



**HAL**  
open science

# Transport et détection quantiques dans un nanofil supraconducteur réalisé par microscopie à force atomique

Cécile Delacour

► **To cite this version:**

Cécile Delacour. Transport et détection quantiques dans un nanofil supraconducteur réalisé par microscopie à force atomique. Physique [physics]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT: . tel-00333114

**HAL Id: tel-00333114**

**<https://theses.hal.science/tel-00333114>**

Submitted on 22 Oct 2008

**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.

Transport et détection quantiques  
dans un nanofil supraconducteur réalisé  
par microscopie à force atomique



Cécile DELACOUR



**THESE**

présentée par

**Cécile DELACOUR**

pour obtenir le titre de DOCTEUR  
de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I  
en PHYSIQUE

**Transport et détection quantiques  
dans un nanofil supraconducteur réalisé  
par microscopie à force atomique**

Soutenue publiquement le 19 novembre 2008 devant le jury :

Composition du Jury :

J.P. Poizat, Président  
J.P. Maneval, Rapporteur  
M. Aprili, Rapporteur  
A. Benoit, Examineur

J.C. Villegier, Invité  
V. Bouchiat, Directeur de thèse  
B. Pannetier, Directeur de thèse

Thèse préparée dans le département Nanosciences de l'Institut Néel,  
CNRS-Grenoble



## Remerciements

Je remercie Alain Fontaine pour m'avoir accueillie au sein de l'institut Néel, ainsi que les services techniques et administratifs de l'institut. De part leurs compétences, ils m'ont offert un environnement scientifique exceptionnel. J'ai une pensée particulière pour les services mécanique et électronique du feu CRTBT.

Pour ce travail, j'ai été financée par la Délégation Générale pour l'Armement. Je les remercie pour le soutien qu'ils m'ont accordé. Je remercie également la société RSA Le Rubis pour leur collaboration.

Je remercie chaleureusement mes deux directeurs de thèse, Vincent Bouchiat et Bernard Pannetier pour avoir su partager leurs savoirs faire et pour la liberté d'action qu'ils m'ont offerte. Ce fut un grand honneur d'appréhender les vastes domaines de la physique du solide, de l'électronique, des nanotechnologies et de la cryogénie à leurs cotés.

Pour leur aide et leur soutien, je remercie vivement Wolfgang Wernsdorfer, Frank Balestro et Eric Eyraud. Je remercie également Anne-Marie Bonnot et Monique Giroud, qui m'ont permis d'utiliser intensivement l'AFM et le cryostat à dilution.

Je remercie Luc Ortega pour m'avoir initiée aux techniques de diffraction et de réflectivité aux RX et pour m'avoir soutenue et conseillée jusqu'au bout de la thèse. Je remercie aussi Maria Baccia pour avoir accepté de tenter l'aventure de la mesure par TEM des films de Nb! Je remercie aussi particulièrement Thierry Crozes et Thierry Fournier pour leur aide.

Je tiens à remercier J.C. Villegier, qui en plus de m'avoir soutenue et conseillée tout au long de ma thèse, m'a fourni des films ultraminces de NbN de très haute qualité. Pour leur collaboration, je tiens également à remercier Jean-Phillippe Poizat, Julien Claudon et Roch Espiau de Lamaestre.

Du séjour surprenant à Moscou, je retiendrai une excellente ambiance de travail et le flux laminaire du métro moscovite! Je remercie vivement Gregory Goltsman et Boris Voronov de nous avoir si bien accueillis ainsi que toutes les personnes qui ont participé, humainement et financièrement, à ce voyage.

Je fus très honorée que Marco Aprili et Jean Paul Maneval acceptent d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Ce fut aussi un grand honneur que Alain Benoît et Jean Phillippe Poizat acceptent d'en être les examinateurs. Je les en remercie.

Pour leurs conseils, et surtout en cette fin de thèse, je remercie Hervé Courtois, Olivier Bourgeois, Klaus Hasselbach, Olivier Buisson, Pierre Monceau, Elsa Lhotel, Laetitia Marty et Clemens Winkelmann.

Merci Aurélien et Sukumar pour vos rires et pour les réserves de chocolat (ou pas...)! Je remercie aussi les quelques téméraires qui ont accepté l'aventure du lancement de la 'PhD-team' de l'Institut Néel! Pourvu que ça dure!

Enfin, je remercie mon père et ma mère pour m'avoir donné l'envie d'apprendre, les mains dans le cambouis et la tête dans les livres. Merci à vous et à Marlène, pour avoir supporté mes excès d'autorité et mes fautes de style durant ces dernières semaines de rédaction.

Je remercie enfin tous ceux qui m'ont permis de Respirer, de la Meije au Matchu Pitchu. Merci Julien, Thomas, Fab et Eric, Emilie, Estelle, Claire et Alexandra... *Enjoy the next!*

---

## Introduction au contenu de la thèse

Le nanomonde est décrit depuis longtemps par la physique microscopique mais son observation est récente. Les progrès instrumentaux ont permis l'émergence des nanotechnologies et sont à l'origine de la maîtrise des nano-objets individuels.

L'invention des microscopes en champ proche<sup>1</sup> est un événement marquant des nanotechnologies. Ces instruments ont permis de voir des atomes individuels et de les manipuler. Ils nous permettent de modifier un monde auquel nous n'avons pas accès et de l'utiliser pour produire des connaissances<sup>2</sup>.

Les nanotechnologies permettent de construire et de façonner des nano-objets. Ces nano-objets sont très sensibles à leur environnement proche et sont utiles pour détecter ou observer les quantas qui constituent un courant électrique ou un faisceau lumineux. Par exemple, il est possible aujourd'hui de réaliser des transistors à un électron qui soient sensibles à la charge d'une électrode avec une précision sub-quanta<sup>3</sup> et de réaliser des lasers attoseconde qui permettent la visualisation d'un paquet d'onde électronique<sup>4</sup>.

Isoler un quanta est une des clefs nécessaires pour l'observation des phénomènes prédits par la physique microscopique et pour leurs applications. Ces concepts, formalisés la mécanique quantique, sont basés sur une vision nouvelle des systèmes qui nous entourent. Elle pose par exemple le problème de la mesure qui est alors déterministe. Dans cette description microscopique, l'état d'un électron ou d'un photon n'est pas certain, il est une superposition linéaire d'états de diverses probabilités. Ces états possibles dépendent du référentiel choisi pour observer la particule. La mesure fixant ce référentiel constitue alors une *action* puisque son résultat détermine l'état de la particule.

Une des prédictions de la mécanique quantique est l'existence d'états enchevêtrés, ou intriqués<sup>5</sup>. Cet état décrit un système où deux électrons, ou deux photons, sont indissociables. Pour l'illustrer nous empruntons un exemple utilisé par N.Gisin : 'Je dispose dans mes mains de deux cartes l'une est rouge et l'autre est bleue. Je place chacune d'elles dans deux enveloppes et je les envoie à deux destinataires différents. Qu'importe la destination et l'espacement spatial entre les deux lettres, je viens de créer un état intriqué où le contenu d'une enveloppe dépend et définit le contenu de l'autre'. Pour être plus exact il faut rajouter à cet exemple l'incertitude de départ sur la contenance des deux enveloppes, c'est à dire l'incertitude sur

---

1. G. Binnig et al, Phys. Rev. Lett. **49**, 57 (1982).

2. D.M. Eigler et al Nature **344**, 524 (1996).

3. M. Devoret et al, Nature **406**, 291 (21 August 2000)

4. T. Remetter et al, Nature Physics **2**, 323 (5 mai 2006)

5. A.Aspect et al, Phys. Rev. Lett. **49**, 1804 (1982); C. H. Bennett et al, Sc. Am. **267**, 50 (1992)



l'état initial de chacun des deux électrons ou photons.

Ce concept d'intrication peut être utilisé pour implémenter une cryptographie quantique. Une telle cryptographie permet la transmission de l'information de manière totalement sécurisée<sup>6</sup>. Un état intriqué est difficile à observer car de nombreux phénomènes de décohérence qui vont agir de manière aléatoire sur les électrons ou photons formant cette paire et les faire évoluer vers deux états indépendants. Néanmoins, les détecteurs et sources à un photon qui sont les briques élémentaires d'une telle cryptographie peuvent d'ores et déjà être utiles à une cryptographie classique qui elle aussi assure une transmission totalement sécurisée que l'on peut exactement comparer au jeu des cartes. Elle repose sur le concept du "masque jetable" inventé par G.Vernam en 1917.

Pour réaliser des détecteurs à un photon, les supraconducteurs sont les matériaux de choix. En raison de leur faible gap supraconducteur, ils sont sensibles au photon unique aux longueurs d'onde infrarouge et peuvent alors être utilisés comme des compteurs de photons<sup>7</sup>. Les détecteurs supraconducteurs sont d'autant plus sensibles que leur taille est réduite. Dans ces systèmes, il est difficile de préserver un état supraconducteur. La réduction de la taille des supraconducteurs à une échelle nanométrique induit l'affaiblissement de la supraconductivité et l'existence de fluctuations locales qui brisent les paires de Cooper. Les électrons libres présents dans le circuit induisent une résistance non nulle aux bornes du supraconducteur. Ces fluctuations dissipatives participent au bruit du détecteur. Pour l'application de ces nanofils à la cryptographie, ce bruit doit être le plus faible possible car il détermine le niveau de sécurité de la ligne de transmission.

Dans cette thèse, nous contribuons à la réalisation et à la mesure de détecteurs supraconducteurs. Les parties sensibles des circuits sont des nanofils dont la section est de l'ordre de  $100nm^2$ . Leur comportement peut être interprété à l'aide des modèles développés pour décrire des supraconducteurs unidimensionnels. Pour améliorer la sensibilité des dispositifs nous travaillons sur des films ultra minces (10-2nm d'épaisseur). Les films sont hétéro-épitaxiés afin de diminuer les défauts du matériau qui contribuent au bruit des détecteurs. D'autre part, nous utilisons une technique non invasive pour la supraconductivité des dispositifs qui est l'anodisation locale contrôlée par la pointe d'un microscope à force atomique. Cette technique de lithographie est une écriture directe en négatif du dispositif. Elle permet d'éviter l'utilisation des résines, qui polluent la surface des dispositifs, et de lithographier le détecteur sur l'objet à mesurer. La précision de l'alignement est sub-nanométrique. Elle est liée à la haute résolution d'imagerie du microscope à force atomique. Cette technique est de plus particulièrement adaptée aux films ultra minces sur lesquels elle atteint une résolution ultime de 10nm.

---

6. N.Gisin et al, Rev. Mod. Phys **74**, 145 (2002)

7. G.Goltsman et al, Appl. Phys. Lett., **79**, 705 (2001)

Ces dispositifs supraconducteurs ont été utilisés pour la détection de quantum de charge et de flux. En particulier, nous explorons les possibilités d'application de ces nanofils supraconducteurs à la détection photonique, dont le seuil de bruit et la bande passante permet la détection de photons uniques<sup>8</sup>. Pour ces détecteurs, la technique de lithographie par AFM apporte un avantage supplémentaire puisqu'elle permet de réaliser des nanofils denses et étroits afin d'augmenter l'efficacité et la sensibilité des détecteurs supraconducteurs.

### Questions abordées dans ce manuscrit

Dans une nanostructure supraconductrice où les paires de Cooper sont confinées<sup>9</sup>, des variations locales de la densité de paires de Cooper apparaissent même en l'absence de champ ou de courant. Elles ont lieu préférentiellement à des endroits où la supraconductivité est déjà affaiblie, par la présence de défauts ou d'impuretés magnétiques<sup>10, 11, 12</sup> par exemple. Ces variations sont des fluctuations thermodynamiques de la phase ou bien de l'amplitude de l'état décrivant le condensat supraconducteur. Ces fluctuations sont des vortex, des lignes ou des centres de glissement de phase par exemple. Elles conduisent à un état mixte résistif où des zones normales coexistent avec des zones supraconductrices. L'objet supraconducteur présente alors une résistance non nulle. Ce champ d'étude est très délicat car la supraconductivité y est souvent difficile à définir. Nous discutons dans ce manuscrit de la supraconductivité caractérisée par une résistance strictement nulle et une supraconductivité qui n'est pas induite par un effet de proximité.

Avant les années 1970, la supraconductivité ne semblait pas possible dans des objets de taille inférieure à la longueur des paires de Cooper. Mais dans les années 70, ce raisonnement a été remis en cause dans les films. Une nouvelle transition<sup>13</sup> prédit l'absence de fluctuations thermodynamiques et l'existence d'un état supraconducteur dans les systèmes où deux dimensions sont grandes devant la taille des paires de Cooper ( $\xi$ ).

L'existence d'un état supraconducteur dans ces systèmes est encore un débat d'actualité. Malgré les prédictions, il n'est pas évident de mesurer une résistance strictement nulle dans un film de quelques plans atomiques et il n'est pas prouvé qu'un état de résistance strictement nul

---

8. C. Delacour et al, Appl. Phys. Lett. **90** 191116 (2007)

9. Au moins une dimension de l'objet est inférieure à l'extension spatiale d'une paire de Cooper, valeur donnée par  $\xi$

10. A. A. Abrikosov and L.P.Gor'kov, Soviet. Phys. JETP, **12**,1243 (1961).

11. K. Maki, *Gapless Superconductivity*, in R. D. Parks (ed. ) *Superconductivity*, vol. II, Dekker, New York (1969), chap.18.

12. P. G. de Gennes, *Superconductivity of metals and alloys*, in R. D. Parks (ed. ) *Superconductivity*, W.A.Banjamin, New-York (1966), Chap.8 ; reissued by Addison-Wesley, reading, MA, in 1889.

13. B.I.Halperin and D.R.Nelson, J. Low Temp. Phys. **36**, 599 (1979)

existe dans des systèmes de plus basses dimensions<sup>14</sup>(1D, 0D). Au contraire, des fluctuations thermodynamiques sont prédites même à température nulle et des travaux montrent l'existence d'une transition vers un état isolant à mesure que les dimensions des supraconducteurs sont réduites, dans des nanofils<sup>15</sup>ou des films<sup>16</sup>.

Néanmoins d'autres expériences, montrent l'existence d'une transition à basse température vers un état très peu résistif, où coexistent des zones normales et supraconductrices dans des grains (0D)<sup>17</sup> ou des nanotubes de carbone (1D)<sup>18</sup>. La supraconductivité qui apparaît dans ces systèmes ne s'explique pas par un effet de proximité. Elle est intrinsèque à l'objet. Ces expériences, peuvent-elles suggérer une remise en cause des méthodes de mesure et de fabrication des échantillons? Un des points importants est de définir la contribution des imperfections des objets que l'on mesure sur leurs propriétés supraconductrices. S'agit-il d'une disparition brutale ou progressive de l'état supraconducteur et quels sont les paramètres pertinents?

Le problème peut s'adresser de deux manières. Tout d'abord en mesurant des systèmes sans défauts structuraux, impuretés magnétiques ou d'autres perturbations qui tendent à affaiblir le gap supraconducteur.

Une seconde approche serait d'adapter notre méthode de mesure, à l'aide des microscopes à sonde locale par exemple. Le microscope à effet tunnel constitue avec l'objet à mesurer, un système supraconducteur bien connu qui est la jonction Josephson. Une pointe supraconductrice isolée du système à étudier par une interface isolante, comme l'air, constitue une jonction Supraconducteur Isolant Supraconducteur<sup>19</sup> (S-I-S). Dans le passé, les jonctions Josephson ont déjà prouvé leur utilité pour la mesure précise de l'évolution des propriétés supraconductrices de films ultra minces de niobium<sup>20</sup>. Des travaux plus récents montrent les variations du gap supraconducteur avec l'épaisseur du plomb (Pb). La période des modulations de la température de transition est de deux monocouches. Le plomb, comme de nombreux autres supraconducteurs, est un matériau où la transition supraconducteur-isolant (TSI) fut très étudiée en fonction de l'épaisseur des films<sup>21</sup>.

Nous abordons ces questions, d'une part à l'aide de systèmes cristallins dont le désordre est rendu minimal grâce à une épitaxie. Les films ultra minces de niobium et de nitrure de ni-

---

14. Deux, puis les trois dimensions caractérisant la taille de l'objet sont inférieures à la taille des paires de Cooper

15. M.Zgirski et al, Nano Lett. **5**, 1029(2005)

16. D.B.Haviland et al, Phys. Rev. Lett. **62**,18 (1989)

17. D. C. Ralph and C. T. Black and M. Tinkham, Phys. Rev. Lett. **74**, 3241(1995)

18. M.Kociak et al, Phys. Rev. Lett. **86**,2416 (2001)

19. O. Naaman, thèse, Dyne's laboratoty, UC San Diego (2003)

20. S. I. Park and T. H. Geballe, Phys. Rev. Lett. **57**,901 (1986)

21. O. Bourgeois et al, Phys. Rev. Lett. **88**, 18 (2002)

bium sont évaporés à chaud sur des substrats de saphir pour obtenir une hétéro-épitaxie. Nous caractérisons dans la première partie de ce manuscrit la qualité cristalline des films de niobium et leur supraconductivité en fonction de leur épaisseur. Nous comparons ces résultats à des mesures de spectroscopie locale effectuées par STM et donnons une interprétation possible sur la disparition de la supraconductivité et sur la nature de la phase non supraconductrice qui en résulte : s'agit-il d'un isolant ou d'un métal normal ?

Nous utilisons aussi un outil pour structurer des nanofils qui est, à notre connaissance, une des techniques les moins invasives pour la supraconductivité des nano-objets. Nous réalisons des nanofils par oxydation anodique locale (LAO) sous la pointe métallisée d'un microscope à force atomique<sup>22</sup>. Ces dispositifs ne sont pas des supraconducteurs 1D mais s'en rapprochent. Ce sont des nano-rubans d'épaisseur de l'ordre de la taille des paires de Cooper (de 3nm à 10nm vs. 5nm) et dont la largeur est de l'ordre de 100nm à 200nm. Cette largeur est assez faible pour être ressentie par le supraconducteur et suffisamment grande pour pouvoir le considérer comme un système à deux dimensions (2D). Dans ces objets nous qualifions les fluctuations supraconductrices qui apparaissent aux plus basses températures. Nous les présentons dans la deuxième partie de ce manuscrit.

Il existe un haut intérêt technologique pour la réalisation de détecteurs à très haute sensibilité et de bruit minimal. Le niveau de bruit atteint par les détecteurs supraconducteurs est sans doute un des plus faibles niveaux de bruit atteints par les dispositifs mésoscopiques<sup>23</sup>. Les semiconducteurs, par exemple, étudiés en détails par l'industrie de la micro-électronique, sont des matériaux qui présentent des gaps plus élevés que celui des dispositifs supraconducteurs. Lorsqu'ils sont utilisés comme des détecteurs ultimes à faibles photons par exemple, les détecteurs à base de semiconducteurs sont alors dans un état d'instabilité tel qu'ils se déclenchent à la moindre fluctuation<sup>24, 25</sup>, ce qui augmente le nombre de faux événements (le bruit du détecteur). Au contraire, nous cherchons à augmenter au maximum la stabilité de l'état supraconducteur pour améliorer les capacités des détecteurs supraconducteurs. L'existence d'un état dont la résistivité est strictement nulle permet d'implémenter des détecteurs quantiques dont le nombre de fluctuations thermodynamiques (et donc le bruit) est minimal. Ces détecteurs sont utiles à des disciplines exigeantes sur leur seuil de bruit, en charge ou en flux (magnétique et électromagnétique) : par exemple, pour les bits quantiques supraconducteurs et les détecteurs supraconducteurs à un photon<sup>26</sup> pour l'implémentation de l'information et de la cryptographie quantique.

---

22. E. S. Snow, P. M. Campbell, *Science*, **270**, 1639 (1995).

23. A. Semenov et al, *Eur. Phys. J.* **AP21**, 171 (2003).

24. S. Takeuschi et al, *Appl. Phys. Lett.* **74** 1063 (1999).

25. G. S. Buller et al, *IEEE Leos Newsletter* 21 (2009).

26. A. M. Kadin, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3193 (1990).

Nous présentons et qualifions les premiers détecteurs supraconducteurs à un photon réalisés à l'aide d'un microscope à force atomique dans la troisième partie de ce manuscrit.

Pour la réalisation de ces détecteurs optiques nous nous sommes intéressés à deux points : comment augmenter leur sensibilité et leur efficacité quantique ? Ces deux paramètres nécessitent de réduire la section des rubans, d'améliorer la régularité des bords et d'augmenter la section efficace du détecteur<sup>27</sup>. Grâce à la haute résolution de l'AFM, la lithographie par LAO permet de réaliser des lignes méandres plus étroites et plus denses que ne le permettent les meilleurs techniques de lithographie électronique<sup>28</sup>. Assurant une meilleure efficacité quantique des détecteurs, la technique de lithographie AFM est une alternative très prometteuse pour les détecteurs supraconducteurs à un photon. Nous montrons comment nous avons adapté cette technique aux films ultra minces supraconducteurs et comment nous l'avons améliorée pour réaliser des détecteurs supraconducteurs à un photon.

### Limite de la supraconductivité dans des films ultra-minces de niobium

*La supraconductivité est affaiblie dans des films dont l'épaisseur est comparable à la taille des paires de Cooper. Peut-on agir sur les mécanismes qui en sont responsables ?*

Nous présentons la caractérisation des propriétés structurales et supraconductrices de films ultra minces de niobium (Nb) en fonction de leur épaisseur et leur température de dépôt.



FIGURE 1 – Image AFM en topographie d'une piste de niobium de  $5\mu\text{m}$  de large et de  $10\text{nm}$  d'épaisseur. Les surfaces vicinales du saphir sont répliquées à la surface du niobium.

Nous évaporons les films de niobium sous ultra vide<sup>29</sup> avec une vitesse de  $0.2\text{\AA} \cdot \text{s}^{-1}$  sur des substrats de saphir chauffés à  $660^\circ\text{C}$ . Une couche mince de  $2\text{nm}$  d'épaisseur de silicium est ensuite déposée à froid. Elle protège le film d'une oxydation lors de son exposition à l'air. Nous varions l'épaisseur des films entre  $10\text{nm}$  et  $2\text{nm}$ , sachant que la longueur de cohérence du niobium massif est de l'ordre de  $5\text{nm}$ . Pour des films de  $10\text{nm}$  et  $3\text{nm}$  d'épaisseur, nous

27. surface remplie par le supraconducteur, ramenée à la surface totale du détecteur (zone morte comprise).

28. K. Rosfjord et al, Opt. Express **14**, 527 (2006)

29. La pression durant le dépôt est comprise entre  $2.10^{-10}$  et  $5.10^{-10}$  Torr

varions également la température de dépôt.

Notre étude en champ proche par microscopie à force atomique (AFM) montre que les surfaces vicinales des substrats de saphir sont répliquées lors du dépôt de niobium (fig.1). Les marches ont une hauteur de  $3\text{\AA}$ , leur largeur est typiquement de  $300\text{nm}$ . La largeur de ces marches varie de manière significative sur la taille d'un wafer. J'observe par endroit des largeurs de plusieurs microns. Ces marches sont en cours de reconstruction malgré le recuit des substrats d'une heure à  $1100^\circ\text{C}$ .

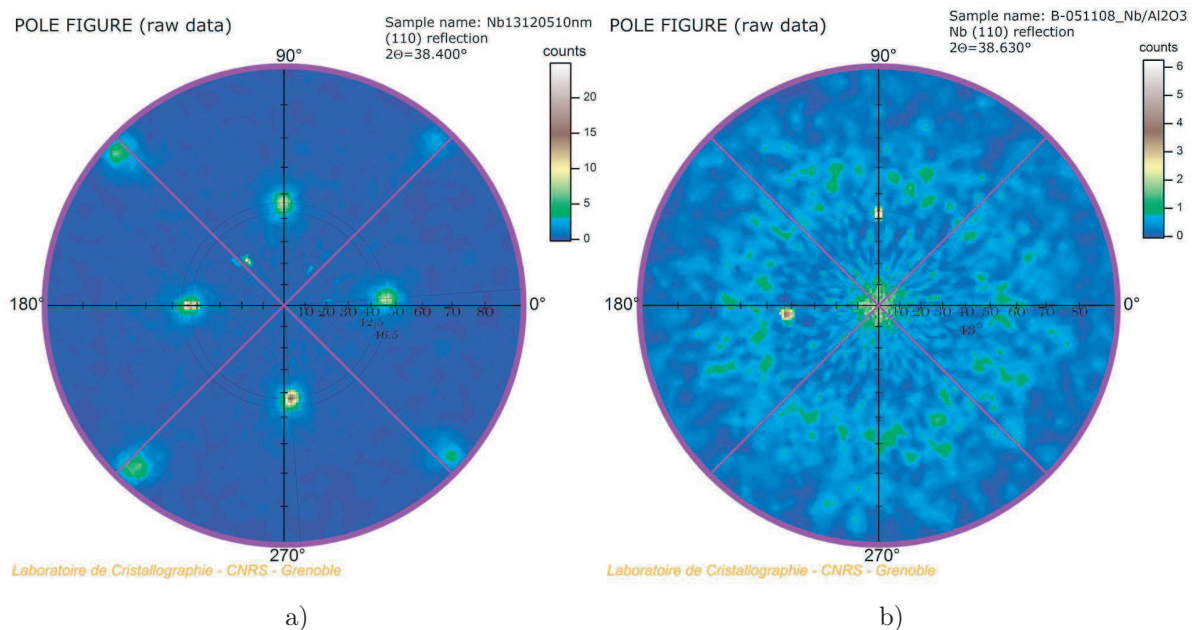


FIGURE 2 – Caractérisation de l'hétéro-épitaxie par diffraction X : Figures de pôle de deux films de niobium de  $10\text{nm}$  d'épaisseur, évaporés à  $590^\circ\text{C}$  (fig.a) et à  $550^\circ\text{C}$  (fig.b). L'axe vertical et horizontal correspondent à l'angle d'inclinaison ( $\chi$ ) par rapport à la surface du film. L'axe circulaire correspond à un angle de rotation ( $\varphi$ ) dans le plan. a) La figure montre la diffraction des plans  $(110)_{bcc}$  à  $\chi = 45^\circ$  par rapport à la surface. Le film est épitaxié. b) La figure montre un pic de diffraction à  $\chi = 0^\circ$  correspondant à la diffraction des plans  $(110)_{bcc}$  parallèles à la surface. La figure montre aussi une couronne de diffraction à  $\chi = 60^\circ$  correspondant aux plans  $(101)_{bcc}$ . Le film est polycristallin.

La qualité cristalline des films de niobium et de ses interfaces sont caractérisées par réflectivité et diffraction aux rayons X<sup>30</sup>. Pour ces faibles épaisseurs ( $10\text{nm}$ - $2\text{nm}$ ), les signaux de diffraction en incidence normale sont extrêmement faibles. Les mesures de réflectivité et de diffraction en incidence rasante permettent alors des mesures plus précises moyennées sur une surface plus grande.

Notre étude en fonction de la température de dépôt des films montre que les films de  $10\text{nm}$

30. Ces résultats sont obtenus en collaboration avec L.Ortega (Institut Néel, CRNS Grenoble)

d'épaisseur sont hétéro-épitaxiés jusqu'à 590°C (fig.3.10.a). A plus basse température, nous montrons que ces films sont polycristallins (fig.3.10.b). La caractérisation par microscopie électronique à transmission<sup>31</sup> le confirme. Notre étude en fonction de l'épaisseur des films montre que au delà de 4nm d'épaisseur les films sont hétéro-épitaxiés. Les plus minces, de 3.5nm et de 3nm d'épaisseur sont polycristallins. Ces films sont déposés à 660°C.

Nous déterminons la qualité des interfaces à partir des mesures de réflectivité. Entre le niobium et le saphir, la rugosité est de l'ordre de 0.13nm de part et d'autre. Elle correspond exactement à la hauteur des marches atomiques de sa surface vicinale. A l'interface entre le niobium et le silicium, la rugosité est plus importante, de l'ordre de 0.5nm de chaque côté.

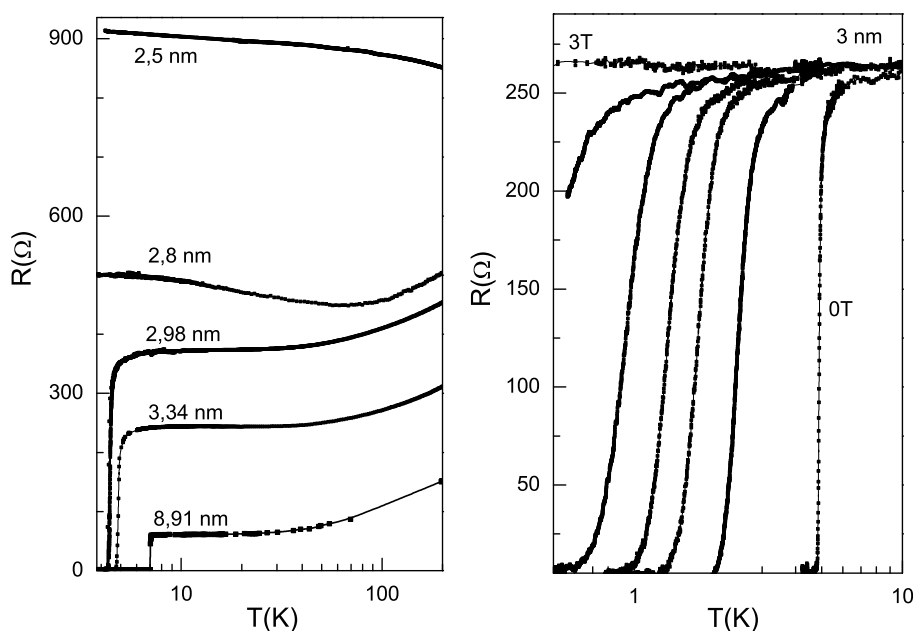


FIGURE 3 – Résistance par carré des films de niobium en fonction de la température. A gauche : pour diverses épaisseurs de niobium. De bas en haut, l'épaisseur des films est réduite de 10nm à 2nm. Une transition supraconducteur isolant a lieu sur une gamme d'épaisseur étroite comprise entre 3et 2nm. A droite : pour divers champs magnétiques appliqués perpendiculairement à un film de 3nm d'épaisseur. De droite à gauche le champ varie de 0 à 6 Tesla par pas de 1 Tesla. Une transition supraconducteur-métal a lieu sous un champ magnétique perpendiculaire. Côté supraconducteur, les films restent métalliques même sous fort champ magnétique.

31. Ces résultats sont obtenus en collaboration avec M.Baccia (Institut Néel, CRNS Grenoble)

Nous comparons nos résultats avec une mesure de spectroscopie locale réalisée<sup>32</sup> sur les films de niobium. L'étude de spectroscopie locale révèle la présence de lacunes à la surface des films hétéro-épitaxiés. Leur profondeur est de 0.5nm. Les terrasses de niobium ne sont pas plates à l'échelle atomique.

Les propriétés supraconductrices des films de niobium sont caractérisées par des mesures de transport électronique en '4 fils'. A basse température, nous mettons en évidence qu'une transition supraconducteur-isolant (TSI) en fonction de l'épaisseur du film a lieu sur une gamme d'épaisseur très étroite ( $<5\text{\AA}$ ). La transition supraconducteur-isolant en épaisseur a lieu entre 3nm et 2nm pour des films évaporés à 660°C (fig.3.gauche). Du côté supraconducteur de la transition, le libre parcours moyen est de l'ordre de 0.4nm. Les films sont fortement diffusifs. Nous mettons en évidence une transition supraconducteur-normal sous un champ magnétique perpendiculaire(fig.3.droite). Ces films proche de la transition (3nm d'épaisseur) restent de bons métaux même sous forts champs (6Tesla). Aucune transition supraconductrice n'est observée aux plus basses températures ( $T > 40\text{mK}$ ) pour les films de 3nm évaporés à 590°C. Leur comportement à basse température s'éloigne de celui décrit par le modèle de Drüde : leur résistivité augmente avec une diminution de la température. A 1K leur magnétorésistance est positive.

### Limite du transport dans un nanofil supraconducteur

*Les mesures de transport dans des films traduisent un effet d'ensemble où les fluctuations du condensat sont moyennées dans le plan. Quelles sont leurs influences sur les propriétés de transport d'un nanofil supraconducteur inhomogène tel que le nitrure de niobium ?*

Nous présentons les propriétés de transport de nanofil de nitrure de niobium réalisés par une oxydation anodique locale (LAO) sur des films ultra minces de nitrure de niobium. Les nanofils ont une géométrie en ligne méandre. Ils sont obtenus par un procédé lithographique négatif réalisant un motif d'oxyde isolant. Il est analogue à deux peignes interdigités. L'épaisseur des fils, comprise entre 4nm et 8nm, est de l'ordre de la longueur de cohérence supraconductrice. Leur largeur est comprise entre 140nm et 200nm, la longueur développée des méandres est l'ordre de  $40\mu\text{m}$ . Ils s'apparentent ainsi à des nano-nanofils.

L'étude en température montre que la résistivité des nanofils augmente avant la transition supraconductrice, ce qui est une caractéristique des supraconducteurs inhomogènes. La largeur de la transition s'élargit avec une réduction de celle des nanofils. Ce qui est cohérent avec une réduction des dimensions du système. La présence des bords se fait sentir. Une traînée résistive apparaît sous la température de transition supraconductrice, ce qui est caractéristique

---

<sup>32</sup>. Résultat obtenu par H.Courtois et al sur un film de niobium de 5nm (Institut Néel, CRNS Grenoble [1]). Nous montrons que ce film est hétéro-épitaxié.



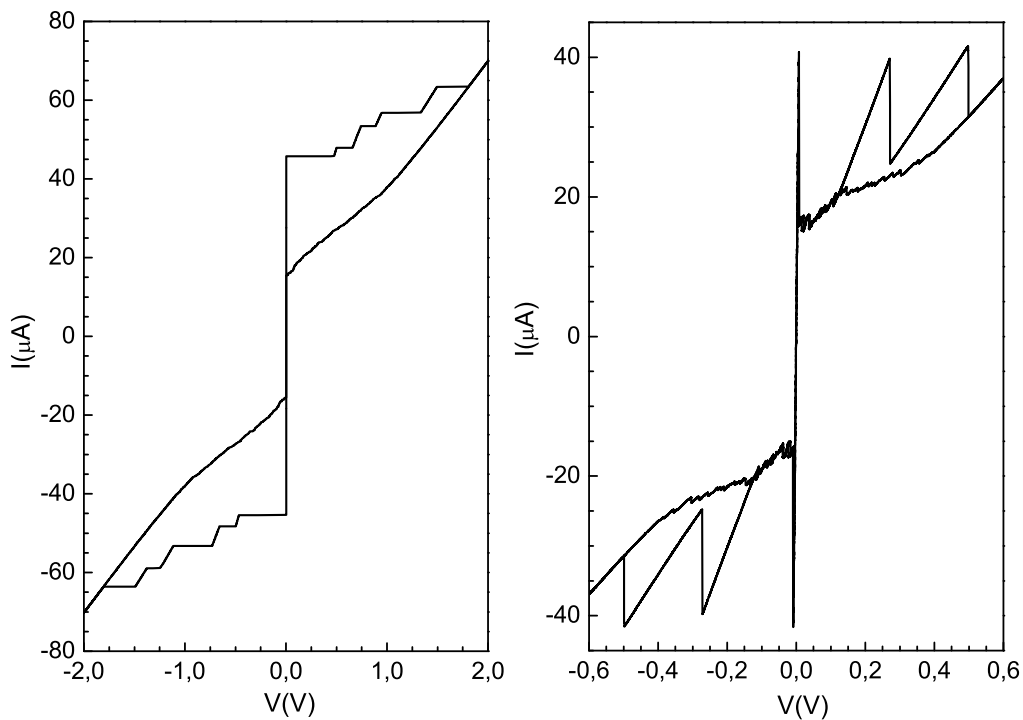


FIGURE 4 – Caractéristique  $I(V)$  d'un nanofil réalisé par oxydation anodique locale. Le dispositif est polarisé en courant (gauche) et en tension (droite). A gauche : la figure met en évidence la formation d'une barrière résistive dont la résistance correspond à une fraction de la résistance carré. Nous l'interprétons à l'aide du modèle des centres de glissement de phase. A droite : la figure met en évidence les transitions successives des lignes en série du méandre (dents de scie) et le plateau de point chaud en polarisation tension (droite).

d'un système granulaire.

La largeur de la transition augmente avec le courant de polarisation. Des sauts de résistivité de plus en plus nombreux apparaissent au niveau de la transition. Leur amplitude est de quelques  $k\Omega$ , tandis que la résistance par carré des nanofils au dessus de la transition est comprise entre  $350\Omega$  et  $500\Omega$ . Ces sauts de tension assistés en courant sont comparés avec la création de paire de vortex et d'antivortex assisté en courant, au dessus de la température de transition de Kosterlitz Thouless<sup>33, 34</sup>.

Les caractéristiques IV des nanofils polarisés en courant et en tension montrent les transi-

33. B.I.Halperin and D.R.Nelson, *J. Low Temp. Phys.* **36**, 599 (1979)

34. J.E.Mooij, *Percolation, Localization and superconductivity*, NATO ASI series, plenum, New York, p.325 (1984)

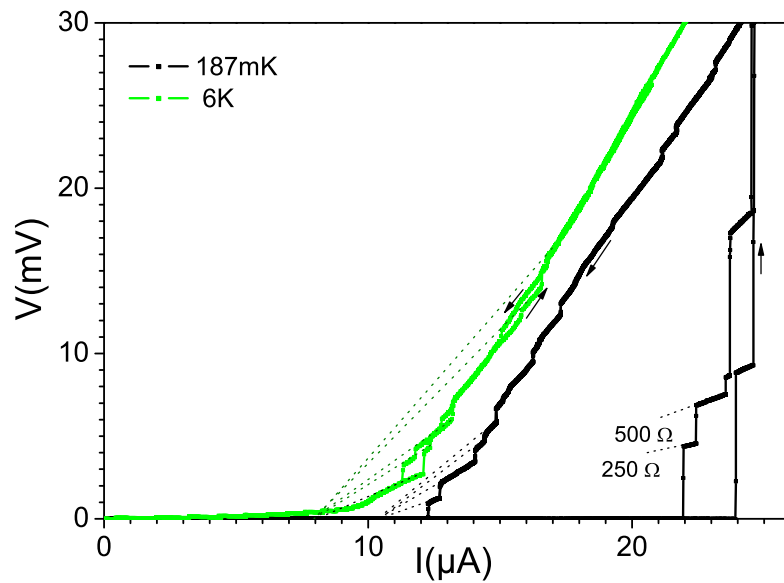


FIGURE 5 – Caractéristique  $I(V)$  pour diverses températures ( $T \sim T_c$  et  $T \ll T_c$ ) d'un nanofil supraconducteur réalisé par AFM, polarisé en courant. La figure traduit la formation de lignes de glissement de phase à haute température et leur instabilité aux plus basses températures.

tions successives de chaque "bras" de la ligne méandre (fig.4.2(droite)). Ces transitions sont caractérisées respectivement par des dents de scie avec une polarisation en tension des nanofils.

Pour un courant juste supérieur au courant critique, nous mesurons des sauts en tension de plus faibles amplitudes dans les caractéristiques IV des nanofils polarisés en courant (fig.4.2(gauche)). Ces sauts ne correspondent pas à la transition d'un bras du méandre mais à la formation d'une étroite barrière résistive sur la largeur du nanofil, avec une amplitude de l'ordre d'une fraction de la résistance par carré. Ces zones dissipatives sont associées à des lignes de glissement de phase.

