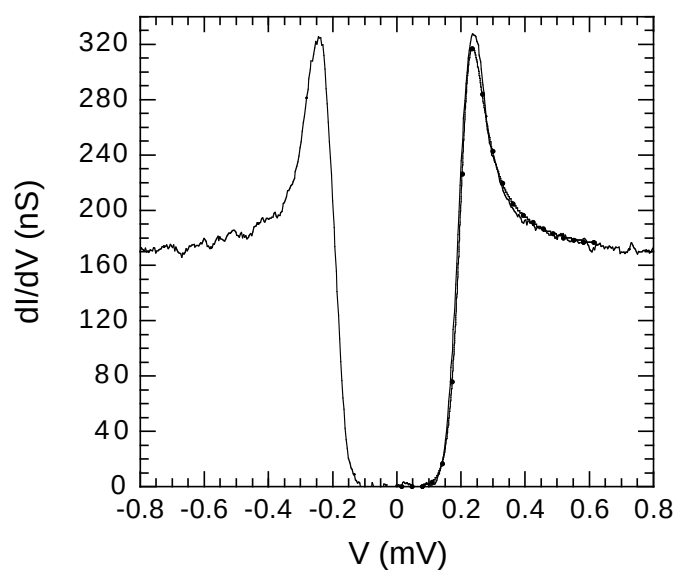


FIG. 3.13 – Spectroscopie sur 400 Å d'aluminium à 60 mK montrant un gap de 210  $\mu\text{eV}$ . La courbe marquée de ronds noirs représente une densité d'états BCS arrondie à une température de température de 210 mK.

restent plus larges que les pics BCS. Il faut de plus prendre en compte le fait que l'on mesure cette densité au travers d'une couche d'or. Les calculs de proximité avec les équations d'Usadel ne sont pas facilement applicables dans ce cas car l'épaisseur d'or est faible devant le libre parcours moyen qui est de 160 Å.

Un second test sur une couche d'aluminium de 400 Å a permis de mettre en évidence un gap supraconducteur de 210  $\mu\text{eV}$  en très bon accord avec la forme d'un gap BCS arrondi à une température de 210 mK (Fig. 3.13). Il faut préciser que le paramètre de Dynes [79], souvent utilisé pour expliquer la remontée de densité au niveau de Fermi par un temps de vie fini des quasiparticules, n'est pas nécessaire ici. La résolution en énergie est alors donnée par  $\varepsilon = 2k_B T = 36 \mu\text{eV}$ .

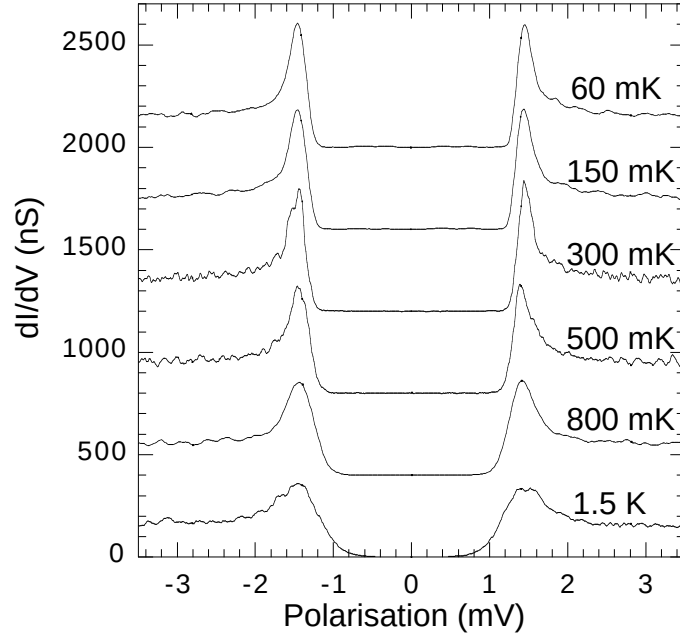


FIG. 3.14 – *Évolution des spectroscopies en fonction de la température sur un bicouche Nb/Au. Chaque spectroscopie est décalée de 400 nS pour plus de clarté.*

Une mesure en réchauffant progressivement le microscope donne un dernier complément d'information sur la résolution effective des spectroscopies (Fig. 3.14). Pendant le réchauffement progressif nous avons essayé de garder la même position de la pointe. Des vibrations dues à l'évaporation du mélange ont légèrement perturbé les mesures. En regardant précisément l'évolution des spectroscopies avec la température il est possible cependant de détecter un début d'arrondissement à partir de 200 mK.

La mesure de la température de l'échantillon a été vérifiée et modifiée plusieurs fois. De plus, des spectroscopies réalisées après trois jours à 60 mK sans aucun apport de chaleur au niveau du STM ont donné les mêmes résultats. Ces mesures semblent donc indiquer que les électrons qui traversent la barrière tunnel sont plus chauds que la température des phonons de la pointe et de l'échantillon. Depuis l'installation des filtres radiofréquence à l'entrée de chaque fil de mesure ou de tension entrant dans le cryostat, nous observons des pics supraconducteurs légèrement plus prononcés qu'auparavant mais sans atteindre la pleine sensibilité attendue à 60 mK.

Pour gagner en résolution, il reste donc à filtrer le rayonnement thermique par des filtres à basse température. Il n'est pas exclu cependant qu'un processus de réchauffement des électrons à l'intérieur de la barrière tunnel ou qu'un phénomène lié à la mesure très localisée ne soit pas la cause de cette perte de résolution.

### 3.5.4 Artefacts de mesure

Pour rendre compte des nombreux phénomènes mis en jeu par les mesures extrêmement locales du STM, nous terminons par quelques effets singuliers et furtifs observés à plusieurs reprises pendant les acquisitions spectroscopiques.

- Le premier phénomène est le blocage de coulomb qui intervient lorsqu'une spectroscopie est réalisée sur un grain mal connecté à la surface de l'échantillon (Fig. 3.15 (Gauche)).

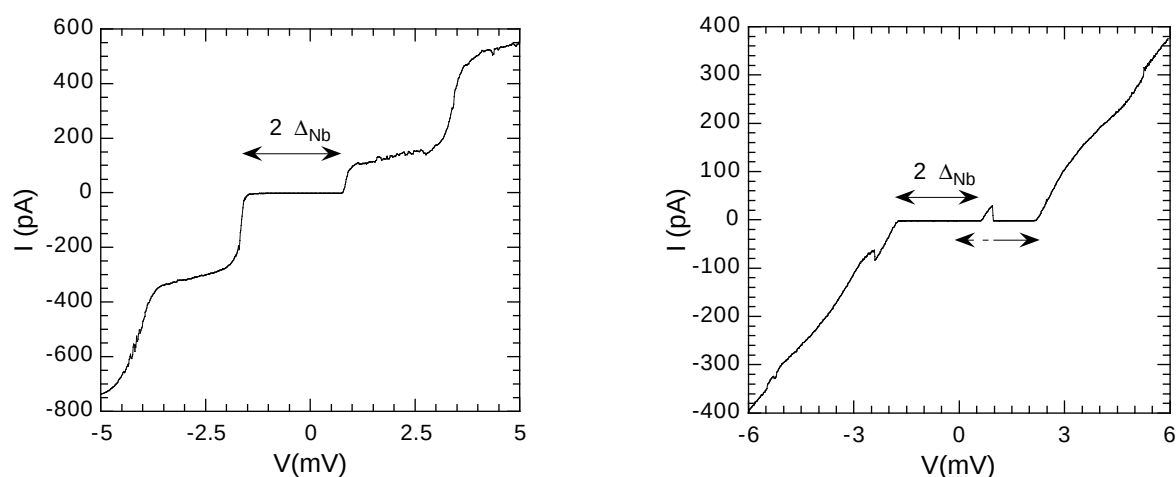


FIG. 3.15 – (Gauche) Mesure  $I(V)$  sur niobium montrant le gap supraconducteur ainsi que des marches de courant, symptôme d'un blocage de Coulomb. (Droite) Mesure  $I(V)$  avec un phénomène de blocage de Coulomb où le nombre de charges électroniques dans le grain responsable du phénomène a changé deux fois au cours du balayage en tension.

À basse température, lorsque la résistance entre le grain et la surface est supérieure à la résistance quantique  $R_k = \frac{h}{e^2} = 25k\Omega$  et lorsque la capacité  $C$  entre la pointe et l'échantillon est faible, les électrons ne peuvent pénétrer dans le grain que s'ils ont une énergie suffisante. Cette énergie de charge s'exprime par  $E_c = \frac{Q_1^2}{2C_1} + \frac{Q_2^2}{2C_2}$  où  $Q_1$  et  $Q_2$  sont les charges des jonctions tunnel de part et d'autre du grain, de sorte que la charge totale de l'île est  $Q = ne = Q_1 - Q_2$  [80]. Le courant en fonction du potentiel appliqué sur les électrodes présente alors une structure en escalier. La position des sauts de marche dépend

du nombre d'électrons  $n$  présents dans le grain. La figure 3.15 (Droite) montre notamment la structure d'un gap supraconducteur qui apparaît à deux polarisations différentes en raison de deux sauts de charges intervenant pendant le balayage de la tension.

- Un autre type de spectroscopie, provenant certainement là aussi d'un blocage de charge, a été observé de manière assez uniforme sur certaines surfaces comme le titane. Il se traduit par un affaissement de la conductance différentielle à faible polarisation. Lorsque la résistance  $R$  des électrodes est importante, le système pointe/échantillon peut être modélisé par un circuit RC, composé d'une capacité  $C$  en parallèle avec la jonction tunnel "idéale", le tout en série cette résistance  $R$  d'environnement. Dans cette configuration, la conductance de la jonction tunnel dépend de la probabilité d'exciter l'environnement RC [13, 80]. À faible énergie et en négligeant la dépendance en température, la conductance peut s'exprimer :

$$\frac{dI}{dV}(V) = \frac{1}{R_T} \left| \frac{eV}{E_o} \right|^\alpha \quad (3.5)$$

pour  $eV \ll E_o$  et avec la résistance tunnel  $R_T$ . L'énergie  $E_o = \frac{e^2}{\pi\alpha C}$  donne la largeur en énergie de l'excitation et  $\alpha = 2R/R_k$  influence l'amplitude de l'effet à basse énergie. Ainsi plus la résistance de l'environnement devient importante (résistance du câble de mesure et de polarisation, résistivité de l'échantillon...), plus la déviation de la mesure par rapport à la densité d'états réelle est importante.

Pour les grandes énergies  $eV \gg E_c = \frac{e^2}{2C}$ , la conductance s'exprime :

$$\frac{dI}{dV}(V) = \frac{1}{R_T} \left( 1 - \frac{2}{\alpha} \left( \frac{e}{2\pi CV} \right)^2 \right) \quad (3.6)$$

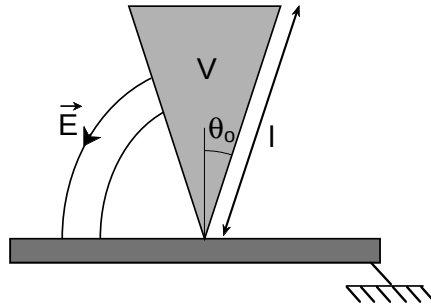


FIG. 3.16 – Modélisation de la pointe par un cône pour l'estimation de la capacité entre la pointe et l'échantillon .

Pour estimer la capacité entre la pointe et l'échantillon, on peut modéliser la pointe comme un cône coupé à une certaine hauteur (Fig. 3.16). En supposant des lignes de champs sphériques (cône infini) la capacité s'exprime  $C = \frac{2\pi\epsilon_0 l}{\ln(\tan(\theta_o/2))}$  où  $\theta_o$  est l'angle du cône et  $l$  sa longueur. Variant comme la surface sur la distance, la capacité diverge pour un cône infini. La contribution des surfaces très proches de l'échantillon est faible. Pour un cône de 1 mm de longueur et de 125  $\mu\text{m}$  de rayon au sommet, la formule ci-dessus donne une capacité d'environ 20 fF. Par rapport à la capacité réelle, cette valeur est une limite inférieure car la pointe possède en plus une partie non conique assez longue ( $\simeq 2\text{mm}$ ) et les lignes de champs ne sont pas sphériques, ce qui a pour effet d'augmenter la capacité. Malgré une surface de barrière tunnel très réduite, la capacité de la jonction tunnel du STM est relativement importante. Dans des jonctions planaires de  $100 \times 100 \text{ nm}^2$ , elle est de l'ordre de 1 fF.

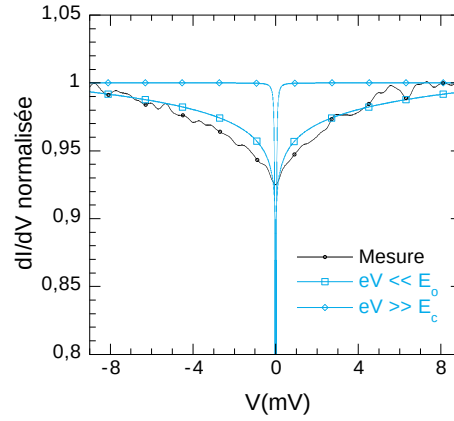


FIG. 3.17 – *Spectroscopie tunnel sur titane comparée à deux limites d'un modèle de blocage de charge calculées avec  $C = 20 \text{ fF}$  et  $\alpha = 1/60$ . L'équation 3.5 est ici pleinement justifiée pour  $eV < E_o = 160 \mu\text{eV}$ . L'équation 3.6 est valable pour  $eV \gg E_c = 4 \mu\text{eV}$ . Dans cette limite, la courbe calculée avec  $C = 20 \text{ fF}$  ne s'ajuste pas bien avec la mesure. Une capacité plus faible, de l'ordre de 1 fF, permet d'obtenir un meilleur accord.*

La figure 3.17 montre un bon accord entre les courbes expérimentales et l'équation 3.5 valable pour les petites énergies. L'ajustement de la résistance donne  $R \simeq 200 \Omega$  contre  $20 \Omega$  pour les résistances d'amorçage de courant. Cependant avec les valeurs annoncées, l'équation 3.5 n'est a priori valable que pour des tensions inférieures à  $160 \mu\text{V}$ . La seconde courbe théorique décrit l'équation 3.6 dans la gamme des grandes énergies. La comparaison avec la courbe expérimentale suggère une capacité bien inférieure à notre estimation ( $\approx 1 \text{ fF}$ ). Le blocage de Coulomb observé semble se placer à la frontière de ces deux limites.

Ce type d'artefact a été observé de manière assez régulière sur la surface lorsque celle-ci n'apparaît pas très propre à l'imagerie. Ce phénomène résulte certainement d'une partie

résistive dans la pointe elle-même où d'une surface métallique très résistive à basse température. Néanmoins, l'amplitude de ce phénomène est généralement faible devant le bruit de mesure et quasiment inexistant sur des surfaces propres.

- Deux derniers types de spectroscopies observés à plusieurs reprises sont des pics de conductance autour l'énergie de fermi (Fig. 3.18). Ces spectres peuvent provenir d'impuretés magnétiques ou d'états liés localisés à la surface des échantillons.

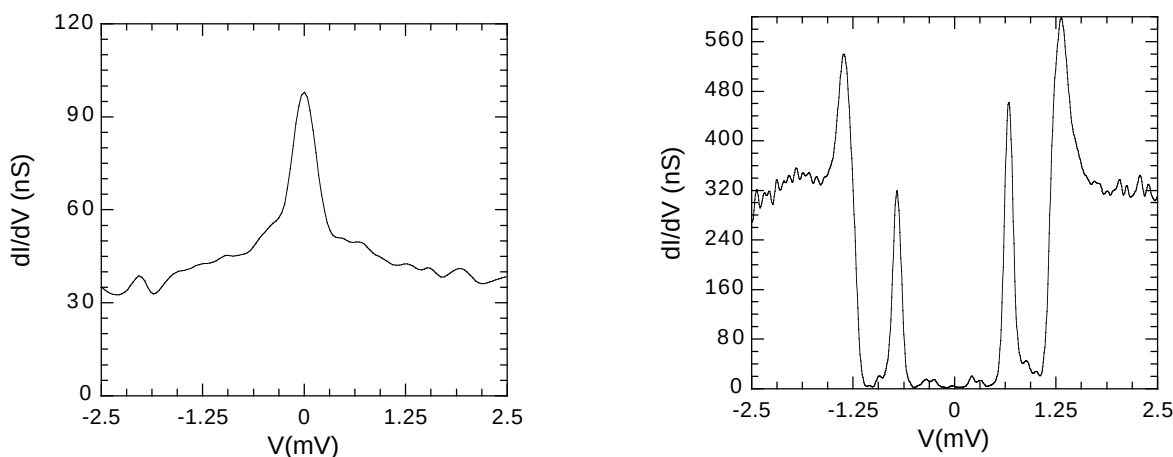


FIG. 3.18 – (Gauche) Spectroscopie à 60 mK sur or en proximité avec un fil de niobium présentant une augmentation de conductance très marquée à l'énergie de Fermi. (Droite) Pics de conductance à l'intérieur du gap supraconducteur du niobium.

Les pics observés sur la figure de droite montrent le gain de résolution obtenu par rapport aux expériences de Van Harlingen et al. [61, 62] (Fig. 1.9 (Gauche)). Ceci illustre bien la nécessité de descendre en température pour la caractérisation directe, sans interprétation, des petites structures en énergie dans la densité d'états. La résolution de  $36 \mu\text{eV}$  de nos spectroscopies, bien que supérieure à celle attendue à 60 mK, donne déjà une précision confortable pour ce type d'observation.





# Chapitre 4

## Fabrication des pointes et des échantillons

Nous disposons au laboratoire d'un équipement assez conséquent pour l'évaporation de couches minces et la réalisation de structures submicroniques en salle blanche. Comme pour les différentes composantes du microscope, la quasi totalité des échantillons a été fabriquée par nos soins, ce qui a permis d'orienter leur confection en fonction des contraintes spécifiques des mesures par STM, notamment en terme de qualité de surface. La première partie de ce chapitre décrit la fabrication électrochimique des pointes que nous utilisons. Nous discutons ensuite des différents types de structures imaginées pour l'observation d'effets de proximité. Chaque échantillon réalisé présente des caractéristiques géométriques et physiques particulières que nous allons exposer.

### 4.1 Fabrication des pointes

Pour l'imagerie d'échantillons de faible relief, une pointe simplement coupée en biseau suffit. Cette méthode simple et rapide de fabrication se prête tout à fait à l'imagerie atomique où seuls quelques atomes en bout de pointe sont en jeu (Fig. 4.1). Le platine/iridium (90/10) est utilisé pour sa rigidité et sa faible oxydation de surface contrairement au tungstène généralement utilisé en ultravide.

Pour des échantillons à fort relief avec des surfaces imparfaites, il est intéressant d'avoir une géométrie de pointe contrôlée avec un apex assez rigide. La fabrication par électrochimie de pointes ultra fines avec le Pt/Ir est plus difficile qu'avec le tungstène.

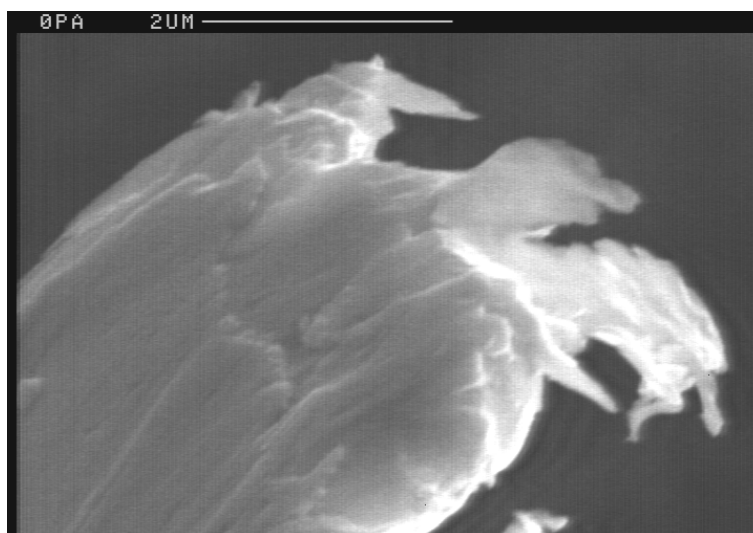


FIG. 4.1 – Image MEB d’une pointe de Pt/Ir coupée, utilisée généralement pour l’imagerie atomique.

La méthode consiste à réaliser un amincissement local d’un fil de Pt/Ir de  $\varnothing 250\ \mu\text{m}$  (Fig. 4.2). Dans une seconde étape, le fil est affiné uniformément jusqu’à la cassure du fil au niveau du col (Fig. 4.3). Le procédé mis au point par J. Lindahl et al. [81] a été légèrement modifié pour plus de commodité.

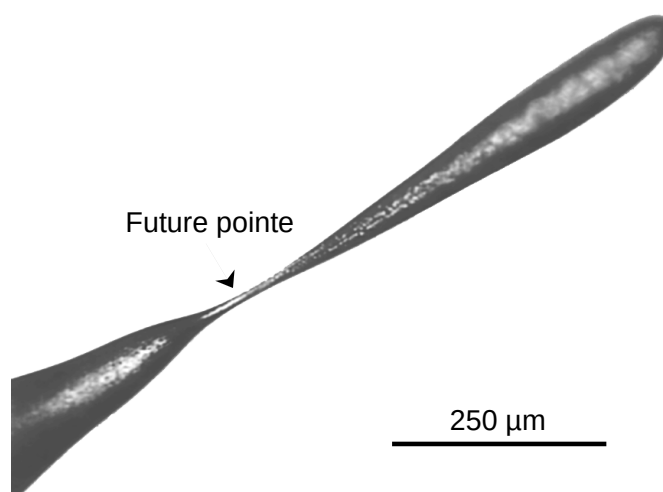


FIG. 4.2 – Image au microscope optique de la première étape de fabrication des pointes par électrochimie. La partie rétrécie constitue le bout de la future pointe.

La première gravure consiste à plonger de 0.8 mm le fil de Pt/Ir dans une solution de  $\text{CaCl}_2 + \text{HCl} + \text{H}_2\text{O}$  (60/4/40). Pour une question de reproductibilité, le fil ne doit pas être préformé. Il est donc systématiquement coupé perpendiculairement avant la gravure. Une tension alternative de 27V à 50 Hz est alors appliquée entre la pointe et une contre-

électrode de carbone plongée dans la solution. Afin d'éviter la corrosion par l'acide, la pince de positionnement du fil est réalisée par deux lames d'or plaquées l'une contre l'autre par une pince plastique.

En plongeant verticalement le fil d'une profondeur de 0,8 mm, le courant AC mesuré débute à 230 mA puis décroît jusqu'à environ 30 mA. À cette valeur, le col a un diamètre d'environ  $15\text{ }\mu\text{m}$  et la partie immergée prend une forme de goutte. La réaction chimique engendre beaucoup de bulles et d'étincelles. Nous arrêtons régulièrement l'attaque pour suivre l'évolution de la géométrie de la pointe avec un microscope binoculaire. La position de la pointe dans la solution n'est pas changée pendant ces opérations. La gravure par électrochimie attaque le métal essentiellement à la surface du liquide avec une vitesse décroissante avec la profondeur. La forme conique de la partie émergée est due à la capillarité. Avec les flancs verticaux du fil de Pt/Ir, le liquide remonte d'environ 1 mm au départ. Durant l'attaque, l'angle de plongée devient négatif et le liquide redescend progressivement, ce qui donne la forme de la partie émergée. À la fin de cette première étape, la pointe est rincée abondamment à l'eau déionisée.

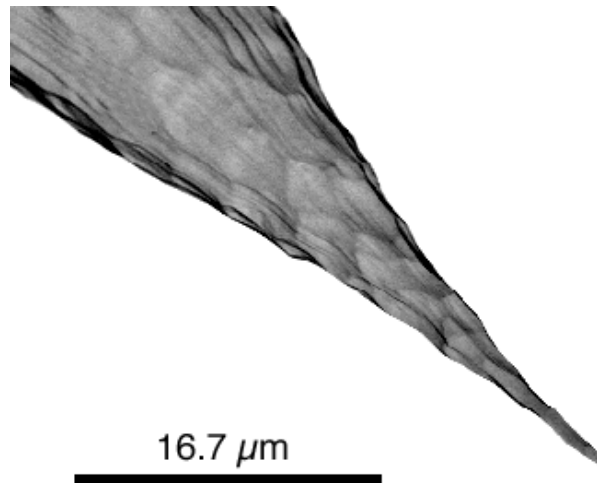


FIG. 4.3 – Image MEB d'une pointe achevée. Les crevasses sont créées par la première attaque très violente qui produit beaucoup de bulles et d'étincelles.

Dans la seconde étape, pour s'affranchir de la gravure localisée et affiner la pointe de manière uniforme, le fil est immergé horizontalement à la surface du liquide. Nous nous contentons en fait de l'incliner au maximum avec un angle d'environ  $75^\circ$ . Pour cette étape, une tension alternative carrée de 4 kHz,  $+10\text{ V}/-1\text{ V}$ , est appliquée à travers une solution de  $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{O}$  (90/10).

Au moment de la cassure, le courant est laissé 10 secondes supplémentaires de manière à affiner encore le bout de la pointe et éventuellement pour faire tomber les structures trop

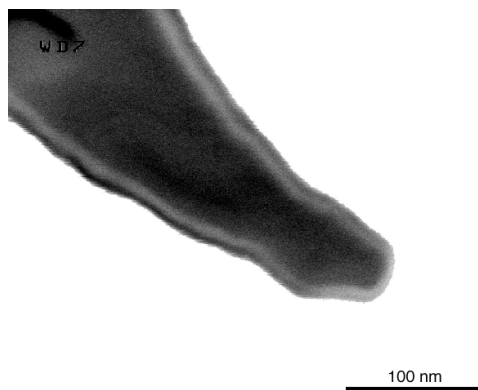


FIG. 4.4 – Image MEB à fort agrandissement de l'extrémité de la pointe. Le rayon de courbure mesuré est de 30 nm. On observe une contamination de la surface par des hydrocarbures déposés pendant l'observation.

finies. Une dernière étape consiste à réduire l'épaisseur d'oxyde présente sur les surfaces de la pointe. Pour cela, dans la même solution, une tension DC de -1 V est appliquée sur la pointe pendant 2 minutes environ jusqu'à disparition des bulles engendrées par la réaction.

Cette technique permet de réaliser de manière routinière des pointes d'un rayon inférieur à 50 nm avec un cône d'angle inférieur à  $10^\circ$  (Fig. 4.4).

## 4.2 Qualité des échantillons

Nous cherchons à observer les effets de proximité à l'interface d'un métal supraconducteur et d'un métal normal. Ces effets de proximité ont une portée estimée à quelques dixièmes de microns ce qui suggère des motifs structurés à cette échelle. La mesure par STM impose quant à elle plusieurs conditions sur la géométrie et la qualité des échantillons.

### 4.2.1 État de surface

Le STM travaille uniquement sur des surfaces conductrices. Les échantillons doivent comporter une couche continue de métal sur toute la zone à observer. De plus les conditions des spectroscopies et la stabilité du courant tunnel sont très dépendantes de la qualité de la surface.

L'observation d'un métal légèrement oxydé aura pour conséquence d'user progressivement la pointe à chaque déplacement car celle-ci creuse les premières couches oxydées

pour trouver le courant tunnel adéquat. Les symptômes visibles seront un raccourcissement lent de la pointe, par exemple au cours d'une image qui apparaîtra penchée sur l'axe des ordonnées.

Le second symptôme observé est un fort déplacement de la régulation lorsqu'on augmente la consigne tunnel. Pour un échantillon propre, le travail de sortie correspond à un coefficient exponentiel d'environ  $1 \text{ }^{-1}$ . Passer de 20 pA à 800 pA nécessite alors un déplacement d'environ 4 Å. Lorsque la surface est oxydée, la pointe va creuser, se plier, les atomes qui forment son apex vont s'écraser et se configurer de manière différente. Cet effet peut donner des déplacements de 10 à 200 Å. Une mesure du travail de sortie dans ces conditions donne alors des exponentielles plus ou moins propres avec des sauts correspondant à un réarrangement atomique de la pointe et de la surface avec éventuellement échange de matière.

Un oxyde propre et assez fin n'est cependant pas une limite à la mesure de densité d'état, au contraire. Des mesures sur du niobium et de l'aluminium nus ayant été en contact avec l'air ambiant ont donné des spectroscopies d'une très bonne stabilité. Dans ce cas, la pointe se plante sur la surface jusqu'à trouver le courant tunnel, ce qui a pour effet de la figer de manière très stable.

La surface des échantillons doit pourtant être la plus propre et la moins oxydée possible pour conserver une pointe en bon état pendant les déplacements. Dans la plupart des géométries utilisées, un dépôt uniforme d'or en dernière étape a permis de remplir cette condition. L'or ne s'oxyde pas, ce qui n'empêche pas une contamination progressive de la surface par des hydrocarbures et autres poussières. Le dégazage par chauffage de l'échantillon avant la fermeture du calorimètre permet de s'affranchir de la couche d'eau condensée au contact avec l'air. Tous les échantillons réutilisés plusieurs fois ou refroidis longtemps après leur fabrication ont montré néanmoins des performances amoindries au niveau de la qualité du courant tunnel, notamment pendant les imageries.

Afin de minimiser ce problème, les échantillons sont préparés au dernier moment et montés sur le microscope le plus rapidement possible. La conservation des échantillons et la fermeture du calorimètre du STM se fait dans une boîte à gants où circule en permanence un flux d'azote. Sans être parfaite, cette solution permet de minimiser la contamination de la surface des échantillons.

### 4.2.2 Échantillons à motifs répétés

Même avec un système stable et fiable, envisager de se déplacer et se repérer à la surface d'un échantillon sur de grandes distances est extrêmement laborieux. Il est alors nécessaire de faire une image après chaque déplacement afin de repérer des signes lithographiés indiquant la direction à prendre. Quelques équipes ont réussi l'opération mais cette technique reste mieux adaptée à l'imagerie par AFM [5]. L'imagerie par STM sur de grandes surfaces reste difficile et périlleuse à mettre en œuvre lorsqu'il faut compter avec la présence de zones peu conductrices comme des poussières statistiquement inévitables sur de grandes distances.

La méthode la plus réaliste est donc de préparer des motifs en réseaux sur de grands champs. Le paramètre de maille du réseau doit être inférieur ou égal au balayage maximum du STM à basse température soit  $6 \times 6 \mu m^2$ . Les contractions thermiques lors du refroidissement peuvent engendrer des déplacements de plusieurs centaines de microns. Il faut donc, une fois la pointe positionnée à l'œil au centre de l'échantillon à température ambiante, que les déplacements dus aux contractions thermiques ne la déplacent pas hors du réseau. La taille minimum confortable est d'environ  $1 mm^2$ . La lithographie en UV profond a été choisie autant que possible pour sa rapidité de mise en œuvre sur de tels champs.

La pointe impose une seconde contrainte sur la forme du motif. Il lui faut pouvoir descendre au fond des structures lithographiées. L'observation d'un motif en creux de 200 nm de largeur avec une pointe de 30 nm de rayon est possible mais ne le reste pas longtemps, la pointe s'abîmant très rapidement au cours d'une image. Il faut notamment veiller à ce que les reliefs ne soient pas trop abrupts de manière à permettre à la régulation de suivre la surface avec le minimum d'accidents.

### 4.2.3 Dépôt sous ultravide et qualité des métaux déposés

Les deux métaux principalement utilisés sont le niobium et l'or. Le niobium, métal supraconducteur à 9 K, a été choisi car il présente un gap  $\Delta=1.5$  meV assez fort pour être mesuré avec une bonne résolution par STM.

Les dépôts métalliques sont réalisés par un canon à électrons en ultravide. Pour un dépôt de niobium à une vitesse de  $1 \text{ \AA/s}$  à  $3 \text{ \AA/s}$ , la pression du bâti varie de  $6 \cdot 10^{-10}$  mbar à  $9 \cdot 10^{-9}$  mbar. Les mesures par STM sur ce métal même recouvert d'une fine couche d'or ont donné des gap supraconducteurs entre 1,4 et 1,5 meV ce qui correspond à une température critique entre 8,5 et 9,1 K. Les dépôts sous forts angles se sont montrés de

moins bonne qualité, les gap maximum observés se situant autour de 1,3 à 1,4 meV.

Il est possible d'obtenir un niobium épitaxié en le déposant à 800 °C sur un substrat de saphir étuvé et nettoyé par canon Argon. Le processus étant relativement long et le chauffage incompatible avec nombre de procédés, nous avons peu utilisé cette technique.

Les mesures ont donc été effectuées sur du niobium polycristallin en limite diffusive. Des mesures préalables [82] de couches préparées dans le même bâti ultravide donne un libre parcours moyen  $l=90$  Å et une longueur de cohérence supraconductrice  $\xi=300$  Å. Ces valeurs ont été prises comme hypothèses de départ pour les calculs des effets de proximité.

Les dépôts d'or sont réalisés sur une cible plus petite que la cible de niobium. Le creuset est donc légèrement chauffé et l'on observe un dégazage assez important. À une vitesse de  $0,3$  Å/s la pression varie entre 2 et  $9 \cdot 10^{-8}$  mbar. Des mesures 4 fils à température ambiante et à 4 K donnent un rapport de résistivité entre 1,4 et 2,3. Ce rapport évalue la résistance due aux phonons par rapport à la résistance due aux défauts du réseau cristallin du métal. Plus ce chiffre est élevé, meilleure est la qualité du dépôt. Au-dessus de 2, celui-ci peut-être considéré comme un bon métal. En utilisant une grande cible d'or dans le bâti ultravide, nous avons obtenu un métal très propre avec un rapport de résistivité de 5.

#### 4.2.4 Qualité de l'interface NS

Le contact entre le supraconducteur et le métal normal doit être le plus transparent possible de façon à induire un fort effet de proximité. Le niobium et l'or ont constitué le couple le plus utilisé pour l'observation des effets de proximité. Aucun décollement entre ces métaux n'a été observé avec les dépôts par canon à électrons. De plus les mesures par STM réalisées sur ces bicouches ont montré un très bon effet de proximité sur la surface d'or (voir chap. 3).

Le couple niobium-cuivre est aussi un bon candidat avec une très bonne interface, pas d'interdiffusion et un fort coefficient de diffusion. Cependant, l'oxydation de surface du cuivre restant très importante comme le montrent les images par STM (Fig. 3.6 (Droite)), ce couple a été généralement écarté.



### 4.3 Types d'échantillons

La qualité de l'interface NS est liée à la méthode utilisée pour fabriquer l'échantillon. La première consiste à structurer le métal supraconducteur par les méthodes traditionnelles de lithographie avec une résine photosensible. La remise à l'air et les traitements subis par la surface ne favorisent cependant pas les qualités de contact NS.

Deux techniques sans lithographie et sans remise à l'air ont été imaginées avec des contraintes très différentes au niveau des mesures STM. La première est le dépôt sous angle avec des reliefs très importants. La deuxième technique, plus pointue, est le dépôt au travers d'un masque mécanique amovible dans l'ultravide.

#### 4.3.1 Échantillons lithographiés

Le principe de ces échantillons est d'insoler et développer une résine déposée sur le niobium pour graver des structures supraconductrices par gravure ionique réactive (RIE). L'or est ensuite déposé uniformément sur les structures de niobium. Se pose alors le problème de la qualité de l'interface Nb-Au. Pendant plusieurs mois, de multiples essais ont été réalisés pour obtenir une interface correcte. Sur la dizaine d'échantillons testés, aucun n'a montré de gap supraconducteur sur les plots de niobium recouverts d'or. Le procédé de

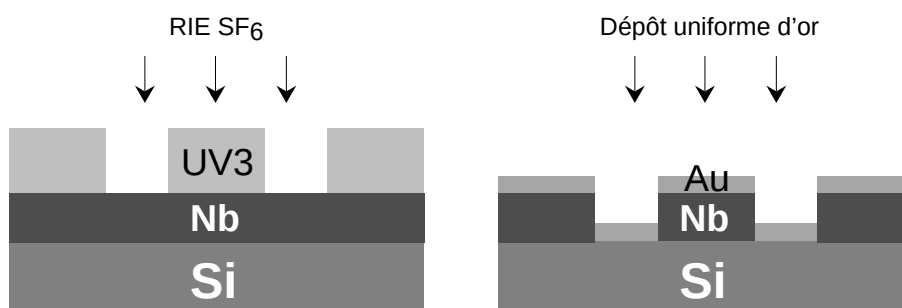


FIG. 4.5 – *Principe de fabrication des échantillons par procédés de lithographie standards.*

base utilisé est le suivant (Fig. 4.5) : un dépôt de Nb de 400 Å est effectué sur Si ou saphir. Une résine positive, UV3 ou PMMA, est ensuite étalée avec une épaisseur d'environ 300 nm puis insolée en UV profond à travers un masque de réseaux de lignes ou de plots. Après développement restent des lignes ou des plots de résine protégeant la surface de niobium. Les zones non protégées sont alors retirées par une gravure RIE avec  $20 \text{ cm}^3/\text{min}$  de  $\text{SF}_6$  ( $P=2.10^{-2}$  mbar) et une puissance de 20 W. La résine est ensuite retirée dans un solvant et l'échantillon présente alors des structures de niobium sur un fond de silicium ou de saphir (Fig. 4.6).

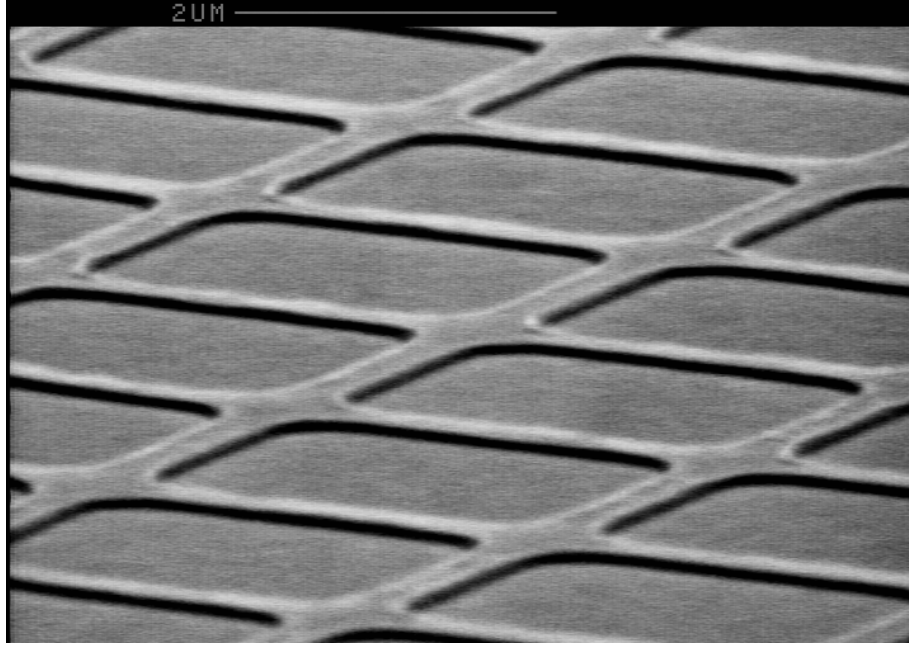


FIG. 4.6 – Image MEB d'un échantillon de  $400 \text{ \AA}$  de niobium lithographié en UV profond recouvert de  $200 \text{ \AA}$  d'or.

Avant le dépôt d'or, plusieurs procédés ont été employés pour nettoyer la surface du niobium qui s'est oxydée par le contact avec la résine, les différents recuits, etc. Une RIE oxygène pour retirer les éventuels résidus de résine suivie d'une RIE  $SF_6$  uniforme ont tout d'abord été réalisés dans différentes conditions. Ensuite un décapage argon, disponible dans le sas du bâti ultravide, a été testé juste avant le dépôt d'or. Les échantillons plongés dans un bain d'hélium ont été testés par une mesure 4 fils et ont montré une chute de résistivité confirmant la présence de supraconductivité. Mais les spectroscopies STM de surface sont restées imperturbablement planes.

Les processus de nettoyage ont donc été remis en cause et une série de tests a été faite pour isoler le problème. Le nettoyage par gravure argon s'est révélé néfaste pour la qualité de l'interface. Des échantillons de niobium gravé à l'argon puis réintroduits dans l'ultravide sans aucune remise à l'air ont montré que la gravure argon désordonne la surface du métal et crée une barrière résistive qui casse très fortement les effets de proximité. Un test avec une remise à l'air juste avant la gravure argon a montré une absence totale de supraconductivité sur la couche d'or déposée par la suite. La remise à l'air semble donc détériorer davantage la surface, sans que le nettoyage argon puisse la restaurer.

Un autre type d'échantillon lithographié a été envisagé. Sa fabrication repose sur le même principe que précédemment mais cette fois le niobium est déposé sur l'or, sans remise à l'air entre les deux dépôts. L'interface est alors de très bonne qualité. Le niobium en

surface est ensuite lithographiée par la technique décrite plus haut. Cependant ces derniers traitements détériorent la qualité du métal en surface. Notamment, le niobium s'oxyde fortement avec les recuits de la résine et les images STM à basse température sont très difficiles à obtenir.

Nous nous sommes alors orientés vers la réalisation d'échantillons entièrement *in situ*.

### 4.3.2 Dépôt sous angle

La technique consiste à partir d'une surface de silicium oxydé et de lithographier de profondes tranchées sur cette surface (Fig. 4.7). En évaporant le niobium sous un angle assez fort, une partie du fond des tranchées est masquée par le relief de silicium. Un second dépôt vertical de métal normal dans le même vide recouvre alors le niobium et le silicium formant une interface NS dans les fonds de gravure. Cette méthode a le mérite d'être facile à mettre en œuvre mais occasionne des reliefs très importants et abrupts pour l'imagerie STM.

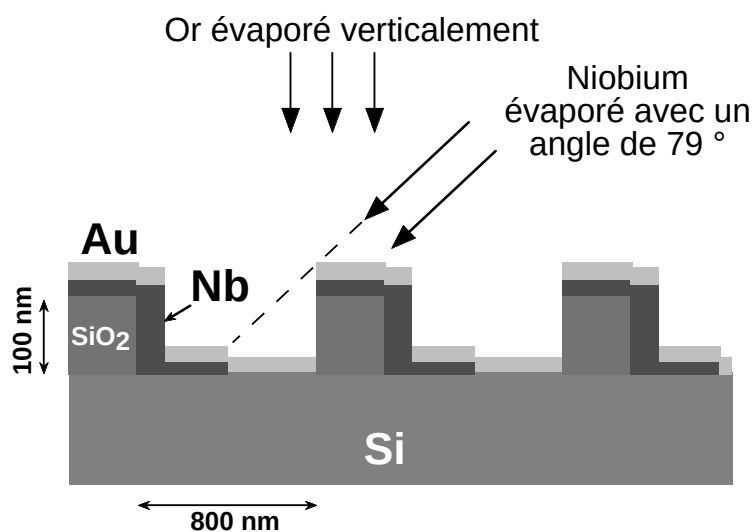


FIG. 4.7 – Schéma de principe de la fabrication des échantillons évaporés sous angle.

À basse température, les déplacements verticaux permis par les piézo-électriques sont de 280 nm. Une profondeur de tranchée de 100 nm est alors un grand maximum et l'imagerie doit être effectuée très lentement avec beaucoup de précautions (Fig. 4.8). Pour obtenir un substrat pré-gravé régulier avec des motifs submicroniques sur de grandes surfaces, les échantillons ont été réalisés à l'aide d'un masqueur électronique au LETI- CEA de Grenoble dans le cadre de la plateforme ouverte PLATO.

Pour avoir une longueur de masquage de 500 nm avec des reliefs de 100 nm l'angle de

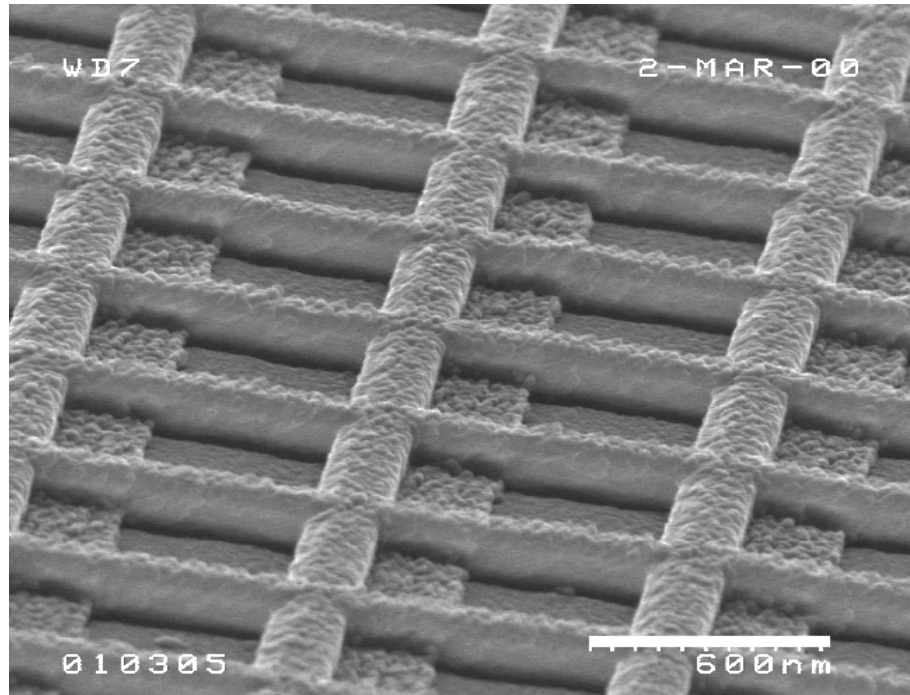


FIG. 4.8 – Image MEB d'un échantillon évaporé sous angle sur un substrat de silicium avec un réseau carré de lignes de 100 nm de large, 100 nm de haut et un paramètre de maille de 800 nm.

dépôt doit être de  $79^\circ$ . Avec un angle si important, la surface évaporée n'est pas uniforme et présente des boursofflures et des crevasses assez importantes. Cet effet a été observé plusieurs fois avec des métaux comme l'or ou le cuivre et peut être comparé aux effets du vent sur le sable. La moindre rugosité de surface crée un micro-masquage amplifié au fur et à mesure du dépôt. L'épaisseur du dépôt au fond des tranchées est choisie afin d'obtenir un niobium continu et supraconducteur, soit supérieur à  $200 \text{ \AA}$ . L'épaisseur perpendiculaire réellement déposée est alors de  $1000 \text{ \AA}$ . Les tranchées dont les flancs voient la source quasi perpendiculairement se remplissent progressivement. L'espace disponible pour la descente de la pointe au fond des tranchées est ainsi légèrement réduit.

### 4.3.3 Dépôt au travers d'un masque en silicium

Cette technique a été imaginée après les difficultés rencontrées pour obtenir une interface NS métallique par des techniques de lithographie avec remise à l'air. La technique de dépôt sous angle génère quant à elle des reliefs trop importants pour conserver facilement une pointe longue et fine pendant l'imagerie.

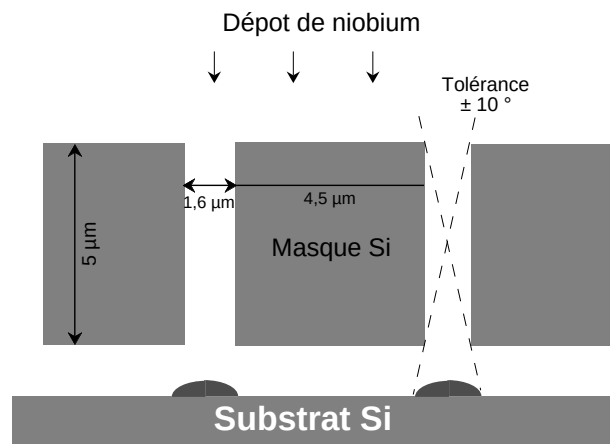


FIG. 4.9 – Schéma de principe de l'évaporation au travers d'un masque mécanique. Les plots sont étalés en raison de la distance résiduelle entre le masque et l'échantillon.

Ici, le principe est de réaliser un masque mécanique en perçant des trous dans une membrane de silicium de  $5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur. Placé en contact avec un substrat de silicium, ce masque est tenu par un ressort fixé sur système de cheville. Un premier dépôt de niobium

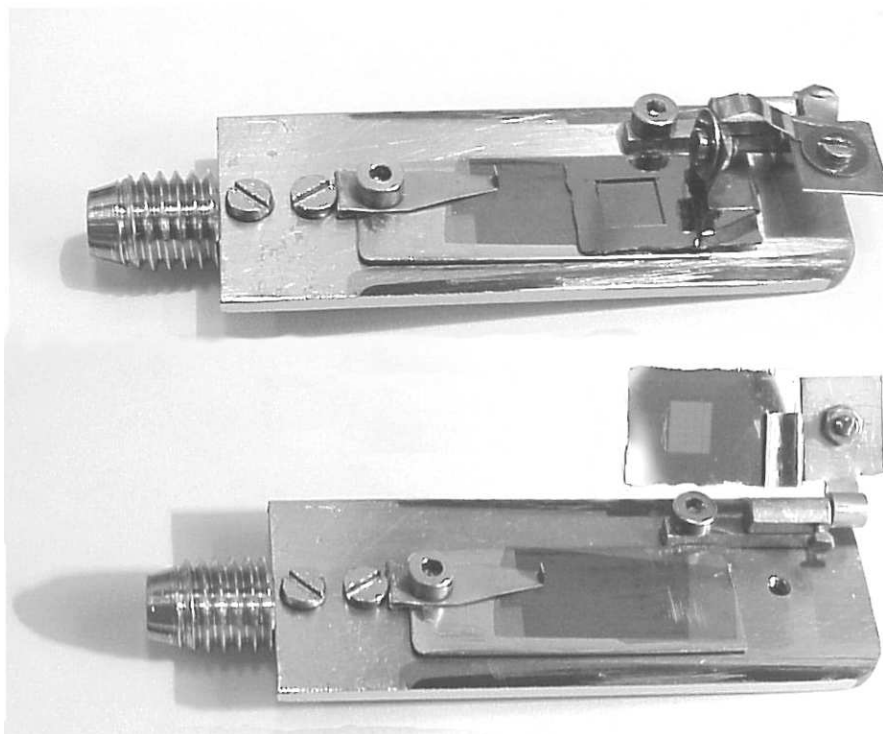


FIG. 4.10 – Porte substrat ultravide utilisé pour plaquer le masque de silicium sur un substrat de silicium ou de saphir. Position fermée sur la photographie supérieure, position ouverte au -dessous.

au travers du masque permet d'obtenir de petits plots supraconducteurs (Fig. 4.9). En utilisant le bras de transfert du bâti ultravide, on peut alors actionner le mécanisme de la cheville et retirer le masque de l'échantillon, sans remise à l'air, avant d'effectuer le second dépôt de métal normal en plein champ.