La dépendance en température des caractéristiques IV (fig.3.4) me permet de discriminer deux régimes : un régime proche de la température critique où les lignes de glissement de phase sont stables et un régime à plus basses températures où les lignes de glissement de phase sont instables et s'étalent en point chaud. Ce régime est caractérisé par un plateau de courant constant alors que l'on augmente la tension appliquée aux bornes du nanofil. Il traduit l'étalement progressif du point chaud et de sa résistance associée (fig.4.2 droite).

## Les détecteurs supraconducteurs à un photon

*Les photons incidents sur un supraconducteur sont fortement réfléchis en raison de sa faible impédance. Un film ultra-mince de nitrure de niobium est fortement transparent dans le visible. Quels sont les mécanismes responsables de l'absorption d'un photon par un ruban ultra mince supraconducteur ?*

Contrairement aux détecteurs semiconducteurs, les détecteurs supraconducteurs à un photon (SSPD) permettent de discriminer le nombre de photons incidents. Les SSPD sont des compteurs de photon. Ils sont utiles à l'implémentation de la cryptographie et l'information quantique<sup>35, 36</sup>.

Je présente la caractérisation optique des détecteurs quantiques supraconducteurs réalisés par une oxydation anodique locale (LAO) sur des films ultra minces de nitrure de niobium.

Les détecteurs sont des rubans de nitrure de niobium dont la géométrie est analogue à celle de lignes méandres de NbN. Leurs propriétés supraconductrices sont étudiées en détail sans source d'irradiation dans la deuxième partie de ce manuscrit. Nous venons de les résumer dans la partie précédente. La réponse photoinduite des détecteurs face à des impulsions lumineuses est mesurée en continue par une méthode de détection synchrone. Leur caractérisation optique effectuée en mode de comptage de photon permet de résoudre dans le temps leur réponse photoinduite. Les sources lumineuses utilisées couvrent une gamme de longueur d'onde allant de l'ultra-violet (400nm) à l'infrarouge proche (850nm). Nous présentons la réponse en tension des détecteurs polarisés par un courant proche du courant critique.

Notre caractérisation des lignes méandres en mode comptage de photon<sup>37</sup> montre que la réponse des détecteurs face à des impulsions lumineuses correspond à des pulses de tension discrets (fig.7). L'amplitude du pulse est de  $V_{pulse} = 100\mu V$  et sa durée est de  $\tau_{pulse} = 2.5ns$ . La résolution des impulsions est limitée par l'électronique de mesure.

Nous comptons le nombre d'occurrence de ces impulsions en fonction du courant de polarisation et de la longueur d'onde des photons incidents. La dépendance en courant du taux de répétition du détecteur est exponentielle, proche du courant critique. La dépendance en longueur d'onde montre que le détecteur sature plus rapidement dans l'infrarouge.

Dans le régime où le nombre de photons par impulsion lumineuse est inférieur à 1, la probabilité d'absorber n photons sur m photons incidents est donnée par la probabilité de Poisson :

35. N.Gisin et al, Rev. Mod. Phys **74**, 145 (2002)

36. C.H.Bennett and G.Brassard and A.K.Ekert, Sc. Am. **267**, 50 (1992)

37. Nous avons obtenu ces résultats avec M.Tarkhov (Doctorant dans l'équipe de G.Goltsman) durant une semaine intense, lors d'un séjour passé à Moscou (Noël 2006).

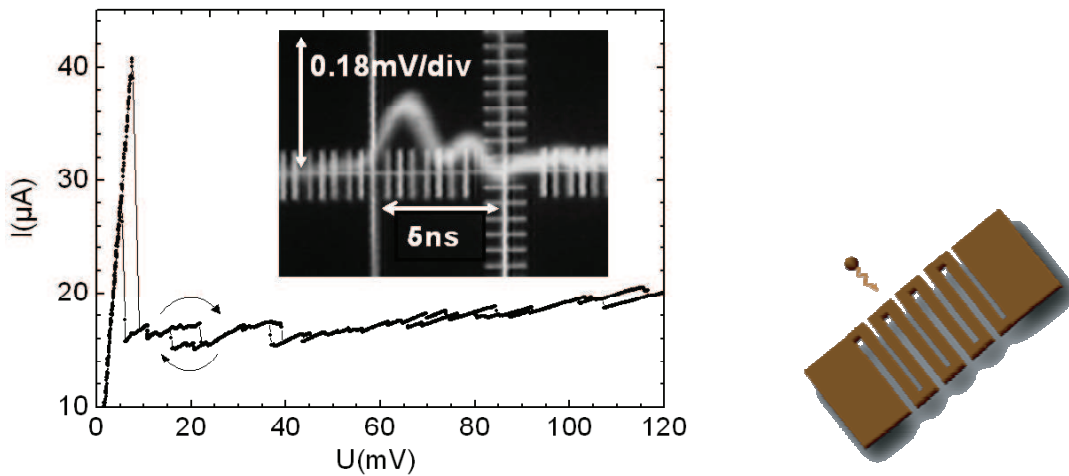


FIGURE 6 – La caractéristique IV du détecteur, polarisé en tension, met en évidence le plateau caractérisant le régime de point chaud. La figure montre un oscillogramme d'un pulse de tension mesuré aux bornes d'un SSPD nanostructuré par AFM. Il est irradié par une impulsion lumineuse dans l'infrarouge (représenté schématiquement à droite). Le détecteur est polarisé en courant proche de son courant critique. La mesure est obtenue dans le montage à hautes fréquences correspondant aux mesures de comptage de photons.

$P(n) = m^n/n$ . A partir du nombre d'impulsions de tension, compté en fonction de l'atténuation des diodes, nous mesurons la sensibilité des lignes méandres. Nous montrons que les détecteurs sont sensibles au photon unique dans le visible et qu'ils sont sensibles à deux photons dans le proche infrarouge (fig.7).

J'ai mesuré la tension photoinduite des détecteurs supraconducteurs à un photon (SSPD) par une méthode de détection synchrone. La détection synchrone est verrouillée à la fréquence des impulsions lumineuses ( $f_0$ ). Cette technique fut proposée par M. W. Johnson<sup>38</sup> en 1996, elle reste pourtant marginale dans la communauté des détecteurs supraconducteurs à un photon.

Je présente la dépendance courant de la tension photoinduite pour les trois sources lumineuses et pour diverses températures et fréquences de mesure.

La dépendance en température montre que la sensibilité du détecteur diminue aux plus basses températures. Nous montrons que les résultats sont cohérents avec le modèle de création de paire de vortex-antivortex assisté en courant<sup>39</sup>. L'énergie de création d'une paire de vortex

38. M. W. Johnson, A. M. Herr and A. M. Kadin, J. Appl. Phys. **79**, 1996 (1996)

39. A. M. Kadin, Phys. Rev. Lett. **65**, 3193 (1990).

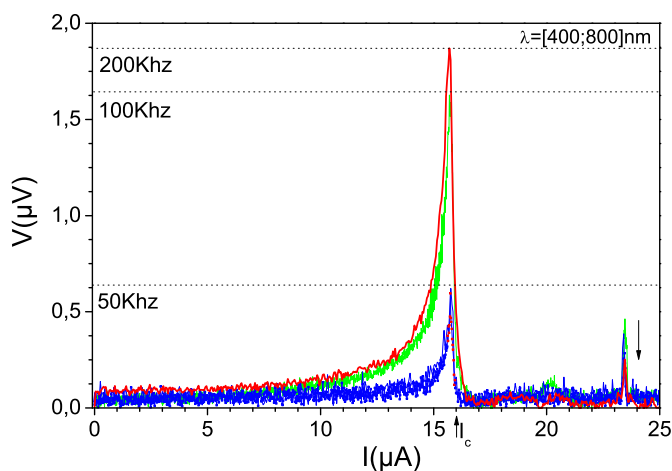


FIGURE 7 – Réponse photoinduite d'un SSPD nanostructuré par AFM. Le détecteur est irradié par une impulsion lumineuse dans le visible. Sa sensibilité est maximale lorsqu'il est polarisé proche de son courant critique mesuré dans l'obscurité. La mesure est obtenue en mode de détection synchrone.

antivortex est plus importante et l'efficacité de détection est réduite.

La dépendance en fréquence montre que la tension photoinduite augmente avec la fréquence des impulsions lumineuses sous le courant critique (fig.7). Au contraire, le signal diminue au dessus du courant critique. Les pics de tension apparaissent au niveau des instabilités observées dans les caractéristiques IV des rubans. Dans cette gamme de courant, un seul "bras" du méandre a transité. Il est dans un état mixte où coexistent des zones normales et supraconductrices.

### Lithographie par microscopie à sonde locale

Pour la réalisation de ces détecteurs nous nous sommes intéressés à deux points : comment augmenter leur sensibilité et leur efficacité quantique ? Une des solutions est de réduire la section des rubans, d'améliorer la régularité des bords et d'augmenter la surface remplie par le supraconducteur.

Pour fabriquer les lignes méandres denses, étroites et longues, mon travail a contribué au développement de la technique d'oxydation anodique locale en mode contact-intermittent. Je présente nos dispositifs réalisés et la résolution atteinte sur des films de nitrure de niobium et de niobium.

Dans le mode intermittent la pointe AFM oscille à une fréquence imposée proche de sa fréquence de résonance. En bout de course, elle vient en contact de la surface. La régulation est

effectuée à amplitude constante. J'ai utilisé l'AFM dans un mode de fonctionnement intermédiaire "contact-intermittent". La pointe oscille mais à une amplitude réduite par rapport au mode d'imagerie, de sorte qu'un ménisque d'eau puisse se former entre la pointe et la surface. Sa vitesse de balayage pour la lithographie est aussi diminuée par rapport à la vitesse d'imagerie, qui est de l'ordre de  $v = 0.1 \mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

L'endurance des pointes est augmentée, ce qui permet de réaliser un masque d'oxyde plus long et plus fin que les motifs utilisés habituellement par les groupes travaillant avec cette technique de lithographie. Cette étape m'a permis de valider le challenge technologique de fabrication des rubans supraconducteurs longs (plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ ), étroits (100nm) et denses (80%) (fig.2.3).

Ces dispositifs présentent un taux de remplissage des plus élevé. Je les ai réalisés sur des films de 4nm d'épaisseur de NbN dont la qualité de surface était excellente. Ces films sont déposés au CEA de Grenoble par JC.Villégier (DRFMC).

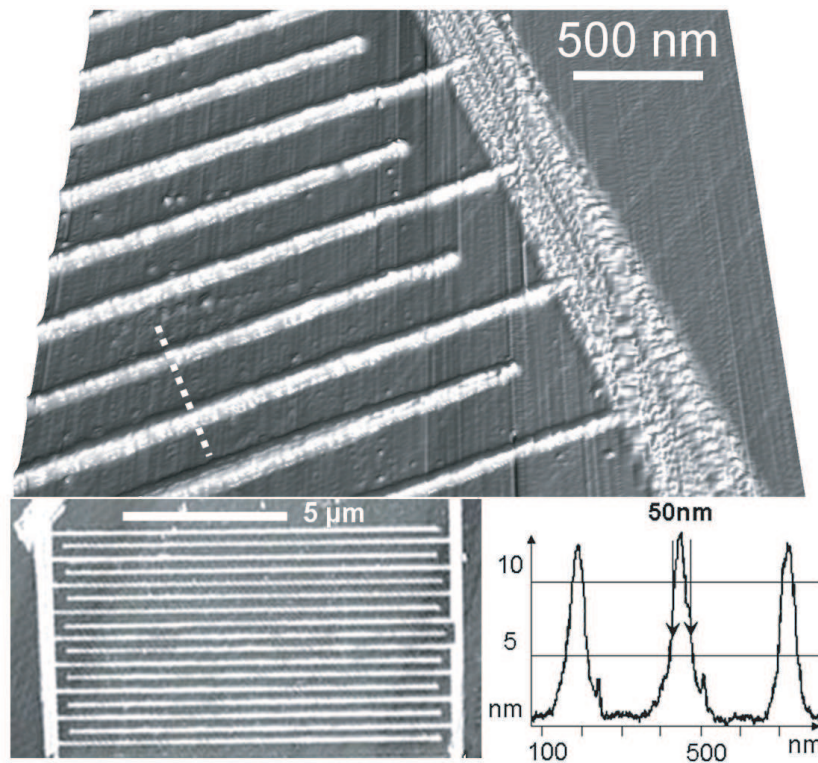


FIGURE 8 – Image AFM d'un ruban de nitrure de niobium réalisé par lithographie AFM en mode intermittent, sur un film de nitrure de niobium de 4nm d'épaisseur. La largeur du fil est de 150nm. La longueur développée est de l'ordre de  $160 \mu\text{m}$ . La largeur des lignes d'oxyde de nitrure de niobium est de 50nm de large. La qualité de la surface du détecteur reste excellente après la lithographie AFM.



# Table des matières

<b>I</b>	<b>Limite de la supraconductivité dans des films ultra-minces</b>	<b>27</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>31</b>
<b>2</b>	<b>Épitaxie de films ultra-minces de niobium</b>	<b>33</b>
2.1	Le choix et la préparation des substrats . . . . .	33
2.1.1	Relations d'épitaxie entre le niobium et le saphir . . . . .	33
2.1.2	Accord de maille entre le niobium et le saphir . . . . .	33
2.1.3	Optimisation de l'état de surface du substrat . . . . .	35
2.2	Dépôt des films ultra-minces de niobium . . . . .	37
2.2.1	La technique de dépôt UHV . . . . .	37
2.2.2	Les conditions d'évaporation des films de niobium . . . . .	38
2.3	Caractérisation des films par microscopie en champ proche . . . . .	39
<b>3</b>	<b>Caractérisation par réflectivité et diffraction aux rayons X</b>	<b>43</b>
3.1	Description des méthodes . . . . .	43
3.1.1	Analyse de texture cristallographique par diffraction . . . . .	43
3.1.2	Réflectivité des rayons X . . . . .	45
3.1.3	Diffraction des rayons X en incidence rasante . . . . .	46
3.2	Résultats . . . . .	48
3.2.1	La texture des films de niobium . . . . .	48
3.2.2	Qualités des interfaces . . . . .	48
3.2.3	Hétéro-épitaxie des films de niobium ( $d \geq 4nm$ ) . . . . .	51
3.2.4	Le cas des films les plus minces ( $d < 4nm$ ) . . . . .	53
3.2.5	Influence de la température de dépôt . . . . .	55
<b>4</b>	<b>Propriétés électroniques des films à basse température</b>	<b>59</b>
4.1	Transition S-I en épaisseur . . . . .	59
4.2	Transition S-M sous champ magnétique . . . . .	61
4.3	Magnétorésistance des films . . . . .	63
4.4	Influence des grains sur les propriétés supraconductrices . . . . .	64



4.5	Influence des interfaces sur les propriétés supraconductrices des films . . . . .	65
4.6	Influence des procédés humides . . . . .	67
<b>5</b>	<b>Interprétation de la perte de la supraconductivité</b>	<b>69</b>
5.1	Effet du désordre . . . . .	69
5.1.1	Désordre et interférences du côté résistif de la TSI . . . . .	69
5.1.2	Désordre et supraconductivité . . . . .	71
5.2	Effet de proximité . . . . .	76
5.3	Des perturbations de type "pair breaking" . . . . .	78
5.4	Transition de phase quantique . . . . .	80
<b>6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>83</b>
<b>II</b>	<b>Limite du transport dans un nanofil supraconducteur</b>	<b>85</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>87</b>
1.1	Le contexte . . . . .	87
1.2	Les régimes dissipatifs . . . . .	89
1.2.1	Le régime de Flux-Flow . . . . .	89
1.2.2	Les glissements de phase . . . . .	90
1.2.3	Régime de point chaud . . . . .	90
<b>2</b>	<b>Le régime de Flux-Flow</b>	<b>93</b>
2.1	Les modèles . . . . .	93
2.1.1	Description de la transition de Kosterlitz Thouless . . . . .	93
2.1.2	Description du régime de Flux Flow linéaire . . . . .	95
2.2	Résistance résiduelle des rubans de NbN . . . . .	95
2.2.1	Mesure de la résistance résiduelle dans nos circuits . . . . .	95
2.2.2	Estimation de la taille d'une PVAV dans nos rubans de NbN . . . . .	97
2.2.3	Influence d'une polarisation en courant proche de $I_c$ . . . . .	97
<b>3</b>	<b>Les glissements de phase</b>	<b>99</b>
3.1	Le modèle 1D . . . . .	99
3.1.1	Le modèle de Skocpol, Beasley et Tinkham . . . . .	100
3.1.2	Le cas des rubans supraconducteurs . . . . .	102
3.2	Glissement de phase dans nos nanofils de NbN . . . . .	102
3.2.1	Signatures dans les caractéristiques $I(V)$ . . . . .	102
3.2.2	Dépendance en température . . . . .	104
3.2.3	Effet d'un champ magnétique . . . . .	105
3.3	Discussion . . . . .	106

3.3.1	Interaction de phase slip center . . . . .	106
3.3.2	Les courants critiques mesurés . . . . .	107
<b>4</b>	<b>Régime de point chaud</b>	<b>109</b>
4.1	Le modèle de point chaud . . . . .	109
4.2	Mesure du plateau de point chaud . . . . .	110
4.3	Interprétation . . . . .	112
4.3.1	Un diagramme de phase entre les PC et les PSL . . . . .	112
4.3.2	Stabilisation d'un PC en polarisation courant . . . . .	113
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>115</b>
<b>III</b>	<b>Détecteurs supraconducteurs à un photon</b>	<b>117</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>121</b>
1.1	Introduction . . . . .	121
1.2	État de l'art des détecteurs à un photon . . . . .	124
1.2.1	Les détecteurs semiconducteurs . . . . .	124
1.2.2	Chambre de vapeur d'atome . . . . .	126
1.2.3	Les détecteurs supraconducteurs . . . . .	126
1.2.4	Comparaison des paramètres relevant des détecteurs optiques . . . . .	128
1.3	Paramètres et propriétés caractéristiques des détecteurs à point chaud . . . . .	129
1.3.1	Sensibilité . . . . .	129
1.3.2	Bruit d'obscurité . . . . .	130
1.3.3	Jitter . . . . .	130
1.3.4	Taux de répétition maximal . . . . .	130
1.3.5	Efficacité quantique . . . . .	130
1.4	Apport de la lithographie AFM pour les détecteurs à point chaud . . . . .	131
1.4.1	Améliorer l'efficacité quantique des détecteurs . . . . .	131
1.4.2	Préserver la supraconductivité des nanofils . . . . .	133
1.4.3	Coupler le détecteur à un nano-émetteur . . . . .	133
1.5	Principe des détecteurs supraconducteurs à point chaud . . . . .	133
1.5.1	Mécanisme de formation d'un point chaud assisté en courant . . . . .	134
1.5.2	Mécanisme d'écrantage lors de l'absorption du photon . . . . .	135
1.5.3	Fluctuations thermiques et quantiques . . . . .	137
<b>2</b>	<b>Protocole expérimental</b>	<b>139</b>
2.1	Fabrication et géométrie du dispositif . . . . .	139
2.1.1	Les films ultra minces de NbN . . . . .	139
2.1.2	Micro fabrication des contacts . . . . .	141

2.2	Lithographie AFM des nanofils . . . . .	142
2.3	Protocole de mesure . . . . .	143
2.3.1	Caractérisation en mode comptage de photon . . . . .	144
2.3.2	Mesure en mode de détection continue . . . . .	146
<b>3</b>	<b>Caractérisation des détecteurs</b>	<b>149</b>
3.1	En mode de comptage de photon . . . . .	149
3.1.1	Résolution temporelle du détecteur . . . . .	149
3.1.2	Résolution spectrale du détecteur . . . . .	151
3.1.3	Sensibilité et efficacité quantiques des détecteurs . . . . .	152
3.2	En mode de détection synchrone . . . . .	154
3.2.1	Dépendance en courant, $I$ . . . . .	154
3.2.2	Dépendance en température, $T$ . . . . .	156
3.2.3	Dépendance avec la fréquence de mesure, $f_0$ . . . . .	158
3.2.4	Bruit d'obscurité des détecteurs . . . . .	160
3.3	Comparaison entre les deux modes de mesure . . . . .	162
3.3.1	Une mesure de bruit grenaille . . . . .	162
3.3.2	Estimation du nombre de photons détectés . . . . .	164
<b>4</b>	<b>Interprétation du mécanisme d'absorption photonique</b>	<b>167</b>
4.1	Détection quantique et bolométrique . . . . .	167
4.1.1	Comparaison avec un effet purement bolométrique . . . . .	167
4.1.2	L'effet 'photofluxonic' . . . . .	171
4.2	Contribution de l'inductance cinétique des fils . . . . .	172
4.3	L'absorbance d'un fil supraconducteur . . . . .	173
4.3.1	Cas d'un film métallique . . . . .	173
4.3.2	Cas d'un film supraconducteur . . . . .	174
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>177</b>
<b>IV</b>	<b>Techniques de lithographie par microscopie à sonde locale</b>	<b>179</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>181</b>
<b>2</b>	<b>Le microscope à force atomique</b>	<b>183</b>
2.1	Interaction pointe-surface . . . . .	183
2.2	Les forces d'interactions . . . . .	183
2.3	Imagerie en mode contact et non contact . . . . .	185
2.4	Les pointes AFM . . . . .	186

---

<b>3</b>	<b>Lithographie en champ proche</b>	<b>189</b>
3.1	Etat de l'art des techniques de lithographie en champ proche . . . . .	189
3.1.1	Lithographie optique . . . . .	189
3.1.2	Lithographie électronique . . . . .	190
3.1.3	Les microscopes à sonde locale . . . . .	191
3.2	Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM . . .	191
3.2.1	Présentation de la technique . . . . .	192
3.2.2	Principe de l'anodisation locale . . . . .	194
3.3	Anodisation en mode contact-intermittent . . . . .	198
3.3.1	Montage électrique . . . . .	198
3.3.2	Évolution du rapport d'aspect des lignes d'oxyde en fonction des paramètres d'oxydation . . . . .	199
<b>4</b>	<b>Application aux dispositifs supraconducteurs</b>	<b>205</b>
4.1	Film ultra minces de Nb et de NbN . . . . .	205
4.2	Nature de l'oxyde anodique . . . . .	206
4.3	Résistance d'un tracé d'oxyde . . . . .	206
4.4	Les dispositifs supraconducteurs . . . . .	207
4.4.1	Apport de la technique aux détecteurs quantiques . . . . .	208
4.4.2	Réalisation de SQUID sur des films ultra-mince de Nb . . . . .	208
4.4.3	Réalisation de détecteurs à un photon sur des films ultra-mince de NbN	209
4.4.4	Vers d'autre matériau : Application au Graphène . . . . .	211
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>213</b>
<b>A</b>	<b>Étude AFM des surfaces vicinales du saphir</b>	<b>217</b>
<b>B</b>	<b>Présentation technique des montages optiques</b>	<b>223</b>
<b>C</b>	<b>Publications</b>	<b>227</b>



Première partie

Limite de la supraconductivité dans  
des films ultra-minces



# Table des matières

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>31</b>
<b>2</b>	<b>Épitaxie de films ultra-minces de niobium</b>	<b>33</b>
2.1	Le choix et la préparation des substrats . . . . .	33
2.1.1	Relations d'épitaxie entre le niobium et le saphir . . . . .	33
2.1.2	Accord de maille entre le niobium et le saphir . . . . .	33
2.1.3	Optimisation de l'état de surface du substrat . . . . .	35
2.2	Dépôt des films ultra-minces de niobium . . . . .	37
2.2.1	La technique de dépôt UHV . . . . .	37
2.2.2	Les conditions d'évaporation des films de niobium . . . . .	38
2.3	Caractérisation des films par microscopie en champ proche . . . . .	39
<b>3</b>	<b>Caractérisation par réflectivité et diffraction aux rayons X</b>	<b>43</b>
3.1	Description des méthodes . . . . .	43
3.1.1	Analyse de texture cristallographique par diffraction . . . . .	43
3.1.2	Réflectivité des rayons X . . . . .	45
3.1.3	Diffraction des rayons X en incidence rasante . . . . .	46
3.2	Résultats . . . . .	48
3.2.1	La texture des films de niobium . . . . .	48
3.2.2	Qualités des interfaces . . . . .	48
3.2.3	Hétéro-épitaxie des films de niobium ( $d \geq 4nm$ ) . . . . .	51
3.2.4	Le cas des films les plus minces ( $d < 4nm$ ) . . . . .	53
3.2.5	Influence de la température de dépôt . . . . .	55
<b>4</b>	<b>Propriétés électroniques des films à basse température</b>	<b>59</b>
4.1	Transition S-I en épaisseur . . . . .	59



---

4.2	Transition S-M sous champ magnétique . . . . .	61
4.3	Magnétorésistance des films . . . . .	63
4.4	Influence des grains sur les propriétés supraconductrices . . . . .	64
4.5	Influence des interfaces sur les propriétés supraconductrices des films . . . . .	65
4.6	Influence des procédés humides . . . . .	67
<b>5</b>	<b>Interprétation de la perte de la supraconductivité</b>	<b>69</b>
5.1	Effet du désordre . . . . .	69
5.1.1	Désordre et interférences du côté résistif de la TSI . . . . .	69
5.1.2	Désordre et supraconductivité . . . . .	71
5.2	Effet de proximité . . . . .	76
5.3	Des perturbations de type "pair breaking" . . . . .	78
5.4	Transition de phase quantique . . . . .	80
<b>6</b>	<b>Conclusion</b>	<b>83</b>

---

# Chapitre 1

## Introduction

En 1989, Haviland et al [2] ont mis expérimentalement en évidence une transition supraconducteur isolant (TSI) dans des films minces de bismuth. Les propriétés électriques des films sont mesurées jusqu'aux basses températures durant leur croissance. La dépendance en épaisseur de la résistivité des films aux basses températures est présentée sur la figure 1.1.

De nombreux supraconducteurs ont été étudiés en couche mince. Néanmoins, à l'heure actuelle, aucun modèle ne s'impose pour expliquer la transition observée dans les supraconducteurs 2D. En particulier, le débat sur l'existence d'un état métallique intermédiaire dans les supraconducteurs homogènes n'est pas encore tranché.

La perte de l'état supraconducteur dans des films minces est étudiée en détail depuis longtemps et de nombreux supraconducteurs ont été étudiés en couche mince. Nous pouvons distinguer deux approches. L'une tend vers la description d'une transition du second ordre. Le gap supraconducteur s'affaiblit avec l'épaisseur des films et s'annule à la transition supraconducteur-isolant, ce sont les effets du désordre et les effets de proximité avec une couche métallique. La seconde approche est la description d'une transition du premier ordre. Le condensat n'est plus un état cohérent en phase, mais le gap supraconducteur reste non nul à la transition. Nous présenterons deux modèles, le modèle de Fisher et le modèle de Feigelman, Larkin et Skvortsov adaptés pour décrire la TSI d'un supraconducteur homogène (Nb) ou inhomogène (NbN).

Cette partie porte sur l'étude de la dépression et de la perte de la supraconductivité dans des films de niobium ultra minces (10nm à 2.5nm). Dans cette première partie nous présentons une étude des propriétés électriques et structurales des films de niobium ultra-minces. Elles sont menées en parallèle en fonction de l'épaisseur des films.

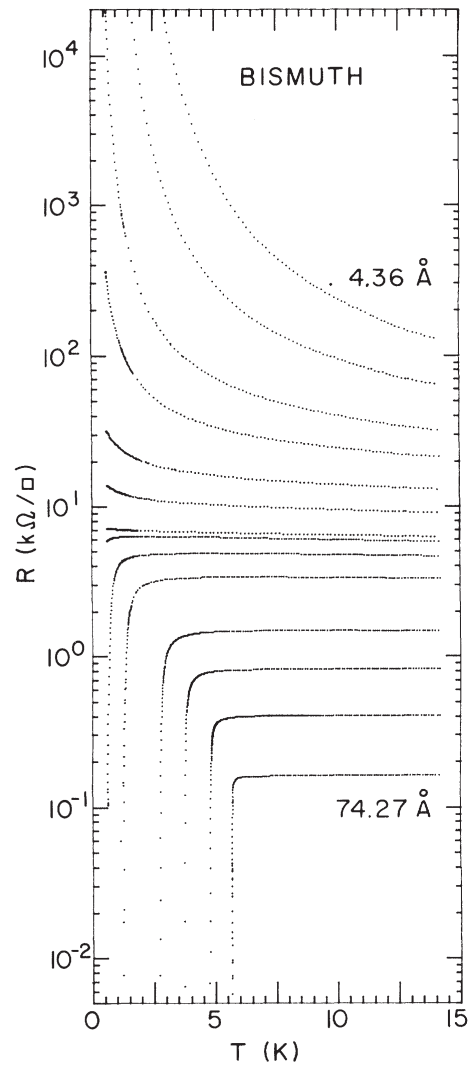


FIGURE 1.1 – Premières études expérimentales de la transition supraconducteur-isolant dans une couche mince. Résistance par carré en fonction de la température pour diverses épaisseurs d'un film de Bismuth. La figure montre une séparation à  $R_{\square} \sim \hbar/2e^2$ . L'épaisseur des films est variée de 74.27Å à 4.36Å. (Haviland et al [2])

## Chapitre 2

# Épitaxie de films ultra-minces de niobium

Dans ce chapitre, nous montrons en quoi les substrats de saphir R-plan nous placent dans de bonnes conditions pour obtenir des films de Nb hétéro-épitaxiés et électriquement isolés, qui présentent une surface adaptée pour la réalisation de nano-dispositifs par lithographie AFM. Puis, nous présentons la méthode de dépôt des films ultra-minces de niobium. Elle est développée et améliorée depuis plusieurs années au laboratoire, en grande partie grâce à B.Pannetier, H.Courtois, T.Fournier et T.Crozes. Dans ce chapitre nous présentons aussi la caractérisation en champ proche des films, à l'aide de la microscopie à force atomique et à effet tunnel.

### 2.1 Le choix et la préparation des substrats

#### 2.1.1 Relations d'épitaxie entre le niobium et le saphir

Il existe une relation tridimensionnelle d'épitaxie entre la structure rhomboédrique du saphir, communément représentée dans la maille hexagonale  $Al_2O_3|_{hexa}$ , et la structure cubique du niobium  $Nb|_{bcc}$  [3] [4]. En fonction de l'angle de découpe des substrats de saphir, l'expérimentateur sélectionne les plans du niobium qui seront parallèles à la surface. Cette relation tridimensionnelle est représentée schématiquement sur la figure 2.1. La surface du saphir nommée R-plan est la surface que nous avons choisie pour l'épitaxie de nos films. Elle correspond aux plans  $(1\bar{1}02)_{hexa}$ . Dans ce cas, les plans  $(100)_{bcc}$  du niobium sont parallèles à la surface avec  $(100)_{bcc} // (1\bar{1}02)_{hexa}$  (fig.2.1-2ème schéma).

#### 2.1.2 Accord de maille entre le niobium et le saphir

Il est souvent plus commode de représenter le saphir dans la maille hexagonale. Cependant pour un dépôt sur des substrats de saphir R-plan, il est nécessaire de la représenter dans sa

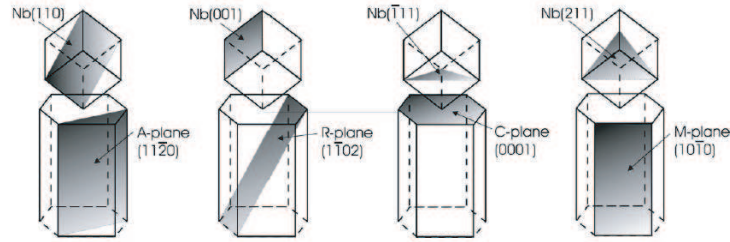


FIGURE 2.1 – Relations d'épitaxie du Nb sur saphir,  $Al_2O_3$ . La figure montre l'orientation attendue des films de Nb hétéro-épitaxiés, en fonction de la surface des substrats de saphir. Ces orientations sont définies pour satisfaire la relation d'épitaxie entre la maille cubique du Nb et la maille rhomboédrique du saphir, communément représentée dans le réseau hexagonal. Les axes  $\vec{c}$  des deux réseaux sont parallèles quelque soit l'orientation de départ du saphir. Reproduit d'après Wildes et al [3].

maille rhomboédrique du  $R - Al_2O_3$  pour visualiser le désaccord de maille entre le niobium et le saphir.

Alors que le réseau hexagonal compact du saphir est très proche des paramètres de maille de celui du réseau cubique centré du  $Nb_{b.c.c.}$  ( $a=3.3\text{\AA}$ ), le réseau rhomboédrique  $Al_2O_3|_{rhomb}$ , ( $\alpha = 85.7^\circ$ ,  $a=3.5\text{\AA}$ ) est légèrement plus grand et présente un angle de distorsion, dont nous devons tenir compte pour l'étude structurale du Nb (fig.) [5][6][7][8]. Les axes  $\vec{c}$  des deux réseaux, parfaitement parallèles pour les autres orientations du saphir, seront ici désorientés de quelques degrés :  $((100)_{bcc}, (0001)_{hcp}) \sim 2-3^\circ$ .

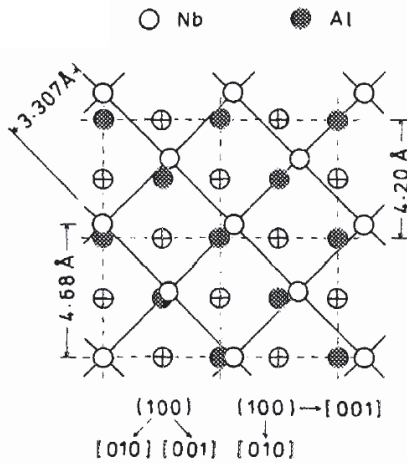


FIGURE 2.2 – Recouvrement des deux réseaux, cubique et rhomboédrique, du Nb (100) sur  $Al_2O_3(1\bar{1}02)$ . La figure montre le décalage entre les deux mailles. Reproduit d'après [9]

Les coefficients de dilatation thermique,  $\alpha$ , du saphir et du niobium sont également similaires, tels que  $\alpha_{Al_2O_3} = 7.3.10^{-6}\% \cdot K^{-1}$ ,  $8.3.10^{-6}\% \cdot K^{-1}$  et  $13.5.10^{-6}\% \cdot K^{-1}$ , respectivement pour les orientations R- $(1\bar{1}02)$ , C- $(0001)$  et A- $(11\bar{2}0)$  du saphir et  $\alpha_{Nb} = 7.2.10^{-6}\% \cdot K^{-1}$  pour le niobium. Le saphir R-plan a donc l'avantage de diminuer les risques de formation de

dislocations au cours des différents cycles thermiques que subissent les échantillons. D'autres substrats, qui permettent aussi l'hétéro-épitaxie du niobium comme le MgO par exemple ont des coefficients de dilatation thermique plus élevés  $\alpha_{MgO} = 13.5.10^{-6}\% .C^{-1}$ .

### 2.1.3 Optimisation de l'état de surface du substrat

#### Surfaces vicinales des saphirs R-plan

Pour réaliser des dispositifs quantiques supraconducteurs par lithographie AFM, la qualité de la surface des films est essentielle. Elle définit la rugosité du tracé d'oxyde isolant, son homogénéité et ainsi sa résolution (part.IV). Les surfaces vicinales du saphir se répliquent lors de l'évaporation du niobium et définissent la rugosité à la surface des films.

A l'aide de différents recuits, il est possible de reconstruire les surfaces vicinales des substrats de saphirs. La surface des saphirs orientés R-plan est constituée de marches de 0.3nm de hauteur et de terrasses (surfaces vicinales) 300nm de large. Cette orientation est choisie pour nos applications. D'une part, elle nous permet d'avoir une maille compacte du Nb et de diminuer le désordre (ségrégation de l'oxygène du saphir vers la surface, inter-diffusion à l'interface Nb-Si, adatome)[10]. D'autre part elle nous permet d'obtenir des surfaces très peu rugueuses larges et régulières.

La surface vicinale des saphirs A-plan présente de nombreuses marches dont la hauteur est certes constante mais dont la largeur est bien plus faible que celle des surfaces vicinales du R-plan. Les saphirs C-plan sont comparables aux R-plan. Cependant, leurs surfaces vicinales présentent une coalescence de marches multiples. Ces marches peuvent induire des dislocations importantes. Les substrats C-plans sont par contre de bons candidats pour mener des études STM, par exemple pour la mesure de la densité électronique locale sur un bord de marche [11].

En annexe, nous présentons une étude AFM de ces surfaces et de leur croissance suivant différentes conditions de recuit pour les trois orientations : C-plan (0001), A-plan (11 $\bar{2}$ 0) et R-plan(1 $\bar{1}$ 02). Un traitement thermique et chimique des substrats est adapté pour obtenir des surfaces prêtes pour l'épitaxie. Cette étude fut réalisée en partenariat avec la société RSA-Le rubis.

#### Nettoyage et recuit des wafers

Avant les dépôts les substrats subissent deux cycles de préparation. Le premier cycle est effectué en atmosphère ambiante. Le second cycle est réalisé sous vide dans l'enceinte de dépôt du niobium.

La première étape est un nettoyage dans une solution à base de surfactants (RBS) dans

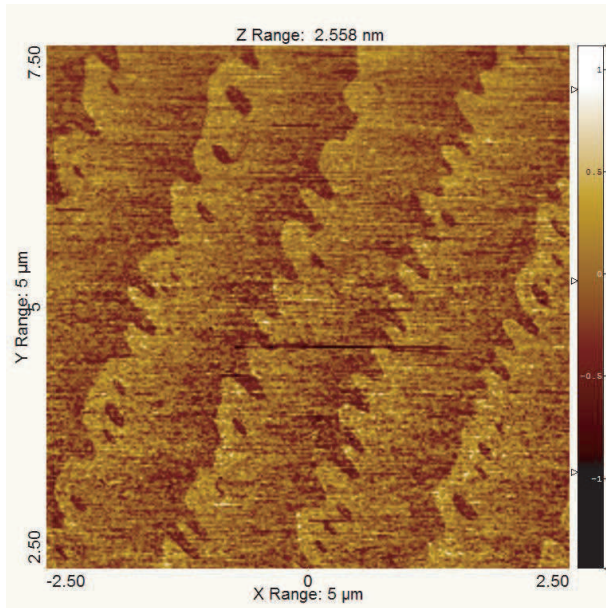


FIGURE 2.3 – Micrographie AFM des surfaces vicinales typiques (nettoyées) du saphir R-plan ( $1\bar{1}02$ ) avant le recuit.