Le mécanisme de maintien du masque a été réalisé rapidement sans problème majeur (Fig. 4.10). Les détails de ce système très basique qui dépendent de la géométrie du bâti ultravide n'ont pas leur place ici. On peut juste préciser qu'il n'est pas possible de coller le masque sur le ressort de plaquage dans le bâti ultravide. Afin donc d'éliminer le dégazage d'une colle ultravide, le ressort en bronze-béryllium a lui-même été formé de manière à constituer une pince pour tenir le masque.

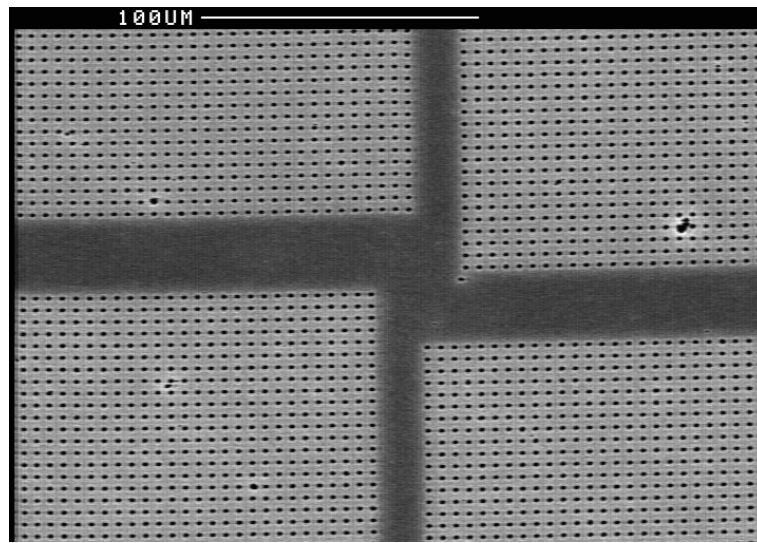
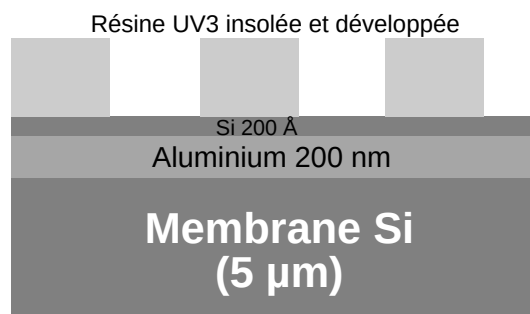


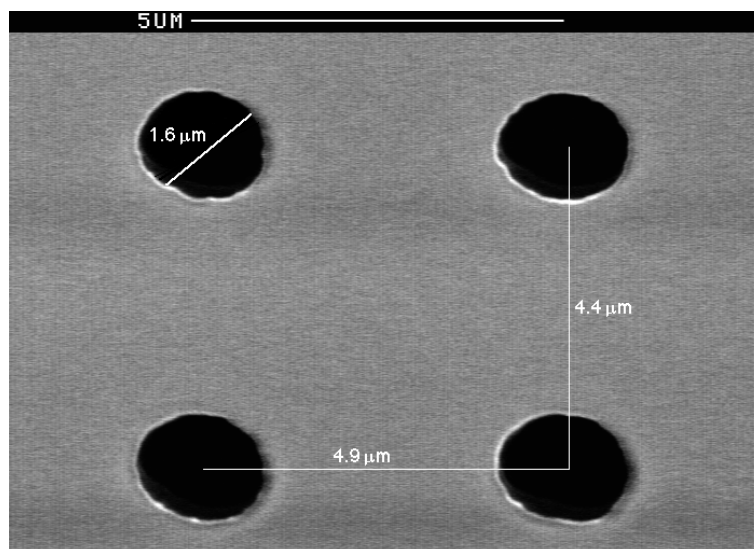
FIG. 4.11 – *Image MEB du masque avec 4 champs de trous de diamètre 1,6  $\mu\text{m}$ , raccordés à moins de 25  $\mu\text{m}$  près.*

Pour la confection du masque, une lithographie par faisceau électronique a été nécessaire. En effet, en lithographie UV profond, il faut pomper sur l'interface entre le masque optique et la membrane pour réaliser un bon contact. La membrane de silicium de 5  $\mu\text{m}$  d'épaisseur reste assez fragile et un fort contact mécanique est susceptible de la détériorer.

L'insolation a été réalisée à grandissement 160 pour un champ d'écriture maximum de 0.73 mm. Plusieurs champs ont été alignés afin d'obtenir une taille d'échantillon raisonnable. Une résine photosensible UV3, très sensible aux électrons, a été utilisée avec des doses de 10  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$  et une résolution notée 8. Chaque plot insolé représente un carré de 2\*2 pixels ce qui donne au développement des trous dans la résine positive de 0,8  $\mu\text{m}$  espacés d'environ 4  $\mu\text{m}$ . L'exposition de 5\*6 champs de 0,73\*0,73  $\text{mm}^2$  raccordés avec une précision de l'ordre à 25  $\mu\text{m}$  s'effectue en 1h30, ce qui est relativement rapide (Fig. 4.11).

FIG. 4.12 – *Géométrie utilisée pour la confection du masque.*

La gravure profonde des  $5\ \mu\text{m}$  de silicium est réalisée par RIE. Il est alors nécessaire de transférer les motifs dans une couche d'arrêt en aluminium de  $200\ \text{nm}$  d'épaisseur déposée sur la membrane. Les trous d'aluminium sont réalisés avec le développeur LDD26W qui est aussi le développeur de l'UV3. L'épaisseur de la couche d'arrêt et le temps de développement doivent être ajustés pour limiter le sur-développement de la résine et la sur-gravure de l'aluminium. Cependant le développeur a tendance à passer au-dessous de la résine et à retirer entièrement l'aluminium. Un dépôt de silicium sur l'aluminium permet de diminuer cet effet (Fig. 4.12). Dans un premier temps, le transfert du motif se fait dans cette

FIG. 4.13 – *Image MEB de la face arrière du masque montrant la taille des trous réalisés après une gravure de  $5\ \mu\text{m}$  de profondeur.*

couche de Si avec une courte RIE SF<sub>6</sub>. L'attaque au LDD26W se réalise alors uniquement dans les trous dégagés par cette gravure. Avec une vitesse d'attaque de  $300\ \text{\AA}/\text{min}$ , un développement total de 6 min 30 sec est optimal. Des trous de  $1,6\ \mu\text{m}$  sont ainsi réalisés dans la couche d'arrêt soit deux fois la taille de départ. Il est difficile de diminuer cette sur-gravure latérale avec une telle épaisseur d'aluminium.

La RIE pour la gravure profonde du silicium est réalisée avec un plasma de  $7 \text{ cm}^3/\text{min}$  de  $\text{SF}_6$ ,  $4 \text{ cm}^3/\text{min}$  d' $\text{O}_2$  et une puissance maximum de 20W. Le  $\text{SF}_6$  grave le silicium à une vitesse d'environ  $150 \text{ nm}/\text{min}$  tandis que l'oxygène forme avec l'aluminium un dépôt sur les flancs de gravure limitant l'attaque isotrope. L'attaque est alors très directionnelle, excepté juste au-dessous du masque en aluminium. Cet effet peut être diminué en réduisant la puissance de la gravure. La largeur des trous obtenus est de  $1,6 \mu\text{m}$  sur une profondeur de  $5 \mu\text{m}$  (Fig. 4.13) avec une sur-gravure latérale quasiment nulle.

Avec cette géométrie, le masque laisse une marge confortable de  $21^\circ$  pour que le dépôt de niobium atteigne l'échantillon (Fig. 4.9). Cependant, si le masque n'est pas parfaitement plaqué contre la surface de silicium, cet angle se réduit et l'on observe un fort arrondissement des bords de dépôt (Fig. 4.14). Les images MEB montrent un étalement d'environ  $200 \text{ nm}$ . Avec une taille de cible de  $0.5 \text{ cm}$  à une distance de  $28 \text{ cm}$ , la distance entre la membrane et l'échantillon est estimée à  $11 \mu\text{m}$ . Cet arrondissement des structures est gênant pour déterminer précisément l'interface NS mais c'est aussi un avantage pour l'imagerie STM.

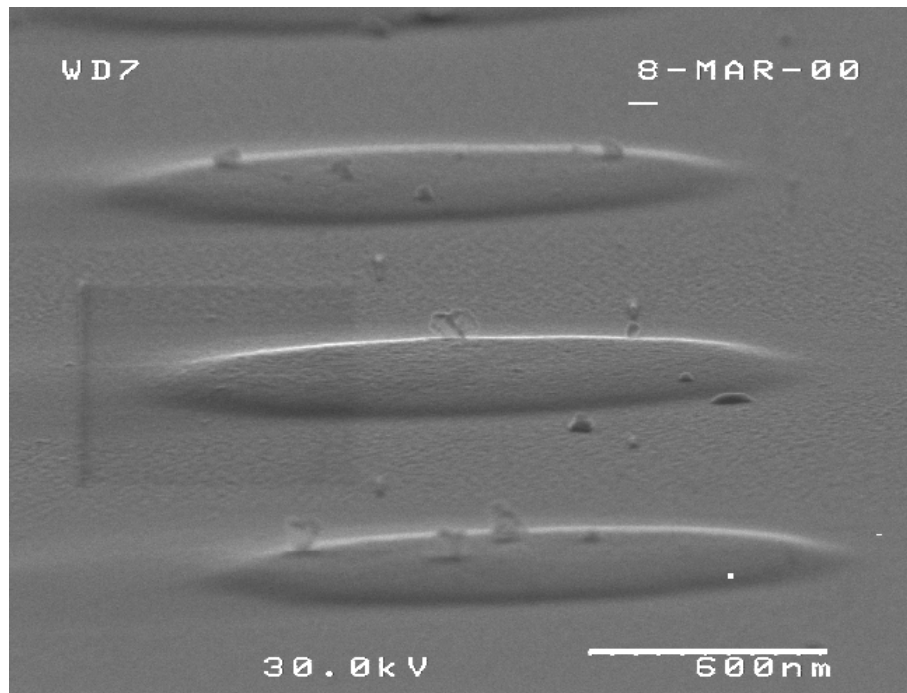


FIG. 4.14 – Image MEB sous angle d'un échantillon de  $400 \text{ \AA}$  de niobium évaporé à travers le masque de silicium puis de  $200 \text{ \AA}$  d'or déposés uniformément après le retrait du masque en ultravide.



## 4.4 Conclusion

D'autres types de structures ont été préparées pour l'observation d'effets de proximité. Des plots de niobium insérés dans une couche d'InAs fournis par Takayanaki et al. n'ont pas encore donné de résultats. Des multifilaments composés de tresses de niobium dans une matrice de cuivre (dans la même configuration que l'expérience de Millo et al.[68]) ont montré des reliefs trop importants pour être observés à basse température.

Malgré la souplesse du STM au niveau de la forme des structures observables, les impératifs de faible relief, de qualité de surface et de structures répétées sur de larges champs, rendent complexe la confection d'échantillons. Pour l'observation des effets de proximité, la qualité d'interface N-S requise ajoute de plus un critère très sélectif sur les méthodes utilisées. Ce n'est pas par hasard que ces interfaces sont généralement réalisées par dépôts sous angles avec des techniques bicouches ou tricouches. Ces méthodes n'étant pas adaptées pour les grandes surfaces d'échantillons, nous avons imaginé les deux techniques de dépôt sous angles et de masquage mécanique. Les avantages et inconvénients de chaque technique en terme de géométrie et d'interprétation des mesures seront présentés au chapitre 6.

# Chapitre 5

## Calculs quasiclassiques de densités d'états locales

Nous définissons dans ce chapitre certaines grandeurs de base de la théorie quasiclassique que nous utiliserons par la suite pour décrire l'évolution de la densité d'états électronique dans les différentes configurations d'échantillons. Il ne s'agit pas d'entrer dans le détail de cette théorie très élaborée mais d'en décrire quelques éléments afin de replacer les équations d'Usadel dans leur contexte [31, 83, 13, 53, 84]. W. Belzig nous a confié son programme de résolution numérique avec lequel il est possible de calculer la densité d'états en tout point d'une hétérostructure unidimensionnelle NS. La théorie quasiclassique décrit l'évolution des quantités physiques sur des échelles supérieures à la longueur de cohérence supraconductrice. Ainsi ce programme se prête extrêmement bien à nos mesures où l'on observe la densité d'états à des distances de quelques longueurs  $\xi_S$  de l'interface NS. Le calcul numérique peut de plus être poussé avec des résultats très satisfaisants aux limites où les longueurs typiques du système deviennent assez faibles. Quelques simulations réalisées à l'aide de ce programme sont présentées ici.

### 5.1 Introduction aux équations d'Usadel

#### 5.1.1 Fonctions de Green

L'approche habituelle pour accéder à des grandeurs observables consiste à définir le Hamiltonien du système observé et à résoudre l'équation de Schrödinger. Ceci est réalisé dans la théorie de proximité de Bogoboliubov et de Gennes [29]. Avec ce traitement, les

problèmes avec un très grand nombre de particules en interaction deviennent généralement très compliqués. L'utilisation des fonctions de Green permet de faire évoluer dans le temps et dans l'espace les grandeurs physiques moyennes du système sans avoir à décrire les fonctions d'ondes de chaque particule. En mécanique quantique, la fonction de Green est définie comme un opérateur permettant de relier la fonction d'onde d'un système à l'instant  $t_0$  et au point  $r_0$  noté (0), à sa fonction d'onde à l'instant  $t_1 > t_0$  et à la position  $r_1$ , noté (1). En seconde quantification, on écrit ce propagateur en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de particules  $\Psi^\dagger$  et  $\Psi$  :

$$G(0, 1) = -i\langle \Psi^\dagger(1)\Psi(0) \rangle, \quad (5.1)$$

Cette notation décrit la probabilité du système d'avoir une particule en (0) que l'on retrouve en (1) à une position et un temps différent. La moyenne statistique sur le désordre et sur les effets thermiques apparaît ici symbolisée par les crochets  $\langle \rangle$ .

Pour décrire un métal, il faut pouvoir traiter le gaz électronique avec ses différentes interactions électron-électron, électron-phonon, spin-flip, etc. Lorsque le système étudié est à l'équilibre, notamment quand il n'y a pas de différence de potentiel appliquée, on peut décrire l'état du système global sans interaction à un temps  $t=-\infty$ . Il est alors possible de calculer son évolution en présence d'interactions jusqu'au temps  $t$ . Par contre, lorsque le système est hors équilibre, il n'est pas possible de connaître la fonction d'onde de départ. En introduisant un temps imaginaire et en faisant évoluer le système suivant certaines directions de ce temps, le formalisme de Keldysh ramène la description à un système à l'équilibre. La fonction de Green généralisée prend alors une forme matricielle dans l'espace de Keldysh.

$$\hat{G}(r, \varepsilon) = \begin{pmatrix} \mathbf{G}^R & \mathbf{G}^K \\ 0 & \mathbf{G}^A \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

Cette fonction de Green généralisée est composée d'une partie diagonale à l'équilibre, avec les fonctions de Green avancée et retardée  $\mathbf{G}^A$  et  $\mathbf{G}^R$ . La partie non diagonale est donnée par la fonction de Keldysh  $\mathbf{G}^K$  qui donne l'information sur l'occupation des états du système hors équilibre. Avec les mesures STM, nous n'imposons pas de différence de potentiel sur l'échantillon. Nous allons donc restreindre la discussion au système à l'équilibre et notamment à la fonction de Green retardée  $\mathbf{G}^R$  qui décrit l'évolution des grandeurs physiques pour des temps croissants vers le futur.

Pour traiter la supraconductivité qui provient de la corrélation de deux particules de spins opposés ( $\uparrow$  et  $\downarrow$ ), on se place dans l'espace de Nambu. Cet espace est composé des

fonctions d'onde électron et trou dont une base peut être définie avec le formalisme de la seconde quantification par les opérateurs cités plus haut  $\begin{pmatrix} \Psi_{\uparrow}(r, t) \\ \Psi_{\downarrow}^{\dagger}(r, t) \end{pmatrix}$ .

La fonctions de Green  $\mathbf{G}^R$  devient alors un opérateur matriciel  $2 \times 2$  composé de deux fonctions de Green normale  $G^R$  et anormale  $F^R$ .

$$\hat{\mathbf{G}}^R(0, 1) = \begin{pmatrix} G^R(0, 1) & F^R(0, 1) \\ F^{R\dagger}(0, 1) & -G^R(0, 1) \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

La fonction  $G^R(0, 1)$  est reliée à l'opérateur  $\langle \Psi_{\uparrow(\downarrow)}(1) \Psi_{\uparrow(\downarrow)}^{\dagger}(0) \rangle$  qui évalue la probabilité d'évolution de (0) à (1) d'une particule de spin up (ou down). Nous avons déjà rencontré au chapitre 1 l'amplitude de paire  $F^R(0, 1)$ , qui est elle reliée à l'opérateur  $\langle \Psi_{\uparrow}(1) \Psi_{\downarrow}^{\dagger}(0) \rangle$ . Elle décrit la corrélation de deux particules de spins opposés. Cette fonction de Green anormale donne ainsi accès à l'évolution des paires de Cooper. Dans le cas de la limite diffusive, l'équation 5.3 peut prendre une forme simplifiée grâce à une paramétrisation en fonction d'un angle d'appariement complexe  $\theta(r, \varepsilon)$  :

$$\tilde{\mathbf{G}}^R(r, \varepsilon) = \begin{pmatrix} \cos(\theta) & e^{-i\varphi} \sin(\theta) \\ e^{i\varphi} \sin(\theta) & -\cos(\theta) \end{pmatrix}. \quad (5.4)$$

La transformée de Fourier  $\tilde{\mathbf{G}} = TF(\hat{\mathbf{G}})$  permet de parler en terme d'énergie  $\varepsilon$ . On reconnaît ici l'angle  $\varphi$  de la phase supraconductrice. L'angle  $\theta$  est directement relié à la force de la supraconductivité au point  $r$  et à l'énergie  $\varepsilon$ . On remarque que si  $\theta = 0$ ,  $F^R$  est nulle et il n'y a pas de supraconductivité au point  $r$ .

### 5.1.2 Équations d'Usadel

Pour les effets de proximité, on s'intéresse essentiellement aux équations de mouvement de deux particules corrélées. Les paires de Cooper n'étant définies que sur une longueur  $\xi_S$ , une première simplification consiste à travailler avec des fonctions de Green moyennées sur cette taille. Toute les oscillations à l'échelle de la longueur de Fermi ainsi que les effets de cohérence à cette échelle sont donc négligés. Cette approximation dite "quasiclassique" n'est cependant pas correcte pour d'autres effets mésoscopiques comme la localisation faible, qui est engendrée par la phase d'une seule particule.

Dans le cadre de cette approximation quasiclassique, les équations cinétiques générales des quasi-particules dans un métal ont été dérivées par Eilenberger [32]. En limite sale, la longueur de cohérence supraconductrice est bien supérieure au libre parcours moyen,

$\xi_S \gg l_p$ . Le déplacement électronique étant diffusif, la dépendance angulaire des fonctions de Green est alors moyennée sur toutes les directions de l'espace. Ceci permet de simplifier considérablement le système par rapport à la limite balistique.

L'évolution spatiale des quasi-particules s'exprime alors en fonction des différentes interactions avec l'environnement. Les processus de diffusion élastique sont compris dans la constante de diffusion  $D$  et les interactions inélastiques peuvent être exprimées par le temps  $\tau_{in}$  moyen entre deux collisions. Les interactions spin-flip sont elles aussi exprimées par un temps moyen  $\tau_{sf}$  entre deux retournements du spin électronique. Le couplage supraconducteur électron-phonon  $\Delta(r)$  peut évoluer dans l'espace et doit être déterminé de manière auto-consistante comme nous le verrons plus loin. Enfin, l'influence du champ magnétique s'exprime au travers du potentiel vecteur ( $\vec{A}$ ), et le champ électrique qui doit être introduit conjointement à la description du système hors équilibre est donné par le gradient de la phase électronique. Les équations d'Usadel décrivant la dépendance spatiale de l'angle d'appariement  $\theta(r, \varepsilon)$  défini plus haut s'expriment :

$$\begin{cases} \frac{\hbar D}{2} \delta_r^2 \theta + \left[ i\varepsilon - \frac{\hbar}{\tau_{in}} - \left( \frac{\hbar}{\tau_{sf}} + \frac{\hbar D}{2} (\delta_r \varphi + \frac{2e}{\hbar} A)^2 \right) \cos \theta \right] \sin \theta + \Delta(r) \cos \theta = 0 \\ \delta_r \left[ (\delta_r \varphi + \frac{2e}{\hbar} A) \sin^2 \theta \right] = 0. \end{cases} \quad (5.5)$$

La première équation, non linéaire, décrit la diffusion de l'angle  $\theta$  en fonction de l'énergie  $\varepsilon$ . La seconde équation est équivalente à la conservation de la densité de courant  $\text{div } \vec{j} = 0$ .

En se plaçant loin dans le métal normal, là où l'amplitude de paire est fortement affaiblie, on peut linéariser la première équation en utilisant  $\sin \theta \simeq \theta$  et  $\cos \theta \approx 0$ . En négligeant l'interaction de spin-flip, l'équation devient  $\hbar D \delta_x^2 \theta + (i2E + \hbar/\tau_{in})\theta = 0$ . Si l'on supprime le terme inélastique, cette équation correspond simplement à une équation de diffusion des paires de Cooper au travers de l'angle d'appariement  $\theta$ . On retrouve immédiatement la longueur de diffusion  $L_\varepsilon$  (équation 1.9). La longueur inélastique  $L_\phi \propto \sqrt{\tau_{in}}$  apparaît ici comme une seconde limite indépendante de l'énergie de la propagation de l'angle  $\theta$ . Elle devient significative lorsque la première longueur limite  $L_\varepsilon$  devient grande, c'est-à-dire pour les faibles énergies.

Suivant l'importance des interactions par rapport aux tailles caractéristiques du système observé, la brisure de phase imposée par les processus inélastiques et les processus de spin flip peuvent être négligés. En connaissant les conditions aux limites, la résolution de ces équations permet d'avoir accès aux grandeurs physiques moyennes sans avoir à résoudre l'équation de Schrödinger.

### 5.1.3 Densité d'états à une particule

Nous avons vu que la fonction de Green  $G^R(0, 1)$  est reliée à l'opérateur  $\langle \Psi_{\uparrow(\downarrow)}(1) \Psi_{\uparrow(\downarrow)}^\dagger(0) \rangle$ . Quand  $r_1 - r_0 \rightarrow 0$  et  $t_1 - t_0 \rightarrow 0$ , cet opérateur n'est autre que la probabilité de présence d'une particule de spin up (ou down) au temps  $t$  et au point  $r$ . La densité d'état à une particule est alors donnée par :

$$n(r, E) = n_0 \Re[\cos\theta(r, E)]. \quad (5.6)$$

$n_0$  correspond dans un métal normal à la densité d'état uniforme autour de l'énergie de Fermi. La condition de normalisation  $\hat{G}^R \hat{G}^R = \hat{1}$  impose un nombre constant d'états dans le métal. La normalisation de la densité d'états décrite comme  $\int [n(E) - n_0] dE = 0$  montre ainsi que lors de l'ouverture d'un gap ou d'un pseudo-gap supraconducteur autour de  $E_F$ , le nombre d'états manquants au-dessous de  $n_0$  doit se retrouver dans les pics de densités au-dessus de  $n_0$ .

### 5.1.4 Densité de paires et largeur du gap supraconducteur

Pour accéder au remplissage des états supraconducteurs, il est nécessaire de passer par la distribution en énergie des particules. À l'équilibre, le remplissage électronique est simplement donné par la distribution de Fermi  $f(\varepsilon)$ . Les grandeurs physiques sont alors convoluées avec la dérivée de cette distribution  $g(\varepsilon) = \frac{df(\varepsilon)}{d\varepsilon} = \tanh\left(\frac{\varepsilon}{2k_B T}\right)$ . L'amplitude de paire, donnée par la fonction de Green anormale  $F^R \propto \sin(\theta)$  est reliée à la fonction d'onde décrivant deux particules de spins opposés. La densité de ces paires est donc en  $\sin^2\theta$  et peut s'écrire [13] :

$$|\Psi|^2 = \frac{m}{e^2 \hbar} \sigma \int_0^\infty g(\varepsilon) \Im[\sin^2\theta] d\varepsilon, \quad (5.7)$$

où  $\sigma$  est la conductivité à l'état normal. Le gap supraconducteur  $\Delta$  se calcule de manière auto-consistante comme dans la théorie BCS :

$$\Delta(r) = n_0 V_{eff} \int_0^{\hbar w_D} g(\varepsilon) \Im[\sin\theta] e^{i\varphi} d\varepsilon, \quad (5.8)$$

avec  $w_D$  la fréquence de Debye. Cette relation auto-consistante peut être exprimée en fonction des fréquences de Matsubara qui permettent par une astuce mathématique d'obtenir une sommation discrète sur les énergies. L'information reste cependant identique. Dans un métal normal, l'interaction  $V_{eff}$  est nulle et le paramètre d'ordre  $\Delta$  s'annule lui aussi. En proximité, un métal normal est cependant susceptible de transporter un supercourant. Les descriptions physiques au moyen du paramètre  $\Delta$  ne sont donc pas adaptées pour les effets de proximité. Ainsi, l'amplitude de paire  $F^R$  est plus représentative de ces phénomènes physiques.

## 5.2 Jonction NS

Nous allons appliquer les équations d'Usadel à un système composé d'un métal supraconducteur en contact avec un métal normal. Cette description a été réalisée par W. Belzig et al. [38], et correspond à leur programme de résolution numérique. On considère deux couches de métal S et N en contact au point  $x=0$  (Fig. 5.1). Par symétrie du système,

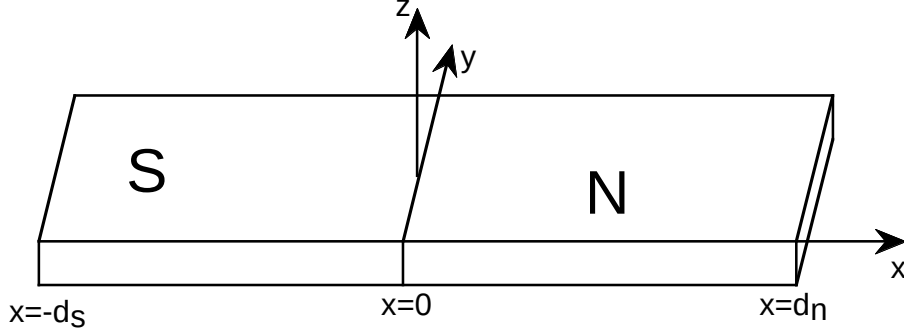


FIG. 5.1 – Géométrie d'échantillon où seule la dépendance en  $x$  est significative.

l'épaisseur suivant  $z$  et la largeur  $y$  de l'interface sont prises supérieures aux longueurs de cohérence et n'interviendront pas dans l'évolution des paramètres physiques. Seule intervient la distance  $x$  à l'interface et l'on distinguera différents cas suivant que les longueurs  $d_n$  et  $d_s$  des deux métaux sont finies ou pas. Le système étant diffusif, ces longueurs restent supérieures aux libres parcours moyens dans S et dans N. Pour une simplicité d'écriture, W. Belzig et al. expriment la taille du métal normal en fonction d'une longueur  $\xi_N$  définie de façon similaire à  $\xi_S$  (équation 1.6) avec le coefficient  $D$  du métal normal et le gap  $\Delta$  du supraconducteur :

$$\xi_N = \sqrt{\frac{\hbar D_N}{2\Delta}}. \quad (5.9)$$

La position  $x$  est alors donnée en unité  $\xi_S$  dans le métal supraconducteur et en unité  $\xi_N$  dans le métal normal.

Sur de faibles distances et dans des métaux relativement propres, le temps de décohérence inélastique  $\tau_{in}$  peut être négligé. Les équations d'Usadel à une dimension et sans champ magnétique ni gradient de phase  $\varphi$  se réduisent alors à

$$\hbar D \delta_x^2 \theta + \left[ 2i\varepsilon - \frac{2\hbar}{\tau_{sf}} \cos \theta \right] \sin \theta + \Delta(x) \cos \theta = 0 \quad (5.10)$$

Le potentiel de paires  $\Delta$  varie continûment de S vers N, et doit être calculé de manière auto-consistante à partir des équations aux limites et de l'équation 5.8.

### 5.2.1 Conditions de raccordement à l'interface

Le contact des deux métaux N et S impose des conditions de continuité des paramètres physiques à l'interface. Tout d'abord, la différence de vitesse de Fermi des électrons dans chaque métal ainsi que la différence de libre parcours moyen influence la cinétique des électrons au passage de l'interface. Cette désadaptation des deux métaux apparaît dans les calculs analytiques des équations d'Usadel par un paramètre  $\gamma$  qui s'exprime

$$\gamma = \frac{\sigma_N}{\sigma_S} \sqrt{\frac{D_S}{D_N}} \propto \sqrt{\frac{l_{pN}}{l_{pS}}}. \quad (5.11)$$

Il est proportionnel à la racine carrée du rapport des libres parcours moyens des deux métaux. Nous verrons un peu plus loin l'effet de ce paramètre qui est utilisé aussi dans les calculs numériques.

Les autres conditions à l'interface sont exprimées par la continuité de l'angle d'appariement à gauche  $\theta(0_-)$  et à droite  $\theta(0_+)$  de l'interface. On peut inclure dans le modèle une résistance d'interface par unité de surface  $\rho_B$  [85]. Les conditions de raccordement s'écrivent alors :

$$\begin{cases} \rho_B \sigma_N \delta_x \theta(x=0_+) = \sin(\theta(0_+) - \theta(0_-)) \\ \sigma_S \delta_x \theta(0_-) = \sigma_N \delta_x \theta(0_+) \end{cases} \quad (5.12)$$

$\sigma_S$  et  $\sigma_N$  sont les conductivités de chaque métal à l'état normal. Pour une interface parfaitement transparente, la première condition devient  $\theta(0_+) = \theta(0_-)$ . La deuxième équation peut être reliée à la conservation à chaque énergie du courant supraconducteur transporté de part et d'autre de l'interface.

### 5.2.2 Limites des tailles infinies

Dans le cas de deux métaux infinis, les conditions aux limites imposent que  $\theta = 0$  en  $x = \infty$  dans le métal normal. Du côté du supraconducteur massif en  $x = -\infty$ , l'angle  $\theta$  et le paramètre d'ordre  $\Delta$  n'évoluent plus. L'angle d'appariement supraconducteur devient alors  $\theta_s = \arctan\left(\frac{\Delta_s}{-iE + \tau_{sf}}\right)$ .

Si on néglige le spin flip, l'équation 5.10 devient dans S :  $\tan\theta_{BCS}(\varepsilon) = i\frac{\Delta}{\varepsilon}$ . On retrouve la densité d'état BCS que l'on peut écrire :

$$n_{BCS} = n_0 \Re[\cos\theta_{BCS}] = n_0 \begin{cases} 0 & \text{si } |\varepsilon| < \Delta \\ \frac{|\varepsilon|}{\sqrt{\varepsilon^2 - \Delta^2}} & \text{si } |\varepsilon| > \Delta \end{cases} \quad (5.13)$$

En négligeant la détermination auto-consistante du potentiel de paires  $\Delta$  et en prenant une fonction marche telle que  $\Delta(x < 0) = \Delta_S$  et  $\Delta(x > 0) = 0$ , W. Belzig et al. arrivent



à une solution analytique de  $\theta(x)$  dans cette limite des métaux infinis. À partir de sa valeur  $\theta_0$  à l'interface, l'angle d'appariement décroît exponentiellement sur une longueur  $L_\varepsilon = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\varepsilon}}$  dans le métal normal, et augmente sur une longueur  $L_{\varepsilon S} = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\sqrt{\varepsilon^2 + \Delta^2}}}$  dans le supraconducteur.

La méthode numérique quant à elle, part de la fonction marche de  $\Delta$  pour calculer  $\theta(x)$  en première itération. L'angle d'appariement est alors réintroduit dans l'équation auto-consistante 5.8 pour calculer une seconde formulation de  $\Delta(x)$ . Ces itérations sont répétées jusqu'à ce que l'angle d'appariement en  $x=0$  n'évolue presque plus.

L'angle d'appariement  $\theta_0$  au niveau de l'interface a une dépendance avec  $\gamma$  exprimée par  $\sin(\theta_0 - \theta_S)/2 \propto \gamma \sin \theta_0/2$ . Lorsque  $\gamma \rightarrow 0$ , l'angle à l'interface se rapproche de l'angle  $\theta_S$  dans le supraconducteur. Le paramètre  $\gamma$  exprime donc l'amplitude des effets de proximité d'un métal sur l'autre en fonction des libres parcours (Fig. 5.2). Lorsque le métal normal est très diffusif, il influence peu le métal S et le gap dans N près de l'interface est grand. Inversement, lorsqu'il est peu diffusif le paramètre d'ordre est fortement affaibli dans S.

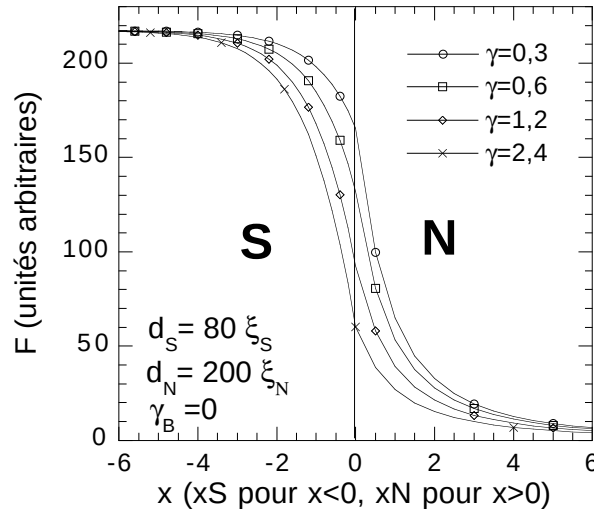


FIG. 5.2 – Évolution de l'amplitude de paire avec la distance  $x$  proche de l'interface dans un système quasi-infini ( $d_S = 80\xi_S$ ,  $d_N = 200\xi_N$ ) pour différentes valeurs de  $\gamma$ .

Des mesures de conductivité sur nos échantillons de niobium et d'or permettent d'estimer  $\gamma \simeq 1,2$ . La figure 5.3 représente l'évolution des densités d'états électroniques en fonction de la distance à l'interface pour une telle valeur de  $\gamma$ . Les tailles prises pour ce calcul sont très grandes devant les longueurs de cohérences supraconductrices et les métaux sont donc considérés comme infinis.

Il y a deux contributions de la température à la mesure d'une densité d'états. Les calculs sont effectués pour une température  $T=0,003 T_c$ . La température donnée ici intro-

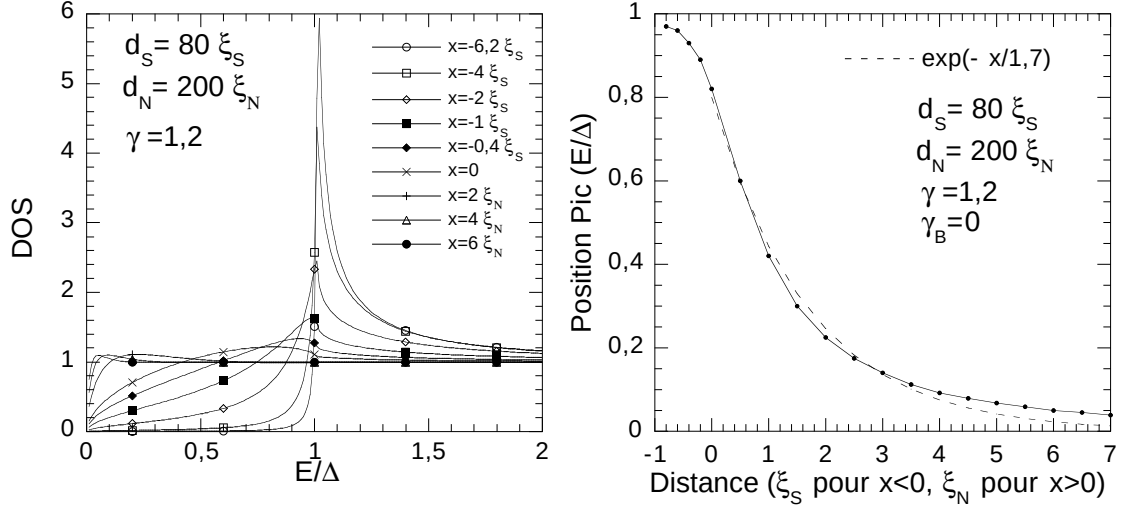


FIG. 5.3 – (gauche) Densité d'états en fonction de la distance à l'interface ( $x=0$ ) pour deux métaux de très grandes longueurs (quasi infinis). Le spin-flip et la barrière d'interface sont mis à zéro. (droite) Évolution du pic de densité d'états en fonction de la distance  $x$  comparé à une évolution exponentielle.

duit simplement la dépendance du gap supraconducteur massif avec la température dans l'équation auto-consistante 5.8. Elle influence donc l'amplitude du paramètre d'ordre BCS dans la condition aux limites et joue essentiellement près de la température de transition supraconductrice. La seconde contribution intervient au moment de la mesure par le remplissage réel des niveaux d'énergie. Les courbes obtenues ici doivent être convoluées par la dérivée de Fermi (équation 1.3) pour être comparées aux mesures spectroscopiques réelles.

La figure 5.3 (gauche) montre qu'il n'y a pas d'ouverture de gap dans N et que l'ouverture de ce gap dans S n'intervient réellement qu'à une distance de l'ordre de  $x = -2\xi_S$ . Dans S, le gap se remplit progressivement en se déplaçant vers l'interface et le pic de densité reste centré sur  $\Delta$ . Juste avant l'entrée dans N (vers  $x \approx -\xi_S$ ) ce pic commence à se décaler vers les faibles énergies. La figure de droite montre la position du pic de densité avec la distance. Cette évolution est comparé à une exponentielle à laquelle on pourrait s'attendre par comparaison avec la théorie de de Gennes. La longueur  $\xi_N$  est l'échelle de décroissance de l'énergie du pic de densité d'états dans N. Les paires supraconductrices de faible énergie semblent cependant pénétrer plus profondément dans N qu'un simple comportement exponentiel. On voit ici que la théorie de de Gennes n'est pas suffisante pour les petites énergies c'est-à-dire pour les grandes distances.

Le paramètre  $\gamma$  influence la vitesse d'évolution du pic de manière non linéaire avec la

distance. Pour  $\gamma = 0,6$  on trouve une décroissance exponentielle  $e^{-\frac{x}{2}}$  avec  $x$  en unité de  $\xi_{N\gamma=0,6}$ . Avec  $\gamma = 1,2$  on a une décroissance  $e^{-\frac{x}{1,7}}$  avec  $x$  en unité de  $\xi_{N\gamma=1,2}$ . Les deux unités sont reliées par  $\xi_{N\gamma=1,2} = 2 \xi_{N\gamma=0,6}$ . Conformément à notre intuition, plus le métal normal est diffusif, moins les paires électroniques le pénètrent. Le paramètre  $\gamma$  est donc critique pour la description des effets de proximité sur de grandes échelles.

### 5.2.3 Métaux de dimension finie

Si l'on considère à présent des structures de dimension finie, le courant spectral s'annule sur chaque bord (équation [5.12]). Les conditions aux limites s'écrivent alors  $\delta_x \theta = 0$ . Par le traitement auto-consistant du paramètre d'ordre, le gap supraconducteur en  $x = -d_s$  peut être affaibli par proximité avec le métal normal si l'épaisseur de S n'est pas assez importante. Ceci est d'autant plus vrai que l'interface est transparente.

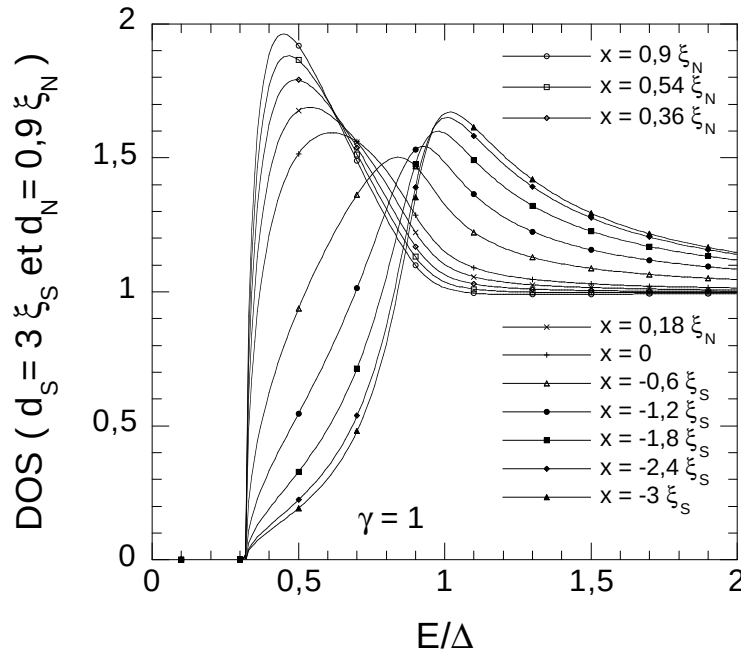


FIG. 5.4 – Densités d'états en fonction de la position  $x$  à l'interface dans un bicouche fin sans barrière d'interface ni spin flip.

Avec de faibles épaisseurs de métal normal et supraconducteur, le minigap qui s'ouvre est identique quelle que soit la distance à l'interface dans S ou dans N (Fig. 5.4). Dans S le pic de densité reste positionné en  $\Delta$  et la densité d'état est non nulle jusqu'au minigap  $E_g$ . En se déplaçant vers N, la densité près de  $E_g$  se remplit progressivement jusqu'à former un pic marqué juste au-dessus du minigap.

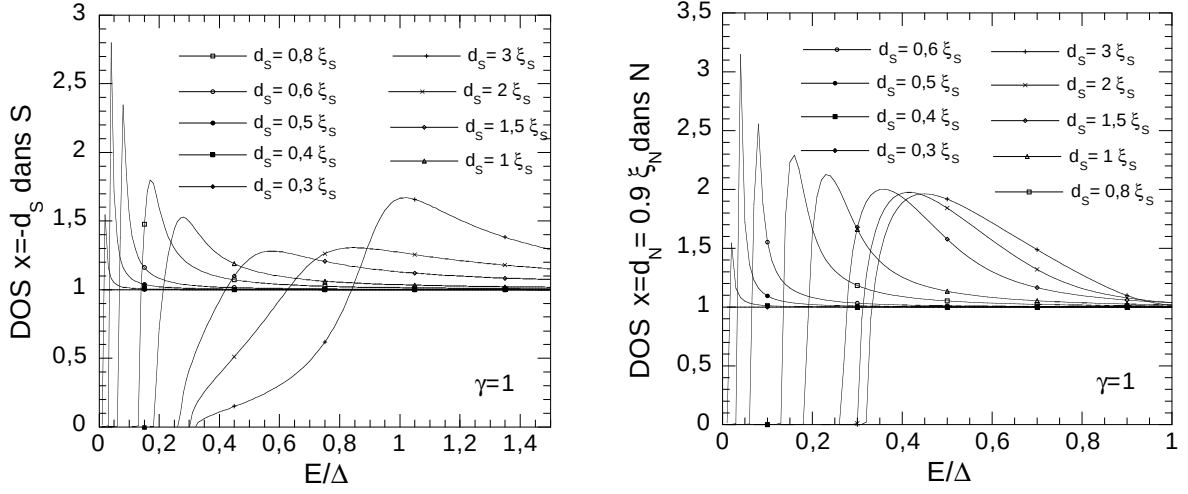


FIG. 5.5 – Densités d'états en fonction de l'épaisseur du métal  $S$  avec une couche fine de métal normal  $d_N = 0,9$ . À droite, densité d'états à la surface libre du supraconducteur en  $x = -d_S$ . À gauche, densité à la surface du métal normal.  $\gamma = 1$ ,  $\gamma_{sf} = 0$  et l'interface est parfaitement transparente ( $\gamma_B = 0$ ).

La figure 5.5 montre l'évolution de la densité d'états dans  $S$  et dans  $N$  en fonction de l'épaisseur du supraconducteur. Ces calculs ont été menés jusqu'à la limite des très faibles épaisseurs pour  $d_S \simeq l_{pNb}$  dans le cas du niobium évaporé dans notre bâti ultravide. Cette limite ne correspond plus à la limite quasiclassique et une correction due au confinement des électrons dans la couche supraconductrice doit être apportée aux dernières courbes.

La limite de Cooper s'intéresse à des épaisseurs de métaux bien inférieures aux longueurs de cohérence définies par  $\xi = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}}$  dans la théorie de P. G. de Gennes [29]. À travers la formulation BCS, cette limite permet d'obtenir une température critique du bicouche à l'aide d'un potentiel effectif moyen "NV" :  $k_B T_c \simeq 1,13 \hbar w_D e^{\frac{1}{NV}}$ . Sans barrière résistive à l'interface, les électrons passent rapidement d'un métal à l'autre et subissent le potentiel attractif  $V$  de chaque métal pondéré par leur l'épaisseur et leur densité  $N$  : "NV"  $\sim \rho = \frac{V_N N_N^2 d_N + V_S N_S^2 d_S}{N_N d_N + N_S d_S}$ . S'il n'est pas nul, le potentiel effectif  $V_{eff}$  dans l'or ou le cuivre est en tous cas très petit. Pour un bicouche Nb 200 Å/ Au 100 Å, le calcul donne une température critique  $T_c = 1,4$  K contre 9,2 K pour le niobium massif. Pour des épaisseurs plus importantes de supraconducteur, les propriétés des parties les plus éloignées de l'interface ont un comportement proche du supraconducteur massif. La température critique effectivement mesurée sera celle du métal massif.

Nous pouvons aussi quantifier l'amplitude du minigap induit dans toute l'épaisseur du bicouche. Les paires d'énergie inférieure à  $\varepsilon_c$  (équation 1.10) pouvant traverser tout le métal N, il est assez naturel de considérer qu'un minigap  $E_g$  d'énergie  $\varepsilon_c$  s'ouvre dans N. On peut réécrire ce minigap  $\frac{E_g}{\Delta} = \frac{\hbar D}{\Delta d_N^2} = \left(\frac{\pi \xi_N}{d_N}\right)^2$ . Dans le cadre de la théorie quasiclassique, W. Belzig et al. montrent [38] que ce minigap s'exprime par :

$$\frac{E_g}{\Delta} \simeq \left( \frac{1}{1 + \frac{d_N}{2,1\xi_N}} \right)^2 \propto (const \times \xi + d_N)^{-2} \quad (5.14)$$

Le raisonnement plus haut reste correct si l'on considère que le métal normal a une taille effective légèrement plus grande, d'une quantité  $const \times \xi$ , en raison de la pénétration des électrons normaux dans le supraconducteur.

### 5.2.4 Barrière résistive

Lorsqu'on ajoute une barrière résistive à l'interface, les pics de densité d'états dans N sont fortement arrondis (Fig. 5.6). La résistance de la barrière  $R_{int}$  est introduite ici par un paramètre  $\gamma_B$  défini par

$$\gamma_B = \frac{R_{int}A}{\rho_N \xi_N}. \quad (5.15)$$

A est la surface de l'interface et  $\rho_N$  la résistivité du métal normal.

La figure 5.6 montre la densité d'états dans le métal normal en fonction de  $\gamma_B$ . On observe un affaiblissement de la DOS au niveau du gap  $\Delta$ . La pente des pics de densité présentent de plus une cassure qui augmente avec l'amplitude de la barrière résistive. Ceci est aussi observé par D. H. Prothero [60] (Fig. 1.7).

Cette configuration a été étudiée par W. L. McMillan [30] dans le cas d'une barrière très résistive et pour des épaisseurs de métal inférieures aux longueurs de cohérence supraconductrices. Il montre dans ce cas que le minigap  $E_g$  est inversement proportionnel au temps  $\tau_N$  que les électrons passent dans N avant de retourner dans S :

$$E_g \approx \frac{\hbar}{\tau_N} \approx \frac{\hbar v_{FN}}{d_N} t = \frac{\hbar v_{FN}}{d_N} \frac{l_{pN}}{\gamma_B \xi_N}. \quad (5.16)$$

t est la probabilité de tunnel à travers la barrière résistive. Ainsi pour de fortes résistances d'interface, le minigap est inversement proportionnel à  $\gamma_B$ . Pour le cas des faibles résistances ( $\gamma_B$  petit), les minigaps montrés sur la figure 5.6 (Gauche) ne semblent pas montrer ce type d'évolution.