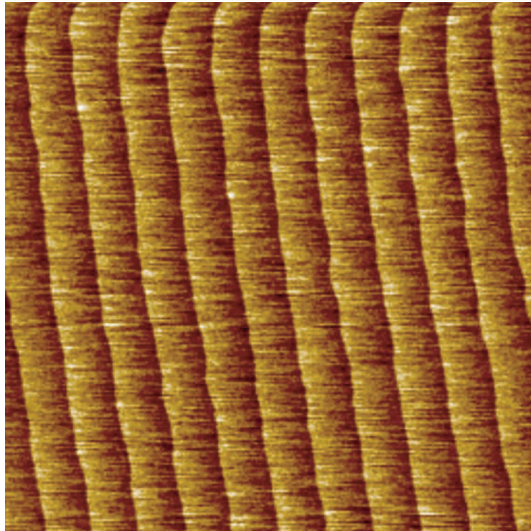


FIGURE 2.4 – Micrographie AFM des surfaces vicinales typiques du saphir R-plan ( $1\bar{1}02$ ). Après un recuit de 1h à  $1100^{\circ}\text{C}$  sous air les surfaces vicinales sont reconstruites. Les marches ont une hauteur de 0.3nm et les terrasses ont une largeur de 300nm.

un bain à ultra-son. La figure 2.4 montre la qualité de surface obtenue. Les wafers sont ensuite recuits 1h à  $100^{\circ}\text{C}$  sous air. La surface vicinale est reconstruite. Cette étape nous est nécessaire pour obtenir une faible rugosité sur les surfaces vicinales reconstruites. La figure 2.3 met en évidence l'importance des étapes de nettoyage des substrats pour obtenir des terrasses non rugueuses. Les adsorbats présents à la surface des wafers "bruts" ont une hauteur de 10nm. Ils pourraient correspondre à des résidus de silice colloïdale utilisée lors du polissage des wafers. Un recuit sans nettoyage induit leur diffusion dans le saphir et une rugosité importante des terrasses. Nous remarquons d'autre part, que l'angle de miscut n'est pas homogène sur la totalité du wafer de saphir. Nous avons obtenu la figure 2.5 à un point cardinal opposé à celle de la figure 2.4. Les surfaces vicinales sont anormalement larges et en cours de reconstruction après un recuit de 1h à  $1100^{\circ}\text{C}$

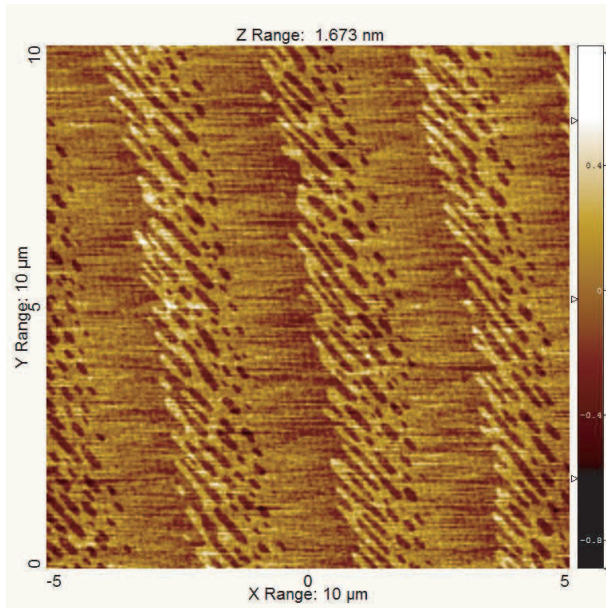


FIGURE 2.5 – Micrographie AFM de surfaces vicinales anormalement larges du saphir, après un recuit de 1h à 1100°C. Les surface vicinales ont une largeur supérieure 5µm et ne sont pas reconstruites. Elles peuvent conduire par endroit à des lacunes et augmenter la rugosité du film.

Nous effectuons la deuxième étape de préparation des substrats dans le bâti d'évaporation des films. Pour étuver et appauvrir en oxygène la surface du saphir, le wafer est chauffé à 661°C durant 24h sous ultra haut vide (UHV) dans la chambre de dépôt du Nb. Il est ensuite transféré dans la chambre de vide primaire et bombardé par un plasma d'ions Argon afin d'éliminer les hydrocarbures de surface. A nouveau transféré dans la chambre UHV, il est recuit avant le dépôt au dessus de 661°C. Cette étape permet de reconstruire la surface dégradée par le plasma argon et prévient la formation de liaison fortes  $Nb^{3+}-O^2$  à l'interface Nb- $Al_2O_3$  [12].

## 2.2 Dépôt des films ultra-minces de niobium

Nous choisissons les dépôts à chaud pour favoriser l'épitaxie et diminuer le désordre des films de Nb. La température de dépôt doit donc être suffisamment haute pour obtenir des films hétéro-épitaxiés et relaxer les contraintes [13] [14] [15], tout en limitant la ségrégation des ions  $O^{2-}$  du saphir dans le film de Nb [10].

### 2.2.1 La technique de dépôt UHV

Les films de Nb sont déposés sous ultra vide par évaporation sous faisceaux d'électron. Les dépôts sont effectués dans un bâti RIBER composé d'une enceinte ultra-vide et d'un sas. Une pression de base comprise entre  $2.10^{-10}$  et  $5.10^{-10}$  Torr est obtenue par une pompe ionique dans l'enceinte l'ultra-vide (fig.2.6). Le sas atteint un vide secondaire de  $5.10^{-8}$ Torr grâce à une pompe turbo moléculaire couplée à une pompe à membrane. Le bâti est pourvu d'un



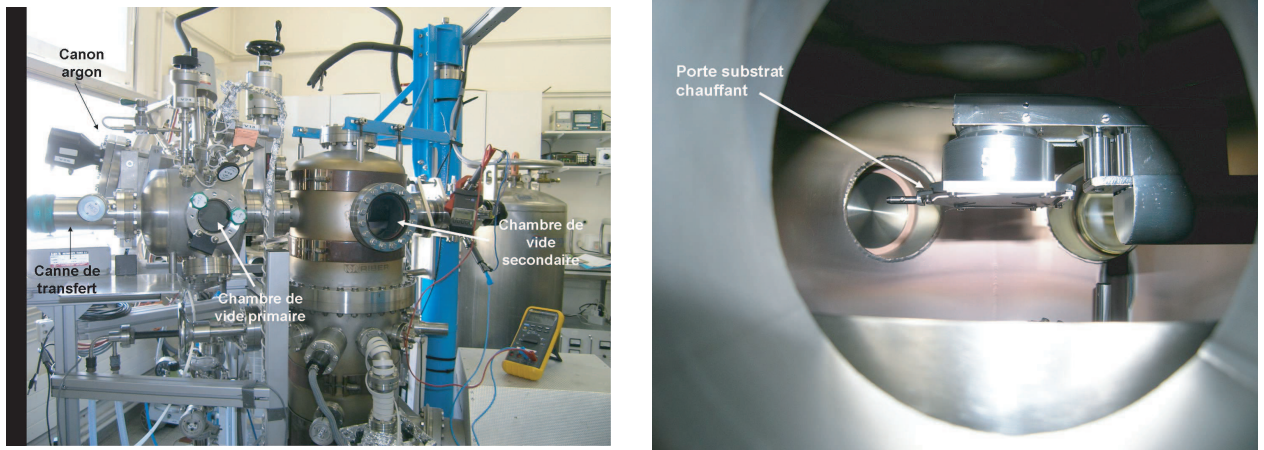


FIGURE 2.6 – A gauche : photographie du bâti d'évaporation des films de niobium. La pression de la première chambre est de l'ordre de  $1.10^{-7}$  lors de l'introduction de l'échantillon dans la chambre sous ultra-haut vide (UHV). La pression est comprise entre  $2.10^{-10}$  et  $5.10^{-10}$  Torr lors de l'évaporation du niobium. A droite : photographie du porte substrat chauffant prise du hublot de la chambre sous UHV.

porte substrat chauffant qui permet une évaporation jusqu'à  $1017^{\circ}C$ .

## 2.2.2 Les conditions d'évaporation des films de niobium

L'échantillon est placé sur un porte substrat chauffant permettant une régulation en température.

Avant le dépôt du niobium, l'ensemble du bâti est chauffé à la température d'évaporation des films ( $661^{\circ}C$ ) pour étuver les éléments qui ont été exposés à l'air : le porte substrat, le substrat et la cible de niobium.

Le niobium est déposé avec un taux d'évaporation compris entre  $0.5\text{\AA}$ , et  $0.2\text{\AA} \cdot s^{-1}$ , pour obtenir une croissance épitaxiée (fig.2.7) [9].

Durant le refroidissement du film, nous déposons une couche de passivation de Si, de 2nm d'épaisseur. La température de dépôt du silicium est inférieure à  $80K$ . Au delà, nous observons une inter-diffusion à l'interface Nb/Si qui induit une rugosité importante à la surface des films. Nous nous interrogerons sur la formation éventuelle d'un alliage métallique  $Nb_xSi_{1-x}$  dans la section 3.2.4. La vitesse d'évaporation des films est de  $2\text{\AA} \cdot s$ . L'épaisseur de silicium déposée est de 2nm.

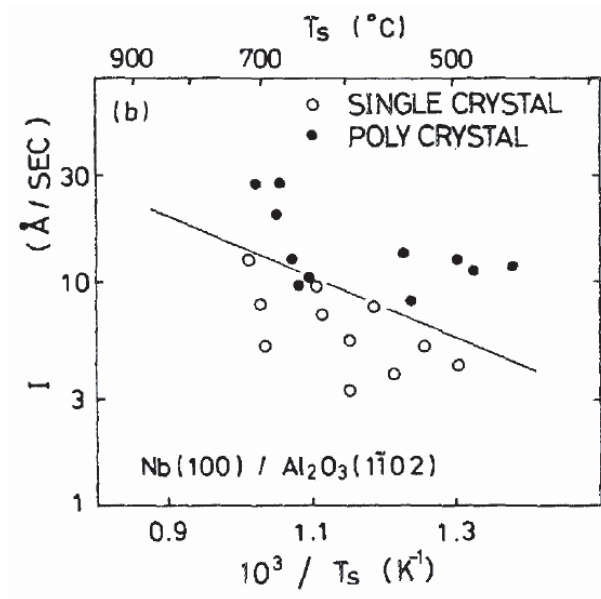


FIGURE 2.7 – Diagramme de phases vitesse-température pour le dépôt de niobium sur  $Al_2O_3$  R-plan. Ce graphique est déduit des conditions de croissance de plusieurs échantillons dont la cristallinité est mesurée en diffraction d'électrons. Un régime de croissance épitaxié est mis en évidence sous la droite d'activation thermique. Reproduit d'après [9].

## 2.3 Caractérisation des films par microscopie en champ proche

Les microscopes à sondes locales (AFM, STM) sont utilisés pour caractériser l'état de surface des films ultra minces de niobium.

### Étude topologique par microscopie à force atomique

La qualité du film est observée par microscopie à force atomique (AFM). Nous vérifions que les surfaces vicinales du substrat de saphir sont répliquées lors du dépôt des films de niobium, que la rugosité de sa surface est inférieure au seuil de bruit de l'AFM et que nous n'observons pas de lacune traduisant des terrasses anormalement larges (fig.).



FIGURE 2.8 – Image AFM en hauteur d'une piste de niobium de  $5\mu m$  de large et de  $10nm$  d'épaisseur. Les surfaces vicinales du saphir sont répliquées à la surface du niobium.

### Spectroscopie locale

Des études AFM combinée STM aux basses températures sont très utiles pour caractériser l'état de surface des films. Elles permettent d'observer des variations locales du gap supracon-

ducteur.

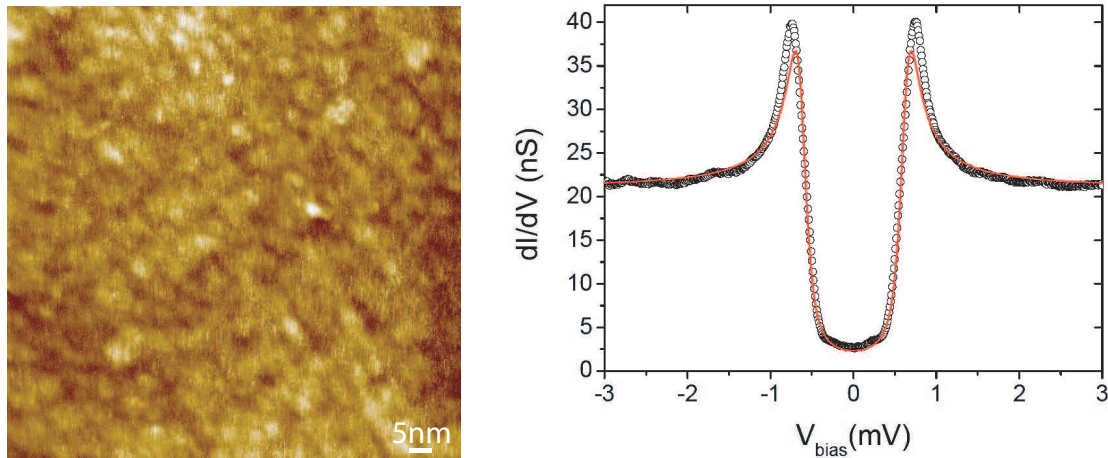


FIGURE 2.9 – Micrographie STM de la surface d’un film de niobium de 5nm d’épaisseur épitaxié sur du saphir R-plan dans les mêmes conditions que nos films. La figure révèle la présence de grains dont la dimension est de l’ordre de 5nm. Reproduit d’après [16]

Nous présentons une mesure de microscopie à effet tunnel effectuée par H. Courtois et al sur un film de 5nm d’épaisseur que nous avons caractérisée par diffraction au RX. Nous avons montré que cet échantillon est hétéro-épitaxie (fig. 3.7).

La figure 2.9 de gauche est une micrographie STM de la surface de ce film. Pour permettre la mesure d’une spectroscopie tunnel ce film n’est pas recouvert par une couche de silicium. L’image montre des irrégularités, lacunes, ad-atome, sphériques de l’ordre de 5nm de rayon.

La figure 2.9 de droite est une mesure de spectroscopie par effet tunnel du gap supraconducteur de la surface du film. La courbe rouge est une modélisation des données avec non pas un modèle BCS simple. Un paramètre supplémentaire est introduit, le paramètre de Dynes. Il traduit l’existence de niveau supplémentaire dans le gap supraconducteur Dynes [1].

L’apparition de grains peut s’expliquer par une oxydation à l’air durant le transfert entre le bâti d’évaporation et la mise à froid sous vide dans le microscope. Néanmoins, ce temps de transfert est court et nous pouvons également supposer de cette granularité reflète bien la texture du film.

La structure granulaire des films de niobium est un paramètre qui peut influencer les propriétés de transport des films de niobium, voir même la transition supraconducteur-isolant, nous en discuterons dans le dernier chapitre de cette partie (chap.5).

*Conclusion*

Les substrats de saphir R-plan, nous placent dans les meilleures conditions pour obtenir des films de Nb hétéro-épitaxiés, électriquement isolés. Ils présentent des terrasses régulières et très peu rugueuses pour la lithographie AFM. Un recuit de 1h à  $1100^{\circ}\text{C}$  permet de reconstruire la surface vicinale des wafers R-plan. Un nettoyage dans une solution à base de surfactants est nécessaire pour éliminer la silice colloïdale issue du polissage mécanique des substrats. L'évaporation des films de Nb est effectuée typiquement à  $661^{\circ}\text{C}$  à une vitesse d'évaporation de  $2\text{\AA} \cdot \text{s}^{-1}$ . Pour s'assurer de la qualité de l'interface Nb/Saphir nous contrôlons toutes les étapes de préparation des substrats par microscopie à force atomique.



## Chapitre 3

# Caractérisation par réflectivité et diffraction aux rayons X

Dans ce chapitre, nous présenterons les techniques et les résultats obtenus pour caractériser la structure sur tout le volume des films ultra minces. Cette étude est effectuée en fonction de l'épaisseur et de la température d'évaporation des films de niobium. Tout d'abord, nous présentons les méthodes de caractérisations utilisées et enfin les résultats obtenus.

### 3.1 Description des méthodes

#### 3.1.1 Analyse de texture cristallographique par diffraction

##### Descriptif général

La méthode générale d'analyse de texture porte sur la détermination de la répartition des orientations cristallographiques des cristallites d'un échantillon polycristallin. Les propriétés physiques des matériaux cristallins étant souvent anisotropes, leurs valeurs mesurées dépendent des orientations préférentielles des cristallites appelées texture. L'analyse de texture consiste à décrire statistiquement les orientations des repères de chaque cristallite par rapport à un référentiel macroscopique. Pour réaliser cette description il est nécessaire de mesurer des figures de pôles. Une figure de pôles est réalisée à un angle de Bragg  $\Theta_{hkl}$  donné c'est-à-dire pour un ensemble de plan (hkl) donné et dans une direction du vecteur de diffusion  $k$  fixe. Les mesures consistent à amener successivement en position de diffraction les plans (hkl) de toutes les cristallites (amener leurs normales en coïncidence avec  $k$ ). En pratique et dans la géométrie expérimentale que nous avons utilisée cela est réalisé par des rotations d'axes  $\varphi$  (normal à la surface de l'échantillon) et  $\chi$  (basculement) de l'échantillon en laissant  $\Theta_{hkl}$  invariant. On effectue une projection stéréographie pour représenter graphiquement le résultat des mesures. L'intensité diffractée est représentée par un code de couleur ou par des courbe de niveaux ou de lignes d'iso-intensités. L'analyse détaillée de plusieurs figures de pôles après

corrections et normalisation permet d'obtenir des informations quantitatives sur la texture par le calcul de la fonction de distribution des orientations des cristallites (FDOC ou ODF). La figure suivante montre différents types de texture cristallographique. Dans le cas de film épitaxié on s'attend à trouver des figure de type a. Cette méthode nous permet de déterminer précisément les relations d'épitaxie entre le substrat et la couche déposée.

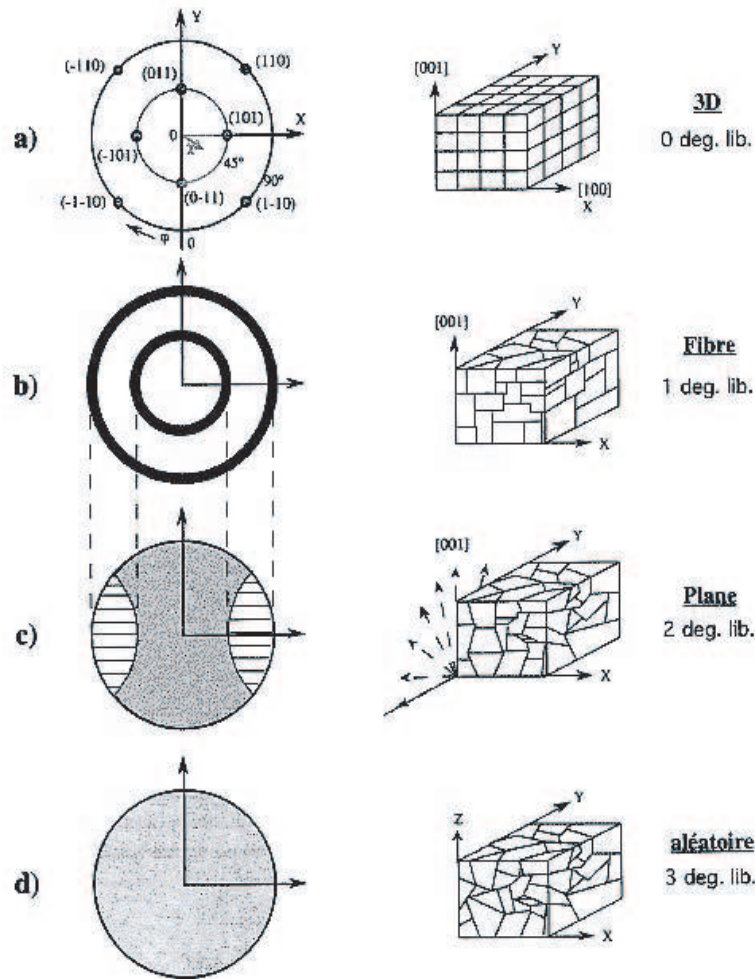


FIGURE 3.1 – Classification des différents types de texture : a) 3D type monocristal ou épitaxie, b) fibre, c) plane et d) aléatoire (type poudre) et figure de pôles (110) correspondantes pour un système cubique. Représentation imagée de l'empilement des cristallites dans l'échantillon. Figure issue de [17].

### Descriptif expérimental

Les mesures ont été effectuées sur un diffractomètre 4 axes de marque Seifert : un mouvement  $2\theta$  (détecteur) et  $\theta$  (échantillon) permettant de sélectionner une famille de plan (hkl) à  $\theta_{Bragg}$  et les mouvements  $\chi$  et  $\varphi$  de l'échantillon pour effectuer les mesures de la figure de pôles. La source de rayons X est issue d'un générateur pour tube scellé à anticathode de cuivre

(sortie ponctuelle) fonctionnant à 50kV et 40mA. La monochromatisation à  $\lambda_{K\langle\alpha\rangle}=1.5418\text{\AA}$  et la collimation du faisceau sont assurée par une optique multicouche 2D W/Si à gradient de période provenant de la société Xénocs. La taille du faisceau est de  $0.8h \times 2vmm^2$ . Un analyseur graphite couplé à un détecteur à scintillation NaI recueille l'intensité diffractée. Un premier alignement de la surface de l'échantillon est réalisé par une diode laser puis un alignement cristallographique sur les plans du saphir est réalisé par diffraction X en ajustant les berceaux de la tête goniométrique où se trouve l'échantillon. La précision obtenue est de l'ordre de  $0.02^\circ$ . Les collectes ont été réalisées en faisant varier  $\chi$  de 0 à  $90^\circ$  et  $\varphi$  de 0 à  $360^\circ$ . Le même montage a été utilisé pour mesurer la réflectivité des rayons X ainsi que les mesures  $\Theta-2\Theta$ , ces dernières n'ont pas donné de résultats sur les couches de Nb du fait de leur très faible épaisseur.

### 3.1.2 Réflectivité des rayons X

#### Définition de l'indice d'un matériau

L'indice d'un milieu rend compte de façon macroscopique de l'interaction onde-matière. Il correspond au rapport de la vitesse de l'onde dans le vide et dans le milieu. Dans le cas des rayons X, il est relié aux interactions photon-électron et est issu de la résolution de l'équation du mouvement des électrons liés à l'atome excité par une onde incidente de longueur d'onde (dipôle oscillant) loin des seuils d'absorption [18]. Il est défini par :

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (3.1)$$

avec,

$$\delta = \frac{e^2}{mc^2} \frac{\lambda^2 N(Z + \Delta f')}{2\pi} \quad (3.2)$$

et

$$\beta = \frac{e^2}{mc^2} \frac{\lambda^2 N(\Delta f'')}{2\pi} = \frac{\lambda\mu}{4\pi} \quad (3.3)$$

$e^2/mc^2$  est le rayon classique de l'électron,  $\lambda$  la longueur des rayons X,  $N$  le nombre d'atome par unité de volume,  $Z$  le nombre d'électron dans l'atome,  $\Delta f'$  et  $\Delta f''$  traduit la dispersion dans le milieu et dépend de la longueur d'onde incidente,  $\mu$  est l'absorption linéaire de l'onde dans le milieu.

La partie dispersive  $\delta$  et d'absorption  $\beta$  de l'indice sont très faibles pour les longueurs d'onde de l'ordre de l'angström de l'ordre de  $10^{-5}$  et  $10^{-7}$  respectivement et sont proportionnelles à la densité électronique du milieu en négligeant la partie de correction dispersive  $\Delta f'$ .

#### Principe de la mesure de réflectivité

Le principe consiste à mesurer le faisceau réfléchi spéculairement à la surface d'un échantillon en fonction de l'angle d'incidence. Dans le cas d'un empilement de couches à interfaces paral-



lèles on observe des phénomènes d'interférence qui se traduisent par des franges. La périodicité de ces franges est liée aux épaisseurs des différentes couches de l'échantillon. L'analyse est basée sur l'optique classique, loi de Snell-Descartes et équations de Fresnel. Aux niveaux des interfaces, on peut tenir compte de la rugosité en affectant les coefficients de réflexion et de transmission de Fresnel par un facteur correctif de type Debye-Waller ou autres. Ce paramètre de rugosité est représenté sur la figure suivante. L'analyse d'une courbe de réflectivité spé-

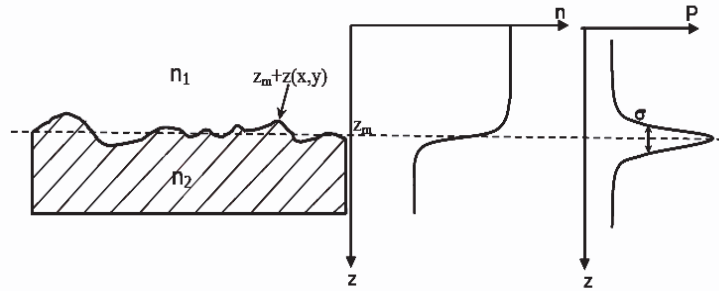


FIGURE 3.2 – Interface rugueuse entre deux milieux  $n_1$  et  $n_2$  à une profondeur  $z_m$  moyen avec une fluctuation  $z(x,y)$ . Le graphe  $n(z)$  montre la variation de la partie réelle de  $n$  en fonction de  $z$ . La probabilité de trouver une interface à  $z_m + z$  est donnée par la distribution  $P$  avec une variance  $\sigma$  appelée paramètre de rugosité.

culaire permet donc de déterminer les épaisseurs, la densité électronique et les rugosités de surface et d'interfaces d'un matériau déposé en couche mince. Dans cette géométrie le vecteur de diffusion est normal à la surface et ainsi les paramètres structuraux sont reliés à cette direction normale. Pour obtenir des informations le long de la surface, il est possible d'effectuer des mesures hors-spéculaires et d'obtenir un signal lié aux propriétés structurales latérales de l'échantillon. Nous avons utilisé cette méthode et nous avons pu mesurer les marches de nos échantillons (fig. 3.3).

### Descriptif expérimental

Le même dispositif expérimental est utilisé en réflectivité et en analyse de texture.

#### 3.1.3 Diffraction des rayons X en incidence rasante

##### Principe de la mesure

Les rayons X en incidence rasante (angle de quelques dixièmes de degré) sont bien adaptés à l'étude des surfaces de matériaux massifs ou des surfaces et interfaces de couches minces, de la monocouche à quelques milliers d'angströms. Du fait que le faisceau de rayons X soit en incidence rasante, il est très peu pénétrant et l'information de surface est considérablement renforcée par rapport à l'information de volume. Nous obtenons ainsi des renseignements sur la composition et la structure de l'échantillon près de sa surface, de plus cette méthode est

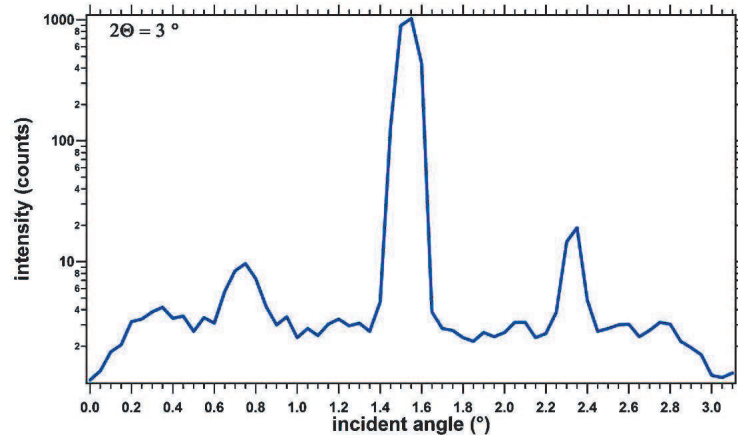


FIGURE 3.3 – Mesures hors spéculaires pour différents angles d'attaque des marches pour un échantillon de 10 nm de Nb (pour 20 et 200°) l'incidence est transversale). Les positions des pics satellites nous renseignent sur la largeur moyenne de ces marches :  $L = 300\text{nm}$ .  $L = m\lambda/(\cos\Theta_1 - \cos\Theta_0)$ .

non destructive.

La géométrie utilisée est très performante pour évaluer le caractère polycristallin de type poudre d'un échantillon pour des épaisseurs à partir de 3 - 4 nm (fig.3.4). Il existe une autre

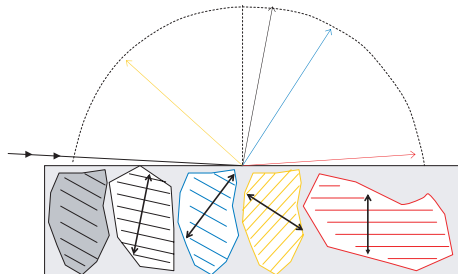


FIGURE 3.4 – Représentation schématique de la réflexion des cristallites désorientées. La largeur à mi hauteur des pics d'intensité diffractée est liée à la dimension des cristallites dans la direction de diffraction par la formule de Scherrer.

méthode de diffraction en incidence rasante (diffraction in-plane) utilisée pour déterminer les relations d'épitaxie dans le plan et déterminer les paramètres cristallins planaires. Mais elle n'a pas pu être mise en oeuvre dans ce travail de caractérisation car l'expérience au sein de l'institut n'était pas disponible.

### Descriptif expérimental

La source de rayons X utilisée est issue d'un générateur à tube scellé à anticathode de Fer. Le faisceau est conditionné en utilisant un monochromateur graphite réglé pour  $\lambda_{K\alpha} = 1.936\text{\AA}$  et des jeux de fentes. L'angle d'incidence est réglé par un goniomètre et la collecte est assurée par un détecteur à localisation d'ouverture angulaire de  $120^\circ$  (Inel CPS120).

## 3.2 Résultats

Les points importants de l'étude structurale sont de qualifier l'épitaxie, les contraintes induites durant les premiers stades de croissance des films et la nature des interfaces. Ces caractérisations permettent de définir le désordre du film et de mettre en cause l'existence ou non d'une couche normale aux interfaces (NbO, NbSi).

### 3.2.1 La texture des films de niobium

La figure 3.5 présente nos mesures de réflectivité obtenues pour diverses épaisseurs et températures de dépôt des films de niobium. Nous comparons nos mesures de réflectivité avec un modèle de couches texturées. Pour des films plus épais que 4nm, le modèle est en accord avec nos mesures. Nous observons des modulations périodiques du signal d'intensité réfléchi par les plans cristallins des films de niobium. Les modulations diminuent à mesure que l'angle d'incidence augmente, la surface intégrée étant réduite.

Au contraire, l'amplitude et la périodicité des modulations sont très différentes de celles attendues aux plus basses épaisseurs. A partir d'une épaisseur de niobium de 3.5nm, nous observons un écart important avec un modèle de couche texturée.

Nous arrivons à décrire le comportement général de ces modulations particulières (doubles bosses, absence de modulation pour le dernier film) avec des paramètres qui correspondent à une interface niobium-silicium rugueuse. Les paramètres de modélisation sont présentés dans le tableau 3.1. Les rugosités apparentes à l'interface niobium-silicium de ces échantillons sont très importantes.

Nous observons que les films de 10nm d'épaisseur évaporés à des températures plus basses que  $661^{\circ}\text{C}$  restent bien texturés. Au contraire, aux plus basses épaisseurs, le film de 3nm déposé à  $590^{\circ}\text{C}$  a une texture bien différente de celle du film de 3nm déposé à  $661^{\circ}\text{C}$ . Nous discutons de la dépendance en température de la croissance des films dans le paragraphe 3.2.5.

### 3.2.2 Qualités des interfaces

L'étalement du niobium est calculé aux deux interfaces, au niveau du saphir et au niveau du silicium. Les valeurs obtenues sont présentées dans la tableau 3.1 en fonction de l'épaisseur des films. La rugosité est donnée pour les trois matériaux (saphir, silicium et niobium).

La figure 3.6 illustre le calcul. Elle présente le profil de densité calculé pour le film de 4nm d'épaisseur. Les 3 cubes correspondent aux valeurs théoriques du substrat de saphir, du film de niobium et enfin de la couche de protection de silicium.

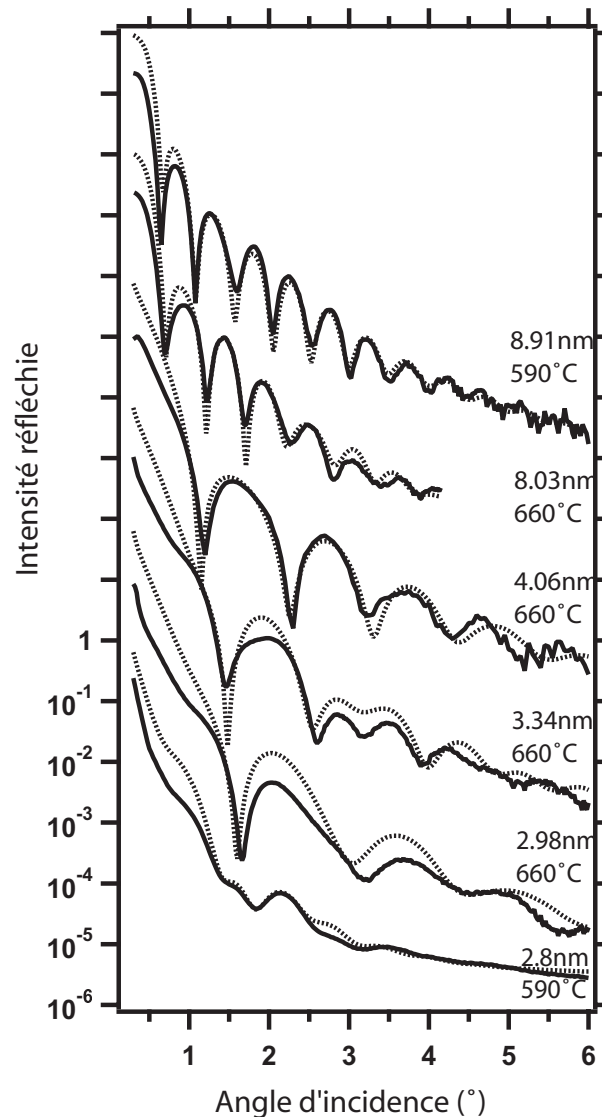


FIGURE 3.5 – Réflectivité  $X$  aux petits angles des films de niobium de différentes épaisseurs. Les mesures sont en accord avec un modèle (trait pointillé) de film texturé pour des épaisseurs de 4nm à 10nm. Aux plus basses épaisseurs (3.5nm), nous commençons à observer des écarts avec le modèle d'un film texturé. Les signaux sont décalés pour présenter les modulations de chacun des films.

L'épaisseur des films est également déterminée à partir des courbes de réflectivité, à partir de la relation  $d = \lambda / (4\pi \sin\theta)$  où  $d$  est l'épaisseur du film,  $\lambda$  la longueur d'onde incidente et  $\theta$  la période des modulations. Elle est comparée à l'épaisseur mesurée par la balance à quartz durant le dépôt des films (tab.3.1). Pour les faibles épaisseurs, nous obtenons un bon accord. Les différences sont importantes pour les échantillons plus épais, précisément de 1.09nm pour un film de 10nm d'épaisseur.

Échantillon		n°1	n°2	n°3	n°4	n°5	n°6
Épaisseur de Nb(nm) (indication quartz)		10	8	4	3.5	3	3
Épaisseur (nm)	Nb	8.91	8.03	4.06	3.34	2.98	2.80
	Si	1.69	2.70	1.28	2.23	2.30	4.30
Rugosité (nm)	$Al_2O_3$	0.161	0.143	0.1	0.15	0.14	0.12
	Si	0.617	0.600	0.527	0.290	0.553	0.553
	Nb	0.513	0.6	0.360	0.480	0.400	0.800

TABLE 3.1 – Le tableau présente les valeurs des épaisseurs des films de niobium et la rugosité de leurs interfaces. Les épaisseurs des films déterminées par la vitesse d'évaporation et le temps de dépôt sont comparées à celles déterminées à partir des mesures de réflectivité 3.5.

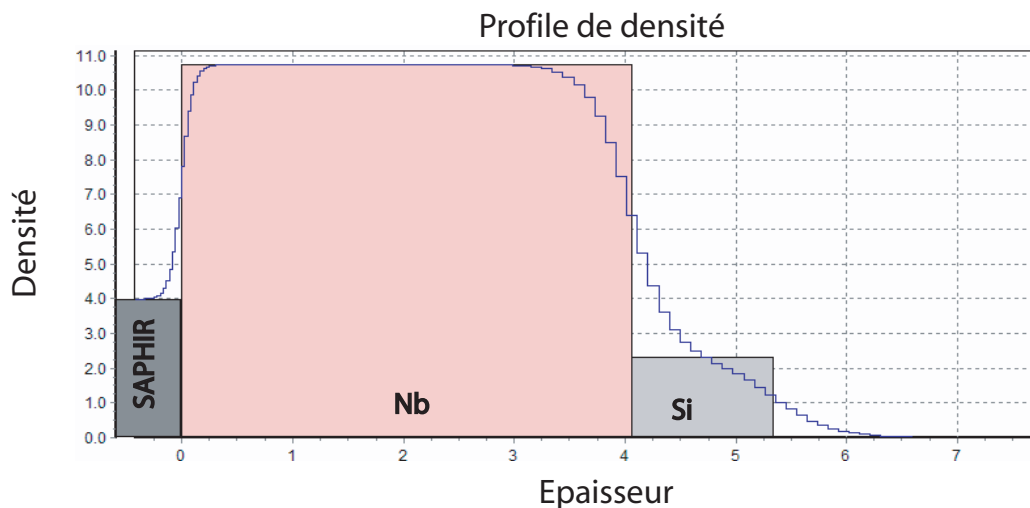


FIGURE 3.6 – Profil de densité du saphir, niobium et du silicium (courbe noire) déduit des courbes de réflectivité pour un film de 4nm d'épaisseur (eq.). Les valeurs théoriques attendues pour le saphir, le niobium et le silicium sont également présentées.

Nous déterminons à présent la rugosité des interfaces. Elle nous permet de mettre en cause la formation de couche mono-atomique de NbO ou NbSi, métallique aux interfaces.

### Rugosité de l'interface Niobium-Saphir

Les surfaces terminées par des atomes oxygènes présentent des adhésions plus fortes avec les films de Nb que les terminaisons aluminium [12]. Dans cette configuration, le niobium s'ionise en  $Nb^{3+}$  et crée des liaisons fortes avec les anions oxygène,  $O_{2-}$ , de surface. L'arrangement atomique d'équilibre est trouvé lorsque la répulsion entre les plans de cations,  $Nb^{3+}$  et  $Al_{3+}$ , est minimum. Cette configuration peut conduire à l'existence d'état d'un plan monoatomique

de NbO qui est un oxyde métallique. Dans le cas du saphir R-plan aucune étude à notre connaissance n'a été réalisée pour déterminer la nature des liaisons à l'interface. Elle a été réalisée sur des saphir C-plan [12]

Nous montrons que l'interface entre le saphir et le niobium est peu rugueuse et constante,  $r_{Al_2O_3/Nb} = 0.15$  (tab.3.1). Cette rugosité correspond aux marches atomiques du saphir,  $h = 0.3nm$ , soit  $\pm 0.15nm$ . Nous en déduisons que les surfaces sont principalement terminées  $Al_{3+}$ . L'adhésion du niobium sur le saphir n'est pas maximale mais qu'elle empêche la formation d'un alliage NbO.

Avant chaque dépôt de Nb, les saphirs sont recuits afin d'appauvrir la surface en oxygène et éviter la formation de ces états localisés. Il semblerait donc que cette étape soit suffisante pour éviter la formation d'un plan de NbO.

### Rugosité de l'interface Niobium-Silicium

Les alliages  $Nb_xSi_{1-x}$  sont étudiés en détails pour la thermométrie par exemple. Suivant la stoechiométrie de alliage, les films sont supraconducteurs, métalliques ou isolant à basse température [19]. Ces films sont des systèmes dans lesquels la transition supraconducteur-isolant a été étudiée en détails, en fonction de l'épaisseur des films, du champ magnétique et de leur stoechiométrie. Ils sont également très étudié pour leurs applications en thermométrie puisque dans l'état isolant leur résistivité diverge aux basses températures ce qui en fait des capteurs thermiques très sensibles [20]. Le NbSi est métallique pour une très faible concentration de Si. Il est possible d'un alliage se forme lors du dépôt vers  $80^\circ$ . Nous en discutons dans le chapitre 5.