Les densités d'états calculées par la théorie de McMillan montrent bien la brisure de pente des pics de densité. Ceci est assimilé à une trace dans N de la forte densité électronique au niveau du gap  $\Delta$  dans le supraconducteur. On considère généralement qu'une

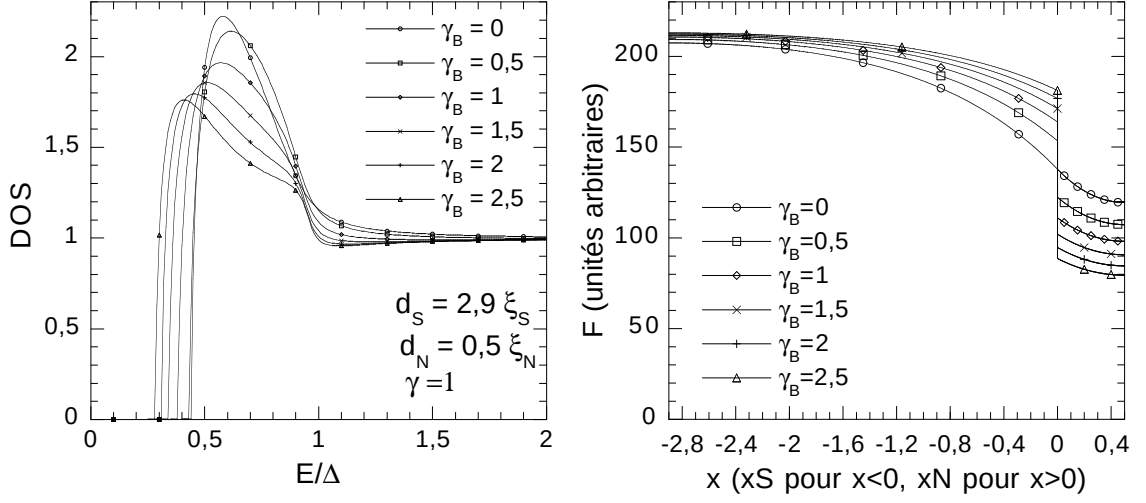


FIG. 5.6 – (Gauche) Densités d'états à la surface du métal normal pour différentes barrières d'interface dans un bicouche de faible épaisseur. (Droite) Évolution de l'amplitude de paires en fonction de la distance à l'interface pour les mêmes paramètres de barrière  $\gamma_B$ .

barrière résistive est identique à une épaisseur de métal normal plus importante [86]. Ceci n'est pas vrai pour la densité d'états. Sans barrière résistive, il n'y a pas de brisure de pente dans les pics de densité.

Dernièrement, Ya. V. Fominov and M. V. Feigel'man [87] ont effectué un calcul quasi-classique dans le cas d'un bicouche de faible épaisseur. Ils considèrent que les fonctions de Green évoluent très peu sur l'épaisseur de ce bicouche. De manière similaire au temps  $\tau_N$  introduit ci-dessus, ils définissent un temps  $\tau_S$  de vie des électrons dans le métal supraconducteur. Ils montrent alors deux comportements asymptotiques suivant la résistance d'interface. Dans le cas d'une forte résistance, ils retrouvent le minigap  $E_g = \hbar/\tau_N$  de McMillan et la densité d'états dans N se rapproche de l'équation :

$$\cos\theta_N = \frac{\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon^2 - E_g^2}}. \quad (5.17)$$

Cette équation ressemble à une densité d'états BCS avec cependant un gap positionné au minigap  $E_g$  au lieu de  $\Delta$ .

Dans une limite d'Anderson de faible résistance et de faible épaisseur ( $\tau_S\Delta \ll \hbar$  et  $\tau_N\Delta \ll \hbar$ ), le minigap  $E_g$  est défini par :

$$E_g = \frac{\tau_S}{\tau_N + \tau_S} \Delta. \quad (5.18)$$

La densité d'états est uniforme dans toute l'épaisseur du bicouche et se rapproche là aussi d'une densité pseudo-BCS (équation 5.17) avec cette nouvelle valeur de  $E_g$ . On observe en effet sur la figure 5.5 que la DOS dans S se rapproche de la densité dans N pour les faibles épaisseurs de supraconducteur.

La température du bicouche peut être évaluée analytiquement dans cette limite d'Anderson. Elle est directement proportionnelle au minigap  $E_g$  :

$$\frac{T_c}{T_c^{BCS}} = \frac{E_g}{\Delta_{BCS}}. \quad (5.19)$$

La température critique dans la limite de Cooper, décrite plus haut, se retrouve avec ces équations en prenant une résistance d'interface nulle. À titre d'exemple, dans un bicouche niobium/or avec une résistance d'interface inférieure à  $1 \text{ m}\Omega.\mu\text{m}^2$ , la limite d'Anderson intervient pour des épaisseurs  $d_N$  et  $d_S$  très inférieures à  $1000 \text{ \AA}$ .

Les évolutions des densités d'états dans le système unidimensionnel présenté ici va nous permettre d'appréhender les comportements des spectroscopies réalisées par STM en se déplaçant sur la surface des échantillons. Nous savons à présent que les effets seront visibles sur des tailles d'environ  $5 \xi_N$  dans le cas de métaux de grandes dimensions. Dans le cas d'un métal normal de dimension finie, le microscope ayant une résolution en énergie d'environ  $36 \mu\text{eV}$ , la taille de N en contact avec du niobium ne devra pas dépasser  $10 \xi_N$ . Ceci correspond à l'ouverture d'un minigap d'environ  $45 \mu\text{eV}$ . Les effets du spin-flip et d'un champ magnétique, négligés pour l'interprétation de nos mesures, sont discutés par Belzig et al. [38].

## Chapitre 6

# Structures NS mesurées par STM

Nous présentons dans ce chapitre trois types de mesures qui ont montré les comportements de la densité d'états dans différentes configurations de métal normal (Au ou Cu) en proximité avec le métal supraconducteur (Nb). Les échantillons dont la fabrication nécessite une remise à l'air entre les dépôts des deux métaux présentent une résistance d'interface trop importante pour observer des effets de proximité. Au cours des différents essais pour rendre cette interface transparente, nous avons testé l'influence de la gravure ionique à l'argon souvent utilisée pour décaper et nettoyer les surfaces métalliques. Les densités d'états observées sur ces échantillons test présentent des caractéristiques intéressantes au niveau de l'influence de la qualité de l'interface. Pour contourner le problème du mauvais contact métallique entre le niobium et l'or, nous nous sommes tournés vers des interfaces réalisées par deux dépôts successifs dans le même vide. Deux procédés de fabrication *in situ*, l'évaporation sous angle et le masquage mécanique, ont montré des phénomènes de proximité dont les résultats sont présentés ici. Autant que la géométrie de ces échantillons le permet, ces mesures sont comparées aux densités d'états calculées par les équations d'Usadel dans le système unidimensionnel présenté au chapitre précédent.

Le STM mesure une densité d'états locale qui peut être influencée par de nombreux paramètres : libres parcours moyens, orbitales atomiques locales, impuretés, joints de grains, qualité de la jonction tunnel, température effective de mesure, paramètre d'ordre supraconducteur, taux de décohérence spin-flip, résistance d'interface, etc. Ainsi, à l'échelle atomique, l'évolution des densités d'états mesurées par STM peut parfois apparaître un peu chaotique. Il est alors nécessaire de chercher une cohérence sur l'ensemble des acquisitions. Pour l'analyse de ces mesures, il faut partir de quelques paramètres fixés qui permettront d'appliquer les équations d'Usadel. Relier ces paramètres qui peuvent avoir des variations assez locales à des mesures macroscopiques telles qu'une température cri-



tique où une conductivité n'est pas toujours approprié.

Les paramètres insérés dans les équations d'Usadel sont au nombre de 6. Tout d'abord, l'amplitude du gap  $\Delta$  est de 1,55 meV pour le niobium massif mais sa valeur varie avec la qualité et l'épaisseur du dépôt. Ensuite, les épaisseurs  $d_N$  et  $d_S$  sont exprimées en unité  $\xi_N$  et  $\xi_S$ . Ces deux longueurs de cohérence sont en fait liées au gap  $\Delta$  et aux libres parcours  $l_{pN}$  et  $l_{pS}$  à travers la relation

$$\xi = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\Delta}}. \quad (6.1)$$

Nous devons introduire ensuite le paramètre  $\gamma \propto \sqrt{l_{pN}/l_{pS}}$  qui dépend du rapport des libres parcours des deux métaux et qui influence l'arrondissement des pics de densité d'états dans N ainsi que la profondeur de pénétration de la supraconductivité. On peut aussi tenir compte de la barrière d'interface avec  $\gamma_B = (R_{int}A)/(\rho_N \xi_N)$  (équation 5.15), et de l'interaction spin-flip ( $\gamma_{sf}$ ). Un dernier paramètre important est la température effective de mesure qui influence beaucoup l'apparence des structures de faible énergie dans la densité d'états.

Avec les incertitudes sur chaque paramètre, les combinaisons pour décrire une forme de densité d'états sont nombreuses. La température effective a été fixée autour de 210 mK ce qui correspond à la température mesurée avec les tests de sensibilité du microscope (cf. chapitre 3). Dans l'analyse de la plupart des échantillons, nous avons négligé le spin-flip ainsi que la résistance d'interface. La forme de la densité d'états est bien entendu modifiée par ces deux paramètres, mais son évolution avec les épaisseurs ou les distances est normalement équivalente avec ou sans ceux-ci. Ceci nous permet de réduire le nombre de paramètres à deux longueurs  $l_{pN}$ ,  $l_{pS}$  et à l'amplitude du gap local  $\Delta$ .

## 6.1 Échantillons lithographiés

Nous avons effectué environ 13 refroidissements avec des échantillons dont la confection consiste à structurer une couche de niobium par des procédés de microfabrication standards. Ces échantillons sont réalisés en déposant une résine photosensible sur une couche de niobium d'environ 50 nm d'épaisseur. La résine est insolée puis développée et une gravure ionique réactive permet de retirer les zones de niobium sur les parties dégagées par le développement. La résine est alors retirée, les surfaces de niobium nettoyées par différentes techniques et les échantillons réintroduits dans l'ultravide pour un second dépôt de métal normal. Ce procédé est détaillé au chapitre 4. Malgré tous les essais de nettoyage de la surface de niobium avant le second dépôt d'or, la supraconductivité n'est jamais apparue dans le métal normal. Les densités d'états supraconductrices ne sont apparues que lorsque

la pointe avait manifestement retiré la couche d'or lors de manipulations volontaires ou involontaires, ou lorsqu'en bordure de plot la couche d'or s'est décollé par mauvaise adhésion. La remise à l'air, le contact avec la résine utilisée pour la lithographie optique et les différents solvants utilisés pour le retrait de cette résine détériorent donc fortement l'interface entre les deux métaux.

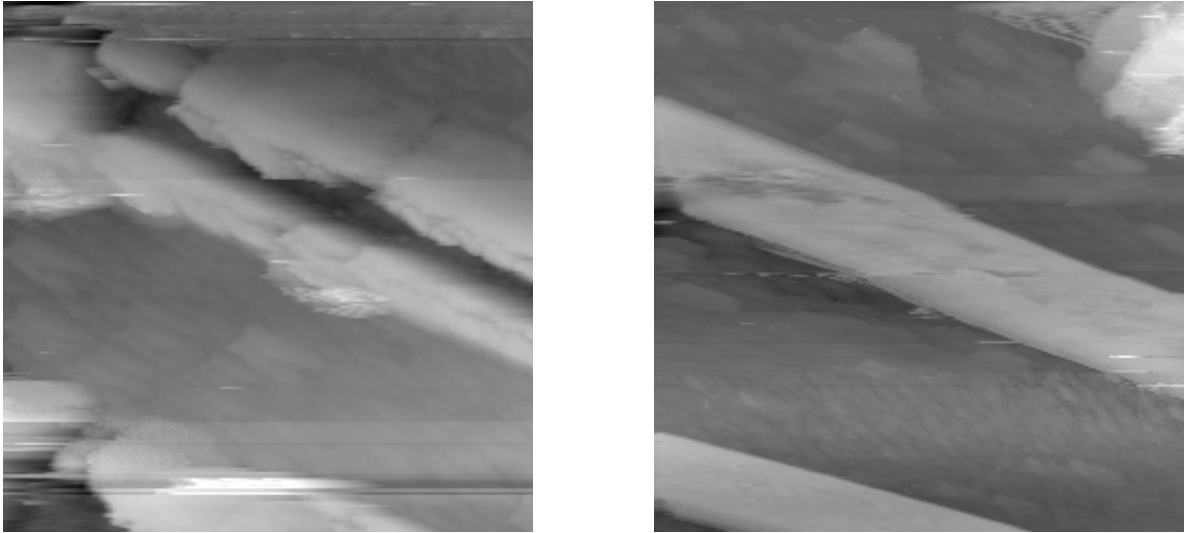


FIG. 6.1 – (Gauche) Image STM à 60 mK d'un échantillon de lignes de niobium de  $0,5\ \mu\text{m}$  de largeur espacées de  $3\ \mu\text{m}$ . Ces structures sont lithographiées en surface d'une couche d'or et leur surface nettoyée par une gravure argon. (Droite) Image de la même structure après réchauffement, sans avoir changé la pointe.

Trois autres tests ont été réalisés en plaçant l'or sous le niobium. La technique de fabrication est la même que pour les échantillons précédents. L'avantage est ici que les deux métaux sont déposés successivement dans le même vide car le niobium est structuré uniquement en dernière étape. Ceci assure un bon contact d'interface. Cependant la qualité du niobium se détériore fortement en surface et il est difficile de repérer les structures sur les images STM obtenues à basse température. La figure 6.1 montre un tel échantillon à basse température (Gauche), puis à température ambiante avec la même pointe après réchauffement (Droite). Sur l'image après réchauffement, il est surprenant de remarquer que la pointe n'a pas été trop endommagée par l'imagerie à basse température. L'image de gauche semble montrer que le centre des lignes de niobium est très peu conducteur en raison d'une contamination ou d'une oxydation importante en surface. La pointe a creusé pour obtenir le courant tunnel de consigne. Il est difficile sur de telles images de localiser précisément une interface.

Des effets de proximité sur ce type d'échantillon ont été observés avec un pseudo-gap mesurable jusqu'à 500 nm à l'intérieur du métal normal. Cependant, ne connaissant pas

réellement la position exacte de l'interface, il n'est pas possible de comparer ces résultats à un modèle théorique. De plus, la transition entre la densité d'états mesurée sur une ligne de niobium et sur la couche de métal normal est souvent très abrupte. Elle ne montre pas le remplissage progressif des états attendu à l'intérieur du gap. Au contraire, au passage d'une marche de niobium, nous avons observé à plusieurs reprises une double structure composée du gap de la ligne de niobium et du gap mesuré sur l'or. La figure 6.2 montre la réduction progressive du gap supraconducteur dans l'or avec la distance à une interface. La position de cette interface a été prise à la transition discontinue entre le large gap du niobium et le petit gap de proximité. Une double structure apparaît clairement à cet endroit.

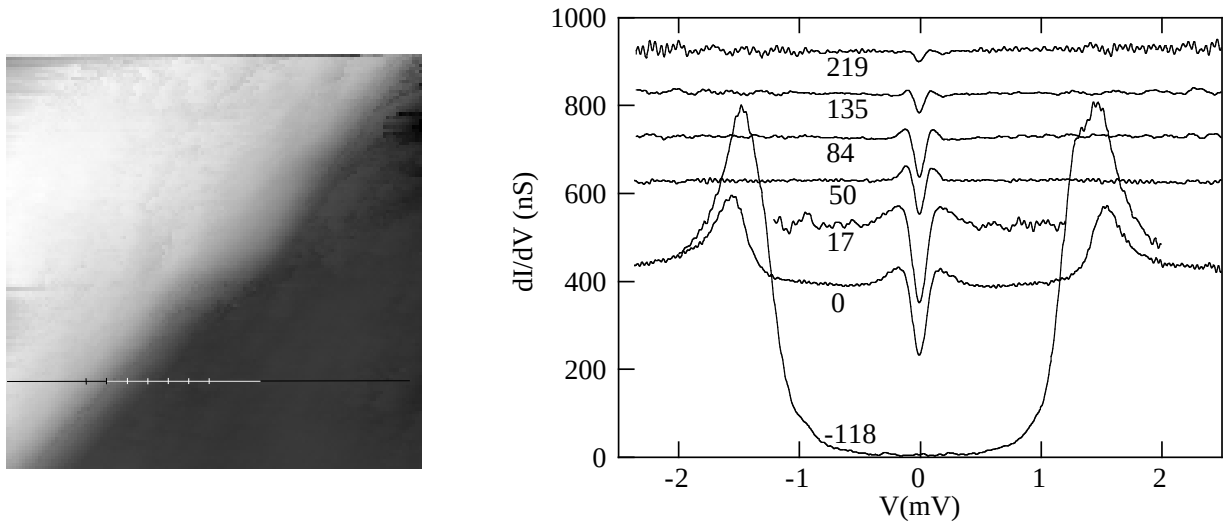


FIG. 6.2 – (Gauche) Image ( $714 \text{ nm} \times 714 \text{ nm}$ ) en bordure d'une ligne de niobium (en clair) déposée en surface d'une couche d'or. Les segments de la ligne où sont réalisées les spectroscopies (Droite) ont une longueur de 50 nm. Les distances sont indiquées en nm à partir du zéro correspondant au changement de couleur de la ligne. Ce zéro correspond aussi à la double structure du gap supraconducteur. Ceci est interprété comme une mesure tunnel simultanée sur la ligne de niobium et sur la couche d'or.

Ce type d'observation semble provenir d'un effet multi-pointe où la spectroscopie est réalisée simultanément sur les deux surfaces. Ceci indique soit que la pointe est fortement endommagée par les déplacements sur les parties oxydées de niobium, soit que des poussières conductrices arrachées pendant les déplacements réalisent un contact multiple avec la surface de l'échantillon. La présence d'une couche d'or de protection en surface est donc préférable.

## 6.2 Effets d'une gravure argon sur l'interface Nb/Au

Pour réaliser un bon contact NS tout en gardant une couche d'or protectrice en surface, nous avons testé plusieurs types de nettoyage d'interface. Les dépôts de niobium simplement remis à l'air quelques minutes puis rentrés dans l'ultravide pour un second dépôt d'or n'ont montré aucun gap supraconducteur en surface. La même procédure avec une gravure à l'argon avant le dépôt d'or a donné le même résultat. Mesurés par résistivité, ces bicouches présentent une transition supraconductrice autour de 8,3 K. Si l'interface est transparente, cette température critique devrait être plus faible en raison de l'influence du métal normal sur le supraconducteur. Ceci suggère que la barrière d'interface engendrée par le contact avec l'air supprime presque totalement la réflexion d'Andreev. Le décapage du niobium par gravure ionique argon n'assure donc pas un nettoyage assez efficace. Pour tester l'effet de la gravure ionique, nous avons décapé des couches de niobium avec différentes tensions de faisceau et différents temps d'exposition aux ions. Sans aucune remise à l'air, une épaisseur constante d'or est ensuite déposée en surface et l'échantillon est transféré immédiatement dans le STM pour la mesure.

La chambre de gravure se trouve dans le sas d'entrée de l'ultravide et la pression dans cette chambre avant l'insertion de la couche de Nb est d'environ  $1.10^{-7}$  mbar. La ligne d'arrivée de gaz Ar ainsi que la chambre ont été étuvées pendant 12 heures à 100 °C. Le faisceau a été mis en marche à vide de manière à dégazer le système et assurer le minimum de contamination pour la gravure ultérieure. Pour cette gravure, tout en faisant le vide dans la chambre avec une pompe turbo-moléculaire tournant à vitesse réduite, le gaz argon est introduit avec un débit de  $2 \text{ cm}^3/\text{s}$  NTP ce qui fait remonter la pression à  $3.10^{-4}$  mbar. Les paramètres du générateur de faisceau plasma [88] sont réglés à un courant de faisceau de 10 mA accéléré par une tension de 400 V. L'énergie de faisceau est ajusté entre 100 et 500 V dans les conditions habituelles de fonctionnement.

La figure 6.3 montre les spectroscopies STM obtenues sur quatre échantillons Nb (60 nm) / Gravure / Au (20 nm). Dans les quatre cas, la densité d'états présente un plateau de densité non nul à l'énergie de Fermi. Les pics de densité d'états dans l'or sont fortement arrondis et présentent une cassure de pente plus ou moins importante en fonction du temps et de l'énergie du décapage. Les deux gravures de longue durée et à faible énergie de faisceau (100 V), présentent des pics très affaiblis et une brisure de pente très marquée. On observe de plus, un affaissement de la densité d'états près de l'énergie du gap  $\Delta$  du niobium.

Ces spectroscopies s'écartent fortement des densités quasi BCS observés sur les bicouches simples, sans gravure (Fig. 3.12). Le décapage ionique détériore donc la surface

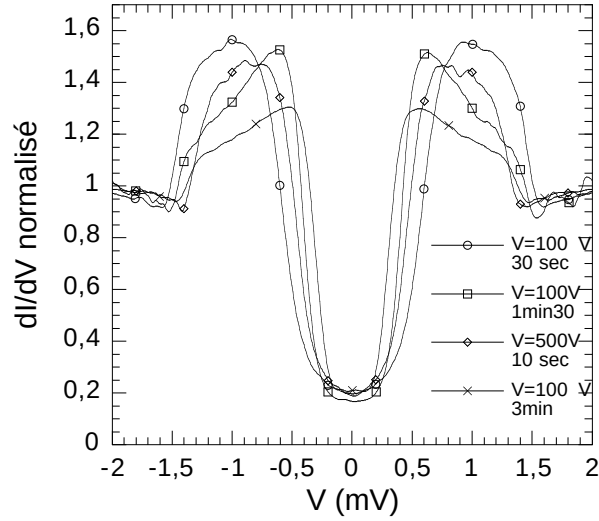


FIG. 6.3 – Spectroscopies sur 4 échantillons Nb (60 nm) / Gravure / Au (20 nm) évaporés plein champ. Les gravures ioniques sont réalisées pour différentes durées à des énergies de 100V et 500 V.

du niobium. La cassure dans la pente des pics de densité ainsi que la dépression à l'énergie  $\Delta$ , ont également été observées par D. H. Prothero (Fig. 1.7). Ce sont les signatures d'une forte résistance d'interface.

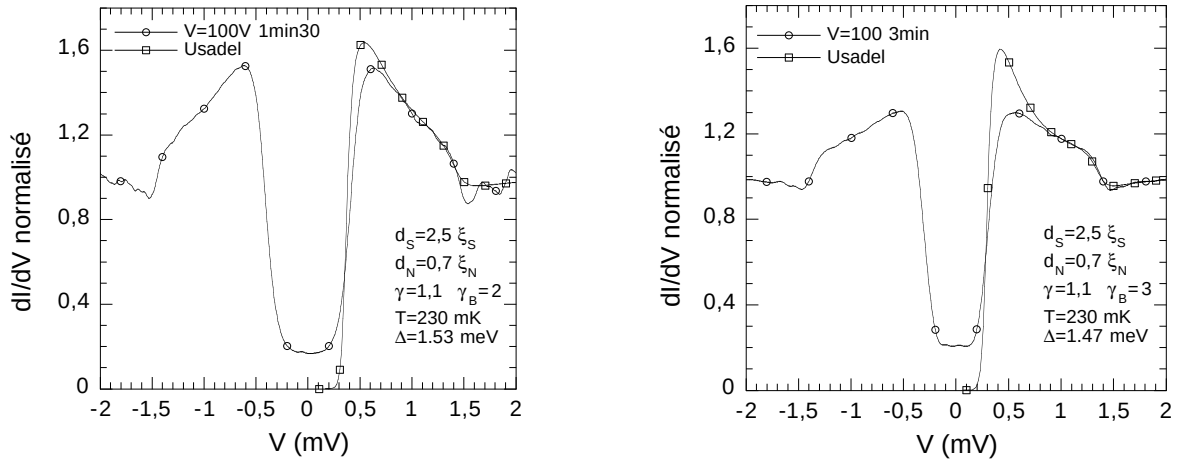


FIG. 6.4 – Comparaison entre les spectroscopies mesurées de deux échantillons gravés à 100 V avec des temps différents et les simulations avec les équations d'Usadel en introduisant des résistances d'interface  $\gamma_B=2$  et  $\gamma_B=3$ .

La figure 6.4 présente deux densités calculées par les équations d'Usadel ajustées à l'aide d'une barrière d'interface  $\gamma_B$  et se rapprochant des densités d'états mesurées. Les paramètres des simulations ont été choisis pour ajuster la cassure de la pente et la hauteur des pics de densité, sans tenir compte du fond de densité d'états à l'énergie de Fermi. La

résistance d'interface (équation 5.15) est donnée par  $A.R_B = \rho_N \xi_N \gamma_B$ . Pour une résistivité  $\rho_N = 5,12 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$  et une longueur de cohérence  $\xi_N = 40 \text{ nm}$ , la résistance d'interface est estimée à  $4 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  et  $6 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  pour les échantillons de la figure 6.4 ( $\gamma_B = 2$  et  $\gamma_B = 3$ ). Une mesure de résistivité a été réalisée par P. Dubos au laboratoire par une technique d'évaporation sous angle. Avec une gravure ionique du niobium avant un deuxième dépôt de cuivre, cette mesure suggère une résistance d'interface de  $12 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  compatible avec notre estimation.

Le minimum au gap  $\Delta$  décrit par la théorie reste moins prononcé que la mesure. Dans les simulations, ce minimum est accentué par une augmentation de l'épaisseur  $d_n$  et un paramètre  $\gamma$  petit. De la même manière, cet effet est obtenu en diminuant le libre parcours  $l_{pN}$  du métal normal, auquel sont reliés les deux paramètres  $d_N$  et  $\gamma$ . Pour l'ajustement des courbes 6.4, nous avons introduit une épaisseur de métal normal de  $0,7 \xi_N$  légèrement plus importante que sa valeur estimée à  $0,5 \xi_N$ .

Bien que les simulations permettent de définir avec une bonne précision la valeur de la barrière d'interface, les pics de densité au niveau du minigap sont difficilement décrits par la théorie. De même, le remplissage de la DOS à faible énergie n'intervient jamais dans les simulations. L'une des densités mesurées par D. H. Prothero montre aussi ce plateau non nul à  $E_F$ . Ceci pourrait être expliqué dans les jonctions planaires par un défaut conducteur dans la barrière tunnel en aluminium. Dans le cas du STM, le niveau de conductance est tel que l'on se trouve toujours en régime tunnel. Cet effet a de plus été observé uniformément sur toute la surface des échantillons accessible avec le STM. Il est remarquable de constater que le niveau du plateau de conductance est identique pour les quatre échantillons. Cet effet ne semble donc pas être complètement relié à la barrière d'interface, mais plutôt aux épaisseurs des métaux qui sont identiques pour tous les échantillons.

Cette mesure est surprenante car elle met en évidence l'existence d'électrons normaux qui ne voient pas l'influence supraconductrice, autrement dit ne voient pas souvent l'interface, même dans le métal diffusif. Si l'on considère que l'or en surface présente un libre parcours assez important dans le plan de la couche, il est possible que certains électrons puissent avoir une trajectoire assez longue parallèlement à la surface. Avec la forte barrière d'interface, le taux de réflexion Andreev est diminué au profit de la réflexion spéculaire. N. A. Mortensen et al. [89] ont montré de plus que lorsque l'angle de la trajectoire des électrons se rapproche de la parallèle à l'interface, la probabilité de réflexion d'Andreev diminue jusqu'à s'annuler. Cet effet n'est pas pris en compte dans les équations d'Usadel qui suppose une isotropie des trajectoires dans le métal diffusif. Dans notre configuration, avec des épaisseurs de métal normal de l'ordre du libre parcours moyen, des effets dus aux trajectoires quasi-balistiques entre l'interface et la surface sont certainement à prendre en

compte. Cette discussion reste cependant ouverte. Elle nécessiterait de montrer que cet effet n'intervient qu'en présence d'une résistance d'interface mais que son amplitude ne dépend pas directement de la barrière.

### 6.3 Échantillons évaporés sous angle

Nos premières mesures par STM révélant des effets de proximité évoluant spatialement ont été réalisées sur les échantillons évaporés sous angle. La technique de fabrication de ces échantillons décrite au chapitre 4 consiste à créer des zones de métal supraconducteur de taille réduite sur une surface de silicium préformée de profondes tranchées. En évaporant le niobium sous fort angle, les structures de haut relief (100 nm) préformées dans le silicium masquent une partie du fond des tranchées. Un second dépôt vertical d'or permet de réaliser une structure N-S au fond des tranchées tout en protégeant le niobium de l'oxydation. La principale difficulté rencontrée pour la mesure STM de ce type d'échantillon est la hauteur des reliefs et leur pente très abrupte.

Deux substrats de silicium préformé fournis par le LETI ont été évaporés puis observés à très basse température. Quatre refroidissements ont été réalisés dont un seul a vraiment montré les profondes tranchées ouvertes sur une largeur de 800 nm. Pour les trois autres observations, la pointe certainement très endommagée n'offrait pas de déplacement assez important à l'intérieur des tranchées pour observer spatialement la densité d'états. Sans pouvoir connaître la position réelle de la pointe, elles ont cependant permis de confirmer l'existence de trois types de densité d'états dans l'échantillon.

La figure 6.5 montre la topographie mesurée par le STM après une série de spectroscopies sur la même ligne. Les structures grisées permettent la comparaison avec le profil théorique. On reconnaît les marches de silicium recouvertes de niobium et d'or, avec une hauteur totale de 140 nm, ainsi que le fond de tranchée composé d'une partie Nb/Au et d'une partie d'Au uniquement. Cette dernière zone ne semble pas régulière et le courant tunnel y est parfois perdu. Des impuretés ou une couche d'or non continue sont susceptibles d'expliquer un tel comportement.

Les mesures de LDOS sur la ligne de la figure 6.5 ont montré trois types de densité d'états (Fig. 6.6) suivant la position sur les structures :

- 1 - Le premier type de spectroscopies est obtenu sur le flanc des lignes de silicium, là où le gap supraconducteur est le plus large. En effet, à cet endroit le niobium est épais et évaporé quasi perpendiculairement sur la surface de silicium. Les spectroscopies présentent un gap d'environ 1,25 meV avec cependant des pics de densité relativement arrondis par

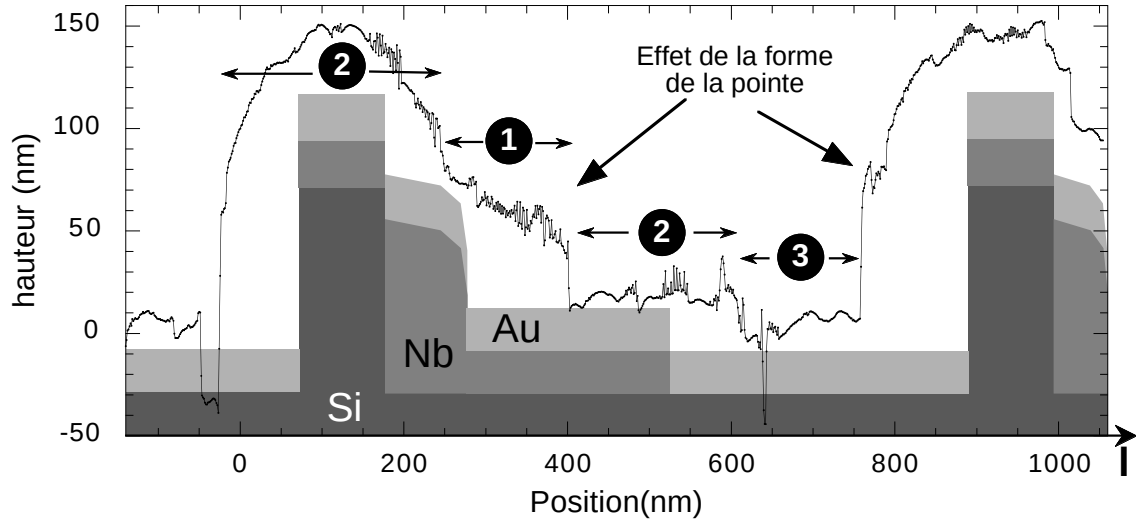


FIG. 6.5 – *Mesure topographique d'un échantillon évaporé sous angle avec un schéma de sa structure théorique. Trois zones correspondant aux trois types de spectroscopies mesurées sont indiquées par les numéros. On remarque un fort élargissement des structures dû à la forme de la pointe endommagée.*

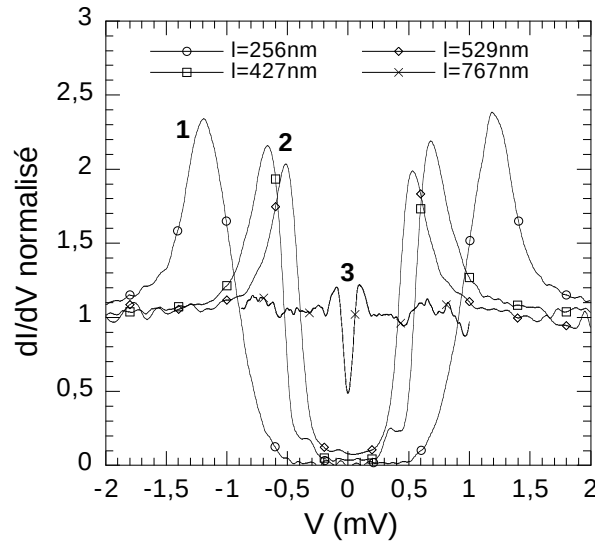


FIG. 6.6 – *Trois types de spectroscopies. Le gap le plus large est observé sur la partie épaisse de Niobium évaporée sur le flanc de silicium. Les distances  $l$  indiquées font référence aux positions repérées sur la figure 6.5.*

rapport aux mesures sur un bicouche Nb/Au (cf. chapitre 3).

2 - Les mesures sur la partie Nb/Au au fond des tranchées ou au sommet des plots révèlent des pics de densité entre 0,4 et 0,8 meV dont l'évolution n'est pas monotone avec la position. Ces zones se situant près d'une marche de silicium, il est possible que cette



évolution non régulière résulte d'un effet multi-pointes. Cependant, la figure 4.8 au chapitre 4 montre que l'évaporation sous angle crée une couche de niobium très accidentée et certainement constituée de nombreux joints de grains. La qualité du métal en est influencée, ce qui peut expliquer la valeur réduite du gap supraconducteur ainsi que son irrégularité.

3 - Le dernier type de spectroscopies est obtenu sur la zone d'or en fond de tranchée. Le contact avec le supraconducteur est réalisé uniquement avec le niobium au fond des structures. Il semble peu probable en effet qu'un contact électrique existe entre le sommet des lignes de silicium et le fond des tranchées. A cet endroit le minigap est très petit, de l'ordre de  $70 \mu\text{eV}$  et ne semble pas évoluer significativement sur une longueur de  $180 \text{ nm}$ . Ces mesures correspondent en effet au cas d'une zone de métal normal de taille finie en contact avec le supraconducteur. Dans cette configuration, nous avons vu au chapitre 5 que la largeur du minigap ne varie pas avec la distance à l'interface (Fig. 6.7). La légère évolution du sommet des pics de densité est simplement due à l'arrondissement en température de la DOS dont le niveau à  $E_F$  évolue avec la distance.

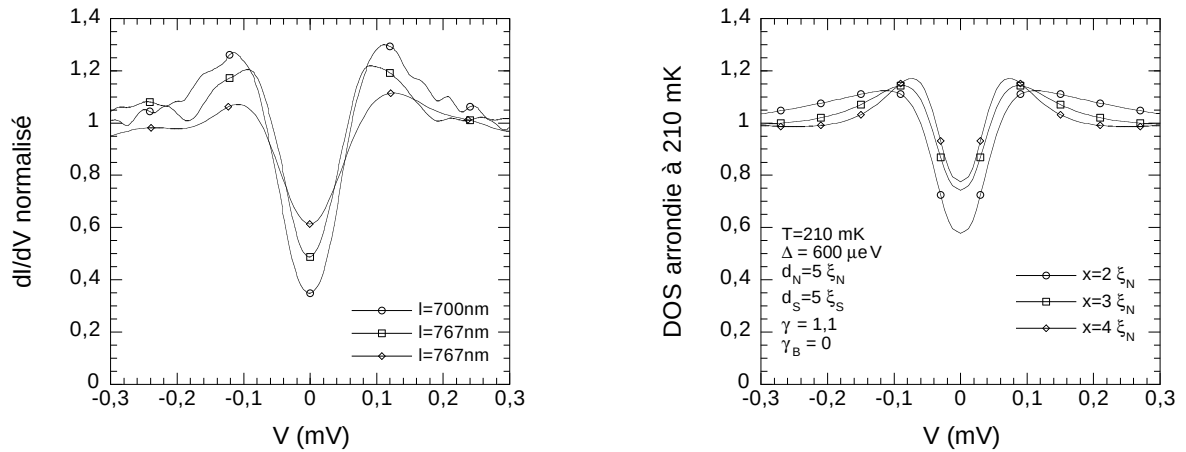


FIG. 6.7 – (Gauche) Spectroscopies sur la zone d'or (3) en fonction de la distance à l'interface située à  $\approx 525 \text{ nm}$ . Les distances  $l$  indiquées correspondent aux positions repérées sur la figure 6.5. (Droite) Essais de simulations à différentes distances  $x$  de l'interface dans une configuration N-S de taille finie avec un arrondissement à la température de  $210 \text{ mK}$ . Les épaisseurs des métaux sont de  $5 \xi_S$  et  $5 \xi_N$ .

On peut estimer la largeur du minigap  $E_g$  théorique grâce à l'équation 5.14 :

$$\frac{E_g}{\Delta} \simeq \left( \frac{1}{1 + \frac{d_N}{2,1\xi_N}} \right)^2 \propto (\text{const} \times \xi + d_N)^{-2} \quad (6.2)$$

Nous observons au microscope électronique (Fig. 4.8) une largeur de métal normal d'environ  $350 \text{ nm}$ . La valeur du gap supraconducteur est prise en bordure du bicouche Nb/Au au fond des tranchées, lorsque le remplissage du fond de densité d'états dû à l'effet de proximité n'est pas encore effectif. Il est estimé à environ  $\Delta=0,6 \text{ meV}$ . Avec un libre parcours

moyen mesuré dans l'or de 16 nm, on obtient un rapport  $\frac{E_g}{\Delta} = 0,81$ . La largeur de minigap est alors 50  $\mu\text{eV}$ , ce qui est proche de la valeur observée par STM à 70  $\mu\text{eV}$ . Il est possible que la largeur réelle du métal normal soit légèrement inférieure à 350 nm en raison d'un angle résiduel pendant l'évaporation verticale de la couche d'or et de l'effet de la taille de la charge d'or. Le gap supraconducteur peut lui aussi être légèrement supérieur. Ces éléments conduiraient à une largeur de minigap calculée plus importante, se rapprochant de la valeur mesurée.

On observe aussi sur la figure 6.7 (Gauche) une légère évolution de la densité d'états à l'énergie de Fermi en fonction de la distance à l'interface. En raison de la forme de la pointe, la position de l'interface réelle n'est pas située exactement à la position où l'on observe les premiers minigap de la zone numéro (3). On estime que cette interface est située à une distance  $l \approx 525$  nm sur l'échelle indiquée sur la figure topographique 6.5. Nous avons essayé d'appliquer les équations d'Usadel dans un système de métal normal de taille finie (voir chapitre 5) et calculé les densités d'états pour différentes distances  $x$  à l'interface. Avec les paramètres d'épaisseur et de gap mentionnés ci-dessus, ces densités d'états présentent une largeur de minigap inférieure aux mesures (Fig. 6.7 (Droite)). Ces densités calculées s'ajustent bien en prenant un gap de départ  $\Delta = 0,88\text{meV}$ . Toutefois l'incertitude sur le remplissage au niveau de Fermi est grande pour une largeur de gap aussi petite. De plus, les spectroscopies n'ont pas toujours été prises en se déplaçant dans le même sens et la position indiquée peut subir un peu d'hystérésis. On remarque en effet que deux spectroscopies de formes différentes sur la figure 6.7 (Gauche), sont prises à la même position nominale (767 nm). Il n'a donc pas été possible de relier de manière précise cette évolution avec la théorie.

## 6.4 Échantillons évaporés avec un masque mécanique

Les échantillons évaporés sous angle étant difficiles à mesurer et les difficultés rencontrées avec la technique de lithographie par remise à l'air ne permettant pas d'envisager de solutions à court terme, nous avons innové en réalisant une technique d'évaporation par masquage mécanique décrite au chapitre 4. Cette technique consiste à réaliser un masque mécanique dans une membrane de silicium de 5  $\mu\text{m}$  d'épaisseur avec des motifs d'une résolution de l'ordre du micron. Le niobium est évaporé sur un substrat de silicium à travers le masque. Ce dernier est ensuite retiré sous ultravide pour évaporer le deuxième métal normal uniformément sur la surface de l'échantillon. Tout le processus étant réalisé sous ultravide, les deux métaux sont en très bon contact électrique.

Deux échantillons Nb/Au et Nb/Cu de ce type ont été mesurés à très basse température.

Des mesures de résistivité sur les parties masquées pendant le dépôt de Nb ont montré des libres parcours moyens  $l_{pAu} = 16$  nm et  $l_{pCu} = 19,5$  nm. Le libre parcours moyen du niobium a été mesuré sur des échantillons annexes dans des conditions d'évaporation équivalentes,  $l_{pNb} = 9$  nm. Il est possible cependant que l'évaporation au travers des trous du masque de silicium fasse dégazer le masque et engendre une couche de niobium de moins bonne qualité. Pour tous les échantillons, les évaporations ont été réalisées 24 heures au minimum après l'entrée dans l'ultravide. Il n'a pas été possible d'effectuer un étuvage du système car le ressort de maintien du masque se déforme avec la température ce qui empêche un bon contact avec le substrat de silicium.

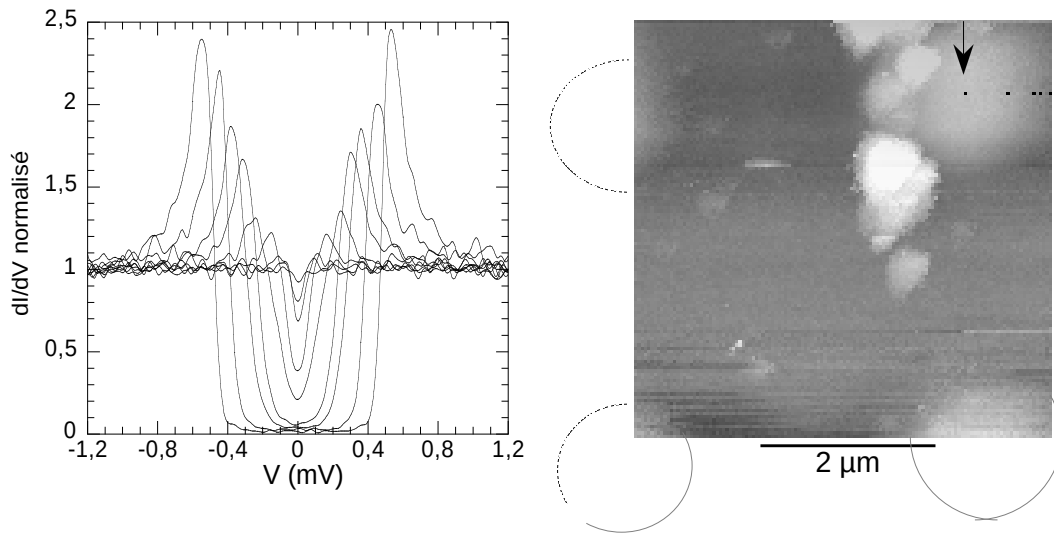


FIG. 6.8 – Série de spectroscopies d'un échantillon Nb/Au réalisées aux positions indiquées par des points noirs sur l'image de droite. La spectroscopie réalisée au sommet du plot et présentant le gap le plus large est indiquée par la flèche. Malgré une poussière d'un relief très important au centre de l'image, on distingue nettement quatre plots espacés de  $4,3$   $\mu\text{m}$ . Les cercles en pointillés précisent leurs emplacements.

La figure 6.8 montre une image réalisée par STM à 60 mK sur l'échantillon Nb/Au (40 nm / 20 nm). Malgré une poussière métallique, quatre plots arrondis de niobium peuvent être très nettement distingués. La distance entre plots est de l'ordre de la course du piézo-électrique à basse température et le dernier plot peut être aperçu en limite du coin inférieur gauche. Les images sur l'échantillon de cuivre présentées au chapitre 3 (fig. 3.6 Droite), sont de moins bonne qualité en raison de l'oxydation de surface. Elle montrent néanmoins des structures quasiment identiques. Les plots très arrondis par la méthode de fabrication ont une hauteur d'environ 40 nm et s'étalent sur une distance de  $1,8$   $\mu\text{m}$  pour l'échantillon d'or et  $2,5$   $\mu\text{m}$  pour le cuivre. Cette différence est directement liée à la qualité du contact

entre la membrane et le substrat pendant le dépôt.

Il faut préciser que l'échantillon de cuivre présente une oxydation très importante en surface, ce qui a endommagé la pointe pendant l'imagerie. La jonction tunnel est alors moins stable que pour l'échantillon d'or.

### 6.4.1 Interprétation des mesures

La mesure de la résistivité du bicouche Nb/Au évaporé en même temps sur une partie non masquée de l'échantillon donne une température critique de 7,63 K. Les spectroscopies réalisées sur le sommet des plots donnent un gap maximum de 500  $\mu\text{eV}$ . Dans la limite d'Anderson, nous avons vu au chapitre 5 que ce minigap est directement proportionnel à la température critique de l'échantillon par la relation 5.19. La barrière d'interface étant a priori inférieure à 1  $m\Omega.\mu\text{m}^2$  et les épaisseurs des métaux bien inférieures à 1000 Å, cette limite est satisfaite dans notre cas. En prenant une température  $T_{co}=9$  K pour le niobium massif et  $\Delta=1,5$  meV, la température critique estimée est de  $T_c=3$  K. Pour l'échantillon de cuivre, le gap maximum observé est de 0,9 meV pour une épaisseur de niobium évaporée plus importante. Ces largeurs de gap très réduites par rapport à la température du bicouche  $T_c=7,63\text{K}$  s'expliquent par l'effet de proximité inverse dans l'îlot de métal supraconducteur noyé dans la couche de métal normal. De plus, l'épaisseur des plots (34 nm) est légèrement inférieure à l'épaisseur du bicouche (40 nm) et la qualité du niobium peut être amoindrie par le dégazage local dans les trous du masque mécanique pendant le dépôt. Une mesure de la résistance de l'échantillon d'or dans le plan du réseau de plots montre une température critique de 3 K en accord parfait avec la mesure STM. La résistance de l'échantillon montre de plus une évolution de 4 % jusqu'à 300 mK. Cet effet correspond quantitativement à une estimation de la variation de résistance tenant compte du rapport des surfaces des plots de niobium et de la couche d'or. Cette évolution suggère de plus que les parties les moins épaisses des plots transitent au dessous de 3 K, jusqu'à 300 mK pour les zones plus fines.

Plusieurs séries de spectroscopies en s'éloignant du sommet des plots ont montré un comportement identique les unes des autres. Le pic de densité se décale peu à peu vers les basses énergies et lorsqu'il diminue au-dessous de 300  $\mu\text{eV}$  environ, le fond de DOS à l'énergie de Fermi remonte progressivement. Le tableau 6.1 relève une des séries de spectroscopies qui ont été effectuées sur une ligne correspondant au profil topographique de la figure 6.10.

| n° | l (nm) | h (nm) | Pic ( $\mu\text{eV}$ ) | n° | l (nm) | h (nm) | Pic ( $\mu\text{eV}$ ) |
|----|--------|--------|------------------------|----|--------|--------|------------------------|
| a  | 0      | 34     | 530                    | i  | 975    | 4      | 150                    |
| b  | 595    | 21     | 455                    | j  | 1011   | 2,5    | 160                    |
| c  | 773    | 15     | 360                    | k  | 1047   | 1,7    | 120                    |
| d  | 833    | 11     | 305                    | l  | 1071   | 1,2    | 100                    |
| e  | 892    | 8,5    | 300                    | m  | 1100   | 0,8    | 85                     |
| f  | 904    | 7,8    | 255                    | n  | 1130   | 0      | 70                     |
| g  | 928    | 6,5    | 240                    | o  | 1190   | 0      | 40                     |
| h  | 952    | 5,5    | 180                    |    |        |        |                        |

TAB. 6.1 – Position (l) et hauteur (h) d’une série de spectroscopies réalisées en s’éloignant du centre d’un plot supraconducteur. Leur position est repérée sur la figure 6.10. Nous avons indiqué de plus la position en énergie des pics de densité d’états mesurés.

Pour les spectroscopies les plus proches du centre des plots, les densités montrent une adéquation surprenante avec une densité d’états BCS de  $\Delta = 500 \mu\text{eV}$  arrondie à 230 mK. À cet endroit, le bicouche Nb/Au se comporte globalement comme un supraconducteur affaibli. La figure 6.9 montre une série de spectroscopies modélisées avec une densité BCS de gap variable ( $\Delta = 0,5 \text{ meV}$ ,  $\Delta = 425 \mu\text{eV}$ ,  $\Delta = 330 \mu\text{eV}$ ). La comparaison en diminuant le gap BCS pour correspondre aux séries de spectroscopies, montre par contre que le remplissage du fond de densité obtenu en bordure de plot ne peut être expliqué par un arrondissement en température.

On distinguera donc dans la suite, deux types de comportements suivant la position sur les plots de niobium.

Sur une grande région autour du centre du plot, les densités d’états évoluent peu. La largeur des plots étant très importante devant leur épaisseur, le système peut être modélisé sur cette zone comme un bicouche NS avec une hauteur variable de la couche S. Cette région est indiquée sur la figure 6.10 avec la disposition des deux métaux S et N. Il faut noter que l’échelle verticale a été multipliée d’un facteur 10 par rapport aux distances horizontales. La raison d’un traitement par un modèle bicouche apparaîtrait encore plus clairement si l’on gardait les proportions de chaque axe.