Nous montrons que l'interface Nb-Si est très rugueuse et très étendue pour les films les plus minces (tab.3.1). Il est probable qu'elle ait une influence non négligeable sur les propriétés de transport.

### 3.2.3 Hétéro-épitaxie des films de niobium ( $d \geq 4nm$ )

La figure 3.7 présente la projection stéréographique des figures de pôle d'un film de 5nm d'épaisseur déposé sur un substrat de saphir R-plan. Les figures mettent en évidence la diffraction des 4 plans équivalents (110). Ils sont mesurés pour des angles de rotation  $\varphi = n\pi/4$ . Ils révèlent la symétrie du système cubique.

La réflexion des plans (110) n'apparaît pas exactement à  $\chi = 45^\circ$ . L'alignement de la mesure est réalisé sur les pics du saphir. L'écart ( $2^\circ$ ) correspond à l'angle de tilt entre les axes  $\vec{c}$  des réseaux du saphir et du niobium ( $2^\circ$ )(fig.2.2) [5][6][7][8].

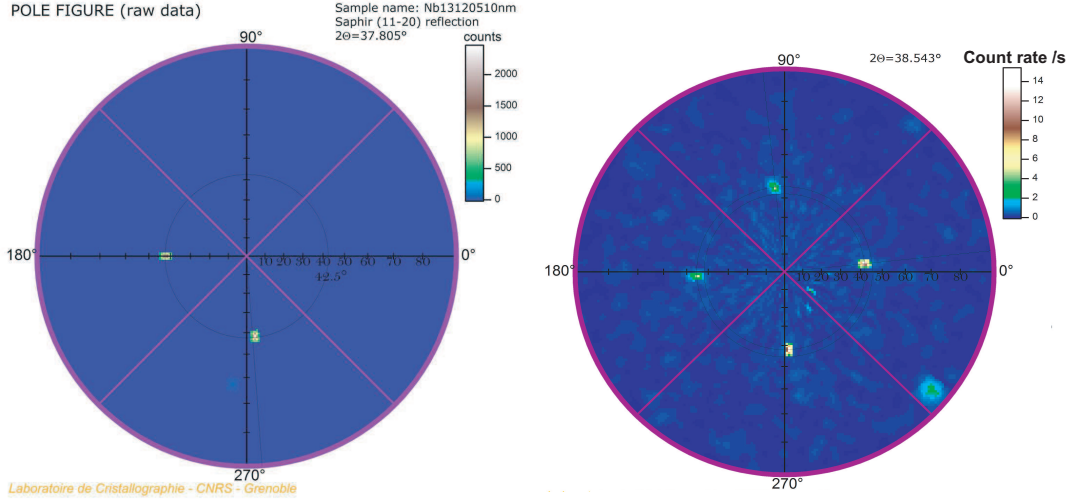


FIGURE 3.7 – Figures de pôle d'un film de  $Nb_{bcc}$  de 5nm d'épaisseur (droite) hétéro-épitaxié sur saphir R-plan(gauche). A droite : réflexion des plans  $(11\bar{2}0)_{hexa}$  du substrat de saphir, à  $2\theta = 37.805^\circ$ . A gauche : réflexion des 4 plans équivalents  $(110)_{bcc}$  du niobium, à  $2\theta = 55.637^\circ$ , pour un angle de tilt  $\chi = 45^\circ$ . Ces résultats sont en accord avec une croissance épitaxié  $(100)_{bcc} // (1\bar{1}02)_{hexa}$

Ces résultats ont été obtenus sur tous les films déposés à  $661^\circ C$  de plus de 4nm d'épaisseur. Ils sont en accord avec une croissance épitaxié du niobium sur saphir tel que  $(100)_{bcc} // (1\bar{1}02)_{hexa}$ .

Pour des épaisseurs inférieures à 4nm, nous n'observons pas la réflexion des plans  $(110) - Nb_{bcc}$  sur les figures de pôle. Les intensités diffractées à cet angle  $2\theta = 38.507^\circ$  correspondent à la réflexion de Bragg des plans (001) du saphir.

Les intensités diffractées sur ces films minces sont très faibles (voir l'échelle sur les figures de pôle fig.3.7). L'obtention de ces figures demande ainsi plusieurs jours d'acquisition. Un signal de diffraction apparaît clairement pour les films de 4nm tandis qu'aucun signal n'est observé pour les films de 3.5nm d'épaisseur. La différence d'épaisseur est mesurée exactement par réflectivité elle est de  $7.2\text{\AA}$ . Elle correspond à environ deux plans atomiques de niobium ( $a=3.3\text{\AA}$ ). Cette différence peut elle s'expliquer par une limite de résolution de l'appareillage ? Nous en doutons.

Une seconde hypothèse serait de supposer l'existence d'un film contraint sur la maille hexagonale (ou rhomboédrique, fig.2.2) du saphir. Dans ce cas, il serait impossible de distinguer la contribution du substrat de celle du film.

En effet, nous mesurons pour les films plus épais une désorientation du Nb et du saphir de  $2^\circ$  3.7. Elle pourrait traduire une relaxation des contraintes induites dans les premiers stades de croissance qui se relâchent sous forme de dislocation au delà d'une épaisseur critique, estimée à quelques nanomètres dans la littérature [13] [14] [15]. Les contraintes sont dues au passage 3D

du système rhomboédrique au système cubique (angles inter-axiaux différents). La croissance initiale du Nb (première couche atomique) serait dans ce cas dominée par l'interface et les premières couches de niobium seraient parfaitement alignées [21].

La figure montre le diagramme de phase de la structure du niobium épitaxié sur des substrats A-plan durant sa croissance, en fonction de la température de dépôt. Pour une croissance

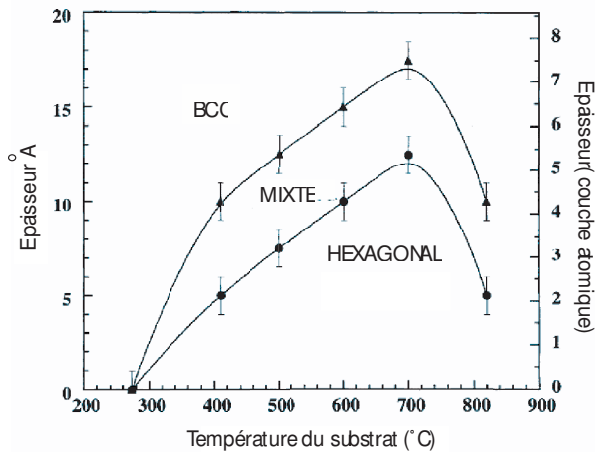


FIGURE 3.8 – Diagramme de phase structural, épaisseur-température de dépôt, pour une épitaxie du niobium sur du saphir A-plan,  $(11\bar{2}0)$ . L'épaisseur critique de la phase hexagonale du niobium dépend de la température du substrat lors du dépôt des films. L'état mixte correspond à la coexistence des clichés de diffraction RHEED du système cubique et hexagonal. Reproduit d'après [22].

$(110)_{Nb} // (11\bar{2}0)_{Al_2O_3}$  il existe un état mixte entre une phase cubique et hexagonale (fig.3.8) [22]. L'épaisseur critique limitant la phase hexagonale dépend de la température de dépôt des films de niobium. La démonstration est menée avec des clichés de diffraction d'électrons (Reflection High Energy Electron Diffraction, RHEED) durant la croissance des films.

Une dernière hypothèse à considérer est la possibilité d'une croissance polycristalline pour les plus faibles épaisseurs. Cette hypothèse est à confronter à un modèle de croissance couche par couche proposée par Flynn [23] et à une mauvaise adhérence du niobium sur le saphir [12]. Nous remarquons d'une croissance polycristalline pourrait aussi traduire un état mixte entre une phase contrainte sur la maille du saphir et une phase relaxée cubique. Cette hypothèse peut être testée par les mesures de diffraction en incidence rasante.

### 3.2.4 Le cas des films les plus minces ( $d < 4\text{nm}$ )

Nous mesurons la diffraction en incidence rasante des films de niobium. Cette mesure nous permet d'observer les différentes orientations de croissance du  $Nb_{bcc}$ , s'il en existe. Les résultats sont présentés en figure 3.9.

Nous montrons que les films texturés et hétéro-épitaxiés ( $d \geq 4.06\text{nm}$ ) ne présentent pas de signal de diffraction en incidence rasante, en accord avec les résultats précédents. Par contre, des intensités de diffraction non nulles sont détectées pour les films de 2.98nm et 3.34nm d'épaisseur ainsi que pour le film de 10nm d'épaisseur évaporé à plus basse température. Ces résultats révèlent une structure polycristalline.



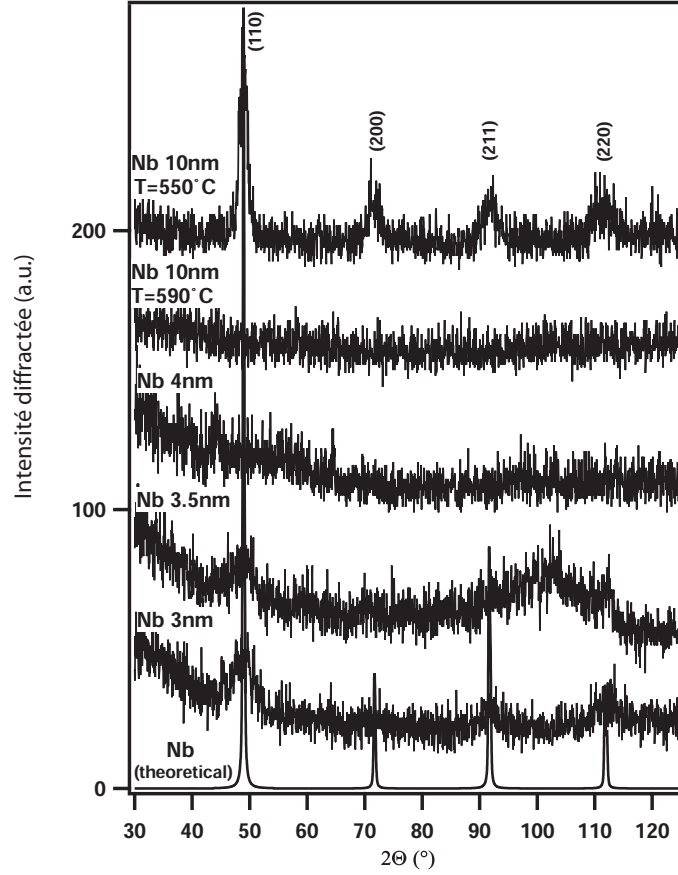


FIGURE 3.9 – Mesure de l'intensité diffractée en incidence rasante en fonction de l'angle de diffraction. Les mesures sont décalées afin de comparer la diffraction des films en fonction de leur épaisseur (indiquées sur le graphique). Nous rajoutons les intensités des réflexions de Bragg théoriques correspondant au système cubique (courbe lisse). La figure confirme l'épitaxie des films de 10nm à 4nm d'épaisseur déposés à 590°C. La figure montre la présence de cristallites désorientées pour le film de 10nm d'épaisseur déposé à 553°C, ainsi que pour les films de 2.98nm et 3.34nm d'épaisseur.

A partir de la largeur des pics de diffraction, nous estimons la taille des cristallites (fig.3.4). Cette relation est donnée par la formule de Scherrer :

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (3.4)$$

L est le diamètre des cristallites. K est un facteur de forme géométrique, que l'on prend égal à  $K=1.07$ .  $\lambda$  est la longueur d'onde de l'onde incidente.  $\beta$  est la largeur à mi-hauteur du pic de l'intensité diffractée et  $\theta$  l'angle de diffraction correspondant.

Pour le film de 10nm d'épaisseur les pics sont bien définis. Nous déterminons la longueur des cristallites égale à 76Å dans l'épaisseur du film ( $\theta = 48^\circ$ ). Leur largeur est comprise entre 53Å ( $\theta = 92^\circ$ ) et 46Å ( $\theta = 111^\circ$ ). Les films de 3,34nm et 2.98nm pour lesquels nous n'avons

observé aucune texture sur les figures de pôle, présentent un pic de diffraction correspondant aux plans (110). Les pics d'intensité révèlent la présence de grains cristallisés. Pour le film de 2.98nm, nous déterminons la longueur des cristallites égale à  $24\text{\AA}$  ( $\theta = 38^\circ$ ). Nous mesurons des pics de plus faibles intensités aux plus grands angles en accord avec les valeurs attendues (trait noir). Nous déterminons leur longueur à  $38\text{\AA}$  à  $\theta = 92^\circ$ .

Les mesures de réflectivité, les figures de pôles et la diffraction en incidence rasante, nous permettent de qualifier la dépendance en épaisseur des films de niobium. Cette étude montre que les films les plus minces déposés à  $661^\circ\text{C}$  sont polycristallins. Les films de 4nm à 10nm d'épaisseur évaporés à  $661^\circ\text{C}$  sont hétéro-épitaxiés.

Nous discutons à présent de la dépendance en température de l'épitaxie du niobium sur les saphir R-plan.

### 3.2.5 Influence de la température de dépôt

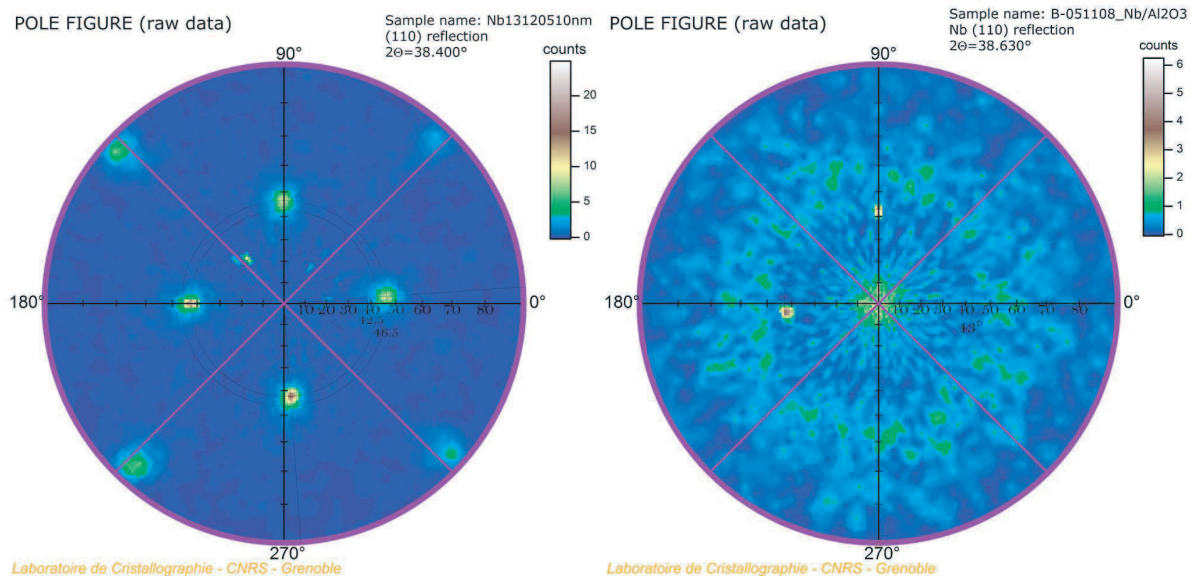


FIGURE 3.10 – Projection stéréographique des figures de pôle pour deux échantillons de 10nm d'épaisseur. A gauche : le film est déposé à  $590^\circ\text{C}$ . Pour à un angle de Bragg  $2\theta = 38.507^\circ$ , la figure montre la diffraction des plans  $(110)_{bcc}$  à  $45^\circ\text{C}$  dans le plan. La maille est cubique, les plans  $(100)$  sont parallèles à la surface, en accord avec les relations tridimensionnelle avec le saphir. L'échantillon est hétéro-épitaxié. A droite : le film est déposé à  $553^\circ\text{C}$ . La figure montre la diffraction des plans  $(110)_{bcc}$  à  $0^\circ\text{C}$  dans le plan et une couronne de diffraction à  $\chi = 60^\circ$ . Les plans  $(101)$  correspondent à cet angle de tilt. L'échantillon est polycristallin.

Dans ce paragraphe, nous présentons l'influence de la température d'évaporation des films de niobium sur leur qualité cristalline.

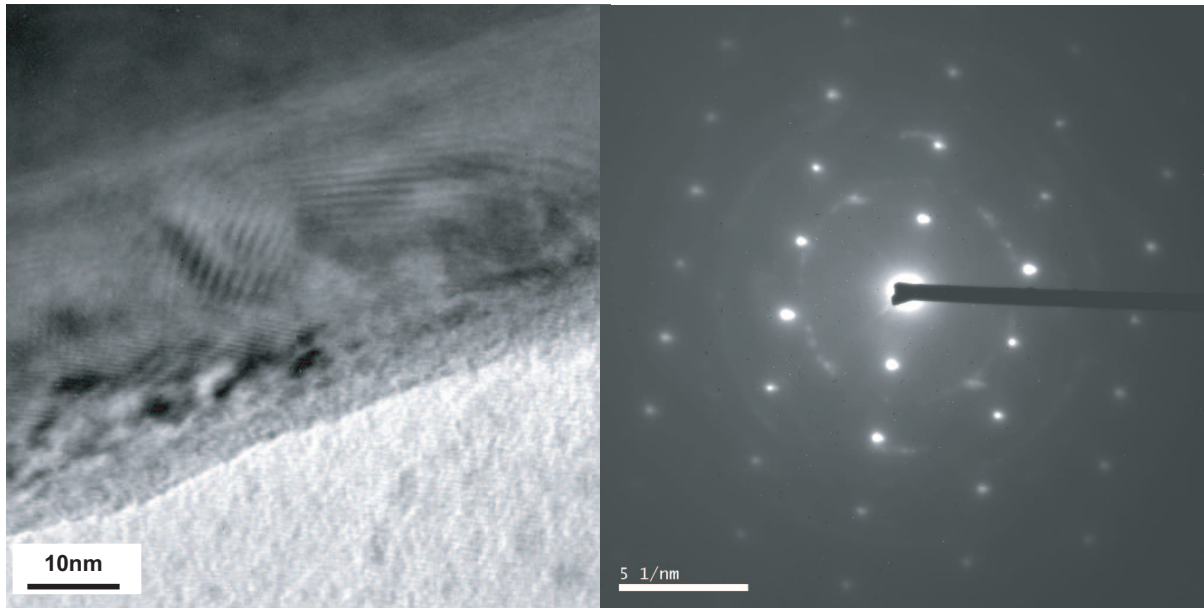


FIGURE 3.11 – A gauche : micrographie d'un film mince de niobium obtenue par microscopie électronique à transmission. L'épaisseur du film est de 10nm. Il est déposé sur un substrat de saphir à 553°C, (fig.3.10. A droite : Diagramme de diffraction électronique correspondant. Au signal de diffraction du réseau hexagonal du saphir se superposent des taches de diffraction qui s'étalent le long d'un cercle centré autour du faisceau incident. Toutes les orientations de la structure cubique sont observées. Les figures montrent la présence de cristallites.

Nous avons mesuré la texture de deux films de 10 nm d'épaisseur déposés à 553°C et à 590°C. La figure 3.10 présente la projection stéréographique des figures de pôle des deux échantillons.

A  $T_{vap} = 553^\circ C$ , les films de 10nm d'épaisseur sont polycristallins. Nous distinguons la réflexion des plans (110) pour un angle de tilt  $\chi = 0^\circ$ . Une large bande apparaît à un angle de  $\chi = 60^\circ$  (fig.3.10). Toutes les orientations des plans réticulaires du  $Nb_{bcc}$  diffractent en incidence rasante (fig. 3.9). La figure 3.11 présente une micrographie obtenue par microscopie électronique à transmission sur ce même échantillon, ainsi que son cliché de diffraction. Ce cliché de diffraction électronique montre toutes les orientations de la structure cubique, en accord avec les mesures de diffraction aux rayons X.

La croissance est hétéro-épitaxiée pour une température de dépôt plus élevée. A 590°, les films hétéro-épitaxiés présentent une unique direction de croissance contrairement aux films polycristallins. Par contre, nous ne sommes pas en mesure de distinguer la présence ou non de grains tous orientés dans la même direction. Ces mesures sont des moyennes d'ensemble.

Nous distinguons donc deux modes de croissance : hétéro-épitaxiés  $(100)_{Nb} // (1\bar{1}02)_{Al_2O_3}$  à

chaud et polycristallins à plus basse température. La dépendance en température (pour avoir une croissance hétéro-épitaxié du Nb) est plus importante à mesure que l'on réduit l'épaisseur des films. Les films de 5nm et de 4nm d'épaisseur sont hétéro-épitaxiés pour une température de dépôt de  $661^{\circ}C$ .

Le modèle de croissance développé par Flynn et al semble adapté pour décrire la croissance du niobium sur saphir R-plan. Ce modèle décrit une croissance couche par couche, avec une nucléation sur les bords des surfaces vicinales du substrat de saphir. La surface vicinale des substrats peut alors influencer les premiers stades de croissance des films de niobium. Dans le cas du film de 2.98nm d'épaisseur, nous avons observé des terrasses anormalement larges et en cours de reconstruction après un recuit de 1h à  $1100^{\circ}C$ . Ces marches n'ont pas été observées pour le film de 3.34nm d'épaisseur.

Ce modèle suggère que l'évaporation du Nb devrait être effectuée à  $1030^{\circ}C$  ( $3T_m/8$ ) pour améliorer l'épitaxie, avec  $T_m = 2750^{\circ}C$  la température de fusion du niobium[23]. Un dépôt plus chaud, pourrait donc améliorer l'épitaxie durant les premiers stades de croissance. A ces températures plus importantes, la ségrégation des atomes oxygènes du saphir vers le film de niobium n'est plus négligeable.

### Conclusion

A partir des mesures croisées de champ proche, de réflectivité et de diffraction aux rayons X, nous avons qualifié la qualité cristalline des films de niobium en fonction de leur épaisseur et de la température dépôt.

Nous montrons que les films de niobium évaporés sur des substrats de saphir chauffés à  $661^{\circ}C$  sont hétéro-épitaxiés au dessus d'une épaisseur de 4.06nm. Les plans  $(100)_{bcc}$  sont parallèles à la surface. Ces résultats sont en accord avec les relations tridimensionnelles entre le niobium et le saphir.

Les mesures de spectroscopie locale par microscopie à effet tunnel (STM) révèlent la présence des cristallites dans les films hétéro-épitaxiés. Les cristallites seraient alors toutes orientées dans la bonne direction d'épitaxie du niobium, en accord avec une hétéro-épitaxie.

Nous montrons que les films les plus fins de 3.34nm et 2.98nm d'épaisseur sont polycristallins. Pour ces films, les cristallites sont désorientées. Elles ont une taille moyenne comprise entre 5.3nm et 2.4nm, dépendant de l'épaisseur des films, ce qui semble en accord avec les mesures spectroscopie locale. Nous discuterons de l'influence des grains dans le chapitre 5.

Pour expliquer cet état polycristallin, nous proposons deux interprétations : d'une part l'exis-

tence d'un état mixte, entre une phase rhomboédrique contrainte sur la maille du saphir qui relaxe vers la structure cubique du niobium au delà d'une épaisseur critique. Dans cette interprétation l'épaisseur critique serait de l'ordre de 4nm. La seconde interprétation que nous proposons correspond à une croissance du niobium couche par couche. Les atomes de Nb nucléent alors sur les bords des surfaces vicinales du substrat et coalescent au delà d'une certaine épaisseur évaporée. Ces deux modèles ne s'excluent pas l'un et l'autre.

Nous montrons également que l'interface entre le niobium et le silicium est rugueuse de l'ordre de 0.5nm de part et d'autre de l'interface. Nous discutons de son influence sur les propriétés supraconductrices des films dans la section.

## Chapitre 4

# Propriétés électroniques des films à basse température

Pour caractériser la dépression et la perte de la supraconductivité dans les films de niobium, nous mesurons la dépendance en épaisseur et en champ magnétique de la résistivité des films jusqu'aux basses températures.

Tout d'abord, nous présentons les mesures de transport effectuées sur les films de niobium que nous avons caractérisés dans le chapitre précédent (chap.3) puis nous tentons de mettre en évidence l'influence de la texture des films sur les propriétés supraconductrices.

Nous discuterons enfin de l'influence du dépôt à chaud sur leurs propriétés supraconductrices en les comparant à des films de niobium évaporés dans les mêmes conditions à froid.

### 4.1 Transition S-I en épaisseur

La figure 4.1 présente le comportement résistifs des films jusqu'aux plus basses températures en fonction de leur épaisseur.

Nous observons une transition supraconducteur-isolant pour une épaisseur critique comprise entre 2.98nm et 2.5nm. Elle a lieu sur une gamme d'épaisseur très étroite. La résistance par carré des films à 300K est comprise entre  $600\Omega < R_{C\Box} < 800\Omega$ . Elle est inférieure à la résistance attendue,  $R_K = h/4e^2$ , à la transition supraconducteur-isolant pour un film homogène. Nous en discutons dans le chapitre suivant en confrontant ce résultat au modèle développé par Fisher [24].

Du côté supraconducteur de la transition, nous observons une diminution de la température

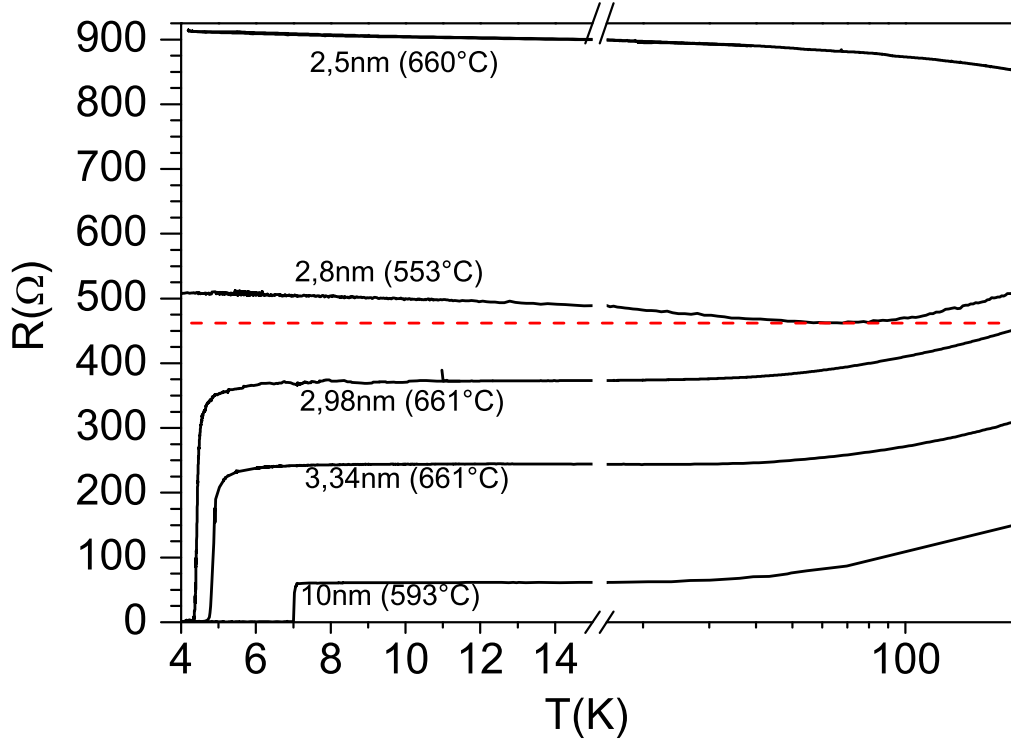


FIGURE 4.1 – Résistance par carré en fonction de la température pour différentes épaisseurs de niobium. L'épaisseur est déterminée à partir des mesures de réflectivité. La figure montre la transition supraconducteur-isolant en épaisseur des films de niobium.

de transition supraconductrice  $T_c$  et une augmentation de la résistance par carré<sup>1</sup>  $R_{\square}(10K)$ . Du côté isolant de la transition, la résistivité des films augmente à basse température tel que  $R \propto -\ln(T)$ .

La caractéristique résistance en fonction de la température ( $R_{\square}(T)$ ) des films de niobium correspond à des supraconducteurs homogènes. Ce qui est cohérent avec une taille des cristallites de l'ordre de 24Å (pour le film de 2.98nm) et 53Å (pour le film de 10nm) inférieure à la longueur de cohérence supraconductrice de l'ordre de 5nm. Nous la déterminons dans le paragraphe suivant.

1. Les mesures de résistivité sont effectuées en 4 fils par la méthode de Van der Pauw. Nous réalisons 4 contacts aux points cardinaux de l'échantillon. Cette configuration particulière permet de mesurer la résistance par carré des films. Nous en déduisons la résistivité des films en fonction de l'épaisseur du film  $d$  et de la résistance mesurée  $R$ ,  $\rho = \frac{\pi \cdot d}{\ln 2} \cdot R$

## 4.2 Transition S-M sous champ magnétique

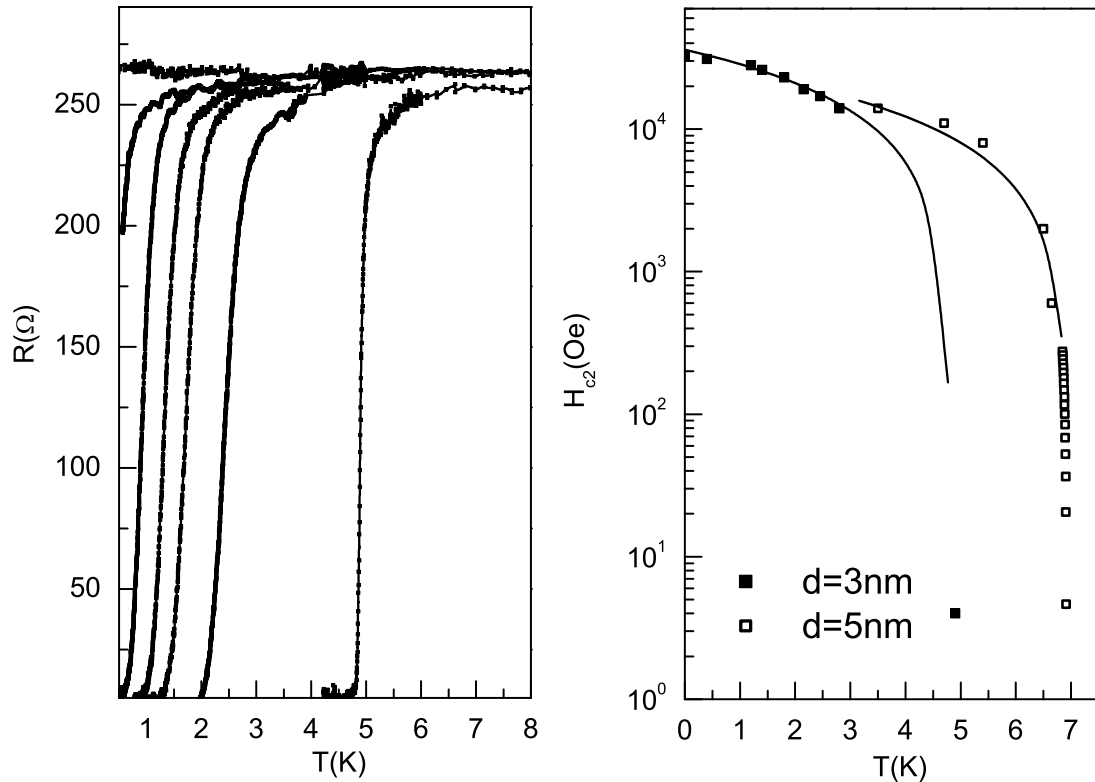


FIGURE 4.2 – A gauche : Résistance en fonction de la température pour divers champs magnétiques appliqués perpendiculairement pour un film de  $\sim 3\text{nm}$  d'épaisseur. Le champ varie de 0 à 6 Tesla par pas de 1 Tesla. La figure montre la transition supraconducteur-métal sous champ magnétique  $H_{\perp}$ . A droite : Champ critique  $H_{c2}$  en fonction de la température pour les films de l'ordre de 3nm et 5nm d'épaisseur.

La figure 4.2 présente la transition sous champ magnétique d'un film de l'ordre 3nm d'épaisseur. Elle montre une transition entre un état supraconducteur et un état métallique. Nous observons une augmentation de la résistance aux plus forts champs (6 Tesla). La résistance par carré augmente par de très faibles paliers. Ces sauts ont une amplitude très faible.

La dépendance en température du champ critique perpendiculaire  $H_{\perp c2}$  nous permet de définir les longueurs caractéristiques des échantillons dans une approximation BCS à  $T=0$ .



Nous avons effectué les mesures sur un échantillon de l'ordre de 5nm d'épaisseur hétéro-épitaxié et sur un film de l'ordre de 3nm d'épaisseur polycristallin. Nous déterminons  $H_{c2}$  à partir des courbes  $R_{\square}(T)$  sous champ (fig.4.2).

Le coefficient de diffusion,  $D$ , le libre parcours moyen,  $\ell$  et la longueur de cohérence des films à  $T=0K$ ,  $\xi(0)$ , sont obtenus par la dépendance linéaire en température près de  $T_c$ , du champ critique. Dans la limite d'un supraconducteur sale,  $H_{c2}$  peut s'écrire tel que :

$$H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2} \sim \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_0\ell} \sim \frac{3ck}{e} \frac{T_c}{v_F\ell} \sim 3.10^4 \frac{T_c}{v_F\ell} \quad (4.1)$$

Nous obtenons respectivement pour les films de l'ordre de 5nm et 3nm d'épaisseur :

$$D = 2.37cm^2.s^{-1}, \ell = 0.5nm, \xi = 3.7nm \text{ et } D = 1.33cm^2.s^{-1}, \ell = 0.3nm, \xi = 2.9nm.$$

Dans les deux cas, la longueur de cohérence est comprise entre le libre parcours moyen élastique et l'épaisseur du film, telle que  $\ell < \xi \leq d$  et le transport est donc fortement diffusif. Nous pouvons comparer ces valeurs à celles obtenues à partir du rapport de résistance résiduelle  $RRR$ , défini tel que :

$$RRR = \frac{R_{300K}}{R_{T>T_c}} \quad (4.2)$$

on obtient :

$$\rho_{imp} = \frac{R_{T>T_c}}{R_{300K} - R_{T>T_c}} \cdot \rho_{ph} \quad (4.3)$$

en considérant que la valeur de la résistance par carré au dessus de  $T_c$  correspond seulement à la contribution des impuretés,  $R_{T>T_c} = \rho_{imp}/d$  et de celle mesurée à 300K correspond aux deux contributions,  $R_{300K} = (\rho_{imp} + \rho_{ph})/d$  où  $d$  est l'épaisseur du film.

D'après le modèle de Drüde, la résistivité du film et son libre parcours moyen est une constante, telle que :

$$\rho \cdot \ell = \frac{mv_F}{ne^2} = 3,75.10^{-6} \mu\Omega.cm^2 \quad (4.4)$$

Nous déterminons  $\rho_{imp}$  et  $\ell$  pour le film de 3nm d'épaisseur, en considérant que la contribution des phonons dans les films de niobium ultra minces est égale à celle du matériau massif,  $\rho_{ph} = 15\mu\Omega.cm$  [25]). Nous obtenons une résistivité induite par les impuretés égale à  $\rho_{imp} = 59.2\mu\Omega.cm$  et un libre parcours moyen associé égal à  $\ell = 0.060.10^{-6}cm^2$ . Nous en déduisons une longueur de cohérence supraconductrice dans la limite sale<sup>2</sup> égale à  $\xi = 4.06nm$ , avec une longueur de cohérence supraconductrice égale à  $\xi_0 = 38nm$  pour le niobium massif.

Les deux résultats obtenus par le champ critique et le rapport de résistance résiduelle sont du même ordre de grandeur. Nous remarquons que les valeurs déterminées à partir des résistances par carré du film sont supérieures à celles estimées par le champ critique. Il est possible que la valeur de la résistivité liée aux phonons que nous prenons égale à celle du matériau massif soit en faite plus faible dans le cas de films minces.

---

2.  $\xi = 0.852 \cdot \sqrt{\xi_0 \cdot \ell}$

### 4.3 Magnétorésistance des films

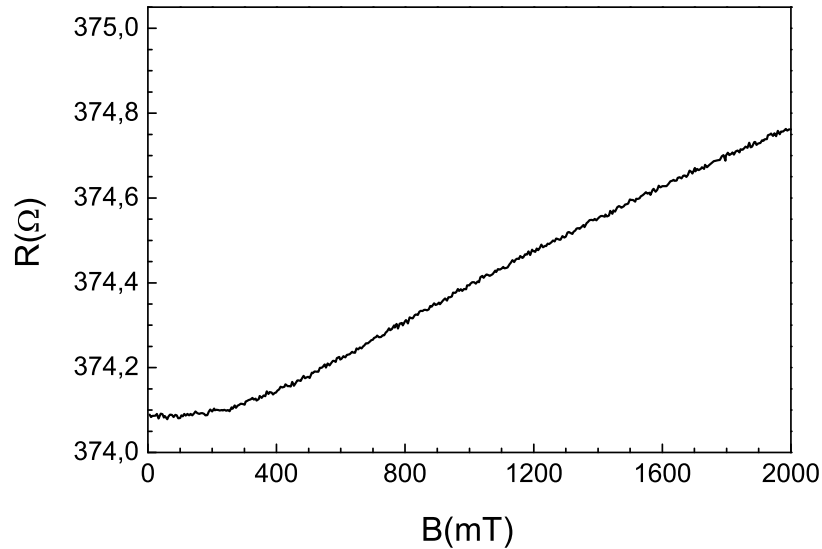


FIGURE 4.3 – Résistance en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à un film résistif de 2.8nm d'épaisseur (déposé à 590°C). La mesure est effectuée à 1K. La figure montre une magnétorésistance positive.

Dans les systèmes à 2D, le désordre et les interférences électroniques apportent une correction à la conductivité de Drüde qui est comparable,  $\Delta\sigma \propto \ln(T)$ . Les mesures de magnétorésistance apportent des éléments de réponses supplémentaires quant à l'origine du comportement résistif des films aux basses températures.

D'une part, le désordre induit un pseudo gap de Coulomb. Le gap de coulomb est indépendant du champ magnétique appliqué. D'autre part, les effets d'interférences électroniques conduisent à de la localisation faible. Les électrons de conduction ont une probabilité non nulle de revenir à leur point d'origine. Cette probabilité augmente aux basses températures. Les électrons suivent alors des trajectoires bouclées qui les localisent et s'opposent donc au transport. Un champ magnétique perpendiculaire permet de détruire cet effet d'interférence. Pour des métaux lourds, il faut tenir compte du couplage spin-orbite. Dans ce cas les effets d'interférence favorisent la conduction des électrons et améliorent le transport. C'est un effet d'anti-localisation.

La figure 4.3 présente le comportement sous champ magnétique perpendiculaire du film de 2.8nm d'épaisseur déposé à 590°C. Ce film est résistif aux basses températures. La mesure est

effectuée à  $1K$ .

Nous mesurons une magnétorésistance positive. Ces résultats sont en accord avec les mesures effectuées sur des matériaux massifs [26][27], [28]. Avec  $Z_{Nb} = 41$  pour le niobium, ce résultat est cohérent avec un effet d'anti localisation du à un fort couplage spin orbite qui se produit dans les métaux lourds, typiquement pour  $Z > 10$  [29]. Malheureusement, nous n'avons pas pu mesurer la dépendance en température de la magnétorésistance de l'échantillon à cause d'un problème expérimental. Nous n'avons pas eu le temps de reproduire ces mesures.