Sur les bords de plots, la supraconductivité est très affaiblie par la présence du métal normal ainsi que par la faible épaisseur de supraconducteur. Dans cette région, on se place alors plutôt en régime de proximité en fonction de la distance à une interface dans des métaux de grande taille. La position de cette interface n’est pas évidente a priori mais on considère que le second régime intervient lorsque la densité d’états à  $E_F$  commence à

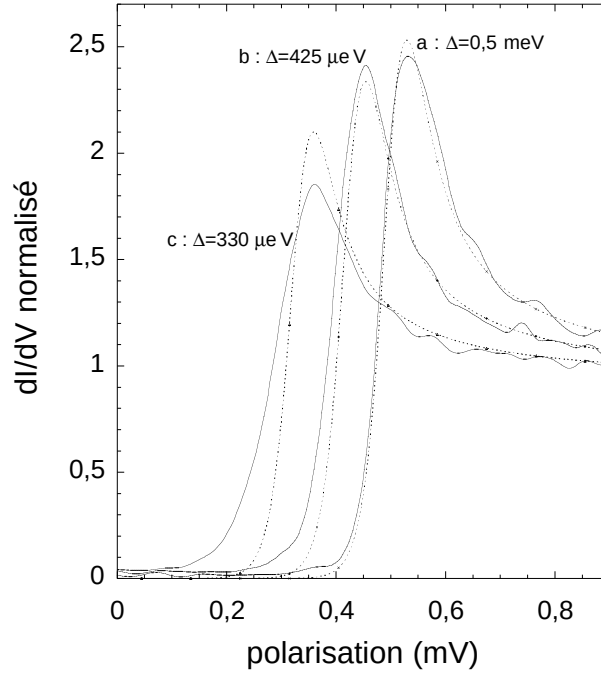


FIG. 6.9 – Comparaison des spectroscopies de l'échantillon d'or sur les zones épaisses des plots, avec des densités d'états BCS de différents gap  $\Delta$  et arrondies à 230 mK. Les positions  $x$  indiquées correspondent aux distances de la figure 6.10.

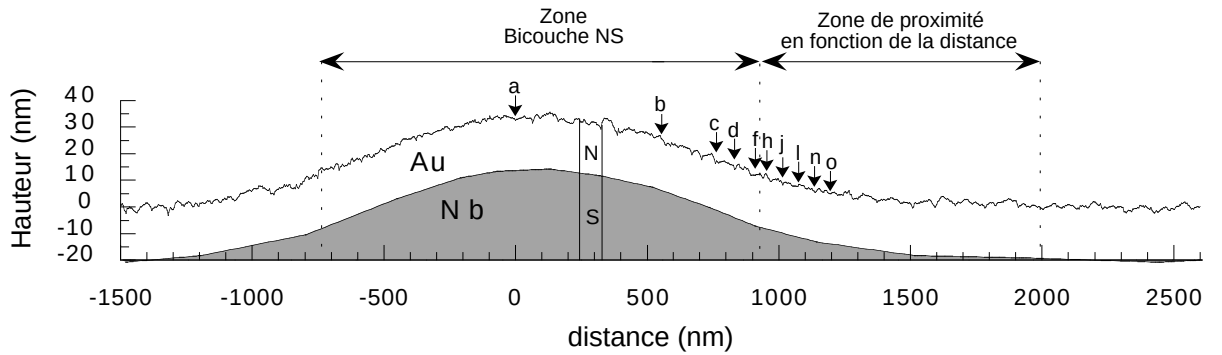


FIG. 6.10 – Topographie STM d'un plot avec un rapport 1/10 entre les échelles horizontales et verticales. Le schéma indique le profil des deux métaux Nb et Au. On distingue deux zones de comportement de la proximité en fonction de la position sur les plots de niobium.

remonter sans qu'il soit possible de l'interpréter par le modèle bicouche arrondi en température. Nous verrons dans la suite de la discussion comment positionner cette interface. Le fait que cette interface ne se positionne pas au bord topographique du plot sera interprété par la présence d'une couche morte de niobium de faible épaisseur ne présentant pas de transition supraconductrice.

### 6.4.2 Modèle bicouche

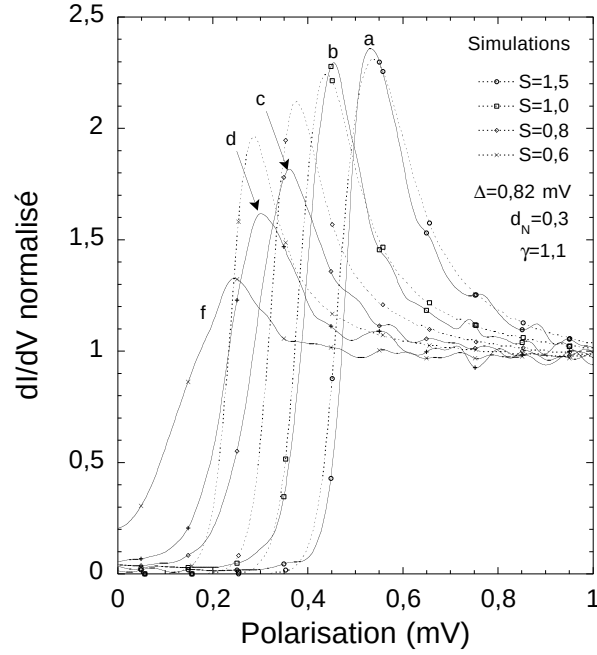


FIG. 6.11 – Évolution de la densité d'état avec l'épaisseur  $h$  de niobium comparée aux simulations arrondies à 230 mK (en pointillés) réalisées pour différentes épaisseurs  $S=h/\xi_S$ . Les courbes mesure/simulation associées sont indiquées par une marque identique.

Le rapport des libres parcours mesurés donne un paramètre  $\gamma \approx 1,2$  pour l'échantillon d'or. Pour rester cohérent avec les mesures de résistivité, nous avons tout d'abord choisi un paramètre  $\Delta = 1,27$  meV correspondant à la température de transition de 7,63 K du bicouche Nb/Au évaporé en même temps et discuté à la section précédente. Les longueurs de cohérence sont alors estimées à  $\xi_S = 33$  nm et  $\xi_N = 44$  nm. Les simulations avec les équations d'Usadel pour les épaisseurs  $d_{Nb} = 40\text{nm} = 1,2\xi_S$  et  $d_{Au} = 20\text{nm} = 0,5\xi_N$ , montrent un pic de densité d'états à la bonne énergie, mais un peu plus arrondi que la mesure. L'ajout d'une barrière résistive accentue encore cette différence. Ceci justifie le fait que l'on puisse négliger cette barrière.

Pour arriver à ajustement correct de la forme de la densité d'états mesurée, nous avons alors supposé que le gap supraconducteur est inférieur à 1,27 meV. Nous avons donc cherché une série de paramètres qui puisse décrire correctement les densités d'états mesurées sur la partie la plus épaisse des plots. Dans une gamme de valeurs réalistes, un jeu de paramètres adéquat correspond alors à  $d_S = 1,5\xi_S$ ,  $d_N = 0,3\xi_N$ ,  $\gamma = 1,1$  pour un gap supraconducteur  $\Delta_o = 0,82$  meV.

En partant de cette valeur du gap  $\Delta_o$  et de cette épaisseur de métal normal, des

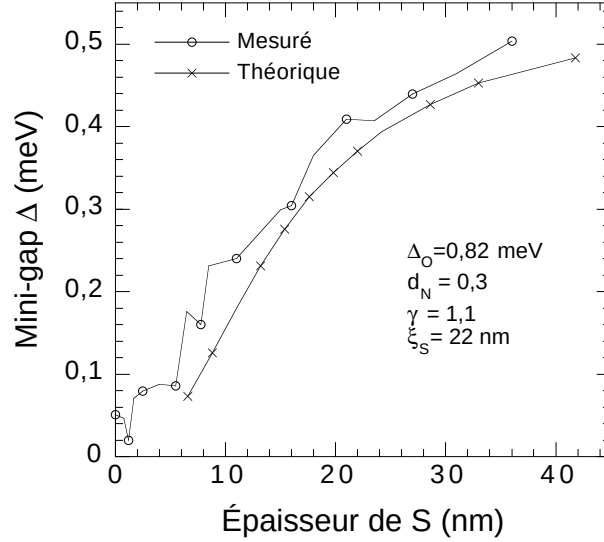


FIG. 6.12 – Évolution du minigap avec l'épaisseur de  $S$  (en unité de  $\xi_S$ ) comparée aux simulations. L'amplitude du minigap est prise au niveau de conductance à grande énergie (conductance 1 sur les courbes normalisées).

simulations sont réalisées pour des couches de supraconducteur plus fines. Le minigap effectif évolue alors simplement avec ce changement d'épaisseur. La figure 6.11 montre les mesures réalisées comparées aux courbes simulées. L'évolution de la largeur du minigap calculée est en bon accord avec l'observation, comme le montre la Figure 6.12. Le décalage entre les deux courbes peut être attribué à une erreur inférieure à 10 % sur l'estimation de la longueur de cohérence  $\xi_S$  ou sur  $\Delta_o$ . On note cependant que dans ce modèle la hauteur des pics de densité évolue beaucoup plus lentement avec la largeur du gap que les pics mesurés. Ceci est certainement la signature d'un début d'effet de proximité sur la distance latérale qui n'est pas pris en compte ici.

### 6.4.3 Proximité à grande distance

La transition entre le modèle bicouche et le modèle de proximité dans des métaux de grandes tailles n'est pas évidente à appliquer à la théorie unidimensionnelle. Comme nous venons de le voir, la hauteur du pic de densité d'états se réduit très rapidement avec la position sur le bord du plot. Le critère que nous avons choisi pour l'application du second modèle de proximité est le remplissage de la LDOS au niveau de Fermi. Ce critère ne fixe pas la position de l'interface, mais définit la zone sur laquelle il est possible d'interpréter l'évolution de la LDOS avec le second modèle. Le remplissage à  $E_F$  intervient alors que la couche de niobium est encore assez épaisse ( $\approx 15nm$ ). L'effet de proximité inverse est responsable de ce remplissage assez loin dans le supraconducteur (cf. chap. 5). Mais son



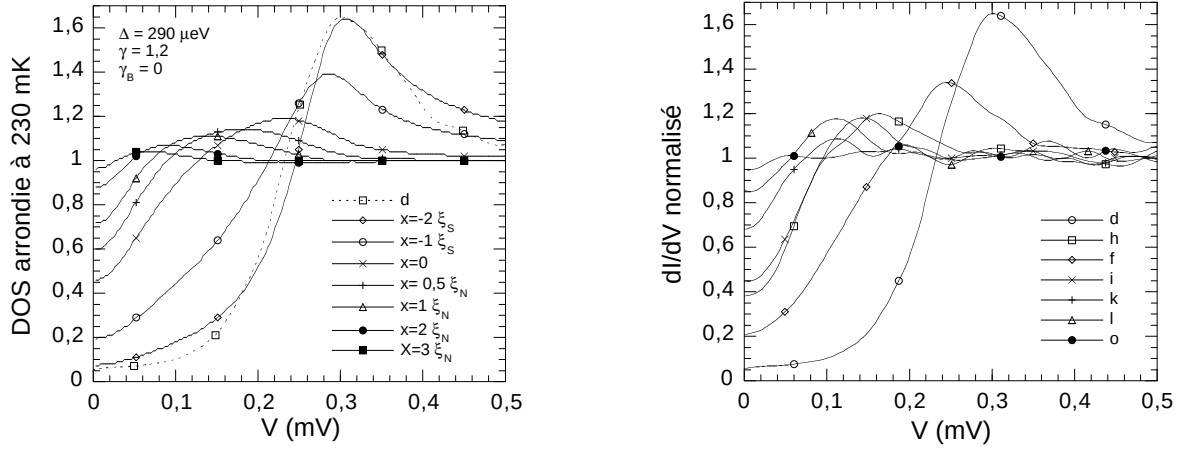


FIG. 6.13 – (gauche) Évolution de la densité d'état calculée en fonction de la distance  $x$  à l'interface avec de grandes épaisseurs  $d_N = 200\xi_N$  et  $d_S = 80\xi_S$  arrondies à 230 mK. (droite) Mesures en bordure de plot.

effet n'est pas suffisant pour expliquer l'importance de la remontée de densité à  $E_F$ . Nous l'interprétons alors par une couche morte de niobium dans laquelle la supraconductivité est tuée par les impuretés captées au début du dépôt. Le niobium est en effet connu pour sa forte réactivité avec les gaz résiduels (effet getter).

Le calcul de densité d'états est réalisé pour ce modèle avec des longueurs de métaux très importantes :  $d_N = 200\xi_N$  et  $d_S = 80\xi_S$ . Ces longueurs correspondent à la distance entre les plots et à leur étendue spatiale. Les densités sont alors calculées pour différentes distances à l'interface dans le métal supraconducteur et dans le métal normal (fig. 6.13 (gauche)).

Les essais d'ajustement, en arrondissant ces courbes à une température de 210 mK montrent un bon accord en prenant un gap de départ de  $\Delta_o = 270 \mu\text{eV}$ . On peut raisonnablement considérer que le niobium présente un tel gap en bordure de plot. La figure 6.13 montre les simulations réalisées en vis à vis les spectroscopies expérimentales.

La figure 6.14 montre le détail des courbes utilisées pour faire la correspondance entre les distances mesurées et les distances théoriques. Plusieurs courbes sont représentées sur chaque graphique pour montrer le détail de l'évolution de la densité d'états et pouvoir interpoler entre les valeurs discrètes des distances introduites dans les simulations. Comme déjà suggéré par les expériences de S. Guéron et al. [13], les pics de densité restent légèrement plus piqués que les simulations : l'étalement du pic de densité dans les simulations pour les pseudo-gap les plus petits n'est pas observable sur les mesures. Les spectroscopies présentent un bruit (certainement mécanique) assez important qui devient gênant avec une telle résolution en énergie. Cependant, de manière générale sur l'ensemble des mesures ef-

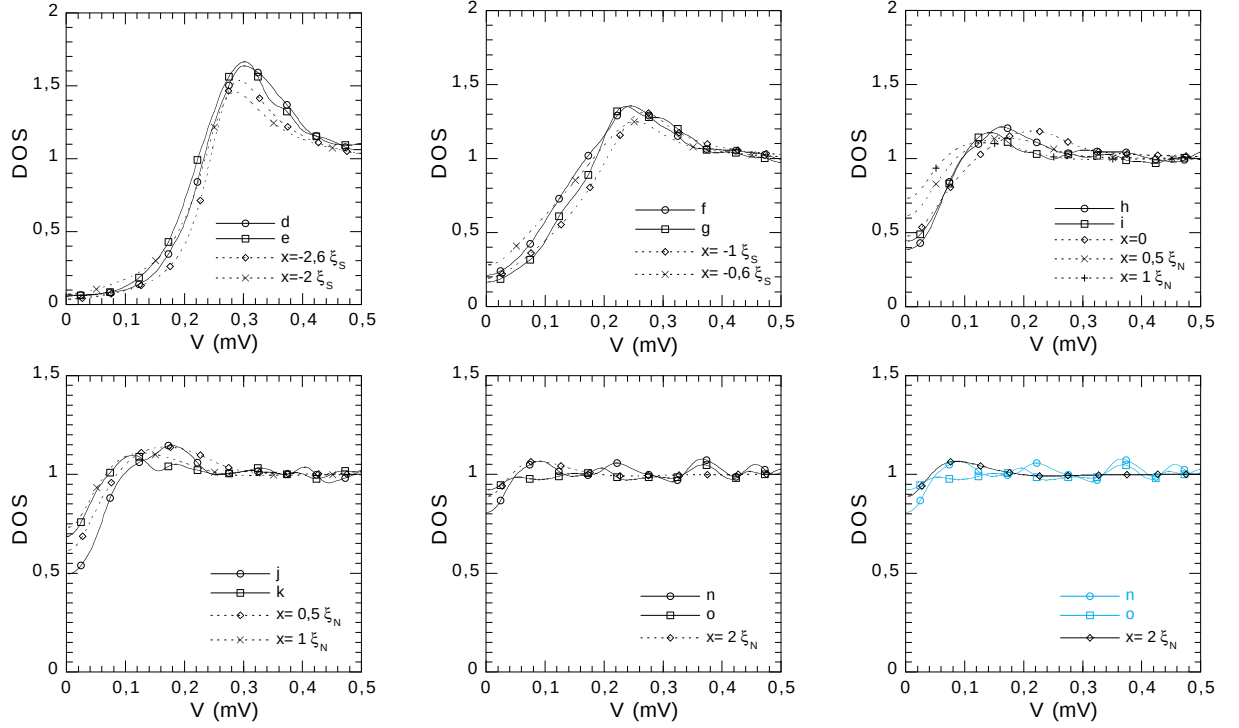


FIG. 6.14 – Ajustement de la position des pics de densité avec les équations d'Usadel (en pointillés) pour différentes distances  $x$  de l'interface. Le gap supraconducteur est pris à  $\Delta_o=270 \mu\text{eV}$ ,  $\gamma=1,2$ ,  $\gamma_B=0$ , et la température est fixée à  $T=210 \text{ mK}$ . Les mesures expérimentales sont réalisées entre  $l=833 \text{ nm}$  et  $l=1190 \text{ nm}$  (voir Fig. 6.10).

fectuées, nous n'avons pas remarqué un tel arrondissement. La hauteur des pics de densité mesurés étant généralement plus haut que la théorie, le fond de densité à  $E_F$  est aussi plus bas par le principe de normalisation de la densité d'états. Le niveau de la conductance différentielle étant plus sujet au bruit de mesure que la polarisation, nous avons choisi la position en énergie des pics de densité avec la théorie comme critère principal d'ajustement.

La figure 6.15 (gauche) montre la distance prévue par la théorie par rapport à la distance mesurée. Une seconde série de spectroscopies sur le même échantillon a été analysée et a donné quasiment le même résultat. Les deux séries sont représentées sur la figure. La relation quasi linéaire entre les distances théoriques et mesurées à l'intérieur de chaque métal montre que le modèle de métaux à grande distance s'applique assez bien. Ceci n'était pas évident a priori et valide notre méthode d'exploitation des résultats en bordure de plot avec un gap très réduit de  $\Delta_o=270 \mu\text{eV}$ . Malgré l'incertitude assez importante des mesures de gap inférieurs à  $150 \mu\text{eV}$ , l'ajustement linéaire permet de définir une longueur de cohérence effective  $\xi_N = 94 \text{ nm}$ . Cette valeur correspond à un libre parcours moyen de  $16 \text{ nm}$  dans le métal normal calculé avec le gap  $\Delta_o$  mentionné. Ceci est en très bon accord

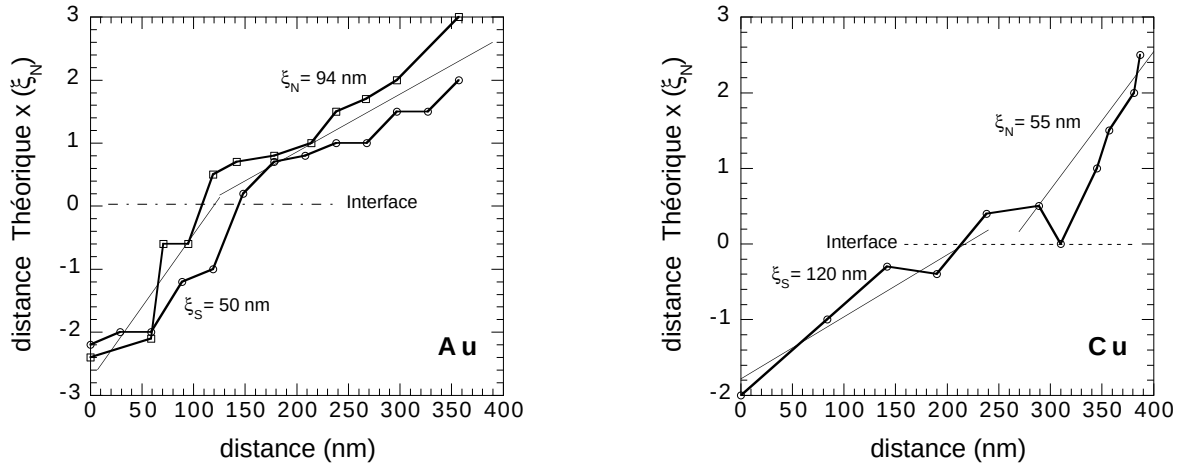


FIG. 6.15 – Distance  $x$  à l'interface ajustée en fonction de la distance mesurée pour l'échantillon d'or (gauche) et de cuivre (droite). Deux séries de spectroscopies sont représentées pour l'échantillon d'or. Chaque point correspond à l'ajustement d'une spectroscopie avec une simulation. L'ajustement linéaire des distances théoriques et mesurées permet de d'obtenir les longueurs de cohérence effectives  $\xi_N$  et  $\xi_S$ . On peut en déduire alors les libre parcours  $l_{pN}$  et  $l_{pS}$  à valeur  $\Delta_o$  fixée. La position de l'interface est directement donnée par la position théorique  $x=0$ .

avec le libre parcours moyen mesurés par résistivité. La longueur de cohérence  $\xi_s$  dans le supraconducteur est estimée à 50 nm. Le libre parcours dans le niobium est alors de 4,5 nm. Cette valeur est inférieure de moitié à la valeur mesurée par résistivité. Ceci confirme la qualité médiocre du niobium déposé notamment en bordure de plot, là où sa faible épaisseur se traduit certainement par une diffusion plus importante.

Avec le traitement effectué, il est possible de localiser une interface NS. La coordonnée  $x=0$  correspond à une hauteur de 6 nm sur le bord des plots. Cette épaisseur de niobium, assimilée à une couche morte, semble être une valeur tout à fait réaliste. Cette valeur semble même un peu faible compte tenu que du fait que l'évaporation est effectuée sur un substrat de silicium non traité et qu'aucun étuvage n'a été réalisé.

Nous avons vu au chapitre 5 que pour un paramètre  $\gamma=1,2$ , la position du pic de densité évolue exponentiellement sur une longueur typique de  $L=1,7 \xi_N$  ce qui donne une valeur  $L \approx 130$  nm pour cet échantillon. La longueur totale sur laquelle nous avons pu observer la pénétration de la supraconductivité dans l'or est d'environ 250 nm.

Nous avons effectué le même traitement sur l'échantillon de cuivre. Cependant le courant tunnel de bien moins bonne qualité par rapport à l'échantillon de cuivre ne permet pas de résoudre correctement les structures à basse énergie. Ainsi, l'ajustement entre les distances théoriques et mesurées est assez aléatoire pour les spectroscopies les plus éloi-

gnées du centre des plots. Cet ajustement suggère une longueur de cohérence  $\xi_N = 55$  nm (Fig. 6.15 (droite)). Avec un gap de départ  $\Delta_o = 300$   $\mu$ eV, le libre parcours moyen de 5 nm est très loin du libre parcours mesuré par résistivité de 19,5 nm. La longueur  $\xi_S$  est ici d'environ 120 nm pour un libre parcours de 25 nm. La décroissance exponentielle sur une longueur typique  $L = 170$  nm est légèrement supérieure à l'échantillon d'or.

## Conclusion sur les mesures de proximité

Nous avons donc réussi, pour l'échantillon d'or, à relier un modèle N-S théorique unidimensionnel à une géométrie expérimentale relativement complexe, à trois dimensions et qui ne donne pas accès direct au supraconducteur. Avec le traitement effectué, les évolutions des densités d'états sont bien décrites par la théorie quasiclassique. L'élargissement des pics de densité pour les faibles valeurs du pseudo-gap suggéré par cette théorie ne sont cependant pas observés. Il est à déplorer que l'amplitude du gap du niobium n'ait pas été plus importante. Ce métal a en effet été choisi pour avoir une grande marge de résolution avec le STM par rapport aux énergies caractéristiques. Il faut souligner que les densités d'états avec lesquelles nous avons travaillé présentent des structures d'une précision dix fois supérieure à toutes les expériences réalisées jusqu'ici par STM. Sur les plots supraconducteurs de ces échantillons, nous avons aussi décrit de manière quantitative l'évolution du minigap pour des effets de proximité en fonction de l'épaisseur de supraconducteur. Des corrections doivent cependant être apportées à cette description par les équations d'Usadel pour tenir compte notre géométrie à faibles épaisseurs.

Nous avons montré qu'une interface très transparente est nécessaire à l'observation des effets de proximité. La qualité d'interface requise reste très difficile à obtenir lorsqu'une remise à l'air est effectuée entre les deux dépôts de métal. Les problèmes de nettoyage de surface par gravure ionique sont certainement spécifiques au niobium. La dégradation de l'interface Nb/Au par la gravure ionique ne nous était pas connue auparavant. Elle engendre des effets qui peuvent être très bien décrits par une résistance d'interface introduite dans les équations d'Usadel. Un remplissage de la densité d'états au niveau de Fermi indépendant de la barrière d'interface a été observé et ouvre des perspectives d'études sur la limite balistique/diffusive dans ce type de bicouche de faible épaisseur.

Enfin, les études des échantillons réalisés sous fort angle d'évaporation ont montré qu'il est difficile d'obtenir une surface uniforme et continue par cette technique. Ajouté au

relief très important nécessaire pour avoir une zone d'ombrage de grande taille, ce type de structure se révèle peu adapté aux mesures par STM. Nous avons pourtant observé l'existence d'un minigap de largeur constante et de très faible énergie ( $70 \mu\text{eV}$ ) dans un métal de dimension finie ( $\approx 350 \text{ nm}$ ), en accord avec les descriptions théoriques.

## Conclusion

Le développement des différents aspects du microscope, la confection des échantillons, les mesures et leur interprétation ont donné un caractère multi-disciplinaire au travail de cette thèse.

Nous avons conçu un STM fonctionnant dans un cryostat à dilution à une température de 60 mK. Pour atteindre les performances attendues à cette température, nous avons optimisé la thermalisation du microscope, sa stabilité mécanique ainsi que l'électronique et les méthodes de mesures. Les spectroscopies réalisées sur des métaux supraconducteurs ont montré une résolution correspondant à une température effective de 210 mK. Cette résolution doit pouvoir être augmentée par des filtres sur les câbles de mesure du microscope qui véhiculent le rayonnement thermique. Ces spectroscopies montrent d'ores et déjà l'une des meilleures résolutions obtenues jusqu'ici par STM.

Nous avons pour la première fois réalisé des spectroscopies STM à très basse température sur des structures lithographiées. De manière générale, nous retenons essentiellement deux contraintes sur ces échantillons : le relief des structures doit être de faible hauteur avec des pentes relativement douces et la surface doit être propre et entièrement conductrice. Le manquement à l'une de ces conditions est généralement fatal pour la pointe lors d'une acquisition d'image. Il est clairement apparu que le contact des échantillons avec l'air ambiant et une atmosphère propre d'hélium dégrade la qualité du courant tunnel en raison d'une oxydation ou d'une contamination de surface. Par contre, une couche de métal non oxydable, comme l'or, déposée juste avant l'observation donne de bons résultats. Ceci conditionne fortement la géométrie des échantillons mais justifie pleinement le choix d'un système avec ouverture à l'air. Un système entièrement sous ultravide peut être envisagé, mais la réalisation d'échantillons dans ces conditions reste limitée.

Une contrainte supplémentaire pour l'observation des effets de proximité est la nécessité d'une très bonne qualité d'interface NS. La technique de masque mécanique amovible sous

ultravide satisfait toutes les contraintes de mesure par STM. Le mécanisme de maintien du masque mériterait d'être optimisé de manière à obtenir des bords de structures mieux définis. De même, il est possible d'augmenter au moins jusqu'au micron, la finesse des dessins du masque. Ce procédé de fabrication in situ présente de nombreux atouts pour la confection de structures métalliques dont la surface doit être parfaitement propre. Pour les effets de proximité, nous poursuivons néanmoins nos efforts sur des échantillons fabriqués par des méthodes de lithographie standards, plus faciles à mettre en œuvre.

Les nombreuses expériences réalisées ont montré que la très grande localité de la mesure STM rend parfois difficile l'interprétation physique des évolutions observées. En effet, des structures totalement inattendues et passagères dans la densité d'états peuvent apparaître sur des distances de quelques angströms. Il faut alors sélectionner les "bonnes" mesures, c'est-à-dire celles qui prennent place dans une évolution générale des structures de densités d'états. Pour cela, le nombre d'acquisitions doit être relativement élevé et un grand soin doit être apporté au positionnement non hystérétique de la pointe sur la surface.

Nous avons observé l'évolution spatiale de la densité d'états dans différents types d'échantillons. Nous avons mis en évidence deux comportements de la densité d'états électronique suivant la taille du métal normal en contact avec le supraconducteur. Dans un métal de petite taille, le minigap supraconducteur s'est révélé constant avec la distance à l'interface, en accord avec les prédictions théoriques. Dans le métal normal quasi infini, la réduction du gap et son remplissage avec l'éloignement de l'interface sont en bon accord un modèle théorique unidimensionnel tiré des équations d'Usadel. Nous avons observé de plus que les effets de proximité inverse diminuent fortement la supraconductivité d'un métal S de faible épaisseur et de dimensions finies. Ces observations ont pu être faites grâce à la très grande résolution du microscope. Elles doivent être néanmoins réitérées avec des énergies de gap plus importantes de manière à augmenter la précision sur l'estimations des différents paramètres physiques. Nous avons étudié des effets de proximité en présence d'une interface résistive réalisée par une gravure ionique du niobium. Les densités d'états observées dans le métal normal correspondent aux prévisions théoriques, mais présentent des caractéristiques supplémentaires. Ces effets évoquent la signature d'électrons balistiques confinés à la surface de nos échantillons.

Pour l'interprétation de nos mesures, l'ajout d'un paramètre de spin flip ou d'une longueur inélastique semble tout à fait arbitraire. En effet, la géométrie particulière des échantillons observés et les incertitudes sur les nombreux paramètres des équations d'Usadel sont autant d'éléments justifiant une certaine prudence vis à vis de l'interprétation fine des résultats.

Les effets de proximité sont une première étape dans l'observation des phénomènes

physiques par sonde locale à très basse température. Ce microscope reste un outil qui promet de pouvoir s'adapter à différentes sortes de mesures. À partir de l'expérience acquise, il est possible d'envisager d'autres types d'observations. Sur de très petites échelles, il sera intéressant de regarder la signature de la supraconductivité, s'il y en a une, à l'intérieur d'un métal ferromagnétique. Dans les systèmes balistiques, avec notamment des semi-conducteurs dopés, la présence d'états liés dans ce métal entouré de supraconducteur pourra être observée.

Les évolutions ultérieures du microscope permettront d'envisager de localiser une structure isolée à la surface des échantillons. Il sera alors possible d'observer des circuits électroniques plus élaborés ainsi que d'appliquer un potentiel pour porter les électrons hors équilibre. Ce développement passera certainement par une évolution vers un double microscope AFM/STM. En effet, avec le STM, le type d'échantillon est limité par la nécessité d'une surface entièrement conductrice. De plus, les structures doivent être de faible relief et il n'est pratiquement pas possible d'utiliser le STM pour le repérage de structures uniques. Par contre, un système AFM est tout à fait envisageable avec une pointe métallique utilisée pour réguler un courant tunnel en un point conducteur et mesurer une densité d'états.





# Bibliographie

- [1] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel, *Tunneling through a controllable vacuum gap*, Appl. Phys. Lett. 40,178 (1982).
- [2] R. Wiesendanger, *Scanning Probe Microscopy Methods and Applications*, Cambridge University Press (1994).
- [3] S. H. Pan, E. W. Hudson, and J. C. Davis, *Vacuum tunneling of superconducting quasiparticles from atomically sharp STM tips*, Appl. Phys. Lett. 73, 2992 (1998) ;  *$^3\text{He}$  refrigerator based low temperature STM*, Rev. Sci. Instrum. 70, 1459 (1999).
- [4] M. Kugler, Ch. Renner, and Ø. Fischer, *A  $^3\text{He}$  refrigerated STM in high magnetic fields and ultrahigh vacuum*, Rev. Sci. Instrum. 71, 1475 (2000).
- [5] D. V. Pelekhov, J. B. Becker, and G. Nunes, Jr., *Ultralow-temperature AFM for the investigation of mesoscopic systems*, Appl. Phys. Lett. 72, 993 (1998).
- [6] M. D. Upward, J. W. Janssen, L. Gurevich and L. P. Kouwenhoven.
- [7] C. Bauerle, N. Mori, G. Kurata and H. Fukuyama, *Studies of 2D cryocrystals by STM techniques*, J. of Low Temp. Phys. 113, 927 (1998).
- [8] Y. Imry, *Introduction to Mesoscopic Physics*, Oxford University Press (1997).
- [9] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, Mc Graw Hill (1985).
- [10] *Mesoscopic superconductivity*, Superlatt. Microstruc. 25, n°5 et 6 (1999).
- [11] X. Jehl, P. Payet-Burin, C. Baraduc, R. Calemczuk, and M. Sanquer, *Andreev reflection enhanced shot noise in mesoscopic SNS Junctions*, Phys. Rev. Lett. 83, 1660 (1999).
- [12] P. Visani, A. C. Mota, and A. Pollini, *Novel reentrant effect in the proximity-induced superconducting behavior of silver*, Phys. Rev. Lett. 65, 1514 (1990) ; F. Bernd Müller-Allinger and A. C. Mota, *Paramagnetic reentrant effect in high purity mesoscopic AgNb proximity structures*, Phys. Rev. Lett. 84, 3161 (2000).
- [13] S. Guéron et al., *Superconducting Proximity Effect Probed on a Mesoscopic Length Scale*, Phys. Rev. Lett. 77, 3025 (1996) et Thèse de l'université Paris 6 (1997).

## Chapitre 1 Introduction

- [14] C. Julian Chen, *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*, Oxford University Press (1993).

- [15] I. Maggio-Aprile, Ch. Renner, A. Erb, E. Walker, and Ø. Fischer, *Direct Vortex imaging and tunnel spectroscopy of flux lines on  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* , Phys. Rev. Lett. 75, 2754 (1995).
- [16] H. F. Hess, R. B. Robinson et J. V. Waszczak, *Vortex-core structure observed with a STM*, Phys. Rev. Lett. 64, 2711 (1990); *STM spectroscopy of vortex cores and the flux lattice*, Physica B 169, 422 (1991).
- [17] L. Solymar, *Superconductive tunneling and applications*, Wiley interscience (1972).
- [18] J. Bardeen, *Tunneling from a many-body point of view*, Phys. Rev. Lett. 6, 57 (1960).
- [19] R. J. Hamers, R. M. Tromp, J. E. Demuth, *Electronic and geometric structure of  $Si(111)-7\times 7$  and  $Si(001)$  surfaces*, Surf. Sci. 181, 346 (1987).
- [20] J. P. Pelz and R. H. Koch, *Successive oxidation stages and annealing behavior of the  $Si(111)-7\times 7$  surface observed with STM and STS*, J. Vac. Sci. Technol. B 9, 775 (1991).
- [21] H. C. Manoharan, C. P. Lutz, D.W. Eigler, *Quantum mirages formed by coherent projection of electronic structure*, Nature 403, 512 (2000).
- [22] M. Morgenstern, Chr. Wittneven, R. Dombrowski, and R. Wiesendanger, *Spatial fluctuations of density of states in magnetic fields observed with STM*, Phys. Rev. Lett. 84, 5588 (2000).
- [23] W. Sacks, D. Roditchev, and J. Klein, *Voltage-dependent STM image of a charge density wave*, Phys. Rev. B 57, 13118 (1998).
- [24] P. Mallet, Thèse de l'Université Paris 7 Denis Diderot (1996).
- [25] D. Smith, S. Shapiro, J. L. Miles, and J. Nicol, *Superconducting characteristics of superimposed metal films*, Phys. Rev. Lett. 6, 686 (1961).
- [26] J. Clarke, *Supercurrents in lead-copper-lead Sandwiches*, Proc. Roy. Soc. A. 308, 447 (1969).
- [27] K. K. Likharev, *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*, Gordon and Breach Science Publishers (1986).
- [28] A. F. Andreev, *The thermal conductivity of the intermediate state in superconductors*, Sov. Phys. JETP 19, 1228 (1964).
- [29] P. G. De Gennes, *Boundary effects in superconductors*, Rev. Mod. Phys 36, 225 (1964).
- [30] W. L. McMillan, *Tunneling of the superconducting proximity effect*, Phys. Rev. 175, 537 (1968).
- [31] J. Rammer and H. Smith, *Quantum field-theoretical methods in transport theory of metal*, Rev. Mod. Phys. 58, 323 (1986).
- [32] G. Eilenberger, Z. Phys. 214, 195 (1968).
- [33] K. D. Usadel, *Generalized diffusion equation for superconducting alloys*, Phys. Rev. Lett. 25, 507 (1970).
- [34] A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, *Nonlinear conductivity of superconductors in the mixed state*, Sov. Phys. JETP 41, 960 (1976).

- [35] G. M. Éliashberg, *Inelastic electron collisions and nonequilibrium stationary states in superconductors*, Sov. Phys. JETP 34, 668 (1972).
- [36] A. Schmid, *Nonequilibrium superconductivity, phonons, and Kapitza boundaries*, edited by Kenneth E. Gray (NATO Advanced Study Institutes series B : Physics), p. 423 (1981).
- [37] A. A. Golubov and M. Yu. Kupriyanov, *Theoretical investigation of josephson tunnel junctions with spatially inhomogeneous superconducting electrodes*, J. Low Temp. Phys. 70, 83 (1988).
- [38] W. Belzig, C. Bruder and Gerd Schön, *Local density of states in a dirty normal metal connected to a superconductor*, Phys. Rev. B 54, 9443 (1996).
- [39] G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk, *Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions*, Phys. Rev. B 25, 4515 (1982).
- [40] D. J. Thouless, *Maximum metallic resistance in thin wires*, Phys. Rev. Lett. 39, 1167 (1977).
- [41] K. K. Likharev, *Superconducting weak links*, Rev. Mod. Phys. 51, 101 (1979).
- [42] H. Courtois, Ph. Gandit, and B. Pannetier, *Phase coherence in a two-dimensional array of normal and superconducting wires*, Phys. Rev. B 51, 9360 (1995).
- [43] P. Dubos, H. Courtois, B. Pannetier, F. K. Wilhelm, A. D. Zaikin, G. Schon, *The Josephson critical current in a long mesoscopic S-N-S junction*, cond-mat/0008146, à paraître dans Phys. Rev. B.
- [44] R. W. Simon and P. M. Chaikin, *Penetration depth in proximity-effect superconductors*, Phys. Rev. B 30, 3750 (1984).
- [45] A. C. Mota, P. Visani and A. Pollini, *Magnetic properties of proximity-induced superconducting copper and silver*, J. Low Temp. Phys. 76, 465 (1989).
- [46] C. Bruder and Y. Imry, *Orbital paramagnetism of électrons in proximity to a superconductor*, Phys. Rev. Lett. 80, 5782 (1998).
- [47] A. Fauchère, W. Belzig, and G. Blatter, *Paramagnetic instability at normal-metal - superconductors interfaces*, Phys. Rev. Lett. 82, 3336 (1999).
- [48] A. Kastalsky, A. W. Kleinsasser, L. H. Greene, R. Bhat, F. P. Milliken, and J. P. Harbison, *Observation of pair currents in superconductor-semiconductor contacts*, Phys. Rev. Lett. 67, 3026 (1991).
- [49] H. Pothier, S. Guéron, D. Esteve, and M. H. Devoret, *Flux modulated Andreev current caused by electronic interference*, Phys. Rev. Lett. 73, 2488 (1994).
- [50] F. W. J. Hekking and Yu. V. Nazarov, *Interference of two electrons entering a superconductor*, Phys. Rev. Lett. 71, 1625 (1993).
- [51] V. T. Petrashov, V. N. Antonov, P. Delsing and R. Claeson, *Phase memory effects in mesoscopic rings with superconducting "mirrors"*, Phys. Rev. Lett. 70, 347 (1993).
- [52] H. Courtois, Ph. Gandit, D. Mailly, and B. Pannetier, *Long-range coherence in a mesoscopic metal near a superconductor interface*, Phys. Rev. Lett. 96, 130 (1996).
- [53] P. Charlat, H. Courtois, Ph. Gandit, D. Mailly, A. F. Volkov, and B. Pannetier, *Reentrant of the metallic conductance in a mesoscopic proximity superconductor*, Phys. Rev. Lett. 77, 4950 (1996) et Thèse de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I (1997).

- [54] S. G. den Hartog, C. M. A. Kapteyn, B. J. van Wees, and T. M. Klapwijk, *Sample specific conductance fluctuations modulated by the superconducting phase*, Phys. Rev. Lett. 76, 4592 (1996).
- [55] W. Poirier, D. Mailly, and M. Sanquer, *Finite bias anomaly in the subgap conductance of superconductor-GaAs junctions*, Phys. Rev. Lett. 79, 2105 (1997).
- [56] V. T. Petrashov, R. Sh. Shaikhaidarov, P. Delsing, and T. Cleason, *Phase sensitive reentrance into the normal state of mesoscopic SNS structures*, JETP Lett. 67, 513 (1998).
- [57] C.-J. Chien and V. Chandrasekhar, *Reentrance effect in normal-metal/superconducting hybrid loops*, Phys. Rev. B 60, 15356 (1999).
- [58] J. Clarke, *The proximity effect between superconducting and normal thin films in zero field*, Journal de Physique, Colloque C2, tome 29 (1968), p. C2 - 3.
- [59] C. J. Adkins and B. W. Kington, *The proximity effect in the Lead-Copper system by electron tunneling*, Phil. Mag. 13, 971 (1966).
- [60] D. H. Prothero, *Superconducting proximity effect in copper-lead sandwiches*, Phil. Mag., 829 (1973).
- [61] S. H. Tessmer, D. J. Harlingen, and J. W. Lyding, *Observation of bound quasiparticle states in thin Au islands by STM*, Phys. Rev. Lett. 70, 3135 (1993).
- [62] S. H. Tessmer, M. B. Tarlie, D. J. Van Harlingen, D. L. Maslov, and P. M. Goldbart, *Probing the superconducting proximity effect in NbSe<sub>2</sub> by STM*, Phys. Rev. Lett. 77, 924 (1996).
- [63] M. Vinet, C. Chapelier and J.-F. Lefloch, *Spatially resolved spectroscopy on a superconducting proximity nanostructure*, cond-mat/0004340.
- [64] R. Zasadzinski, K. G. Vandervoort, and G. W. Crabtree, *Study of the proximity effect in Nb/Au, Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+y</sub>/Au, and HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>/Au using a STM*, J. Appl. Phys. 79, 7843 (1996).
- [65] R. Fazio and C. Lucheroni, *Local density of states in superconducting-ferromagnetic hybrid systems*, Europhys. Lett. 45, 707 (1999).
- [66] Ali Yazdani, B. A. Jones, C. P. Lutz, M. F. Crommie, and D. M. Eigler, *Probing the local effects of magnetic impurities on superconductivity*, Science 275, 1767 (1997).
- [67] Ali Yazdani, C. M. Howald, C. P. Lutz, A. Kapitulnik, and D. M. Eigler, *Impurity-induced bound excitations on the surface of Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub>*, Phys. Rev. Lett. 83, 176 (1999).
- [68] Y. Levi, O. Millo, N. D. Rizzo, D. E. Prober, L. R. Motowidlo, *STM studies of the superconductor proximity effect*, Phys. Rev. B 58, 15128 (1998).

## Chapitre 2 Microscope tunnel à très basse température

- [69] Cryostat sionludi développé par A. Benoît et M. Caussignac et commercialisé sous licence par Air Liquide.
- [70] Conception et réalisation de la microvanne basse température par Bertrand Gauthier, CRTBT-CNRS.
- [71] Colle Stycast noire 2850 FT avec catalyseur Emerson & Cuming 24 LV.

- [72] G. Binnig and D. P. E. Smith, *Single-tube three-dimensional scanner for scanning tunneling microscopy*, Rev. Sci. Instrum. 57, 1688 (1986).
- [73] J. E. Griffith et al., *A scanning tunneling microscope with a capacitance-based position monitor*, J. Vac. Sci. Technol B 8, 2023 (1990).
- [74] L. E. C. van de Leemput, P. H. H. Rongen, B. H. Timmerman, and H. van Kempen, *Calibration and characterization of piezoelectric elements as used in scanning tunneling microscopy*, Rev. Sci. Instrum. 62, 989 (1991).
- [75] M. E. Taylor, *Dynamics of piezoelectric tube scanners for scanning probe microscopy*, Rev. Sci. Instrum. 64, 154 (1993).
- [76] G. Nunes, Jr. and D. Williams, *Thermal contraction of ultrahigh vacuum materials for scanning probe microscopy from 300 K to 4 K*, J. Vac. Sci. Technol. B 13, 1063 (1995).
- [77] Ch. Renner, Ph. Niedermann, A. D. Kent, and Ø. Fischer, *A vertical piezoelectric inertial slider*, Rev. Sci. Instrum. 61, 965 (1990).

### Chapitre 3 Électronique et sensibilité de mesure

- [78] OPA 637BM, Burr-Brown.
- [79] R. C. Dynes, V. Narayamurti and J. P. Garno, *Direct measurement of quasiparticle-lifetime broadening in a strong coupled superconductor*, Phys. Rev. Lett. 41, 1509 (1978).
- [80] H. Grabert and M. H. Devoret, *Single charge tunneling*, NATO ASI Series B Vol. 294.

### Chapitre 4 Fabrication des pointes et des échantillons

- [81] J. Lindahl, T. Takanen, and L. Montelius, *Easy and reproducible method for making sharp tips of Pt/Ir*, J. Vac. Sci. Technol. B 16, 3077 (1998).
- [82] K. Runge, Thèse de l'université Joseph Fourier (1993).

### Chapitre 5 Calculs quasiclassiques de densités d'états locales

- [83] W. Belzig, F. Wilhem et al., *Quasiclassical green fonction approach to mesoscopic superconductivity*, dans la référence [10].
- [84] T. H. Stoof and Yu. V. Nazarov, *Kinetic-equation approach to diffusive superconducting hybrid devices*, Phys. Rev. B 53, 14496 (1996).
- [85] W. Belzig, *Magnetic and spectral properties of superconducting proximity-systems*, Thèse de la faculté de physique de Karlsruhe (1999).
- [86] F. Zhou, B. Spivak and A. Zyuzin, *Coherence effects in a normal-metal-insulator-superconductor junction*, Phys. Rev. B 52, 4467 (1995).
- [87] Ya. V. Fominov and M. V. Feigel'man, *Superconducting properties of thin dirty SN bilayers*, cond-mat/0008038, (2000).

## Chapitre 6 Structures NS mesurées par STM

[88] Gravure ionique de type Ion Tech, inc., MPS-3000 FC.

[89] N. A. Mortensen, K. Flensberg, A. P. Jauho, *Angle dependance of Andreev scattering at semiconductor-superconductor interfaces*, Phys. Rev. B 59, 10176 (1999).

### Résumé

Nous étudions les phénomènes de cohérence de phase électronique qui apparaissent à très basse température dans les supraconducteurs non homogènes. Pour cela, nous avons développé un microscope à effet tunnel (STM) fonctionnant dans un cryostat à dilution à une température de 60 mK. La résolution des densités d'états électroniques locales (LDOS) mesurées par ce STM est de l'ordre de  $36 \mu\text{eV}$ . C'est l'une des meilleures résolutions obtenues avec ce type de système. Nous avons étudié des effets de proximité dans des jonctions entre un métal supraconducteur et un métal normal. Contrairement aux techniques antérieures, la microscopie tunnel permet d'observer ces propriétés de manière continue à l'interface des deux métaux. La mesure de ces effets par STM impose des contraintes géométriques (faible relief, large champ) et une bonne qualité des métaux observés (état de la surface, transparence de l'interface le métal normal-métal supraconducteur). Plusieurs procédés de fabrication ont été élaborés pour satisfaire ces conditions. Chaque configuration d'échantillon présente ses propres caractéristiques en terme de mesure tunnel. Nous avons ainsi identifié les limites et les potentialités de cette méthode de mesure. Différentes évolutions spatiales de la LDOS sont observées suivant la géométrie des structures métalliques et la qualité de l'interface. Ces évolutions sont en bon accord avec les équations d'Usadel qui décrivent les comportements électroniques en présence de supraconductivité dans les métaux diffusifs. Ce sont les premières mesures STM à très basse température sur des échantillons lithographiés.

---

**Title :** Mesoscopic superconductors studied by very low temperature scanning tunneling microscopy

### Abstract

We study electronic effects of coherence that appear at very low temperature in non homogeneous superconductors. We have developed a Scanning Tunneling Microscope (STM) operating in a dilution fridge at a temperature of 60 mK. The resolution of the Local Density of States (LDOS) measured by the STM is  $36 \mu\text{eV}$ . This is one of the best resolution obtained with this kind of system. We have studied proximity effects in junctions between a normal metal and a superconducting metal. In contrast with previous techniques, tunnel microscopy enables a continuous scan at the interface of the two metals. These measurements require specific sample shape (low relief, large field) and a good quality of metals (surface properties, transparency of the normal

metal-superconductor interface). Providing these requirements, several sample fabrications have been developed. Each configuration exhibit its own tunnel measurement features. We identify the limits and potentialities of this measurement method. We observed various types of spatial evolution of the LDOS depending on the geometry of metallic structures and the interface quality. These evolutions are in good agreement with Usadel equations that describe electron behaviour in presence of superconductivity in diffusive metals. These are the first STM measurements at very low temperature on samples processed by lithography.

---

**Discipline** : Physique de la matière condensée

**Mots-clés** : Supraconductivité, Mésooscopie, Proximité, STM, Spectroscopie tunnel, Microscopie tunnel, très basses températures, densité d'états électronique.

**Centre de Recherches sur les Très Basses Températures,**  
laboratoire associé à l'Université Joseph Fourier  
CRTBT-CNRS, 25 av. des Martyrs, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9  
[http :\\www-crtbt.polycnrs-gre.fr](http://www-crtbt.polycnrs-gre.fr)