Du côté isolant de la TSI, les effets d'interférences électroniques ne semblent donc pas responsables de la remontée logarithmique de la résistivité des films avec la température. Nous discutons de l'effet du désordre sur la localisation des électrons dans le chapitre 5.

#### 4.4 Influence des grains sur les propriétés supraconductrices

Nous présentons l'influence de la texture des films de niobium sur leurs propriétés de transport. Nous avons montré qu'une transition structurale en épaisseur a lieu. L'épaisseur critique pour une croissance hétéro-épitaxié est de  $4nm$ , pour des films de niobium évaporés à  $661^\circ$ . En dessous les films sont polycristallins.

A l'aide de la figure 4.4, nous comparons la transition supraconductrice de deux films de  $10nm$ , l'un est polycristallin ( $550^\circ$ ), le second est épitaxié ( $590^\circ$ ). Nous avons caractérisé ces films dans le chapitre précédent (chap.??).

La transition supraconductrice du film polycristallin est plus large, sa température de transition supraconductrice plus faible et sa résistivité à  $10K$  plus grande que le film épitaxié. Nous observons le même comportement pour les films de  $2.98nm$  et  $3.34nm$  polycristallins par rapport aux films plus épais (fig. 4.1). La résistance par carré des films ( $R_{\square}(10K)$ ) augmente, ainsi que la largeur de la transition supraconductrice,  $\Delta T_c$ . Nous comparons les propriétés supraconductrices des films déposés à chaud (fig.4.5 en haut) et à froid<sup>3</sup> (fig.4.5 en bas). A la vue des résultats structuraux, nous supposons que les films évaporés à froid sont au moins polycristallins.

En comparant ces résultats aux mesures effectuées sur les films déposés à  $661^\circ C$  nous n'observons pas une grande différence dans la mesure de la température de transition supraconductrice et dans le RRR. Elle est au maximum de  $1K$  pour les films les plus minces de  $2.98nm$ .

Les films déposés à froid sont par contre caractérisés par une traînée résistive à  $T < T_c$ ,

---

3. Obtenus par l'équipe de H.Courtois et al

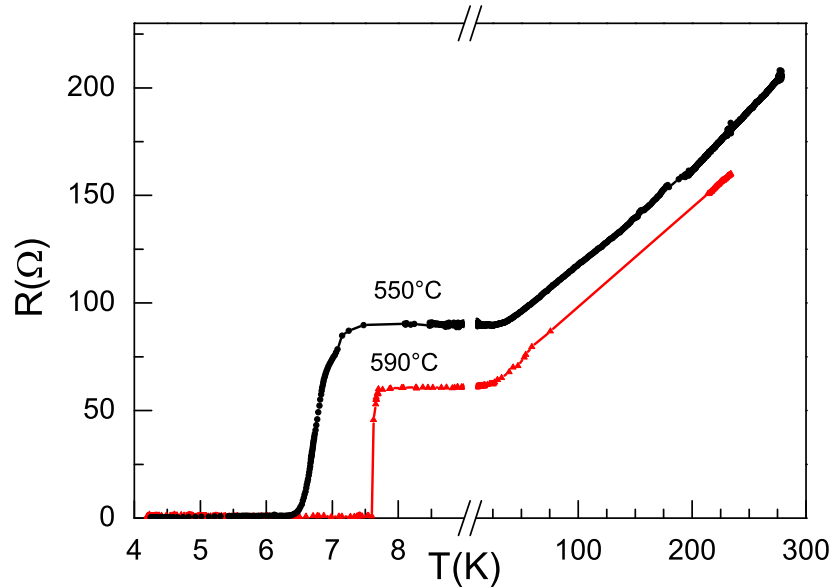


FIGURE 4.4 – Résistance par carré en fonction de la température de deux films de l'ordre de 10nm d'épaisseur, déposés à 590°C (en bas) et à 553°C (haut). Le premier film est épitaxié, le second est polycristallin. Cette figure met en évidence l'amélioration des propriétés supraconductrices avec la qualité de croissance du niobium. L'augmentation de la température de dépôt s'accompagne d'une diminution du rapport de résistivité résiduelle  $RRR = R_{300K}/R_{10K}$  et de l'élargissement de la transition,  $\Delta T_c$ .

après une exposition à l'air de quelques jours. Les films déposés à froid sont moins stables dans le temps, ce qui est cohérent avec une structure polycristalline ou granulaire. Nous nous attendons à l'existence de grains plus espacés que pour les films déposés à plus hautes températures. La résistivité des films suit le comportement décrit par le modèle de Drüde jusqu'à la transition supraconductrice. Les films restent des supraconducteurs de type homogènes. Nous pouvons supposer que les inhomogénéités seront inférieures à la longueur de cohérence supraconductrice.

## 4.5 Influence des interfaces sur les propriétés supraconductrices des films

La figure 4.6 montre la résistivité de deux films de 3nm d'épaisseur. L'un est déposé à 661°C, il transite vers 4.2°K. Le second est déposé à 590°C, il tend vers un comportement isolant.

Nous avons montré dans le paragraphe précédent que la température de dépôt influence les propriétés supraconductrices des films. Elle diminue la température de transition supracon-

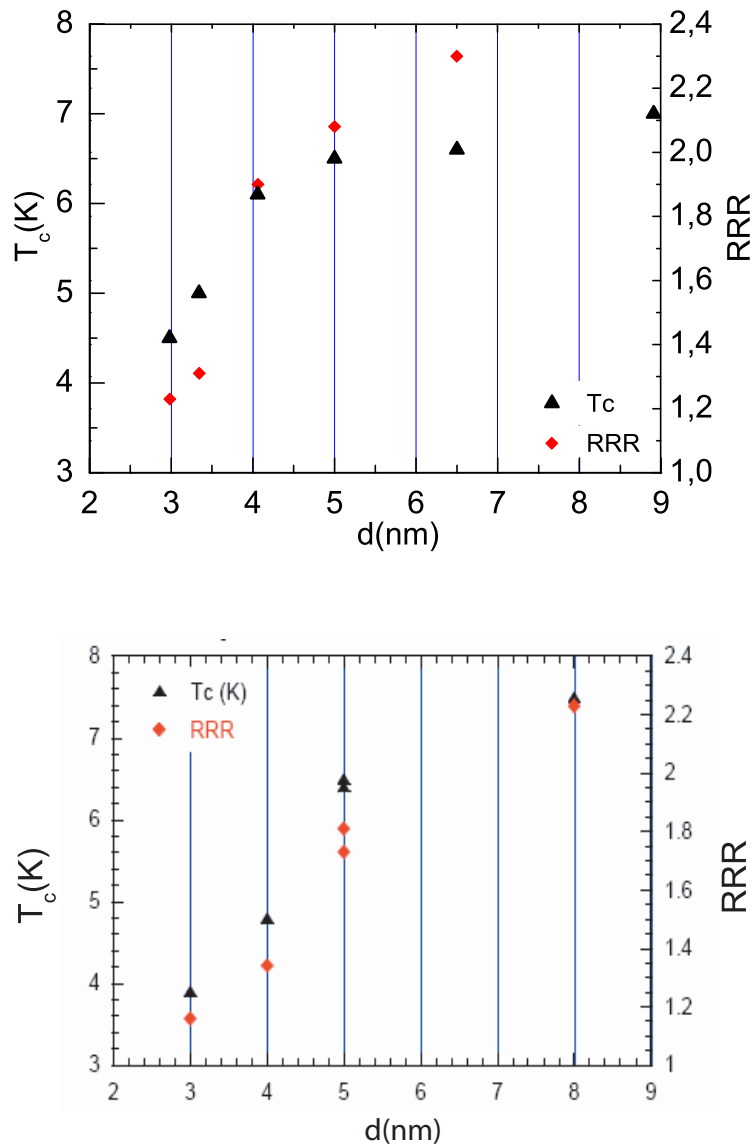


FIGURE 4.5 – Température de transition supraconductrice,  $T_c$ , et rapport de résistivité résiduelle, RRR, en fonction de l'épaisseur des films de Nb. En haut : Les échantillons sont déposés à chaud, entre  $500^\circ\text{C}$  et  $600^\circ\text{C}$ . En bas : Les échantillons sont déposés à froid dans les mêmes conditions. La figure montre qu'un dépôt à froid réduit un peu les propriétés supraconductrices des films. Elle n'induit pas une transition supraconducteur-isolant pour les films les plus fins de l'ordre de 3nm d'épaisseur.

ductrice de 1K pour les films de 3nm mais n'induit pas une transition supraconducteur-isolant. A ces épaisseurs les deux films de 3nm présentés ici sont tous deux polycristallins et la température d'évaporation est suffisamment proche pour que l'on puisse supposer l'existence d'une

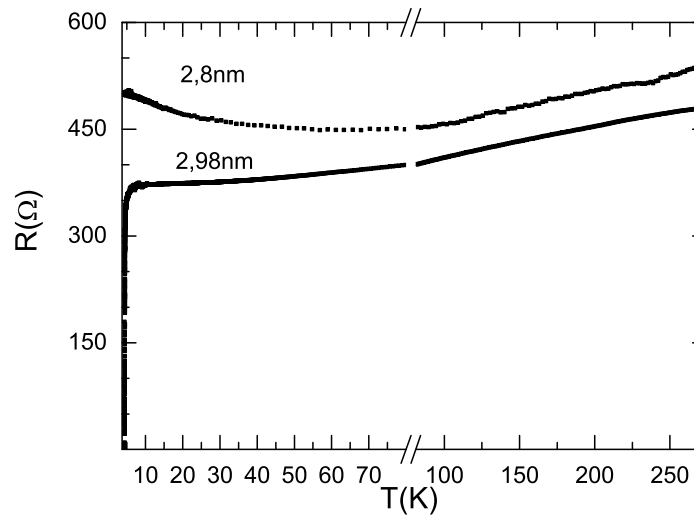


FIGURE 4.6 – Résistance par carré en fonction de la température d'un film de 2.98nm et de 2.8nm. Les films sont tous deux polycristallins. Leur température de dépôt et leur interface entre le niobium et le silicium sont différentes. La figure montre que les propriétés supraconductrices des films sont améliorées avec la qualité du film et de ses interfaces.

seconde perturbation qui contribue à la baisse des propriétés supraconductrices des films.

Nous avons mesuré une rugosité importante à l'interface Nb/Si : de 1.35nm pour le film résistif et de 0.95nm pour le film supraconducteur (chap.3). Il est certain que cette rugosité influence le comportement des films aux basses températures et que la qualité de la texture du film et de ses interfaces est d'autant plus importante que les films sont fins.

Nous supposons que pour cet échantillon, la transition TSI est induite par une interface Nb/Si rugueuse. Nous en discutons dans le chapitre 5.

## 4.6 Influence des procédés humides

Les solutions basiques permettent le retrait du niobium. Au bout de 60s à 45°C dans de la soude à 1mol/L, nous pouvons recycler la surface d'un substrat de saphir, sur laquelle était déposée un film de 4nm d'épaisseur de niobium.

Nous avons observé que le développeur LDD26 est invasif sur le niobium et contribue à l'affaiblissement des propriétés supraconductrices. Il est responsable de l'affaiblissement de la température de transition du film de 3nm étudié sous champ magnétique et présenté sur la

figure (fig.4.2).

Par contre, nous n'avons pas observé d'effet sur le NbN. Au contraire, pour ces dispositifs nous avons remplacé la soude par le LDD26 pour notre procédé de micro-fabrication des échantillons.

### Conclusion

La température de transition supraconductrice,  $T_c$  diminue avec l'épaisseur des films, tandis que le rapport de résistivité résiduelle RRR et la largeur de la transition supraconductrice augmentent.

Nous mesurons une transition supraconducteur-isolant en épaisseur. Elle a lieu sur une gamme très étroite. L'épaisseur critique est repoussée par une amélioration de la qualité cristalline des films. Elle est comprise entre 2.98nm et 2.5nm. Nous mesurons une résistance par carré des films à la transition qui est inférieure au quantum de résistance  $h/4e^2$ .

Nous mesurons une transition supraconducteur-métal sous champ magnétique. Le métal semble localisé à basse température et sous forts champs magnétiques. Du côté isolant de la transition, nous mesurons une magnétorésistance positive à 1K pour un film de 2.8nm. Ces mesures devront être confirmées en mesurant la dépendance en température de la magnétorésistance des films à la transition.

## Chapitre 5

# Interprétation de la perte de la supraconductivité

Dans cette partie nous interprétons nos résultats à partir de modèles théoriques existants sur la transition supraconducteur-isolant observée dans les films supraconducteurs. Tout d'abord, nous abordons les effets du désordre d'une part du côté isolant [30] et d'autre part du côté supraconducteur [31] de la TSI. Nous abordons ensuite les effets de proximité avec une éventuelle couche métallique à l'interface entre le niobium et le silicium. Nous proposerons ensuite d'interpréter les effets du désordre et de proximité comme ceux des perturbations du type "pair breaking". Enfin, nous confrontons notre étude aux modèles qui décrivent des transitions de phase quantiques qui nous semblent adaptés pour prédire d'une part le comportement de supraconducteurs homogènes [32] et d'autre part le comportement de supraconducteurs inhomogènes [33].

### 5.1 Effet du désordre

Un confinement du supraconducteur se traduit par une augmentation des effets du désordre [34][35] et des interférences électroniques [30]. Ces effets peuvent-ils être responsables d'une transition supraconducteur-isolant (TSI) ?

#### 5.1.1 Désordre et interférences du côté résistif de la TSI

Dans les systèmes ordonnés, la répulsion coulombienne tend à localiser les électrons. Ce sont des métaux où les interactions  $e^- - e^-$  sont fortes, car mal écrantées [34]. Même en l'absence d'interaction, le désordre induit des fluctuations spatiales de l'énergie potentielle telles que les niveaux d'énergie de sites voisins ne sont pas accessibles. Ceci entraîne une localisation des électrons et une transition vers un état isolant [35]. Ces effets s'interprètent par une diminution de la longueur de cohérence dans le métal normal qui devient très diffusif.



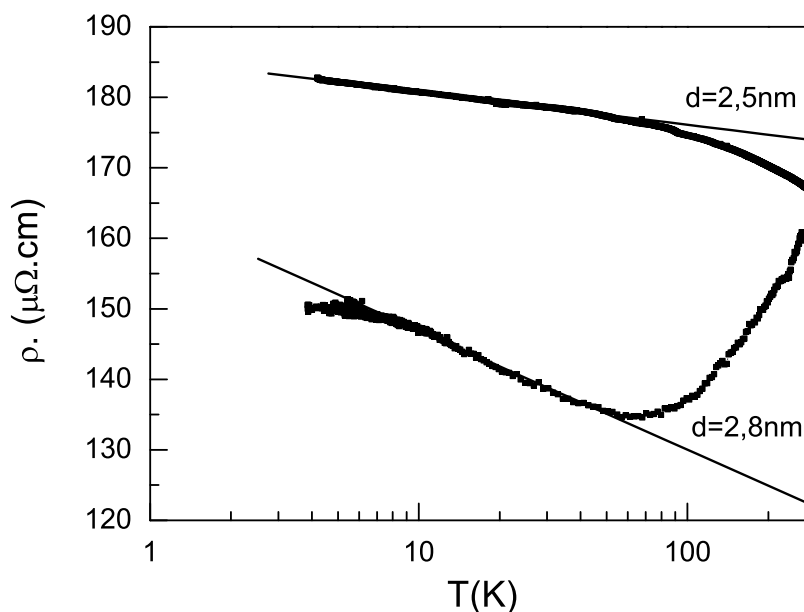


FIGURE 5.1 – Conductivité en fonction de la température des films résistifs de 2.8nm et 2.5nm d'épaisseur. Du côté isolant de la transition (TSI) en épaisseur, la conductivité des films suit une loi du type  $\sigma \propto -\ln(T)$ .

Le désordre augmente également la quantité des défauts dans le film et ainsi les collisions subies par les électrons de conduction. Dans ces systèmes, l'électron a une forte probabilité de revenir à son point d'origine. Les électrons suivent des chemins qui peuvent être décrits par des boucles qui tendent à les localiser. Cet effet se nomme la localisation faible.

Les effets des interactions et du désordre induisent une correction de la conductivité décrite par le modèle de Drüde. Le problème est que dans un système bidimensionnel ces deux corrections présentent la même dépendance logarithmique en température. Les deux contributions peuvent alors s'exprimer par une unique relation du type :

$$\sigma = a + b \ln(T) \quad (5.1)$$

La figure 5.1 présente la dépendance en température de la résistivité de deux films de niobium. Ces films ont une épaisseur de 2.8nm et de 2.5nm. Ils sont résistifs aux basses températures et sont donc du côté isolant de la TSI. La figure montre une remontée logarithmique de la résistivité des films en dessous de 60K. Ce comportement pourrait-il s'expliquer par un effet de localisation faible ?

Les chemins qui participent à la localisation faible sont des trajectoires qui sont symétriques

par renversement du sens du temps. Ce qui signifie qu'elles sont caractérisées par un sens de circulation opposée. Sous champ magnétique, ces interférences sont donc détruites. Une mesure de magnétorésistance permet donc de discriminer les deux contributions.

Nous avons effectué une mesure de magnétorésistance sur le film de 2.8nm d'épaisseur (elle est présentée dans le chapitre précédent). Nous avons observé que la magnétorésistance de ce film est positive à 1K. Ce film ne semble donc pas soumis à des effets de localisation faible. Cette mesure traduit par contre un effet d'anti-localisation, qui traduit un effet du couplage spin orbite qui intervient pour les métaux lourds. Ce résultat est cohérent avec des résultats obtenus sur des échantillons de niobium massif [26][27], [28]. Les effets d'anti-localisation favorisent la conduction des électrons et vont à l'encontre d'une augmentation de résistance aux basses températures. Les effets d'interférences ne semblent donc pas expliquer la remontée logarithmique de la résistivité des films de niobium à basses températures. Ce comportement pourrait il alors s'expliquer par un effet du désordre ?

Nos caractérisations structurales et électriques des films de niobium mettent en évidence l'influence grandissante des cristallites quand l'épaisseur des films est diminuée. L'interprétation par le désordre semble donc être cohérente.

L'existence d'un pseudogap de Coulomb a ainsi été démontrée dans des films ultra minces de plomb [36]. A notre connaissance aucune mesure n'a été réalisée sur des films ultra minces de niobium du côté isolant de la TSI. La spectroscopie locale serait une méthode adéquate et envisageable pour compléter cette étude.

### 5.1.2 Désordre et supraconductivité

Quel est l'effet du désordre sur les propriétés supraconductrices des films de niobium ? Une condition admise pour avoir un état supraconducteur dans un système à  $2D^1$  est la suivante [31] :

$$N(0)\Delta\xi_{loc}^2 \gg 1 \quad (5.2)$$

Cette relation compare l'énergie du gap supraconducteur  $\Delta$  et l'espacement des niveaux électroniques dans l'état normal,  $1/N(0)\xi_{loc}^2$ . Nous déterminons la longueur de cohérence des films supraconducteurs, proche de la transition en nous aidant de la relation  $\xi_{loc}^{2D} = \ell \exp(\frac{\pi}{2}k_F\ell)$ , [30]. Pour deux films de l'ordre de 3 nm et 5 nm, nous obtenons  $\xi_{loc} \sim 78nm$  et  $\xi_{loc} \sim 5.5\mu m$  respectivement. En prenant,  $N(0) = 0.91$  état/V.atom et  $\frac{\Delta(0)}{k_B T_c} = 3.8$ , soit  $\Delta(0) = 1.47eV, 1.63eV$ , respectivement pour  $d=3nm$  et  $d=5nm$ , nous obtenons :  $\rho \cdot \Delta_S \cdot \xi_{loc} \gg 1$ . Les films ne sont donc pas dans la limite fortement désordonnés [37]. Les films supraconducteurs restent de bons

1. 2D, 1D et 0D : une, deux puis trois des dimensions du supraconducteur sont inférieures à la taille des paires de Cooper.

métaux dans l'état normal, c'est aussi ce que nous avons constaté. Cependant le désordre peut-il affaiblir les propriétés supraconductrices des films ?

Nos études croisées sur la caractérisation en épaisseur de la texture et des propriétés électriques des films de niobium (présentées dans les chapitres 3 et 4) met en évidence une relation de causalité entre la qualité des films et de leurs interfaces avec leurs propriétés supraconductrices. En effet, nous avons montré qu'un dépôt à froid, impliquant une structure polycristalline, se traduit par un affaiblissement de la température de transition supraconductrice.

### Relations entre la température de transition supraconductrice et la résistance par carré

La figure 5.2 présente le comportement de la transition supraconductrice des films en fonction de la résistance par carré mesurée au dessus de la transition. Elle est normalisée par la valeur du niobium massif que l'on prend égale à 9.22K.

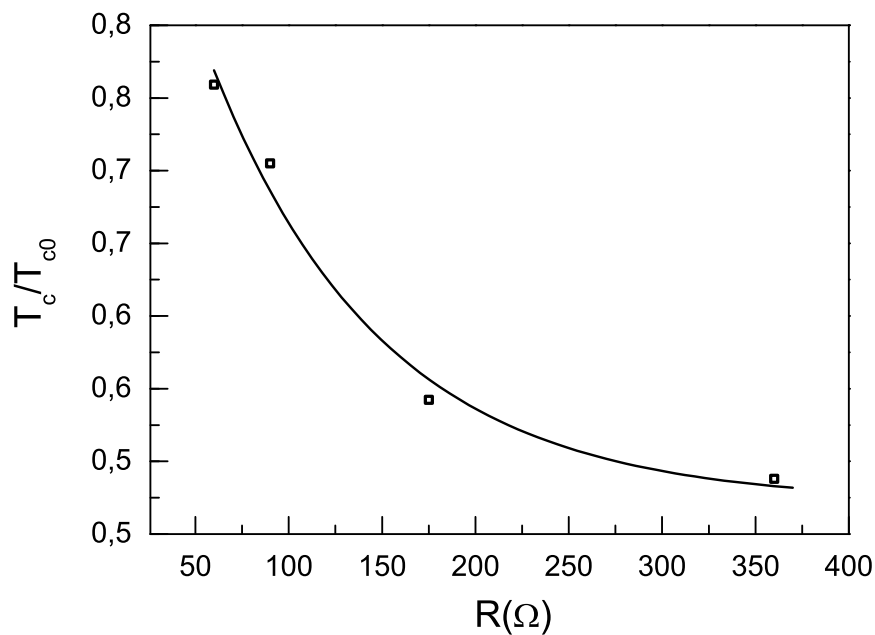


FIGURE 5.2 – Température de transition supraconductrice  $T_c$  normalisée avec la température correspondant au niobium massif ( $T_{c0} = 9.22K$ ) en fonction de la résistance par carré mesurée à  $T > T_c$  des films de niobium.

Nous observons un comportement semblable à celui présenté dans la littérature pour le niobium [38] mais aussi pour d'autres supraconducteurs en couche mince [39] [31]. Ce comportement est comparé aux modèles théoriques traitant des effets du désordre sur la température de transition supraconductrice [38]. Le modèle le plus employé est celui de Maekawa et de Fukuyama [40]. La description de  $T_c$  en fonction de  $R_{\square}$  est en général en accord avec les résultats loin de la TSI. Proche de la TSI, l'accord entre le modèle et les résultats est moins bon. Ce modèle est un développement en perturbation, tout à fait valide loin de la TSI mais qui l'est moins à mesure que l'on s'en approche.

A notre connaissance, le modèle le plus complet sur la dépression de la supraconductivité par les effets du désordre est le modèle décrit par A.M.Finkelstein [31]. C'est un calcul de renormalisation qui est valable à la TSI. Le point que nous souhaitons souligner est la valeur de résistance critique  $R_{\square c}$  à laquelle le modèle prédit la TSI,

$$R_{\square c} = \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left( 1/\ln\left(\frac{k_B T_{c0}\tau}{\hbar}\right) \right)^2 \quad (5.3)$$

avec  $\tau$  le temps de libre parcours moyen.  $R_{\square c}$  est inférieure à la valeur du quantum de résistance ( $R_K = h/4e^2$ ) et n'est pas universelle.

A la transition (TSI), nous trouvons  $R_{\square c} = 758\Omega \ll R_K$  avec  $\tau = \ell/v_F$ ,  $v_F$  la vitesse de fermi du niobium massif et  $\ell$  la valeur du libre parcours moyen d'un film de 2.98nm (déterminée dans le chapitre précédent). Le résultat est cohérent avec nos mesures avec  $600\Omega < R_{\square c} < 800\Omega$ .

Il nous semble que l'expression finale de  $T_c$  avec  $R_{\square}$  est relativement compliquée pour la comparer à nos données, où le nombre de points est limité par le manque de données ou par l'imprécision sur la mesure de la résistance par carré. Néanmoins nous avons d'autres données qui permettent d'apporter des éléments supplémentaires à cette interprétation.

### Relations entre la température de transition supraconductrice et le rapport de résistance résiduelle

Nous cherchons à exprimer  $T_c$  avec le rapport de résistance résiduelle pour lequel nous avons acquis plus de données. Pour cela, nous limiterons notre interprétation au modèle plus simple décrit par Maekawa et al [40] et Tagagi et al [41] qui traite des effets du désordre. L'expression de l'affaiblissement de la température de transition par un effet du désordre peut s'exprimer alors tel que,

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} = -\frac{e^2}{6\pi^2\hbar} g_1 R_{\square} \left( \ln \frac{v_F}{T_c \ell} \right)^3 \quad (5.4)$$

où  $g_1$  est la constante d'interaction<sup>2</sup> ( $e^- - e^-$ ). Nous considérons que  $R_{\square} \sim \rho_{ph}/(d \cdot RRR)$  et que dans la limite où l'épaisseur du film est supérieure au libre parcours moyen mais inférieure à la longueur des paires de Cooper ( $d \gg \ell$  et  $d \ll \xi$ ). Nous pouvons alors écrire  $\xi \sim av_F \ell / kT_c$  (avec  $a$  une constante de l'ordre de l'unité) et finalement nous obtenons la relation suivante,

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \sim -\frac{A}{d \cdot RRR} (B + 2 |\ln \ell|)^3 \quad (5.5)$$

en mettant en évidence les contributions qui nous semblent importantes, avec  $A = (e^2 \cdot \rho_{ph} \cdot g_1)/(6\pi^2 \hbar)$  et  $B = \ln(\xi k/a)$ .

Nous comparons l'expression de  $T_c$  avec nos données expérimentales à l'aide de la figure 5.3. Nous obtenons également une dépendance logarithmique de l'affaiblissement de la température supraconductrice avec une augmentation du rapport de résistance résiduelle.

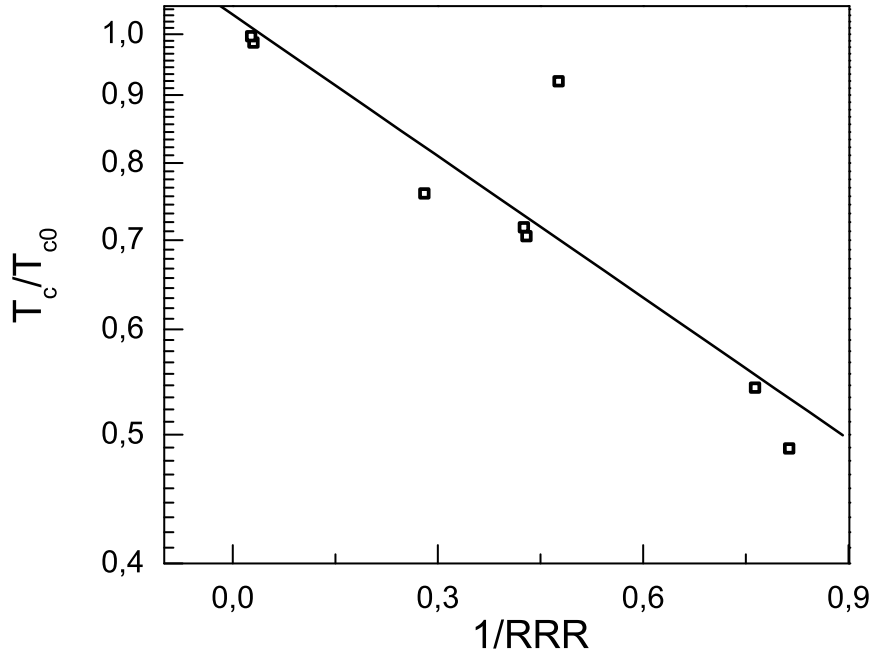


FIGURE 5.3 – Température de transition supraconductrice  $T_c$  normalisée avec la température correspondant au niobium massif ( $T_{c0} = 9.22K$ ) en fonction du rapport de résistance résiduelle  $RRR = R_{300K}/R_{T>T_c}$ .

Nous montrons à l'aide de la figure 5.4 la dépendance du rapport de résistivité résiduelle

2.  $g_1=1/2$  pour les interactions coulombiennes.

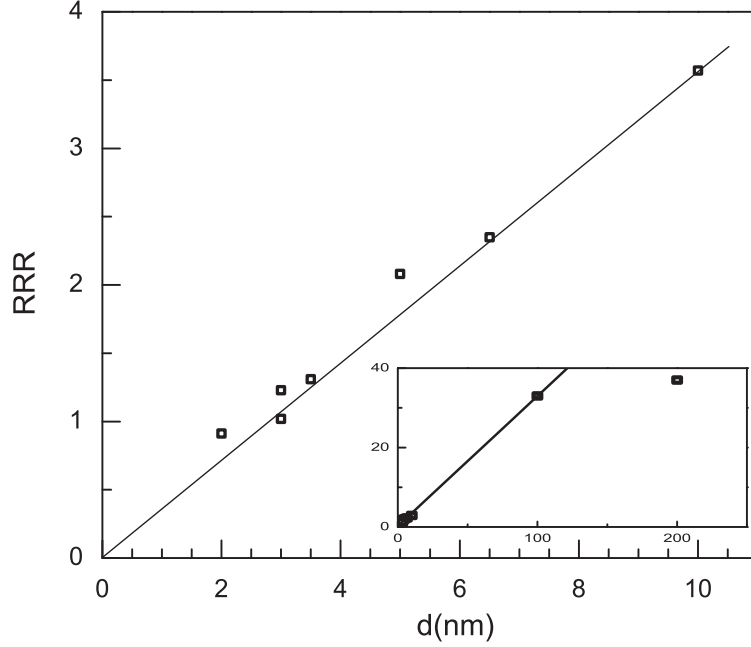


FIGURE 5.4 –  $RRR$  versus  $d$ . Tous les échantillons sont déposés à  $661^\circ\text{C}$  et hétéro-épitaxiés pour  $d_s \geq 4\text{nm}$ . La figure montre la dépendance linéaire du rapport de résistivité  $R_{\square}(300\text{K})/R_{\square}(10\text{K})$  avec l'épaisseur de Nb.

$RRR$  en fonction de  $d$ , l'épaisseur des films de niobium<sup>3,4</sup>. Les paramètres exacts du fit linéaire entre le rapport de résistance résiduelle ( $RRR$ ) et l'épaisseur des films ( $d$ ) sont :  $RRR = -0.05533(\pm 0.18) + 0.32984(\pm 0.0055)d$ . Nous soulignons cette dépendance linéaire par une droite passant par l'origine, compte tenu de l'incertitude du fit à l'origine. Des films épais de 100nm aux plus minces 2.5nm, nous obtenons donc :

$$RRR \sim 0.32984 \cdot d \quad (5.6)$$

Nous comparons ce résultat (eq.5.6) à l'expression (eq.5.5). Nous en déduisons une relation entre la température de transition supraconductrice et le libre parcours moyen des films, telle que

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \sim \frac{1}{d} \cdot |\ln \ell|^3 \quad (5.7)$$

3. Nous rajoutons à ces données la valeur du  $RRR$  des films résistifs, du côté isolant de la TSI

4. Pour les films supraconducteurs, la transition est précédée d'un plateau de résistance et le choix de la température n'a pas d'influence sur la mesure de  $R_{\square}$ . Au contraire du côté isolant de la TSI, la résistance n'est pas constante aux basses températures. Nous faisons ce choix car à notre connaissance c'est la température à laquelle les mesures sont le plus souvent référencées dans la littérature.

Nous avons simplifié l'expression pour mettre en évidence la contribution du libre parcours moyen. Pour cela, nous considérons que le libre parcours moyen est inférieur à la longueur des paires de Cooper ( $\ell \ll \xi$ ). Nous avons mesuré un rapport  $\xi/\ell$  de l'ordre 10 pour nos films de niobium (sec.).

Nous avons obtenu ce résultat (eq.5.7) à partir du modèle simplifié de Maekawa et al[40] et Tagagi et al [41]. Il nous permet de décrire l'effet du désordre sur l'affaiblissement de la température de transition supraconductrice à l'aide d'une relation plus simple, qui souligne la contribution du libre parcours moyen et de l'épaisseur des films.

## 5.2 Effet de proximité

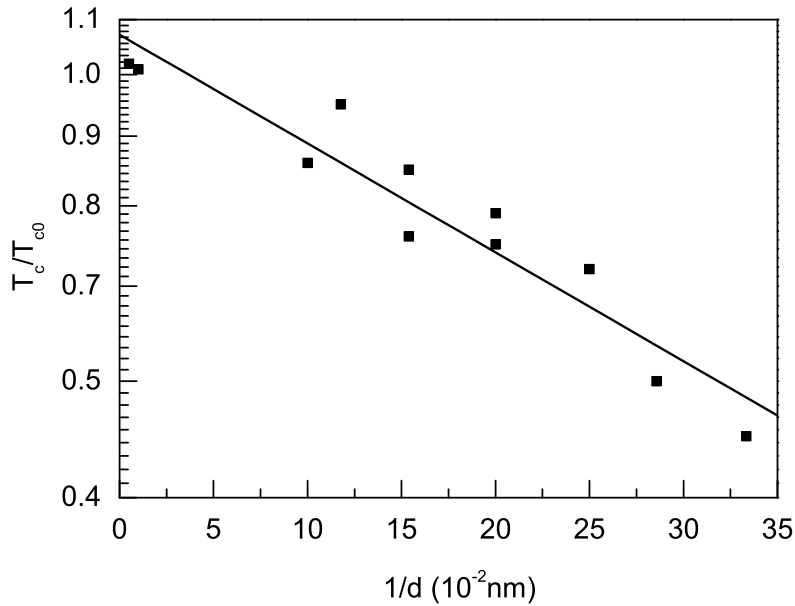


FIGURE 5.5 –  $T_c$  versus  $1/d_S \cdot 10^{-2}$ .  $T_c$  est obtenue à mi-hauteur de la transition supraconductrice, à partir des courbes  $R_{\square}(T)$ . La figure présente la dépendance linéaire de  $T_c$  en  $1/d_S$ . La pente de la courbe en  $\ln T_c \sim 1/d_S$  correspondante, nous donne une estimation de la couche normale, qui dans un modèle d'effet de proximité explique la diminution de  $T_c$  avec l'épaisseur des films. A partir de la relation 5.8, nous obtenons  $d_N \sim 0.5 \text{ nm}$  [42].

Nous discutons à présent nos résultats avec une seconde interprétation qui est communément utilisée pour expliquer l'affaiblissement de la supraconductivité dans les films ultra-minces. Ce modèle est celui d'un effet de proximité entre le supraconducteur et une couche métallique.

Dans un film supraconducteur dont l'épaisseur est de l'ordre ou inférieure à sa longueur de cohérence supraconductrice, la présence d'une couche normale influence ses propriétés supraconductrices. En particulier, pour un système bicouche supraconducteur normal, (SN), l'existence d'un bon contact a pour effet de diminuer le potentiel d'appariement du côté supraconducteur et de l'augmenter du côté du métal normal. Ces effets sont communément appelés effets de proximité. Les réflexions d'Andreev sont porteuses de l'effet de proximité. Leur cohérence diffuse l'état supraconducteur dans des systèmes résistifs [43] [44] [45] et peuvent expliquer la dépression des propriétés supraconductrices par rapport au matériau massif dans un film supraconducteur qui n'est pas isolé.

Dans la limite faiblement désordonnée d'Anderson, le métal et le supraconducteur sont considérés uniformes. Les longueurs pertinentes sont les épaisseurs des deux films et leur longueur de cohérence,  $d_N, d_S, L_\phi, \xi_S$ . Dans l'état normal, la longueur de cohérence  $L_\Phi$  est définie par  $L_\Phi(T) = \sqrt{v_F^2 \tau \tau_\phi}$ .

Notre système s'interprète dans la limite de Cooper, avec  $d_N, d_S \ll L_\phi, \xi_S$ . Le potentiel de paire est modifié à proximité d'une couche normale. En exprimant un potentiel effectif moyen tenant compte de la présence de cette interface, nous pouvons exprimer  $T_c$ .

$$k_B T_c = 1.13 \hbar w_D e^{-1/[NV]_{S+N}} \text{ avec } [NV]_{S+N} = \frac{d_s N_s^2 V_S + d_N N_N^2 V_N}{N_s d_s + N_N d_N}$$

Avec  $w_D$  la fréquence de Debye,  $\rho$  le potentiel effectif moyen,  $N_{S,N}$  la densité au niveau de Fermi dans le supraconducteur et le métal et  $V$  est le potentiel d'appariement. En considérant  $V=0$  dans le métal, nous obtenons :

$$\frac{k_B T_c}{T_{c0}} = \left( \frac{T_{c0}}{1.13 \hbar w_D} \right)^{d_N N(N)/d_s N(s)} \quad (5.8)$$

Nous comparons ce résultat à nos données expérimentales. En exprimant  $T_c$  telle que,

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \sim d_N \cdot \frac{1}{d} \times Cte \quad (5.9)$$

la pente du fit présentée sur la figure 5.5) donne directement accès à l'épaisseur de la couche normale supposée pour avoir un affaiblissement de la température de transition supraconductrice par effet de proximité. Cette donnée est une valeur moyennée sur tous les échantillons. Sa présence est discutée à l'interface Nb- $Al_2O_3$  et à l'interface Nb-Si.

De la caractérisation structurale des films de niobium, nous avons déduit qu'il est peu probable qu'une couche NbO métallique existe à l'interface saphir/niobium. Par contre, nous avons montré que l'interface NbSi était étendue et qu'une diminution de sa rugosité pouvait diminuer l'épaisseur critique mesurée à la TSI. Pour une stoechiométrie comprise entre



$0.2 < x < 1$ , l'alliage  $Nb_xSi_{1-x}$  est métallique [20] [46]. Le Nb est un matériau guetteur. Un dépôt effectué à  $80^\circ\text{C}$  pourrait éventuellement conduire à la formation de cet alliage.

L'étude de Yoshii et al [38] également menée sur des films de Nb hétéro-épitaxiés sur saphir aboutit à cette même observation. L'épaisseur de la couche normale est estimée à  $d_n \sim 0.3\text{nm}$ . Les valeurs présentées de la  $T_c$  sont plus élevées que celles que nous obtenons. Cette différence peut être reliée à une couche normale plus fine, mais aussi à la nature de la couche de protection. Ils déposent en effet un film de protection de  $3\text{nm}$  d'épaisseur sélénium (Se). De plus, leurs films de niobium sont déposés à  $700^\circ\text{C}$ . Ces films minces sont moins désordonnés.

### 5.3 Des perturbations de type "pair breaking"

Le formalisme qui décrit les effets des perturbations de pair breaking, aboutit à une relation générale et simple [47], qui permet la description de l'affaiblissement des propriétés supraconductrices. Il a été développé pour décrire les effets des impuretés magnétiques, puis il a été étendu à toutes perturbations magnétiques [48], [49].

A partir des fluctuations de la phase ou de l'amplitude du condensat, ce formalisme permet de relier la perturbation à la température critique. Dans l'approximation où le rapport  $T_c/T_{c0}$  est proche de 1, le modèle aboutit à la forme simplifiée,

$$k [T_{c0} - T_c] = \frac{\pi\alpha}{4} \quad (5.10)$$

La dépression de  $T_c$  est linéaire avec l'énergie de pair breaking,  $\alpha$ , qui prend le caractère d'un paramètre universel.  $\alpha$  correspond à l'énergie de la perturbation, elle est reliée à un temps de cohérence  $\tau_K$  par la relation suivante :

$$2\alpha = \frac{\hbar}{\tau_K} = 1.76kT_C \quad (5.11)$$

Ce formalisme décrit la dépression continue des propriétés supraconductrices. Dans ce sens, ce formalisme tend vers la description d'une transition S-I du  $2^{nd}$  ordre avec une brisure de symétrie.

A l'aide de la figure 5.6, nous mettons en évidence les similitudes entre les effets de désordre et de proximité. Ces courbes correspondent aux données présentées précédemment, avec pour un effet du désordre :

$$\ln T_c \sim 2.26 - 0.82 \frac{1}{RRR} \quad (5.12)$$

et pour un effet de proximité :

$$\ln T_c \sim 2.26 - 1.8 \frac{1}{d} \quad (5.13)$$

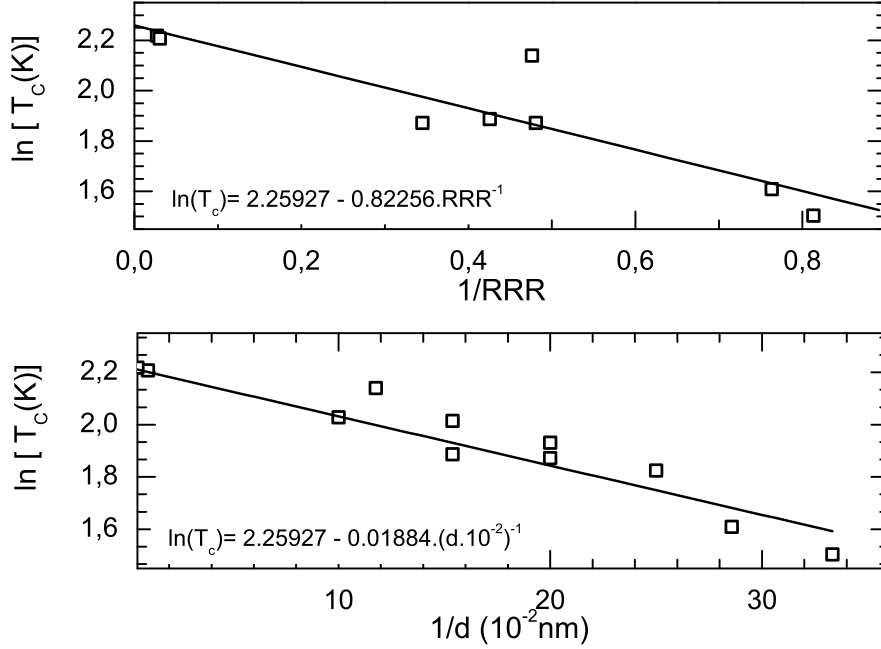


FIGURE 5.6 – Température de transition supraconductrice en fonction de l'inverse du rapport de résistance résiduelle (haut) et de l'épaisseur (bas) des films de niobium. La figure souligne les similitudes entre les effets du désordre et de proximité sur la température de transition supraconductrice ainsi que celles observées avec les effets des perturbations de type "pair breaking".

La valeur 2.26 correspond au logarithme népérien de la température de transition du niobium massif  $\ln T_{c0} = 2.26$ . Nous retrouvons exactement les résultats précédents, qui nous ont permis de qualifier l'effet du désordre :

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \sim -0.82 \frac{1}{RRR} \quad (5.14)$$

et pour un effet de proximité :

$$\ln \frac{T_c}{T_{c0}} \sim -1.8 \frac{1}{d} \quad (5.15)$$

Nous remarquons que sur une décade l'échelle logarithmique est peut significative et que nous retrouvons le même comportement linéaire pour  $T_c/T_{c0} \sim 1$ . Nous commençons à observer des écarts pour la dépendance linéaire de  $T_c(RRR)$  aux valeurs proches de  $T_c/T_{c0} \sim 0.5$ .

Nous montrons alors que pour  $T_c/T_c \sim 1$ , par analogie avec le formalisme de paire breaking (eq.??) nous obtenons

pour un effet du désordre :

$$2\alpha = \frac{8kT_{c0}}{\pi} \left( 1 + \frac{b}{RRR} \right) \quad (5.16)$$

et pour un effet de proximité :

$$2\alpha = \frac{8kT_{c0}}{\pi} \left( 1 + \frac{b}{d_s} \right) \quad (5.17)$$

avec  $b$  déterminé par le fit (fig.5.6) et les modèles précédents.

Pour un effet de proximité,  $b = d_N \times \ln(T_{c0}/1.13\hbar w_D)$ .

Pour un effet du désordre,  $b = A(B + 2 | \ln \ell |)^3/d$ ,  $A$  et  $B$  étant défini précédemment (eq.5.5).

Par cette approche, nous proposons donc une interprétation commune aux effets du désordre et de proximité sur la dépression de la supraconductivité dans des films ultra-minces, qui s'opposent à l'appariement des paires de Cooper

## 5.4 Transition de phase quantique

La grande différence avec les interprétations précédentes est que le formalisme de Fisher décrit une transition du premier ordre. Il n'y a pas de brisure de symétrie, l'amplitude du paramètre d'ordre est non nulle, la densité de paires de Cooper reste inchangée à la transition. Les paires de Cooper sont gelées et les vortex libres. L'état dissipatif domine alors les propriétés de transport. Le modèle est formalisé par la théorie de renormalisation des groupes. Des exposants critiques décrivent la transition. Ils gouvernent les longueurs caractéristiques qui sont la longueur de cohérence thermique  $\xi_T$  et la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ . Fisher définit une résistance critique universelle, comme séparatrice entre une phase supraconductrice et un réseau de vortex.

$$\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2 = \left( \frac{\hbar}{4e^2} \right)^2 \quad (5.18)$$

La dépendance en température de la résistance du film est alors définie par :

$$R_{\square} = R_c (\delta/T^{1/z\nu}) \quad (5.19)$$

avec  $z$  et  $\nu$  les exposants critiques [24]. La limite  $R_{\square} = \hbar/4e^2$  sépare l'état supraconducteur de l'état isolant. Ce modèle est valide pour les supraconducteurs 2D homogènes.

Un supraconducteur est dit homogène si les variations spatiales du supraconducteur sont inférieures à la taille du coeur d'un vortex,  $50\text{\AA}$ . Les films homogènes présentent une transition directe entre un état supraconducteur et localisé. Les films inhomogènes présentent des états intermédiaires. Nous observons un comportement isolant, métallique, partiellement supraconducteur, et finalement complètement supraconducteur.

A la transition en épaisseur (TSI), les valeurs expérimentales des résistances par carré des films de Nb sont inférieures au quantum de résistance,  $R_{\square} \simeq 760\Omega$ . Cet écart avec le modèle de Fisher pourrait s'expliquer par la transition structurale, entre des films hétéro-épitaxiés et polycristallins, suggérée par la caractérisation aux rayons X. Les films tendraient alors vers un comportement de type supraconducteur inhomogène. Cette hypothèse est en accord avec l'augmentation du rapport de résistivité résiduelle et l'élargissement à la transition supraconductrice. Les mesures de transport que nous effectuons sont macroscopiques. Elles correspondent à des moyennes d'ensemble. Sauf par des mesures locales effectuées par microscopie tunnel, nous n'avons pas accès aux fluctuations mésoscopiques de notre système. Or une telle mesure a été faite par l'équipe de H. Courtois<sup>5</sup>. La figure montre des fluctuations locales en surface. La taille des grains mesurée est de l'ordre de 5nm (fig.1).

Le modèle de Feigelman, Larkin et Skvortsov décrit la transition supraconducteur-métal-isolant dans des systèmes granulaires. Il nous apparaît être une bonne synthèse entre les effets combinés du désordre et de proximité cette fois-ci entre cristallites supraconductrices. Le film est modélisé par un réseau grains supraconducteurs couplés par une interaction Josephson à longue portée<sup>6</sup> dans une matrice métallique faiblement désordonnée. L'espacement  $b$ , entre les grains est inférieur à la longueur de cohérence du métal normal  $L_{loc}$  et supérieur à leur taille  $d$ , tel que  $d \ll b < L_{loc}$ . La cohérence des réflexions d'Andreev entre ces grains est le paramètre de la transition. De la même manière que précédemment, cette transition peut être caractérisée par un temps de décohérence de l'état supraconducteur. Il correspond au temps de décohérence des réflexions d'Andreev que subit la paire diffusant dans les joints de grains normaux,  $\tau_c$ . A la transition supraconducteur-métal, la cohérence de la paire de Cooper est perdue au cours de sa diffusion dans la matrice normale. Les grains supraconducteurs sont isolés et le transport dominé par les zones normales résistives. La transition supraconducteur-isolant apparaît lorsque le système est suffisamment désordonné, pour localiser les électrons des zones normales. Dans ce cas, elles tendent vers un comportement isolant à basse température. La température de transition supraconductrice et le champ critique,  $T_c$  et  $H_{c2}$ , sont déterminés via la dépendance en champ et en température du couplage Josephson, tels que

$$\ln \frac{T^*}{T_c(b)} \approx \ln \left( \frac{\Phi_0}{H_{c2}(0)b^2} \right) \approx \frac{2\ln(b/d)}{b_c^2(g)/b^2 - 1} \quad (5.20)$$

avec  $T^* = \hbar D/b^2$  pour  $T^* > T > T_{loc} \approx \hbar/\tau_{tr}e^{\pi^2 g}$ . La première condition,  $T_c < T^*$ , assure le caractère longue portée de l'interaction Josephson<sup>7</sup> et la seconde permet de négliger les effets de localisation faible. La transition a lieu pour un résistance par carré inférieure au quantum

5. Institut Néel, CNRS, Grenoble

6.  $J_{ij} = \frac{1}{r_{ij}^2} \ln(-c \frac{r_{ij}}{L_T})$

7. ie de la cohérence des réflexion d'Andreev ou de l'effet de proximité

de résistance :

$$R_{\square c} = \frac{\hbar}{e^2 g_c} \approx \frac{\hbar}{e^2} \left[ \left( \frac{1}{\pi} \ln \frac{b}{d} \right) \right] \quad (5.21)$$

soit pour un rapport  $\ln \frac{b}{d} \gg 3$ , la transition quantique a lieu pour une  $R_{\square c} < R_q$ <sup>8</sup>. La question de l'universalité de la résistance critique à la transition T=0 n'est pas remise en cause et reste non résolue. Le régime de validité de cette théorie s'étend pour l'instant au cas  $g \gg 1$  avec  $T^* > T > T_{loc}$ .

Aux plus faibles épaisseurs des films de niobium, les mesures de diffraction en incidence rasante révèlent la présence de cristallites dont les dimensions sont de l'ordre de 4nm. A la transition, nous déterminons un espacement entre les grains tel que :  $b \simeq 7nm$ , à partir de la relation 5.21, avec  $R_{\square} \simeq 760\Omega$ . Cet espacement est du même ordre de grandeur que les caractérisations aux rayons X et en champ proche de nos films de niobium.

Si une transition de phase quantique est avérée dans nos films de niobium, alors le modèle de Feigelman, Larkin et Skvortsov semble le mieux adapté pour la décrire. La mise en évidence d'un état métallique à la transition apporterait des éléments de réponses supplémentaires. Les mesures sont en cours...

---

8. de même pour  $R_n$  tel que  $R_n = \frac{R_{\square c}}{\pi} \ln \frac{b}{d} \approx 3R_q (\ln \frac{b}{d})^{-1}$

## Chapitre 6

# Conclusion

A partir des mesures croisées de réflectivité et de diffraction par rayons X nous avons montré que nos films de niobium de 10nm à 4nm d'épaisseur sont hétéro-épitaxiés  $(100)_{Nb} // (1\bar{1}02)_{Al_2O_3}$ . Aux plus fines épaisseurs, nous montrons que les films sont polycristallins. Nous déterminons alors la taille des cristallites désorientées, de l'ordre de quelques nanomètres, selon de l'épaisseur du film.

D'autre part, nous montrons que l'hétéro-épitaxie dépend de la température d'évaporation des films. Celle ci est d'autant plus élevée que les films sont minces.

Un mode de croissance couche par couche par nucléation sur les bords des surfaces vicinales du substrat de saphir semble être cohérent avec nos observations. Des dépôts à des températures plus élevées peuvent être envisagés pour améliorer l'hétéro-épitaxie aux plus fines épaisseurs. Une étude RHEED permettrait de qualifier l'épitaxie durant les premiers stades de croissance et de compléter notre étude structurale en fonction de l'épaisseur des films de niobium.

Notre caractérisation électrique des films aux basses températures, montre une transition supraconducteur-isolant en épaisseur. La transition a lieu sur une gamme très étroite  $2.5nm < d < 2.98nm$  et pour une résistance critique  $750\Omega$  inférieure au quantum de résistance,  $h/4e^2$ . La magnétorésistance positive des films ne permet pas d'interpréter leur comportement isolant aux basses températures par des effets d'interférences électroniques. Par contre, l'effet du désordre pourrait conduire à localiser les électrons de conduction dans les films les plus minces. Cette approche est cohérente avec la caractérisation structurale.

Nous montrons que la qualité cristalline des films et celle de leurs interfaces améliorent leurs propriétés supraconductrices. Les dépôts à chaud augmentent la température de transition supraconductrice ( $T_c$ ) et de plus faibles rugosités à l'interface NbSi repoussent l'épaisseur critique à laquelle a lieu la TSI.

Nous montrons que les effets du désordre et de proximité avec une couche métallique peuvent être prédits par le formalisme de "pair breaking". Ces dernières perturbations tendent à briser

les paires de Cooper tandis que les effets du désordre et de proximité s'opposent à l'appariement des électrons en paires de Cooper.

Les effets du désordre et des interfaces peuvent être contournés par l'amélioration des techniques de dépôt et de nanostructuration. Ces effets ne permettent pas d'interpréter une transition de phase quantique entre un état supraconducteur et un état métallique voir isolant.

Nous comparons les résultats de notre étude structurale à des mesures de spectroscopie locale. Nous montrons que même les films hétéro-épitaxiés sont homogènes mais granulaires. Les grains sont des cristallites dont la taille reste inférieure à la longueur de cohérence supraconductrice. Pour les plus fines épaisseurs (2.8nm et 2.5nm), du côté isolant de la TSI, nous n'avons pas pu qualifier ces cristallites.

Nous pensons donc que le modèle de Feigelman, Larkin et Skvortsov serait le mieux adapté pour décrire une possible transition de phase quantique dans nos films ultra-minces de niobium. Nous remarquons que ce modèle traduit aussi un effet de proximité entre les grains supraconducteurs. A la transition, la cohérence des réflexions d'Andreev est perdue. Du côté isolant de la TSM, l'état résistif est un état métallique qui pourrait être localisé par les effets du désordre.

Deuxième partie

Limite du transport dans un nanofil  
supraconducteur





# Chapitre 1

## Introduction

Dans cette partie, nous présentons les effets des fluctuations thermodynamiques qui ont lieu dans des rubans supraconducteurs dont la section est de l'ordre de  $100nm^2$ . Après une introduction aux régimes dissipatifs existants dans les supraconducteurs confinés, nous présentons nos résultats <sup>1</sup> en essayant de les interpréter avec les modèles existant sur les régimes dissipatifs.

### 1.1 Le contexte

Les supraconducteurs sont soumis à des perturbations qui tendent à briser les paires de Cooper. Ces perturbations sont écrantées par des fluctuations de la phase ou de l'amplitude du paramètre d'ordre. Dans le cas de matériaux massifs, ces fluctuations sont difficiles à observer. Les caractéristiques de transport sont dominées par celles du supraconducteur massif.

Elles sont par contre observables dans des volumes restreints et dominent les propriétés de transport dans les films (chap.1) ou les fils [50][51][52]. Les dimensions du système sont comparables à la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ . Le courant traversant le fil est sensible aux effets sentis par ses bords (fig.1.1).

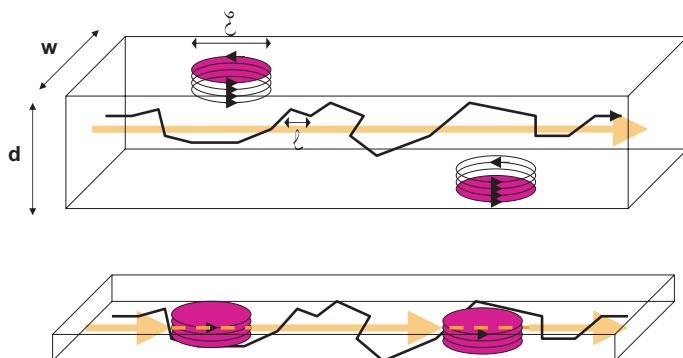


FIGURE 1.1 – Influence de la taille du circuit sur le transport des paires de Cooper.

1. Les mesures ont été réalisées sur des nanofils de NbN dont la géométrie a été adaptée pour la détection optique. Elle est présentée dans la troisième partie de ce manuscrit(Part.III).

Dans un nanofil, le transport est mésoscopique. Aux plus basses températures, une dimension du système reste très grande devant la longueur de cohérence supraconductrice,  $\xi$ . Les deux autres sont inférieures ou de l'ordre de  $\xi$ . La mesure est alors sensible aux fluctuations du condensat supraconducteur. Elles peuvent être induites par la mesure du nanofil ou par une perturbation, ce qui en fait un bon détecteur quantique. La figure 1.2 présente un exemple où les fluctuations du condensat permettent le fonctionnement d'un interféromètre quantique magnétique [53]. Les jonctions Josephson d'un SQUID classique sont ici des liens faibles.

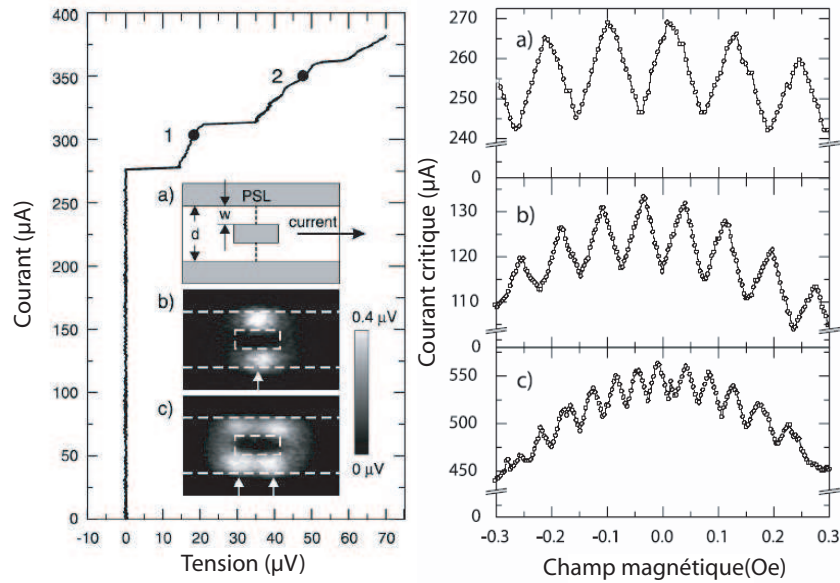


FIGURE 1.2 – Réalisation d'un SQUID dont les jonctions peuvent être vues comme des glissements de phase (PSL). La figure de droite présente les sauts de tension associés aux PSL dans la caractéristique courant-tension du dispositif. À droite, la figure montre les modulations du courant critique en fonction du champ magnétique piégé dans la boucle du SQUID. Travaux de Sivakov et al [53].

L'existence d'une transition supraconductrice est avérée pour des grains métalliques de taille nanométrique [54] [55]. Néanmoins, il semble plus difficile de réaliser le transport d'un supercourant dans un nanofil métallique [56] [57] [58]. Des travaux menés sur des nanofils de MoGe [59] et d'Al [60], montrent l'existence d'une transition de l'état supraconducteur vers l'état isolant pour des sections de nanofil inférieures à  $100\text{nm}^2$ .

Nous avons montré dans le chapitre précédent que le désordre et les contacts métalliques affaiblissaient le gap supraconducteur. Les dispositifs sont aussi très affectés par la nanostructuration. Pour réduire ces effets sur la supraconductivité de nos échantillons, nous cherchons à obtenir des fils de meilleure cristallinité. Pour cela, nous avons choisi de fabriquer et

de mesurer le transport mésoscopique dans des nano-rubans de niobium et de nitrure de niobium réalisés par une technique de lithographie originale. L'anodisation locale sous AFM d'un film ultra mince métallique nous permet de réaliser des lignes d'oxyde de 15nm de résolution permettant d'isoler des nanofils, épitaxiés sur saphir, de section  $\sim 100nm^2$ . Nous présentons les dispositifs testés dans le chapitre suivant.

## 1.2 Les régimes dissipatifs

Face à des perturbations thermiques, magnétiques, ou liées au désordre et aux effets de proximité, le paramètre d'ordre supraconducteur ajuste sa phase et son amplitude pour préserver un état cohérent et le passage d'un supercourant. Ces fluctuations induisent une tension non nulle aux bornes d'un supraconducteur, en accord avec l'équation de Josephson :

$$\delta\varphi/\delta t = 2eV/\hbar \quad (1.1)$$

De telles fluctuations existent aussi pour des supraconducteurs massifs mais uniquement dans un intervalle,  $\Delta T \sim |T_c - T|/T_c < 10^{-12}$  [61], très proche de la température critique  $T_c$ . Dans un volume restreint, tel un film (2D) ou un nanofil (1D), ces fluctuations sont observables sous  $T_c$  par des mesures de transport.

Nous distinguerons trois régimes dissipatifs : induit par le mouvement des vortex, par des glissements de phase et par des points chauds. Dans cette partie, nous définissons ces fluctuations et présentons succinctement leur effet sur la caractéristique  $I(V)$  d'un fil supraconducteur.

### 1.2.1 Le régime de Flux-Flow

Dans les supraconducteurs de type II, il existe un état mixte où des zones normales et supraconductrices coexistent. Les zones normales peuvent être des vortex, qui apparaissent quand on applique un champ magnétique. Dans des films ou des rubans, les vortex peuvent apparaître sans la présence d'un champ magnétique. L'énergie thermique est alors suffisante pour induire ces fluctuations de phase.

En présence d'un courant électrique, les vortex libres sont soumis à la force de Lorentz. Si les vortex ne sont pas piégés, ils acquièrent une vitesse non nulle et circulent à travers l'échantillon. Leur mouvement induit un champ électrique qui s'oppose au passage du courant. La résistance résiduelle induite sous  $T_c$  dépend alors de la densité de vortex libre.

Dans la limite classique, les vortex sont des fluctuations thermodynamiques. En dessous d'une certaine température, caractérisant la transition de Kosterlitz Thouless[62](sec.2.1), la densité de vortex libre est nulle et il n'y a pas de dissipation. Néanmoins, un apport d'énergie

extérieur, comme un fort courant par exemple, peut induire des excitations de vortex et une résistance non nulle sous la transition de Kosterlitz Thouless.

Si le système ne possède pas de centre de piégeage de vortex, une résistance apparaît (fig. 1.3 LFF). Dans des rubans, ces excitations existent si la largeur  $w$  du fil satisfait au critère de Likharev [63], tel que  $w > 4.4\xi$ . Nous comparons nos mesures avec ce régime dissipatif dans le chapitre 2

### 1.2.2 Les glissements de phase

Dans les systèmes quasi 1D (ruban ultra-mince), les fluctuations de phase sont associées à des lignes de glissement de phase (PSL) et dans le cas purement 1D, à des centres de glissement de phase (PSC).

Les fluctuations de phase autorisent une annihilation du paramètre d'ordre sur une longueur au moins égale à la longueur de cohérence supraconductrice,  $\xi$ . Ceci permet de réduire la vitesse du condensat lorsqu'il est soumis à un champ électrique par exemple. Sans ces sauts de phase, l'accélération du condensat serait constante<sup>2</sup> (eq.1.2).

$$\frac{\delta v_s}{\delta t} = \frac{eE}{m} \quad (1.2)$$

Pour préserver un état supraconducteur, la phase varie de  $\pm 2\pi$  à la fréquence Josephson, telle que  $w = 2eV/\hbar$ . A chaque fluctuation,  $v_s$  atteint la vitesse critique, les paires de Cooper se brisent et leur densité s'annule. La vitesse du condensat diminue, la supraconductivité peut réapparaître et ainsi de suite<sup>3</sup>. Le courant de paire de Cooper oscille autour d'une valeur moyenne qui dépend de la densité d'électrons normaux excités dans le coeur de la fluctuation (sec.3.1). Les glissements de phase induisent des sauts de résistance d'amplitude constante (fig.1.3 (SBT))[64] dans les caractéristiques  $I(V)$  des nanofils. Nous présentons ces résultats dans le chapitre 3.

### 1.2.3 Régime de point chaud

Un point chaud est une zone normale qui s'étend sur une longueur  $L > \xi$ . Le point chaud est un phénomène dissipatif classique d'effet Joule. Il est stable, lorsque l'équilibre thermique entre la puissance dissipée par effet joule dans la zone résistive est égale à la puissance de refroidissement par couplage thermique au substrat. Le point chaud, régresse, se stabilise ou s'étale en fonction du courant de polarisation [65].

Le régime de point chaud se caractérise par un plateau de courant constant sur la caractéristique  $I(V)$  d'un nanofil polarisé en tension (fig.1.3 Point chaud)[66]. Le courant de point

2. La relation est déduite de la relation de Josephson (eq.1.1) sans champ magnétique.

3. Près de  $T_c$  et pour  $v = v_s$ , le courant supraconducteur est ainsi inférieure au courant critique de « depairing »  $I < I_c$  (non linéarité décrite par la théorie de Ginzburg Landau)

chaud,  $I_h$  nécessaire à l'étalement de cette zone résistive, est inférieur au courant critique  $I_c$  en dessous d'une température,  $T^*$  avec  $T^* < T_c$ . Dans ce cas un PSC n'est pas stable. Il s'étend en un point chaud. Nous présentons ces résultats dans le chapitre 4.

Nous résumons ces effets sur le transport dans un ruban supraconducteur à l'aide de la figure 1.3 (inspirée de [67]).

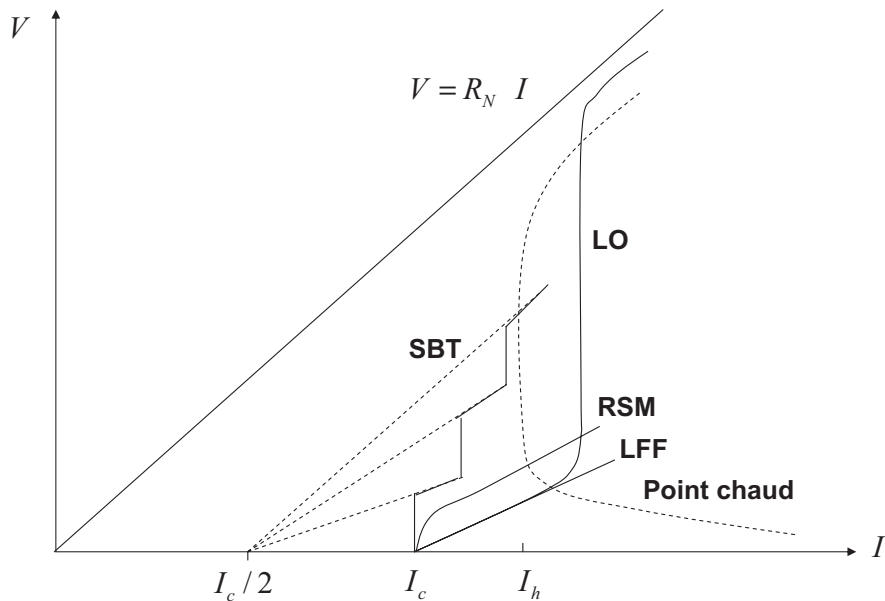


FIGURE 1.3 – Représentation schématique des effets des régimes dissipatifs dans la caractéristique courant-tension d'un supraconducteur mésoscopique. On distingue une dissipation induite par des vortex non appariés. Elle est décrite par le modèle du flux flow linéaire (LFF) et de l'instabilité de Larkin-Ovchinnikov (LO). L'état dissipatif apparaît à  $I=I_c$ . Le régime des centres de glissement de phase caractérisé par des sauts de résistance d'amplitude constante est décrit par le modèle de Skocpol, Beasley et Tinkham (SBT) et par celui de Rieger, Scalapino et Mercereau (RMS). Les pentes suivant chaque saut convergent vers une valeur non nulle du courant  $I_c/2$ . Finalement le régime de point chaud est caractérisé par un plateau de courant constant à  $I = I_h$ , avec  $I_h < ou > I_c$  dépendant de la température. (Figure inspirée de [67].)



# Chapitre 2

## Le régime de Flux-Flow

Dans ce chapitre, nous expliquons plus en détail le régime dissipatif induit par le mouvement des vortex. Nous montrons ses effets sur la résistance résiduelle de nos rubans de nitrure de niobium. Nous présentons également l'énergie nécessaire à la brisure des paires de vortex-antivortex (PVAV) en estimant la température de transition de Kosterlitz Thouless. En particulier, nous cherchons à savoir si de telles fluctuations peuvent avoir lieu dans des nanofils de NbN.

### 2.1 Les modèles

#### 2.1.1 Description de la transition de Kosterlitz Thouless

La transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless [68] [69] [62] définit la température en dessous de laquelle l'énergie thermique n'est pas suffisante pour induire une excitation de vortex. En dessous de  $T_{KBT}$ , le densité de vortex libre est nulle.

L'énergie de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless,  $k_B T_{BKT}$ , correspond à l'énergie que coûte la création d'une paire vortex-antivortex (PVAV),  $U_{dp}$ . Elle est normalement trop élevée pour induire l'apparition d'une résistance résiduelle en l'absence de champ magnétique. Cependant dans des films minces,  $d \sim \xi$ , cette énergie peut être comparable à  $k_B T$ .

La présence d'un vortex dans le supraconducteur induit une valeur non nulle de la circulation  $\oint \vec{\nabla} \varphi \cdot d\vec{r} = 2\pi n$ . Sans champ magnétique, nous déduisons  $\vec{v}_s = \hbar n / m r \cdot \vec{u}_r$  avec  $v_s = 1/2m(\hbar \nabla \varphi - 2e/h\vec{A}) = \hbar \nabla \varphi / 2m$ . L'énergie que coûte un vortex au supraconducteur correspond à son énergie cinétique [70]. En considérant que la densité des paires de Cooper au coeur du vortex est égale à la moitié de la densité électronique normale<sup>1</sup>  $n_s/n_N = 1/2$  [56],

---

1. Dans le modèle de Gorter-Casimir,  $n_s/n_N = (1 - (T/T_c)^4)/(T/T_c)^4$ .



l'énergie associée à un vortex libre est telle que

$$U_{dp} = \frac{1/2}{n_s} \int m v_s^2 dr^2 \quad (2.1)$$

En remplaçant l'expression de  $v_s$ , on obtient la relation suivante avec un tour de phase ( $n=1$ ) :

$$\frac{dU_{dp}}{dr} = \frac{\pi n_s \hbar^2}{2 m} \frac{1}{r}, \text{ pour } r \ll \lambda \quad (2.2)$$

$\lambda$  est la longueur de pénétration du champ magnétique. L'équation 2.2 s'exprime telle que  $\frac{dU}{dr} = \frac{\pi n_s \hbar^2}{2 m} \frac{\lambda}{r^2}$ , pour  $r \gg \lambda$ . L'énergie d'une paire dépend de façon logarithmique de la distance séparant les deux vortex, avec  $U(r) = A \ln r + U_0$ .  $U_0 = \xi^2 d H_c^2 / 8\pi$  est l'énergie de coeur du vortex<sup>2</sup>.  $A$  est la section du fil. Pour un ruban,  $U_0 = w d \xi H_c^2 / 8\pi$ , avec  $w$  la largeur du ruban et  $d$  son épaisseur.

On détermine la température de transition  $T_{BKT}$ , telle que  $k_B T$  soit égale à l'énergie minimale pour briser une paire, soit telle que  $dU/dr = 4k_B T_{BKT}/r$  [70] :

$$k_B T_{KT} = \frac{1}{8} \frac{\pi n_s \hbar^2 d}{m} \quad (2.3)$$

La température peut s'exprimer en fonction de la longueur de pénétration magnétique de London telle que  $k_B T_{KT} = \phi_0^2 / 32\pi^2 \lambda_L^2$  avec  $\lambda_L^2 = mc^2 / 4\pi e^2 n_s$  sachant que pour un film  $\lambda^{2D} = \lambda_L^2 / d$ .

La température de transition de Berezinski-Kosterlitz-Thouless a été déterminée exactement par une théorie de renormalisation décrite par Mooij et al [71]. Elle s'exprime en fonction de la résistance par carré,  $R_{\square}$ , de l'échantillon dans son état normal. Près de  $T_{c0}$ , elle prend la forme simplifiée [72] :

$$T_{KT}/T_{c0} \sim [1 + 0.17 R_{\square} \varepsilon_c / R_K]^{-1} \quad (2.4)$$

$R_K = \hbar/e^2$ , et  $\varepsilon_c$  est l'équivalent d'une constante diélectrique. Elle représente l'écrantage des PVAV longues par des PVAV courtes (fig.2.1).

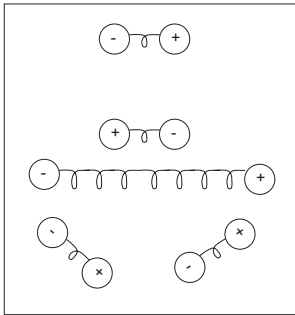


FIGURE 2.1 – Représentation schématique de l'écrantage d'une paire de vortex antivortex. La paire élargie est écrantée par une seconde paire courte. La paire se dissocie et se reforme avec la plus courte. Son énergie de charge est inversement proportionnelle à la distance entre les porteurs :  $F(r) = q^2 / r \varepsilon(r) = q(r)/r$ . Elle est alors minimisée.

2. en unité SI, on remplace  $H_c^2/8\pi$  par  $B_c^2/2\mu_0$ .

Dans un fil supraconducteur parcouru par un courant longitudinal, les paires de vortex n'ont pas la place de s'étendre. Le critère de Likharev [63] fixe la largeur minimale d'un ruban pour qu'il soit soumis à de telles fluctuations :  $w \gg 4\xi$ ,  $w$  étant la largeur du nanofil. Dans le cas du Nb et du NbN la longueur de cohérence,  $\xi$  est inférieure à 10nm. La largeur des fils que nous fabriquons est de l'ordre de 100nm à 300nm. Une brisure des PVAV peut induire une résistance résiduelle même loin de  $T_c$ .

### 2.1.2 Description du régime de Flux Flow linéaire

En présence d'un champ magnétique, les vortex libres acquièrent une vitesse  $v_{FF}$  et leur mouvement induit une résistance non nulle sous  $T_c$ . C'est le mode dissipatif de flux flow. La tension induite est donnée par la relation 2.5 :

$$V = \frac{h\phi_0}{2e\eta w^2 d} (I - I_c) \quad (2.5)$$

avec  $w$  la largeur du ruban,  $I_c$  son courant critique et  $\eta = \phi_0^2 / \pi^2 \rho \xi$  la viscosité du matériau en fonction de  $\rho$  sa résistivité, [48]. Cette expression est obtenue en supposant le milieu isotrope avec une densité de courant uniforme le long du fil (sachant que  $\lambda \sim 250nm > w = 140nm$ ). L'effet de Hall et l'effet des bords sont négligés. Ce résultat traduit la réponse linéaire d'un réseau de vortex sans défaut [73].

Nous remarquons néanmoins que l'effet de piégeage est très fort dans les dispositifs structurés à l'échelle de la longueur de cohérence. Une expression plus adaptée peut être trouvée dans [74].

## 2.2 Résistance résiduelle des rubans de NbN

### 2.2.1 Mesure de la résistance résiduelle dans nos circuits

Les caractéristiques géométriques du nanofil<sup>3</sup>(fig.2.2), sont déterminées par imagerie AFM. Nous estimons un nombre de carré de  $N_{\square} = 171$ , une largeur de 140 nm et une longueur développée de  $24\mu m$ .

La transition supraconductrice du fil est large (fig.2.2). Elle est caractéristique des supraconducteurs granulaires. Sa résistance dans l'état normal à  $T=10K$  est de  $R_N = 57.6k\Omega$ , à  $275K$  de  $R_N = 42.6k\Omega$ . Nous estimons  $R_{N\square} = 337\Omega$ . L'épaisseur du film mesurée par AFM est de 7nm soit 4nm de NbN en considérant une couche de passivation d'AlN de 3nm d'épaisseur. On obtient une résistivité de  $\rho = d \times R_{N\square} \sim 135\mu\Omega.cm$  pour le film de NbN. Nous prenons une longueur de cohérence de l'ordre de 5 nm, [75], [76], [77], [78], [79].

---

3. Le nanofil est obtenu par oxydation locale avec un AFM (chap.??)

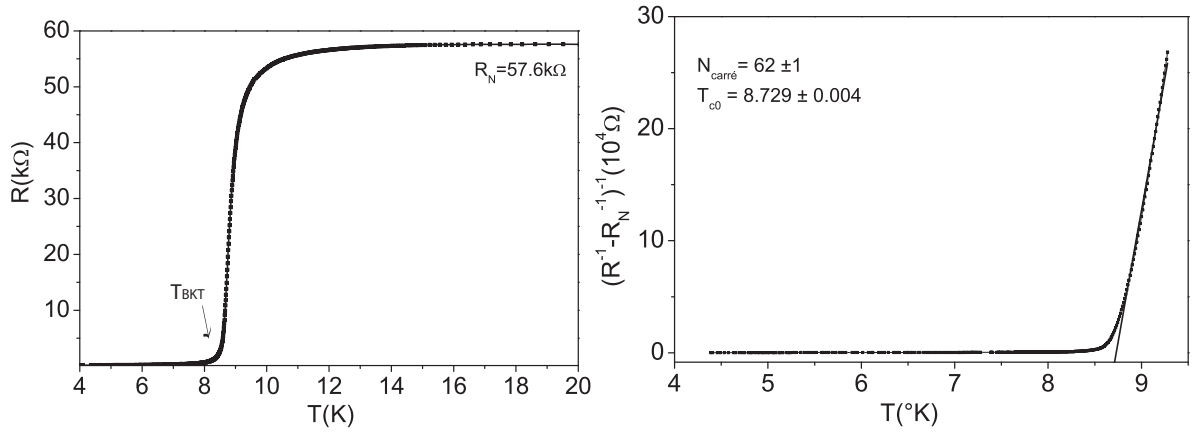


FIGURE 2.2 – A gauche : Résistance en fonction de la température d'un fil méandre constitué de 12 lignes de NbN en série, de longueur  $L = 2\mu m$ , de largeur  $w=140nm$  et d'épaisseur  $d=4nm$ . La longueur développée est de  $24\mu m$ . A droite : résistance normalisée (eq.2.6) en fonction de la température. Nous estimons la température de transition du ruban :  $T_{c0}=8.7K$ .

Finalement, nous obtenons une résistance induite par un flux de vortex (eq.2.5) de  $R_{FF} = R_{\square} \times 4.10^{-3}\Omega$ , soit de  $1.39\Omega$  avec  $\xi = 5nm$ ,  $w = 140nm$  et  $R_{\square} = 337\Omega$ . Avec une incertitude sur le nombre de carré du fil, on conserve un ordre de grandeur de quelques ohms pour une résistance résiduelle induite par un régime de flux flow sous  $T_c$ , pour de faible valeur de courant.

La température de transition du ruban,  $T_{c0}=8.7K$ , est estimée à partir du modèle de fluctuation d'Aslamasov Larkin d'un supraconducteur 2D dans la limite sale [80] [81] :

$$(R^{-1} - R_N^{-1})^{-1} = N_{\square} R_0^{-1} (T/T_{c0} - 1) \quad (2.6)$$

$R_0 = e^2/16\hbar$ , et  $R_N$  est la résistance du film dans l'état normal au dessus de la transition. Nous comparons ce modèle à notre mesure de  $R(T)$ . Nous pouvons ajuster le calcul en fonction de la résistance par carré. Nous trouvons un bon accord avec notre mesure pour une valeur de l'ordre de 60 carrés. Cette valeur est inférieure à la géométrie mesurée par l'AFM. Dans ce cas, nous obtenons une résistivité du film à 10K de  $\rho = 384\mu\Omega.cm$ , avec  $R_{\square} = 960\Omega$ . La résistance de flux flow reste du même ordre de grandeur,  $R_{FF} = 4\Omega$ . Nous devons considérer le fait que notre procédé de fabrication peut augmenter la résistivité du dispositif par rapport au film, d'un facteur de l'ordre de 40%. Le bras le plus faible du méandre domine le transport du fil. La température critique n'en est pas influencée.

### 2.2.2 Estimation de la taille d'une PVAV dans nos rubans de NbN

A partir de l'équation 2.4, nous estimons la température de transition de Berezinski-Kosterlitz-Thouless pour le ruban de NbN. Nous obtenons  $T_{KBT} = 8.09K$ , avec  $\epsilon_c = 1$ .

Nous en déduisons une énergie de brisure des PVAV égale à  $U_{dp} = 0.7meV$  et  $U_{dp} = 0.4meV$  avec  $T_{KBT} = 8.09^\circ K$  et  $T_{KBT} = 4.69^\circ K$  pour le film de NbN et de Nb.

La longueur de pénétration des films est obtenue dans la limite sale,  $\lambda_{GL}(0) = 6,42 \cdot 10^{-6} \sqrt{\rho/T_c} \sim 0.250\mu m$ . A partir de la relation  $U_{dp} = (2\phi_0^2/\lambda^{2D}) \times \ln(r_{dp}/\xi)$ , nous en déduisons une distance de séparation de l'ordre de  $r_{dp} = 70nm$ , avec  $\lambda^{2D} \sim 0.25\mu m$ .

### 2.2.3 Influence d'une polarisation en courant proche de $I_c$

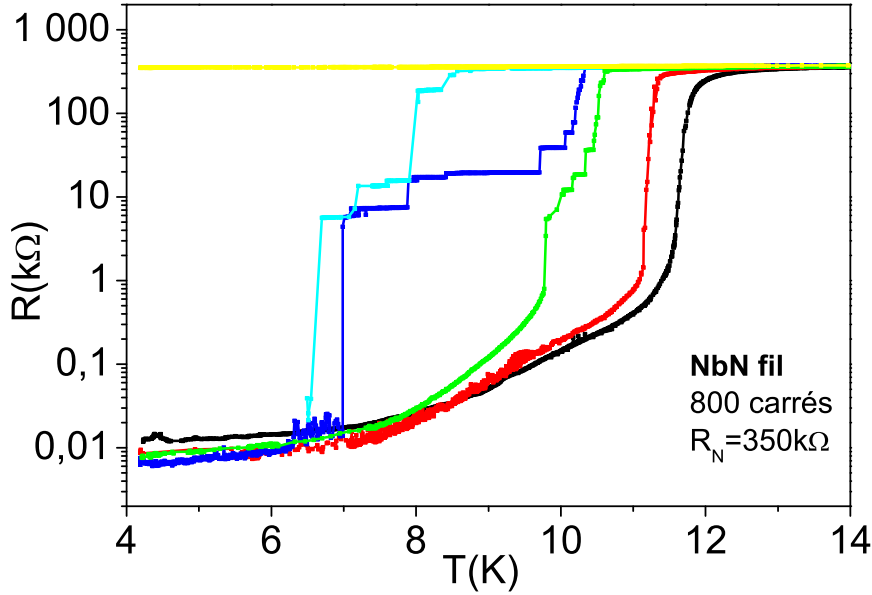


FIGURE 2.3 – Résistance en fonction de la température, pour divers courants de polarisation d'un ruban supraconducteur de 800carrés.

Une polarisation en courant proche du courant critique a pour effet de réduire la distance de séparation d'une paire de vortex antivortex (PVAV), de sorte que  $r_{dp} \sim (I_c/I)\xi$ . Nous pouvons alors exprimer l'énergie de création d'une paire de vortex antivortex en fonction du courant de polarisation,

$$U_{dp} \sim 2\pi\Phi_0 d\xi \cdot \ln(I_c/I) \quad (2.7)$$

Dans la limite où les fluctuations sont thermiquement activées, nous pouvons exprimer la

résistance induite par la création des vortex libres assistés en courant,

$$R(I) \sim \exp\left(\frac{U_{dp}(I)}{2k_B T}\right) \sim (I_c/I)^{2\pi\Phi_0 d\xi/k_B T} \quad (2.8)$$

Cette loi en puissance est le plus souvent utilisée dans la littérature pour estimer la température de transition de Kosterlitz Thouless. Elle révèle du moins la présence de vortex libres qui participent à un effet dissipatif. Nous retiendrons cette expression pour la partie suivante de ce manuscrit. Nous comparons à présent ce modèle avec nos mesures de résistance en fonction du courant de polarisation.

Nous avons mesuré l'effet d'un courant proche du courant critique sur un ruban supraconducteur réalisé par lithographie électronique. Nous présentons ce résultat sur la figure 2.3. Le courant de polarisation est varié de  $I_{bias} = 5\mu A, 10\mu A, 15\mu A, 20\mu A$  à  $25\mu A$ .

Avec une élévation du courant de polarisation, la température de transition supraconductrice et de la transition de Kosterlitz Thouless diminuent. La transition normal-supraconducteur s'élargie. Entre ces deux transitions, il apparaît des sauts de tension dont le nombre et l'amplitude augmente avec le courant de polarisation. En moyenne, les sauts observés ont une amplitude de l'ordre de  $2k\Omega$ .

La résistance varie peu avec le courant de polarisation. Elle est de l'ordre de  $m\Omega_{\square}$  (fig.2.3). Leur décroissance exponentielle pourrait indiquer un régime de flux flow sous  $T_{KBT}$ .

Il nous semble que ces effets pourraient s'interpréter avec le modèle de création de paires de vortex-antivortex assistées en courant [82].

### Conclusion

L'énergie associée aux paires de vortex est faible de l'ordre de  $0.7\text{meV}$  pour le NbN. La distance maximale de séparation est de l'ordre de  $70\text{nm}$ . Dans un fil de  $140\text{nm}$  de large, la séparation de la paire de vortex est possible. Il peut être induit par une élévation locale de la température, par le passage d'un fort courant proche de  $I_c$ , ou par une onde électromagnétique tel qu'un photon.

La résistance induite par un régime dissipatif de flux flow est faible, de quelques  $\Omega$ s, devant la résistance par carré des dispositifs ( $R_{\square} \sim 500\Omega$ ), avec  $I \ll I_c$ .

Nous remarquons ensuite l'influence du passage d'un fort courant dans un nanofil. Les fluctuations font apparaître des sauts de tension.

## Chapitre 3

# Les glissements de phase

Dans ce chapitre, nous présentons les effets des glissements de phase, dans un système 1D sur sa caractéristique courant-tension. Nous présentons ensuite la dépendance en température et en champ magnétique des centres de glissement de phase (PSC) dans les nanofils de NbN. Nous étudions dans la dernière section de ce chapitre les liens entre les PSC et la formation de point chaud.

### 3.1 Le modèle 1D

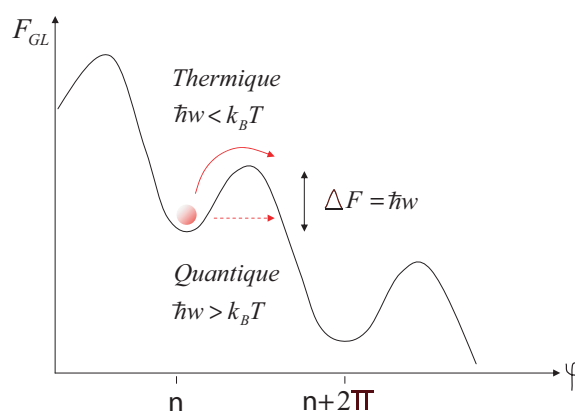


FIGURE 3.1 – Énergie libre de Ginzburg Landau en fonction de la phase  $\varphi$  du condensat à 1D. Une polarisation en courant incline la modulation de l'énergie libre. Un glissement de phase, entre deux états séparés par une barrière d'énergie  $\Delta F = \hbar\omega$ , peut être classique (thermique) ou quantique (effet tunnel), en fonction du rapport  $\hbar\omega/k_B T$ . Entre ces deux états, la phase fluctue de  $2\pi$ . Une tension non nulle apparaît aux bornes du supraconducteur durant un laps de temps  $\Delta t = h/2eV$ .

Pour préserver un courant supraconducteur malgré une perturbation thermique ou quantique qui tend localement à briser les paires de Cooper, le condensat supraconducteur fluctue sa phase de  $\pm n \times 2\pi$ . La longueur de cette fluctuation correspond à la longueur maximale sur laquelle une zone normale peut s'étendre sans détruire l'état supraconducteur. Elle correspond à la longueur de cohérence supraconductrice. De part et d'autre de cette zone normale, le condensat est déphasé de  $\pm 2\pi$ . Une tension non nulle apparaît aux bornes du supraconducteur. Elle est reliée à la variation temporelle de la phase par la relation Josephson (eq.1.1),

$$\hbar \delta\varphi / \delta t = 2eV \quad (3.1)$$

La figure 3.1 décrit l'énergie libre d'un supraconducteur 1D en fonction de sa phase. Le supraconducteur est parcouru par un courant constant  $dc$ . Chaque minima correspond à un état stable. La barrière d'énergie entre ces deux états est telle que  $\Delta F = 8/3\sqrt{2}[SH_c^2(T)\xi(T)/8\pi]$ , avec  $S=w.d$  la section du fil. Ce saut peut être thermique si  $k_B T > \Delta F$ . La transition est dans ce cas, classique. Si  $k_B T < \Delta F$ , la transition est quantique. La phase tunnel entre les deux états. Dans les deux cas, la phase fluctue de  $+$  ou  $-2\pi$ , suivant l'inclinaison de la pente fixée par le courant de polarisation.

Les glissements de phase induisent des sauts de tension proportionnel à  $\Delta F_{GL}$ . Elles contribuent à une résistance résiduelle non nulle sous  $T_c$ . Le taux de fluctuations de phase thermiquement activées diminue exponentiellement avec la température. Au delà d'un seuil en température, l'énergie thermique n'est plus suffisante pour induire un glissement de phase. Au dessous de ce seuil, les excitations sont quantiques,  $\hbar\omega > k_B T$ .

Nous reviendrons en détail sur la dépendance en courant et en température de la tension induite par les centres de glissement de phase thermique et quantique, dans le chapitre suivant (chap.??). A présent nous décrivons phénoménologiquement, un glissement de phase dans un système 1D, soit un centre de glissement de phase PSC.

### 3.1.1 Le modèle de Skocpol, Beasley et Tinkham

Les expériences détaillées de J.D.Meyer [83],[84], ont mis en évidence de façon systématique la présence de saut de tension d'amplitude constante. Les mesures sont effectuées très proches de la température de transition du fil, à 2.9mK et 4.05mK en dessous de  $T_{c0}$ . Des régions résistives de taille similaire apparaissent le long du fil, ce sont des centres de glissement de phase (PSC). La pente suivant ces sauts, augmente de  $n \times R_{PSC}$ . La résistance mesurée après chaque saut, souligne que la taille du centre de glissement de phase est plus grande que la longueur de cohérence  $\xi$ , attendue pour une fluctuation de phase du supraconducteur.

La figure 3.2 illustre le mécanisme de PSC, introduit par SBT (Skocpol, Beasley et Tinkham) [64] dans le cadre du modèle à deux fluides. A chaque saut de phase, le paramètre d'ordre s'annule sur  $\xi$ . Dans cette région, des quasiparticules sont excitées. Le courant traversant le fil est composé d'un courant de paires de Cooper,  $n'_S = n_S - \delta n_S$ , qui passe par effet tunnel à

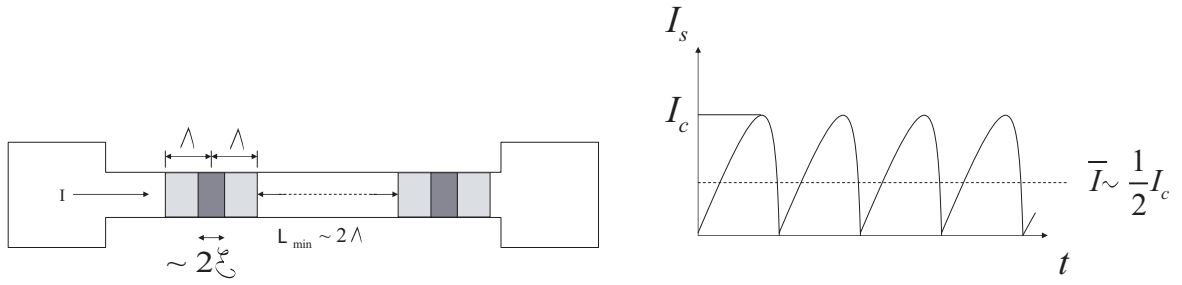


FIGURE 3.2 – Représentation d’un centre de glissement de phase par le modèle SBT (Skocpol, Beasley et Tinkham) [64]. A gauche : La taille d’un centre de glissement de phase (PSC) est plus grande que la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ . Les quasiparticules diffusent sur la longueur de diffusion inélastique,  $\Lambda_Q$ . Les zones grises correspondent à cet écart de taille. A droite : Modulation du courant supraconducteur au coeur du vortex (sur  $\sim \xi$ ).  $I_s$  oscille entre 0 et  $I_c$ , autour d’une valeur moyenne de  $\bar{I}$ , définie par la densité de quasiparticules excitées (modèle à deux fluides).

travers la zone normale de largeur  $\xi$ . Il est aussi composé d’un courant d’électrons normaux,  $n_N = 2\delta n_s$ . Les quasiparticules se thermalisent sur une longueur  $\Lambda_Q$ , telle que [56] :

$$\Lambda_Q = 2\sqrt{D\tau_Q} \text{ avec, } \tau_Q = \frac{4}{\pi} \frac{\tau_e k_B T_c}{\Delta} \quad (3.2)$$

avec  $\tau_e$  le temps de relaxation. Dans le coeur du PSC, le courant de paires de Cooper oscille entre 0 et  $I_c$ . Dès que  $I > I_c$ , une zone normale apparaît et  $n_N \neq 0$ . Elle induit une tension non nulle au borne du fil et un champ électrique, qui accélère les paires. Pour  $v_s > v_c$ , le paramètre d’ordre s’annule et la phase tourne de  $2\pi$ . La densité de paires diminue,  $n'_s$ , ainsi que le courant supraconducteur. La supraconductivité réapparaît et ainsi de suite. Un courant de paire de Cooper  $ac$ , à la fréquence Josephson, accompagne la formation d’un PSC. La tension au borne du fil est donnée par, [64] :

$$V = 2\Lambda_Q \cdot \rho(I - \beta I_c)/S \quad (3.3)$$

avec  $\rho$  la résistivité du film,  $S$  sa section et  $\beta \sim 1/2$  le rapport de densité des deux fluides (SN). La condition pour l’établissement d’un PSC est <sup>1</sup>  $j_s > j_c$ .

Les PSC se repoussent sur une distance  $2\Lambda_Q$ . Sur un fil de longueur  $L$ , on s’attend à avoir  $L/2\Lambda_Q$  PSC. Les pentes associées aux PSC, convergent vers une valeur de courant qui donne la proportion d’électrons normaux qui participent à la résistivité. Elles tendent typiquement vers  $I_c/2$ .

1. non pas  $j > j_c$ .  $j_s$  étant la densité de courant de paires  $<$  à la densité de courant totale  $j$ .



### 3.1.2 Le cas des rubans supraconducteurs

Un centre de glissement de phase ne peut être observé que dans un fil supraconducteur dont la largeur est de l'ordre de la longueur supraconductrice,  $\xi$ . Pour une largeur  $w$  supérieure,  $w > \xi$ , comme c'est le cas des rubans de NbN que nous mesurons, la densité de courant supraconducteur est non nulle aux bords du PSC ce qui court-circuite la résistance induite par le PSC.

Nous estimons alors la taille d'un PSC pour nos rubans de NbN. Sans présence d'impuretés magnétiques, nous estimons la longueur de diffusion des quasiparticules à  $T = 0^\circ K$ , telle que  $\Lambda(0) \sim 50nm$ , avec  $D = 0.35cm^2.s^{-1}$  et  $\tau_e = 12ps$  pour un fil de NbN de 140nm. Les quasiparticules excités par un PSC diffusent sur une longueur  $w > \Lambda_Q > \xi$ . Le PSC n'est pas assez large pour induire une barrière résistive et être observé par des mesures de transport.

Dans un ruban ultra mince dont la largeur est plus grande que  $\xi$  mais suffisamment étroite pour que les bords influencent le transport, nous pouvons associer la formation d'une barrière résistive à la formation d'un chemin de vortex ou à la formation d'une ligne de glissement de phase [85] [53] (fig. 1.2) par exemple. Nous utiliserons le modèle des centres de glissements de phases pour interpréter nos résultats.

Nous verrons aussi dans le chapitre suivant qu'un centre de glissement de phase peut également induire la formation d'un point chaud qui lui s'étalera sur toute la largeur du méandre.

## 3.2 Glissement de phase dans nos nanofils de NbN

### 3.2.1 Signatures dans les caractéristiques I(V)

La figure 3.3 présente les caractéristiques courant-tension du nanofil (R12). Ces caractéristiques sont typiques de celles des détecteurs que nous avons réalisés.

La figure 3.3.A, correspondant à une polarisation tension, montre des sauts de résistance dont l'amplitude est de l'ordre de grandeur des lignes séries de NbN ( $\sim k\Omega$ ). En raison d'un balayage rapide et d'une mesure sans adaptation d'impédance à la sortie du générateur, la mesure de la première transition n'est pas bien marquée. Elle est observée nettement sur la figure 4.2B. Néanmoins, des irrégularités en dents de scie entre les grands sauts révèlent la présence des PSC. Nous y revenons en détail dans la partie 3.2.3.

La figure 3.3.B, correspondant à une polarisation courant<sup>2</sup>, montre nettement des sauts de tension dont l'amplitude est constante, de l'ordre de  $300\Omega$ . Ces sauts sont inférieurs à la résistance d'un bras du méandre ( $10k\Omega$ , fig.3.3.B) mais de l'ordre de la résistance par carré

<sup>2</sup>. A la transition, la résistance du fil  $R_{Nfil} = 57.6k\Omega$  est très inférieure à la résistance de polarisation  $R_{N\Box} = 337\Omega$  (fig.2.2).

du fil. Toutes les pentes convergent vers une valeur de courant égale à  $I_c/2$  et non vers 0. Il existe donc un courant non nul de paire de Cooper. Ces propriétés sont caractéristiques des centres de glissement de phase. Leur amplitude est de  $R_{PSC} = 2\Lambda_Q \cdot \rho/S$  (eq.3.3), soit  $337 - 241\Omega$ , avec  $\Lambda_Q \sim 70 - 50nm$ . Ce qui est en accord avec les mesures. Le nombre de sauts observés dépend de la rapidité de la mesure. Certaines pentes révèlent des doubles sauts.

Quel est le temps de fluctuation de la phase? A partir de la relation 1.1, pour  $n \times 2\pi$  tours, nous calculons un saut de tension de :

$$V_{PSC} \simeq n \times \frac{1,9 \cdot 10^{-15}}{\tau} \text{ volts} \quad (3.4)$$

Les sauts de tension ont une amplitude moyenne de l'ordre de 1.6mV. En considérant un tour de phase de  $2\pi$  par saut de tension, nous estimons un temps de glissement de phase de  $\tau \simeq 1.2ps$ . Il est comparable aux temps de relaxation du gap,

$$\tau_r = \frac{h}{\Delta(T)} \quad (3.5)$$

$\Delta(0) = 1.76k_B T_c$  et  $\Delta(T) \simeq 1.74\Delta(0)(1 - T_c/T)^{1/2}$ . Avec  $\Delta(0) \simeq 1.67meV$  et  $\Delta(4.2K) \simeq 1.33meV$ , nous estimons  $\tau_r \simeq 2.5ps$ .

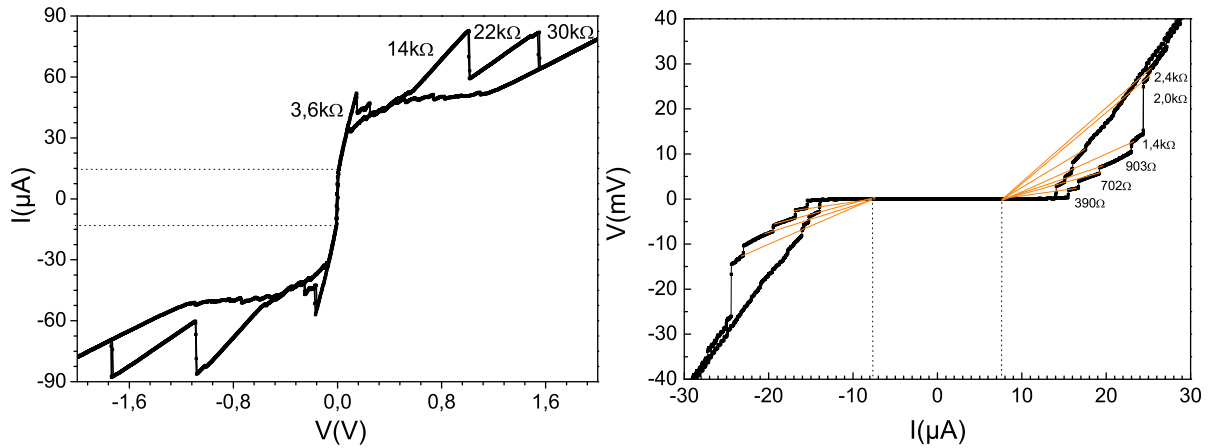


FIGURE 3.3 – Caractéristique courant-tension ( $I(V)$ ) à  $4.2^\circ K$  du nanofil (R12) (12 lignes de NbN en série,  $L = 24\mu m$ ,  $w=140nm$  et  $d=4nm$ ). A gauche : Le méandre est polarisé en tension. La figure montre les transitions successives des premières lignes en série de NbN formant le méandre. La résistance associée à une ligne est de l'ordre de  $10k\Omega$ . A droite : Le méandre est polarisé en courant avec une résistance de  $100k\Omega$  polarisée par une source de tension. La figure montre des sauts de tension, dont l'amplitude est respectivement de  $2mV$ ,  $1.5mV$ ,  $1.3mV$ ,  $1.99mV$ ,  $11.5mV$ ,  $1.2mV$  et  $1.8mV$ . Les pentes mesurées après chaque sauts de tension convergent vers  $I \sim I_c/2$ .

Le temps associé aux fluctuations que nous mesurons dans les fils de NbN par une mesure  $I(V)$  en polarisation courant (1.2ps) est comparable à l'énergie de relaxation du gap supraconducteur (2.5ps). Les fluctuations mesurées ne correspondent pas à des excitations bolométriques. Ceci est en accord avec une mesure de glissement de phase comme nous le suggérons jusqu'à présent.

### 3.2.2 Dépendance en température

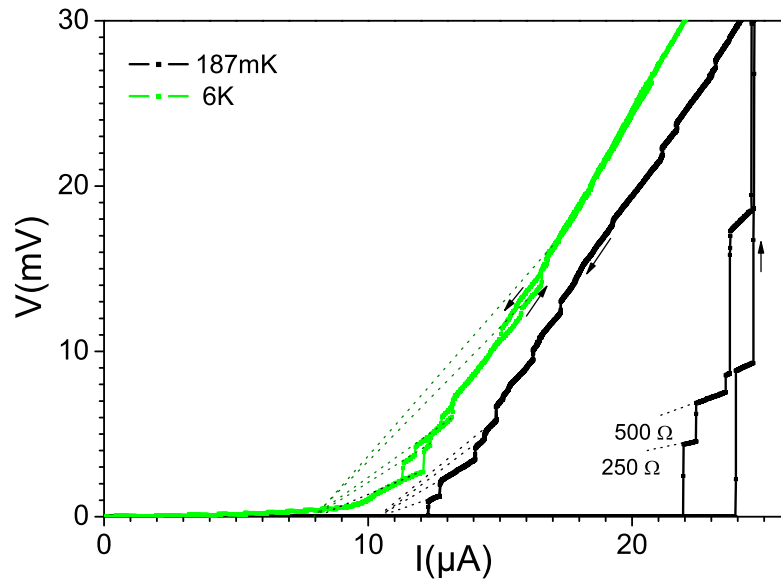


FIGURE 3.4 – Caractéristique courant-tension du nanofil (R12) en fonction de la température. La caractéristique à  $4.2\text{ K}$  est présentée sur la figure 3.3. La figure montre la dépendance en température des sauts de tensions mesurés par une polarisation en courant. Deux hystérésis caractérisent la mesure à  $187\text{ mK}$ . À  $6\text{ K}$ , la première transition est arrondie à des températures proches de  $T_c$ . (RMS)

Nous présentons la dépendance en température de la caractéristique courant-tension du nanofil (R12) polarisé en courant. La figure 3.4 présente des caractéristiques mesurées à  $T = 187\text{ mK}$  et à  $T = 6\text{ K}$ . Deux hystérésis apparaissent dans la mesure à  $T = 187\text{ mK}$  dépendant de la vitesse de mesure. Ces hystérésis indiquent un chauffage plus ou moins important induit par la mesure. Ils fournissent aussi une indication sur la dépendance en température des PSC. En particulier le plus grand hystérésis présente des sauts de tension dont les amplitudes sont comparables à celles mesurées à  $T = 6\text{ K}$ . Néanmoins, celui ci n'est pas soumis à un régime de

flux flow, qui induit une légère pente<sup>3</sup> sous  $I_c$  dans la caractéristique mesurée à  $T = 6^\circ K$ . Sur cette même caractéristique, nous mesurons l'anomalie à  $I_c$  ( $\sim 10\mu A$ ) expliquée par le modèle de Rieger Scalapino et Mercereau (RMS), contrairement à la mesure de retour à  $T = 187m^\circ K$  où l'on mesure un saut net à  $I_c$  ( $\sim 12\mu A$ ).

Le nombre des PSC augmente avec la température. La vitesse de relaxation des quasiparticules augmente avec des longueurs caractéristiques qui divergent à  $T_c$ .  $\xi \propto (1 - T/T_c)^{-1/2}$  et  $\Lambda_Q \propto \Delta^{-1/2} \propto (1 - T/T_c)^{-1/4}$ . L'énergie du gap diminue, ce qui augmente le taux de fluctuations thermiques à  $T = 6^\circ K$ . L'amplitude des sauts associés à ces températures est faible. Aux plus basses températures, les PSC induisent des sauts dont l'amplitude est plus importante. Nous verrons dans quelle mesure nous pouvons interpréter ces observations, propre à une polarisation en courant dans la section ???. En particulier nous verrons qu'il existe une transition entre un régime de PSC et de point chaud pour une température proche de  $T = 6^\circ K$ .

### 3.2.3 Effet d'un champ magnétique

L'application d'un champ magnétique parallèle ou perpendiculaire n'influence pas la distribution de courant du fil, pour lequel la largeur est inférieure à la longueur de pénétration du champ. La densité de PSC ne doit donc pas être affectée par l'application d'un champ magnétique. Néanmoins, le champ magnétique agit comme une perturbation de type « pair breaking » [56] et affaiblit le gap supraconducteur. La longueur de thermalisation des quasiparticules doit être diminuée par une réduction du temps de relaxation.

Les mesures effectuées par Kadin et al [86] montrent la dépendance des PSC sous un champ parallèle. Ils montrent que le nombre de PSC est inchangé tandis que les sauts sont de faible amplitudes. La longueur de diffusion des quasiparticules diminue, et conduit à une résistance plus faible. Schmid et al [87] [88], montrent que le temps de relaxation doit alors être remplacé par  $(\tau_e \tau_k / 2)^{1/2}$  avec  $\tau_e \gg \tau_k$ .  $\tau_k$  est le temps de département. Dans le cas d'un champ magnétique parallèle, il s'exprime tel que  $\hbar/\tau_k = 1.76kT_c H/H_{c\parallel}$ . Nous étendons cela au cas d'un champ perpendiculaire, avec  $\hbar/\tau_k = 1.76kT_c = DeH/2c$  [56].

Nous avons mesuré la dépendance en champ magnétique de la caractéristique courant-tension des nanofils à  $T \sim T_c/2$ . Les nanofils sont polarisés en tension (fig.3.5). La figure 3.6 compare plus précisément une mesure à champ nul et une mesure à 2.4T. Le champ magnétique est appliqué normal à l'échantillon.

De même que pour les précédentes mesures (fig. 3.3.B), nous mesurons des sauts de grande amplitude. Ils correspondent aux transitions successives des lignes série du méandre, dont la résistance associée est de l'ordre de quelques  $k\Omega$ s. Entre deux transitions, la caractéristique n'est pas linéaire mais présente des dents de scie (fig.3.6) que l'on associe à des fluctuations

---

3. De l'ordre de la dizaine d'ohms

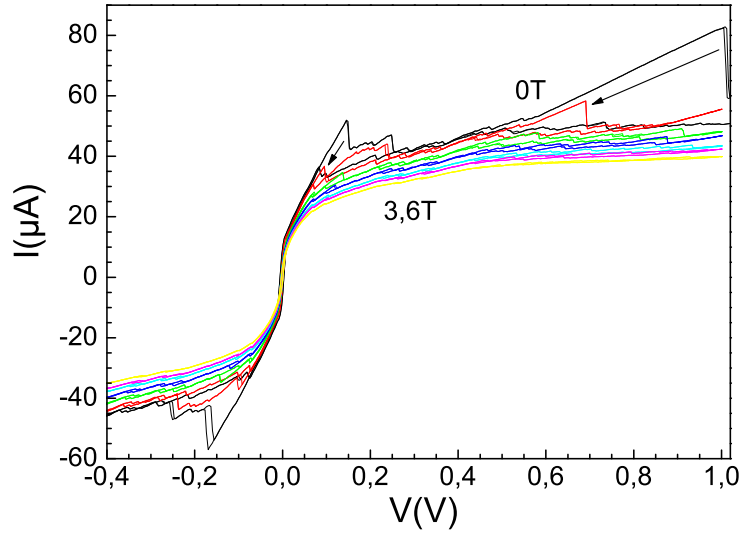


FIGURE 3.5 – Dépendance en champ magnétique à  $4.2^{\circ}K$  de la caractéristique courant-tension du nanofil (R12) ( $w=140\text{nm}$ ,  $d=4\text{nm}$ ,  $L = 24\mu\text{m}$ ). Le nanofil est polarisé en tension. Le champ magnétique est appliqué normal à l'échantillon, de  $0T$  à  $3.6T$  par pas de  $0.3T$ .

de type PSC. Le courant critique respectif de chaque branche du méandre diminue avec une augmentation de  $H_{\perp}$  (fig.3.5). La densité de PSC semble quant à elle indépendante de  $H_{\perp}$  (fig.3.6). Néanmoins, l'amplitude des hystéresis diminue avec une augmentation de  $H_{\perp}$ . Les pentes sous  $I_c$ , correspondent respectivement à une résistance de  $0.6m\Omega$  et  $3m\Omega$ . La résistance de flux flow est très faible dans le cas d'une mesure en polarisation tension.

### 3.3 Discussion

#### 3.3.1 Interaction de phase slip center

Les mesures en polarisation tension, présentées sur les figures 3.3, 3.5 et 3.6 montrent une transition S-N qui s'apparente à une transition par percolation de PSC. La densité de PSC augmente jusqu'à ce que la totalité d'une ligne du méandre de NbN transite. Cependant, les travaux de Tinkham et al[56] montrent que les PSC ne percolent pas mais se repoussent. La distance minimale entre deux PSC est de  $2\Lambda_Q$ .

A partir de la relation 3.2 nous obtenons un temps de relaxation des quasiparticules de  $\tau_Q \sim 4/(\pi \times 1.764) \cdot \tau_e = 8.7ps$ , en prenant  $\tau_e$  égal au temps d'interactions électron-phonon,  $12ps$  [89] et  $\Delta(T_c/2) \sim \Delta(0) \times 1.74(1 - T/T_c)^{1/2}$ , avec  $\Delta(0) \sim 1.764k_B T_c$ . Nous en déduisons une longueur de diffusion,  $\Lambda_Q = 2\sqrt{D\tau_Q} = 5,14 \cdot 10^{-6}cm$ , soit une distance minimale entre

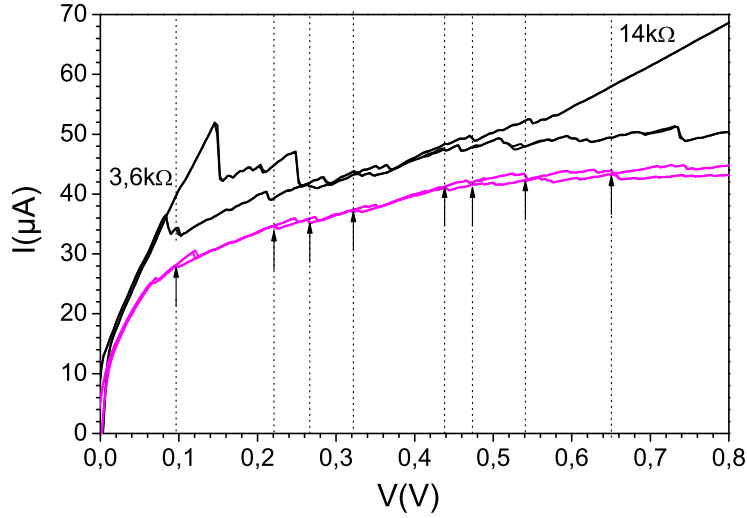


FIGURE 3.6 – Mesure détaillée à la transition. Du bas vers le haut  $H_{\perp} = 2.4T$  et  $0T$ .

deux PSC de l'ordre de 100nm, avec  $D = 0.76cm^2.s^{-1}$  obtenu en sec.2.2. La taille du PSC estimée est inférieure à la largeur du fil  $w$ . Le temps de diffusion et donc la taille des PSC peuvent être sous estimés, en raison du nombre de carré du nanofil et de sa résistivité. Nous supposons que la longueur de diffusion est de l'ordre de  $w/2$  ( $w$  étant la largeur du fil) soit de l'ordre de 70nm. Le nombre maximal de PSC attendu,  $L_{fil}/2\Lambda_Q \sim (L_{fil} = 24\mu m)$  est donc de l'ordre de 86. Pour une ligne, cela équivaut à 9 PSC au maximum. Les flèches indiquent sur la fig.3.6, les hystéresis associés aux évènements de PSC. Nous en comptons 6, ce qui est en accord avec la précédente démonstration. Une faible largeur des PSC, pourrait s'expliquer par une configuration en PSL (sec.3.1.2), avec un PS asymétrique, plus large que long (fig.1.2).

### 3.3.2 Les courants critiques mesurés

Ce paragraphe est une remarque sur les courants mesurés à la transition supraconductrice des fils, autrement dit sur les courant de saut que l'on associe au courant critique.

La figure 3.3, présente la caractéristique courant-tension d'un nanofil polarisé en tension à 4.2K. Le courant critique mesuré en polarisation tension est de  $12\mu A$ , soit une densité de courant de  $2MA.cm^{-2}$ . En polarisation courant, le courant critique mesuré est de  $I_c=16.5\mu A$ , soit  $j_c=2.9MA.cm^{-2}$ . Aux basses températures, la densité de courant critique de « depairing » s'exprime dans la théorie microscopique de Gorkov<sup>4</sup>, telle que  $J_{dp}(0) = 1.491 \times eN(0)\Delta_0\sqrt{D\Delta_0/\hbar}$ , avec  $N(0)$  la densité d'état au niveau de Fermi,  $D = 1/(\rho e^2 N(0))$  le coef-

4. Ginzburg Landau :  $J_{dp} = \Phi_0\sqrt{27}\pi\lambda^2\xi$ .

ficient de diffusion et  $\Delta_0$ , le gap du NbN . Avec  $D = 0.76cm^2.s^{-1}$  obtenu de la résistivité avec  $N(0) = 5.2.10^{24}m^{-3}.s^{-1}$  [90] et  $\Delta_0 = 1.72mev$ , [91], nous obtenons :  $J_{dp}(0) = 36MA.cm^{-2}$ . A température finie,  $J_{dp}(T) = J_{dp}(0) (1 - (T/T_c)^2)^{3/2}$ . La valeur théorique à 4.2K, est de  $J_{dp}(4.2K) = 24MA.cm^{-2}$ . Cette valeur est très supérieure à celle que nous mesurons.

Le calcul théorique de  $J_{dp}$ , est obtenu dans une limite de supraconducteur homogène à fort désordre. Pour un modèle de grains couplés par effet Josephson, [92], ce précédent calcul peut surestimer le courant critique du nanofil. De manière générale, nous distinguerons le courant critique mesuré, correspondant au courant de saut, du courant critique théorique de depairing.

### Conclusion

Les glissements de phase induisent des sauts de tension dont l'amplitude est au maximum de l'ordre de la résistance par carré du fil (fig.3.3). La taille des PSC est réduite par l'application du champ magnétique, celui-ci réduisant le temps de relaxation des quasiparticules (fig.3.5). La stabilité des PSC en polarisation courant dépend de la température du nanofil, (fig.3.4). Aux basses températures, ils induisent des sauts irréguliers de grande amplitude. Leur amplitude diminue et leur régularité augmente à mesure que l'on se rapproche de la transition SN du système.

## Chapitre 4

# Régime de point chaud

Dans ce chapitre, nous présentons le régime dissipatif associé aux points chauds (PC). Nous montrons dans quelle mesure ces points chauds sont stables au détriment des glissements de phase. Les points chauds et leur équilibre avec les glissements de phase sont un point important pour la compréhension de la détection d'une faible perturbation, telle qu'un photon, par la simple mesure de transport d'un nanofil.

### 4.1 Le modèle de point chaud

Un point chaud (PC) est une zone normale. Par exemple, elle peut être induite par une élévation locale de température  $\Delta T = T_0 - T_M$ , avec  $T_0$  la température loin du point chaud et  $T_M$  la température au centre du point chaud, telle que  $T_M \geq T_c$ . La figure 4.1 illustre les échanges thermiques mis en jeu dans le processus d'équilibre du point chaud. Les énergies à comparer sont d'une part l'énergie dissipée par le passage d'un courant à travers une zone normale (résistive) et l'énergie thermique évacuée vers le substrat.

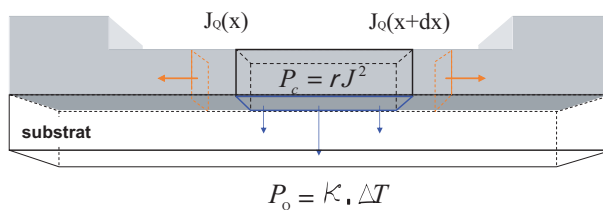


FIGURE 4.1 – Représentation schématique des transferts de chaleur au sein d'un point chaud formé dans un fil supraconducteur couplé à un bain ou un substrat froid.

Le nanofil est polarisé en courant, la puissance dissipée par la passage du courant dans la zone normale, est telle que  $P_c = \rho j^2$ . La conductivité thermique  $\kappa$ , définit la distribution du flux de chaleur sur la largeur du fil. L'équation de diffusion de la chaleur vers le substrat est donnée par  $\vec{J}_Q = -\kappa \vec{\nabla} T$ .



Un régime stationnaire de point chaud est atteint pour un courant de polarisation tel que  $P_c = P_Q = dQ/dt = -\kappa \text{div}(\vec{J}) = -\kappa \Delta T$ .

$$\Delta E = E(T_0) - E(T_c) = \tau_\gamma (\rho J^2 - \kappa \Delta T) = \int_{T_0}^{T_M} C(T) dT \quad (4.1)$$

avec  $T_M = T_c$ .  $\tau_\gamma$  correspond au temps de relaxation thermique et  $C(T)$  la chaleur spécifique du matériau. Elle est donnée par la contribution des phonons à basse température telle que  $C(T) \propto \beta T^4/4$ . Les équations sont exprimées par unité de volume.

La relation 4.2, aboutit finalement à la dépendance en température de la densité de courant  $J_h$ , d'un point chaud en régime stationnaire.

$$\begin{aligned} \rho J_h^2 - \kappa \Delta T &= \frac{1}{4\tau_\gamma} \beta T_c^4 \left( 1 - \left( \frac{T_0}{T_c} \right)^4 \right) \\ J_h^2 &\propto \frac{\beta T_c}{\tau_\gamma \rho} \cdot \left( 1 - \frac{T_0}{T_c} \right) \end{aligned} \quad (4.2)$$

La dépendance en température du courant de point chaud et du courant critique est différente et va nous permettre de distinguer les deux régimes. A présent, nous montrons dans quelle mesure une caractéristique de transport permet de faire la différence entre ces deux modes de dissipation. Nous interpréterons ensuite ces résultats en nous aidant des travaux de K. Harrabi et al [67].

## 4.2 Mesure du plateau de point chaud

Le régime de point chaud est mesuré avec la caractéristique courant-tension d'un nanofil connecté  $50\Omega$  polarisé en tension. Pour cela, nous utilisons un adaptateur d'impédance  $50\Omega$  à la sortie du générateur de tension. La figure 4.2 montre la mesure courant-tension d'un méandre constitué de 8 lignes de NbN en série de longueur  $L = 5\mu m$ , de largeur  $w=200\text{nm}$ , et d'épaisseur  $d=6\text{nm}$ . La longueur développée est de  $44\mu m$ , soit 220 carrés. La mesure est effectuée par une polarisation en courant (à gauche) et par une polarisation en tension (droite). Le maximum de résistance  $44k\Omega$  est mesuré autour de  $20K$ . La résistance diminue progressivement avec un coude de  $30k\Omega$  à  $9.5K$ . On considère que ce coude correspond à la transition du méandre. On prend  $R_n = 30k\Omega$ .

Le courant critique est de l'ordre de  $40\mu A$ , inférieur à la mesure en polarisation courant. L'amplitude mesurée du courant critique est très sensible au bruit électronique et à la vitesse de la mesure. Nous pouvons à présent préciser, que dans ce cas, la transition S-N est amorcée par un PSC. Ce courant est donc inférieur au courant de séparation des paires de Cooper (sec.3.3.2). A cette température, le PSC n'est pas stable, il s'étale en point chaud même pour une polarisation tension.

Le plateau de point chaud (PC) apparaît à un courant  $I_h = 15\mu A$ . Il est inférieur au courant critique du fil,  $I_h < I_c$ . Le PC s'étale sur 125mV, ce qui correspond à la transition continue de  $\sim 60$  carrés, avec  $R_N \sim 7.5k\Omega$  et  $R_{N\cdot\Box} \sim 136\Omega$ .

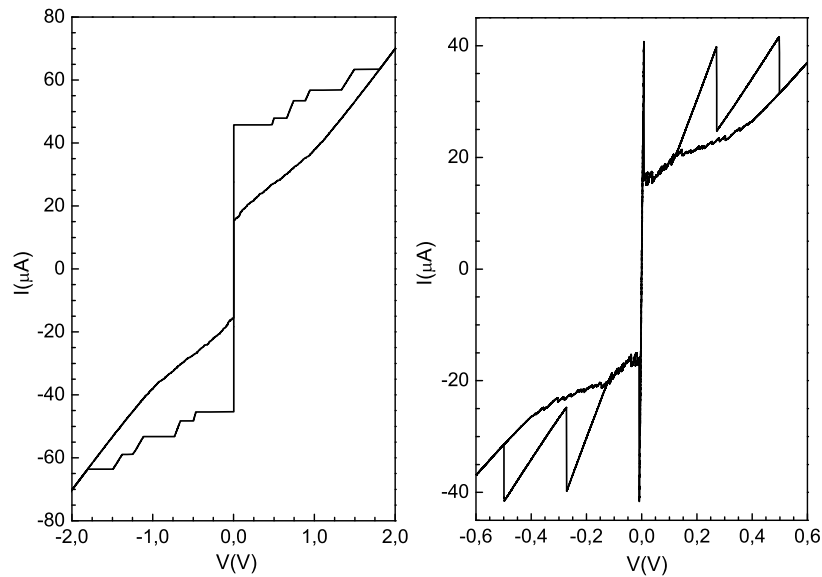


FIGURE 4.2 – Caractéristique  $I(V)$  d'un méandre polarisé en courant (gauche) et en tension (droite). La figure met en évidence, le plateau de point chaud et les transitions successives des lignes en série du méandre.

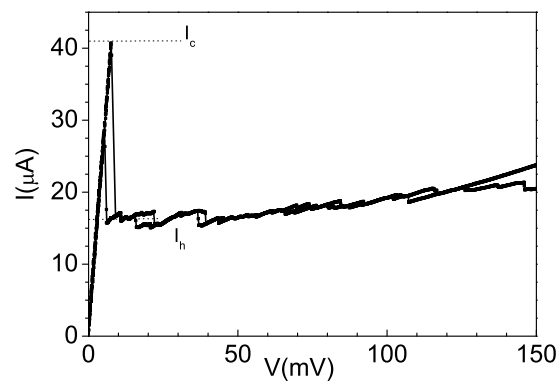


FIGURE 4.3 – Caractéristique  $I(V)$  du méandre polarisé en tension à  $4.2^\circ K$ . La figure met en évidence les fluctuations de phase dans le plateau de point chaud. Les pentes associées convergent vers  $I_c/2$

### 4.3 Interprétation

#### 4.3.1 Un diagramme de phase entre les PC et les PSL

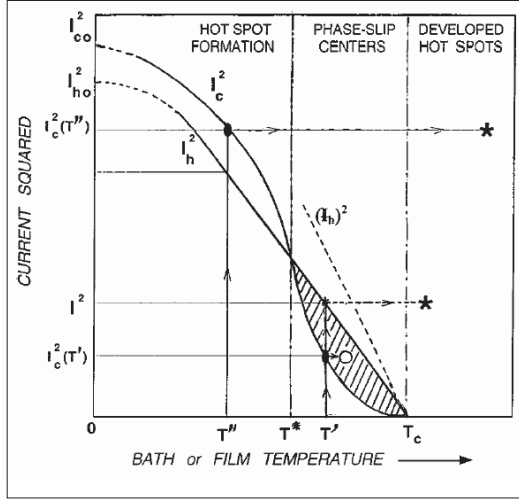


FIGURE 4.4 – Diagramme de phase théorique dans le plan  $I^2(T)$  d'apparition et de disparition d'un centre de glissement de phase et d'un point chaud en fonction de la température.  $I_c$  est le courant critique,  $I_h$  est le courant de point chaud. La région hachurée définit la zone où les PSC sont stables. Reproduit de [65].

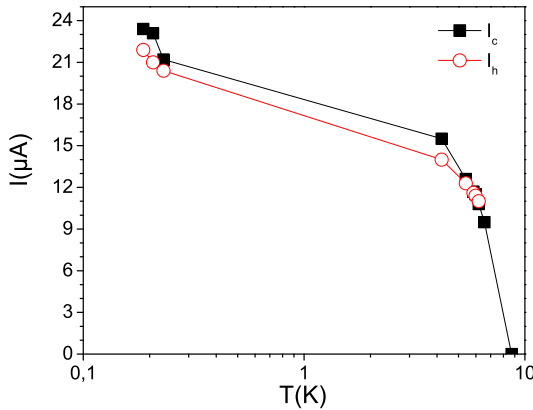


FIGURE 4.5 – Dépendance en température du courant critique  $I_c$  et courant de point chaud,  $I_h$ . La valeur de ces courants est déterminée en fonction de la température à partir des caractéristiques  $I(V)$  d'un de nos rubans mesurées à diverses températures (fig.3.4).

Nous présentons à l'aide de la figure 4.4 le diagramme de phase proposé par Maneval et al [65]. Ce diagramme permet d'interpréter nos résultats. Nous distinguons deux contributions au courant critique du système :

- Le courant critique, sa dépendance en température de  $I_{dp}$  est telle que,

$$I_{dp} = I_0 \times (1 - (T/T_c)^2)^{3/2} \quad (4.3)$$

avec  $I_0 = 1.491 \times S \times 2N(0)\Delta_0(D\Delta_0/\hbar)^{1/2}$ ,  $S$  est la section du fil. Il est nommé  $I_c$  sur la figure 4.4.A.

- Le courant critique de point chaud,  $I_h$  (eq.4.2)

$$J_h^2 \propto \frac{\beta T_c}{\tau_\gamma \rho} \cdot \left(1 - \frac{T_0}{T_c}\right)$$

correspondant au courant nécessaire pour que le point chaud s'étale. Il correspond à la valeur du courant associé au plateau de point chaud sur les caractéristiques courant-tension ( $I(V)$ ).

Ces courants se croisent à une température  $T^* < T_c$ . Au dessus de ce point critique, les PSC sont stables avec  $I_h > I_c$ . Ce sont ces fluctuations qui apparaissent comme des sauts en tension réguliers dans les caractéristiques  $I(V)$  près de  $T_c$  (fig.3.4)[64]. En dessous de  $T^*$ , les PSC ne sont plus stables. Le courant de point chaud est inférieur au courant critique,  $I_h < I_c$ . Dès qu'une fluctuation de phase apparaît, le PSC induit la formation d'un point chaud. C'est ainsi, que sans apport de chaleur supplémentaire, une fluctuation de phase quantique induit la formation d'une zone résistive plus grande. Le PC induit des sauts de tension important facilement détectable par une mesure de transport. Le PC agit comme un amplificateur local pour la détection d'un PSC quantique. Nous voyons dans le paragraphe suivant comment ce PC peut se relaxer de lui même malgré une polarisation en courant.

Nous déterminons ces deux valeurs de courant à partir des caractéristiques  $I(V)$  des rubans. Elles sont mesurées pour diverses températures (fig.3.4)). A l'aide de la figure 4.5, nous mettons en évidence la dépendance en température du courant critique  $I_c$  et du courant de point chaud  $I_h$ . Nous mesurons un croisement entre les courants de PC et de PSC. Au delà de ce point, nous ne pouvons plus mesurer le courant de point chaud qui devient supérieur au courant des PSC. En comparant ce résultat avec la figure 4.4 nous estimons une température  $T^* \sim 6.2^\circ K$ . Au delà de  $T^*$ , les caractéristiques  $I(V)$  ne sont plus hystérétiques, les PSC dominant la transition. Il n'y a plus de dissipation par effet Joule.

Ce modèle nous semble adapté pour interpréter nos résultats et en particulier pour interpréter la dépendance en température des caractéristiques courant-tension. Aux plus basses températures, les centres de glissement de phase entraînent la formation de point chaud lorsque l'on augmente le courant de polarisation (aller). Les points chauds conduisent à des instabilités et des sauts brusques. Ils induisent une élévation locale de la température qui se traduit par de larges hystérésis. Les points chauds n'apparaissent pas lors du retour en courant, car la température devient localement supérieure à  $T^*$ . Les PSC sont alors des excitations stables. De même, à  $T = 6.2^\circ K$ , les centres de glissement de phase ne conduisent pas à la formation de point chaud. Les sauts sont réguliers. ( Amplitude des sauts  $\sim 1mV$ ).

### 4.3.2 Stabilisation d'un PC en polarisation courant

La figure 4.6 est une mesure temporelle de l'évolution d'un point chaud généré par une excitation laser de 20ns, reproduit d'après les travaux de Maneval et al,[65][67] :

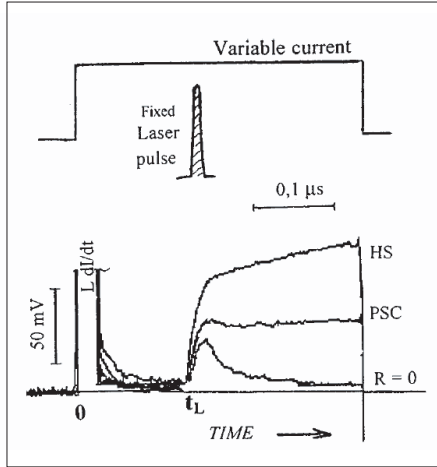


FIGURE 4.6 – Tension induite par un pulse laser de 20ns, au borne d'un film de Nb, de 80nm d'épaisseur polarisé sous  $I_c$ . En fonction du courant de polarisation, l'excitation induit un point chaud qui se relaxe, un phase slip ou un point chaud qui s'étend. Reproduit de [65].

- Le point chaud s'étend pour  $I_h < I < I_c$ .
- Le point chaud est stable pour  $I = I_h$ .
- Le point chaud régresse pour un courant tel que  $I_1 < I < I_h$  sur une durée correspondant au temps bolométrique  $\tau$ .

$I_1$  correspond au courant minimum pour générer un point chaud. Il est inférieur au courant qui permet d'entretenir et d'étendre la zone résistive,  $I_h$ .  $I_1$  s'exprime tel que  $I_1 = (1/\sqrt{2})I_h$ , soit

$$I_1 = \left( (1/\sqrt{2})SC/\rho\tau\gamma \times (T_c - T_0) \right)^{1/2} \quad (4.4)$$

Ce diagramme nous permet de comprendre la dépendance en courant du comportement des nanofils soumis à une perturbation électromagnétique. En particulier, pourquoi le pic de tension photovoltaïque a lieu pour  $I < I_c$ , soit à  $I = I_h$ . En effet, tant que  $I_1 < I < I_h$ , le PC se résorbe. Au delà il sature. Nous présentons ces résultats dans le chapitre suivant.

### Conclusion

Près de la température de transition supraconductrice les PSC sont stables. Ils induisent des sauts de tension dont l'amplitude est constante. Loin de  $T_c$ , un PSC induit la formation d'un point chaud. Ces points chauds ont une amplitude au minimum égale à celle d'un PSC. Leur stabilité dépend du courant de polarisation, soit de la puissance de chauffage par effet Joule et de celle de refroidissement vers le substrat.

Le PC se thermalise de lui même si  $I < I_h$ , il est stable et l'analogue d'un PSC pour  $I = I_h$  et s'étend pour  $I > I_h$ .

Au croisement des domaines de PSC et de PC, on associe une température  $T^*$ . En dessous de  $T^*$ , soit loin de  $T_c$ , le régime de PC permet d'amplifier la réponse d'un nanofil à une excitation de phase quantique. Une élévation locale de la température n'est pas nécessaire pour induire la formation de ce PC. Une fluctuation de phase induite par l'absorption d'un photon unique ou d'une particules porteuse d'un faible spin par exemple, peut être détectée par une simple mesure de transport.

## Chapitre 5

# Conclusion

Nous avons présenté les caractéristiques électriques aux basses températures de rubans de NbN dont la section est de l'ordre de  $3nm \times 150nm$ . Nous avons interprété nos résultats avec les modèles décrivant les régimes dissipatifs associés aux vortex libres, aux centres de glissement de phase et aux points chauds.

Notre étude montre que le régime de flux flow donne une contribution constante à la résistivité, pour une température et un courant constant. La résistance de Flux Flow est de quelques  $m\Omega$ . Néanmoins, l'énergie d'une paire VAV est faible ( $<meV$ ). Une perturbation locale peut briser PVAV. Leur séparation induit un évènement discret en tension. A partir de l'énergie d'une PVAV nous avons pu comparer les temps de réponse du Nb et du NbN.

Nous montrons également que les glissements de phase induisent des sauts de tension d'amplitude constante. La résistance associée à un PSC dans un système quasi 1D est inférieure à la résistance par carré d'un fil. Nous les associons à des lignes de glissement de phase (PSL) pour des températures proches de  $T_c$ . Aux plus basses températures, nous montrons qu'un régime de point chaud est stable. Le point chaud induit des sauts de tension plus importants que ceux induits par les lignes de glissement de phase. A basses températures, les points chauds agissent donc comme des amplificateurs pour la détection de fluctuations quantiques de la phase du condensat.



Troisième partie

Détecteurs supraconducteurs à un  
photon





# Table des matières

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>121</b>
1.1	Introduction . . . . .	121
1.2	État de l’art des détecteurs à un photon . . . . .	124
1.2.1	Les détecteurs semiconducteurs . . . . .	124
1.2.2	Chambre de vapeur d’atome . . . . .	126
1.2.3	Les détecteurs supraconducteurs . . . . .	126
1.2.4	Comparaison des paramètres relevant des détecteurs optiques . . . . .	128
1.3	Paramètres et propriétés caractéristiques des détecteurs à point chaud . . . . .	129
1.3.1	Sensibilité . . . . .	129
1.3.2	Bruit d’obscurité . . . . .	130
1.3.3	Jitter . . . . .	130
1.3.4	Taux de répétition maximal . . . . .	130
1.3.5	Efficacité quantique . . . . .	130
1.4	Apport de la lithographie AFM pour les détecteurs à point chaud . . . . .	131
1.4.1	Améliorer l’efficacité quantique des détecteurs . . . . .	131
1.4.2	Préserver la supraconductivité des nanofils . . . . .	133
1.4.3	Coupler le détecteur à un nano-émetteur . . . . .	133
1.5	Principe des détecteurs supraconducteurs à point chaud . . . . .	133
1.5.1	Mécanisme de formation d’un point chaud assisté en courant . . . . .	134
1.5.2	Mécanisme d’écrantage lors de l’absorption du photon . . . . .	135
1.5.3	Fluctuations thermiques et quantiques . . . . .	137
<b>2</b>	<b>Protocole expérimental</b>	<b>139</b>
2.1	Fabrication et géométrie du dispositif . . . . .	139
2.1.1	Les films ultra minces de NbN . . . . .	139
2.1.2	Micro fabrication des contacts . . . . .	141

2.2	Lithographie AFM des nanofils . . . . .	142
2.3	Protocole de mesure . . . . .	143
2.3.1	Caractérisation en mode comptage de photon . . . . .	144
2.3.2	Mesure en mode de détection continue . . . . .	146
<b>3</b>	<b>Caractérisation des détecteurs</b>	<b>149</b>
3.1	En mode de comptage de photon . . . . .	149
3.1.1	Résolution temporelle du détecteur . . . . .	149
3.1.2	Résolution spectrale du détecteur . . . . .	151
3.1.3	Sensibilité et efficacité quantiques des détecteurs . . . . .	152
3.2	En mode de détection synchrone . . . . .	154
3.2.1	Dépendance en courant, $I$ . . . . .	154
3.2.2	Dépendance en température, $T$ . . . . .	156
3.2.3	Dépendance avec la fréquence de mesure, $f_0$ . . . . .	158
3.2.4	Bruit d'obscurité des détecteurs . . . . .	160
3.3	Comparaison entre les deux modes de mesure . . . . .	162
3.3.1	Une mesure de bruit grenaille . . . . .	162
3.3.2	Estimation du nombre de photons détectés . . . . .	164
<b>4</b>	<b>Interprétation du mécanisme d'absorption photonique</b>	<b>167</b>
4.1	Détection quantique et bolométrique . . . . .	167
4.1.1	Comparaison avec un effet purement bolométrique . . . . .	167
4.1.2	L'effet 'photofluxonic' . . . . .	171
4.2	Contribution de l'inductance cinétique des fils . . . . .	172
4.3	L'absorbance d'un fil supraconducteur . . . . .	173
4.3.1	Cas d'un film métallique . . . . .	173
4.3.2	Cas d'un film supraconducteur . . . . .	174
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>177</b>

# Chapitre 1

## Introduction

Dans cette partie, nous présentons la caractérisation optique des premiers détecteurs à un photon réalisés par l'oxydation anodique locale de films ultra-minces (NbN) sous la pointe d'un microscope à force atomique. Tout d'abord, nous montrons dans quelle mesure ces détecteurs sont utiles pour la détection rapide de photons uniques et quel est l'apport de la lithographie AFM pour ces dispositifs. Puis, nous présentons les détecteurs testés et les protocoles expérimentaux suivis pour leur caractérisation optique. Leur caractérisation électrique aux basses températures (sans irradiation) a été présentée dans la partie précédente de ce manuscrit (Part.II). Enfin, nous présentons les résultats que nous avons obtenus et discutons des points qui sont encore mal compris à l'heure actuelle. En particulier, nous nous interrogeons sur les mécanismes qui sont induits par l'incidence d'un photon et sur la définition de l'absorbance des détecteurs supraconducteurs qui est un point essentiel pour déterminer leur efficacité quantique.

### 1.1 Introduction

Les sources et détecteur à un photon sont les briques élémentaires pour implémenter une cryptographie quantique [93] [94]. Pour cela, les détecteurs supraconducteurs s'avèrent être les meilleurs candidats. Ils sont d'ores et déjà utiles pour la cryptographie classique<sup>1</sup>.

Le mode de cryptographie classique, théoriquement infaillible, est basé sur le concept du "masque jetable" inventé par G. Vernam en 1917. La clef du message est par contre définie de manière aléatoire et ne sert qu'une seule fois. Les difficultés de cette méthode résident dans la transmission sécurisée de cette clef et non du message. Si la clef est corrompue elle est ignorée et la transmission du message, qui a lieu après la clef, n'est pas effectuée. Il est à souligner que le bruit du détecteur détermine dans ce cas le niveau de sécurité de la transmission. La figure 1.1 schématise le principe de distribution d'une clef quantique.

---

1. [www.idquantique.com](http://www.idquantique.com)

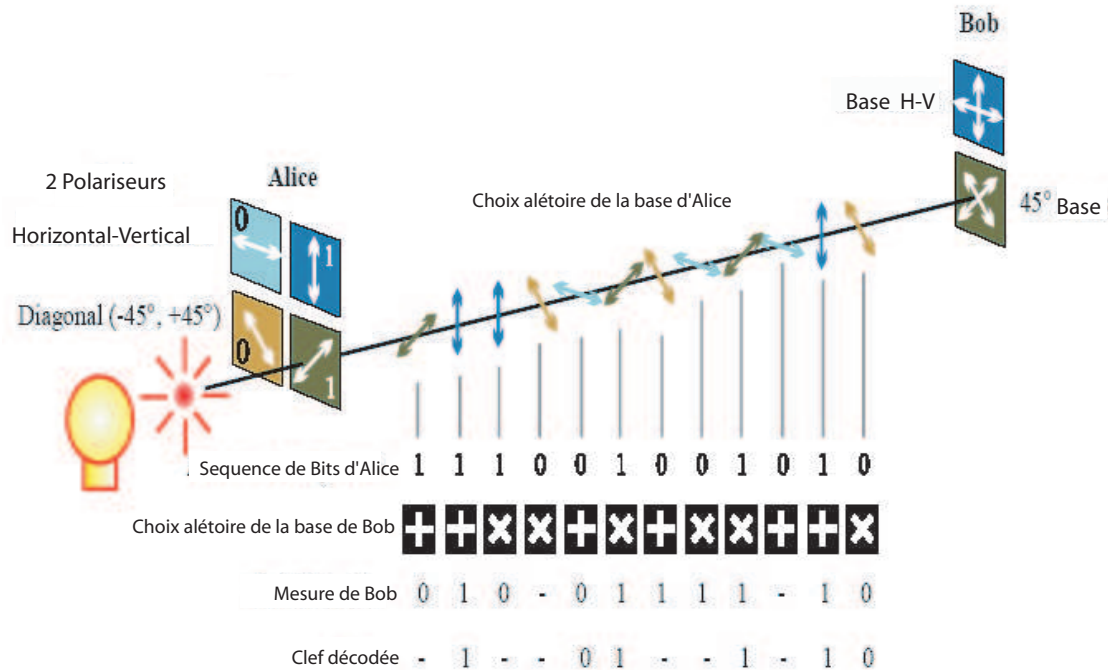


FIGURE 1.1 – Principe de distribution d'une clef quantique. La clef est codée sur la polarisation de photons uniques émis par Alice et détectés par Bob. La base de polarisation des photons émis est choisie de manière aléatoire, ( $0^\circ$ - $90^\circ$ ) ou ( $-45^\circ$ - $+45^\circ$ ). De même, Bob utilise une base aléatoire pour détecter chaque photon incident. Il note le résultat et le polariseur choisi. Alice transmet le choix de sa base à Bob sur un canal public. Une fois sur deux, Bob aura choisi la même base qu'Alice et la mesure donnera une information. Le reste de l'information est inutilisable. L'intrus, Eve, qui est obligée de réémettre un photon, induit une émission aléatoire lorsqu'elle ne choisit pas la même base que Alice. Une tentative d'intrusion induit donc une fois sur deux, une erreur entre la base d'émission fournie par Alice et la mesure de Bob. Si ce taux d'erreur est supérieur à celui du détecteur, Eve est repérée et la clef jetée. Le seuil de bruit du détecteur détermine le niveau de sécurité de la transmission.

Pour être efficace le détecteur doit présenter une grande efficacité quantique, une large bande passante, un faible bruit d'obscurité, une dynamique rapide et une haute sensibilité.

Une autre difficulté consiste à préserver la cohérence d'un photon à travers des fibres optiques sur de longue distance. La transmission dans l'air est une solution alternative [95].

En 1996 A.M. Kadin et M.W. Johnson proposent les détecteurs supraconducteurs à point chaud [87]. Les détecteurs sont des lignes méandres supraconductrices. Un photon incident (IR) d'énergie mille fois supérieure au gap supraconducteur perturbe le condensat de paire de Cooper. Une fluctuation de phase suffit alors pour induire la formation d'une zone résistive plus grande : un point chaud (Part.II). Le point chaud est alors détectable par une mesure de transport (fig.1.2).

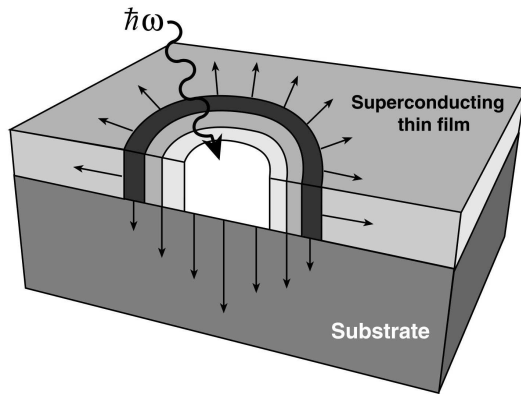


FIGURE 1.2 – Représentation de la formation d’une zone résistive révélant l’absorption d’un photon par un ruban supraconducteur. Sur une large gamme de longueur d’onde, l’énergie des photons incidents est supérieure au gap supraconducteur du ruban, modulable en température et sous champ magnétique.

En raison du faible gap supraconducteur et de leur environnement cryogénique, ces dispositifs sont plus sensibles et plus rapides que les détecteurs semiconducteurs. Ils élargissent la détection aux longueurs d’onde infrarouge avec un taux de répétition de l’ordre du GHz. Ils sont utiles à l’imagerie de défauts dans des circuits intégrés (CMOS), à la spectroscopie rayons-X, à l’astronomie [96][97]. En raison de leur sensibilité aux longueurs d’onde telecom (1350-1550nm), ils sont aussi utiles à la communication rapide [98] et à l’implémentation de la cryptographie quantique [93]. Pour certaines de ces applications, les détecteurs supraconducteurs à un photon présentent encore une trop faible efficacité quantique. Des travaux récents montrent qu’il est possible de l’améliorer en couplant les dispositifs à une cavité optique résonnante [99]. Le nombre de passages du photon est alors augmenté ainsi que la probabilité de le détecter.

Nous proposons une autre alternative pour améliorer l’efficacité des détecteurs. Elle est basée sur l’utilisation de la lithographie en champ proche. La lithographie par oxydation locale avec un microscope à force atomique (AFM) permet d’obtenir des nanofils en méandre plus denses et plus étroits, augmentant ainsi la sensibilité et l’efficacité de détection des dispositifs. En Scannant un parcours vectoriel déterminé, la pointe AFM polarisée induit une oxydation anodique locale (LAO) d’une piste de nitrure de niobium<sup>2</sup> (NbN). Les lignes d’oxydes obtenues sont les parties optiquement inactives du détecteur que l’on tente de minimiser. Leur largeur influence la transparence du détecteur et donc son rendement. Elle est inférieure à la longueur d’onde du photon incident. Nous avons appliqué cette technique à des films ultra-minces de NbN (10nm-3nm), ce qui nous permet de réaliser des lignes isolantes dont la largeur est de 50nm.

La première partie de ce chapitre, présente un état de l’art des détecteurs optiques de faible flux de photons. Nous soulignons l’intérêt des détecteurs supraconducteurs à point chaud ainsi que l’apport de la lithographie AFM à ces dispositifs. Nous présentons dans le deuxième cha-

2. Les films ultra-minces de NbN sont obtenus d’une part au CEA Grenoble par J.C. Villegier et al, et d’autre part au MPSU à Moscou par B. Voronov.

pitre le protocole expérimental puis les résultats que nous avons obtenus en mode de comptage de photon et en mode de détection continue.

## 1.2 État de l'art des détecteurs à un photon

Dans cette partie, nous montrons en quoi les détecteurs supraconducteurs à point chaud sont utiles à la détection de photon unique de basse énergie en présentant un état de l'art des détecteurs optiques semiconducteurs et cryogéniques.

### 1.2.1 Les détecteurs semiconducteurs

Les détecteurs semiconducteurs sont les détecteurs communément utilisés pour la détection optique. Néanmoins nous allons voir dans quelle mesure ces détecteurs sont limités pour le comptage de photon unique.

#### Les photomultiplicateurs à tubes (PM)

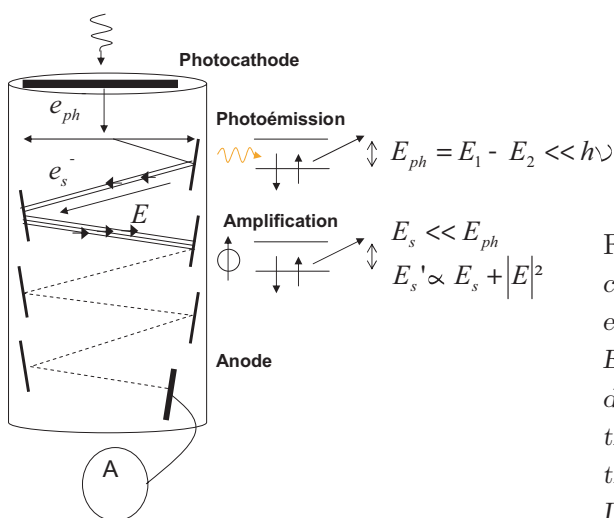


FIGURE 1.3 – Principe d'un tube photomultiplicateur : le signal de photoémission de la cathode est amplifié sous vide par une série de dynodes. Elles amplifient le signal d'entrée par une avalanche d'émission d'électrons secondaires. Un champ électrique permet de compenser les différences énergétiques entre le signal d'entrée et les électrons réémis. Ils sont ainsi accélérés vers les dynodes suivantes.

Les tubes photomultiplicateurs [100] [101] permettent d'amplifier la réponse d'une photocathode soumise à un flux de photon (fig.1.3). Ce détecteur est utilisé comme un compteur de photon. Néanmoins il ne peut faire la différence entre l'absorption d'un ou de plusieurs photons. Il est sensible de l'ultraviolet à l'infrarouge proche et son temps de réponse est de l'ordre de la nanoseconde (10-9ns). L'inconvénient de ce dispositif est son coût et sa fragilité, puisque le tube de transmission du signal électrique est en verre et sous vide.

Le Channeltron (Channel PhotoMultiplier CPM) offre une alternative. Les dynodes sont remplacées par une paroi homogène, où les électrons incidents soumis à un champ électrique ricochent et induisent une émission secondaire. Par ailleurs, il est plus robuste et possède un gain plus important (jusqu'à 108). Le temps de réponse moyen de ce détecteur est de 3 ns

pour un gain typique de 106 avec un courant d'obscurité typique de 60 pA.

Les photomultiplicateurs ont une faible efficacité quantique, 25% au maximum de sa sensibilité et seulement 15% aux longueurs d'ondes infrarouge. L'inconvénient de ces détecteurs est que le bruit est autant amplifié que le signal réel correspondant à l'absorption d'un photon.

### Photodiode à avalanche (APD)

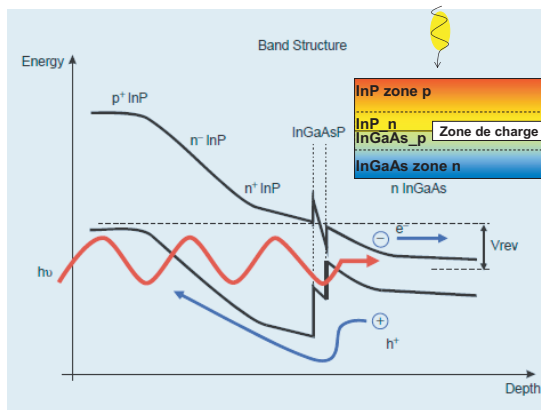


FIGURE 1.4 – Principe d'utilisation des photodiodes à avalanche. Un fort gradient de potentiel entre les deux zones dopées n et p, permet d'amplifier le courant photovoltaïque. L'amplification a lieu par un effet d'excitation en chaîne des paires 'électron-trou', lors de leur transit vers les électrodes. Cet effet peut être augmenté jusqu'à un gain de  $10^5$  à  $10^6$ , en utilisant les photodiodes à avalanche en mode Geiger. Reproduit d'après [102].

Lorsqu'un photon absorbé il crée des paires 'électron-trou' dans la zone de charge d'une photodiode. Les porteurs sont ensuite évacués vers les électrodes, les zones p et n respectivement pour les trous et les électrons créés. Le nombre de porteurs générés est d'autant plus important que la zone intrinsèque, zone de charge, est grande. Pour avoir un courant photo-induit important il faut donc l'augmenter. Mais la largeur de la zone de charge détermine aussi le temps de transit des porteurs qui constitue le temps mort du détecteur. Un compromis entre le nombre de porteurs et leur temps de diffusion doit être trouvé. Lorsque la polarisation de la photodiode est suffisamment grande, d'autres paires 'électron-trou' sont excitées lors de la diffusion des porteurs vers les électrodes. Ces paires permettent d'amplifier le signal photo-induit. C'est le principe des photodiodes à avalanche (APD)(fig.1.4).

Pour ces deux détecteurs, PIN et APD, l'amplification n'est pas suffisante pour détecter des photons uniques. Pour la détection de faible flux de photons, les photodiodes à avalanches sont alors utilisées en mode Geiger. Dans ce mode, les diodes sont polarisées proche de la tension de claquage. Au delà de cette tension la diode devient conductrice et le courant augmente exponentiellement avec la tension appliquée. Ce mode permet d'obtenir des gains élevés de l'ordre de  $10^5$  à  $10^6$ .

Ces dispositifs présentent une grande efficacité quantique dans le visible de l'ordre de  $EQ=76\%$  [103] [104]. Mais l'amplification du signal photovoltaïque s'accompagne d'une amplification du bruit (fig.??) et leur utilisation en mode de comptage de photons ne permet pas de résoudre



le nombre de photons détectés.

Les détecteurs semiconducteurs montrent donc une grande efficacité quantique et une possibilité d'amplification très importante mais ils ne permettent pas de résoudre le nombre de photons incidents. Leur large gap ( $\sim 2\text{eV}$ ) limite leur sensibilité à un photon aux courtes longueurs d'ondes. Malgré leur utilisation aux basses températures, ils présentent également un bruit d'obscurité et un temps mort élevé. Celui-ci est d'autant plus élevé que leur efficacité quantique est grande. Le tableau 4.1 présentent les paramètres relevant des meilleurs dispositifs semiconducteurs actuels.

### 1.2.2 Chambre de vapeur d'atome

Cette technique peut être comparée aux chambres à bulles inventées par le prix Nobel de physique Donald Arthur Glaser en 1960. La chambre à bulle, constituée d'hydrogène liquide, permet de visualiser la trajectoire d'une particule. Celle-ci laisse une traînée de bulles derrière son passage qui sont alors photographiées. Dans le cas des vapeurs d'atomes, le photon incident génère sur son passage, une émission spontanée de photons en excitant les atomes qu'il rencontre.

### 1.2.3 Les détecteurs supraconducteurs

L'énergie du gap supraconducteur est de l'ordre du meV. Un photon incident d'énergie mille fois supérieure ( $1\text{eV}$  à  $1\mu\text{m}$ ) brise un grand nombre de paires de Cooper et crée un grand nombre de quasiparticules. L'absorption d'un photon altère fortement les propriétés du dispositif supraconducteur. Il existe différentes alternatives, dont nous présentons quelques exemples.

#### Les jonctions tunnels (SIS-JT)

Dans les jonctions tunnels Le photon est absorbé par le dispositif supraconducteur. Il brise alors des paires de Cooper et génère des quasiparticules. Avant leur recombinaison, une faible différence de potentiel appliquée sur la jonction induit un unique courant tunnel de quasiparticules. Pour empêcher le passage des paires de Cooper de l'autre côté de la jonction, un faible champ magnétique est appliqué parallèle à la jonction tunnel. Les quasiparticules sont collectées par un amplificateur. Le nombre de quasiparticules est résolue et relié à l'énergie du photon incident ( $N_{qp} \sim h\nu/1.75\Delta_s$ ,  $N_{qp}$  le nombre de quasiparticules,  $h\nu$  l'énergie du photon incident et  $\Delta_s$  l'énergie du gap supraconducteur) [105].

L'efficacité quantique de ces détecteurs est de l'ordre de 50%, avec un temps mort de  $10\mu\text{s}$  [106].

### Les résonateurs (MKID)

Les quasiparticules générées par l'absorption d'un photon peuvent également être détectées par un résonateur couplé à l'absorbeur. Le résonateur est un fil supraconducteur placé en parallèle avec une capacité. L'absorption d'un photon induit un changement de l'inductance cinétique du fil et donc un décalage de la fréquence de résonance [107][108]. L'efficacité de ces détecteurs a été démontrée dans le domaine des rayons X. Leur résonance étroite, permettrait de réaliser un multiplexage dans le domaine fréquentiel en les implémentant sur une même ligne de transmission. Ces détecteurs sont ainsi prometteurs pour la spectroscopie.

### Les détecteurs bolométriques, "Transition edge sensor" (TES)

Les TES sont des supraconducteurs polarisés au bord de la transition supraconducteur - normal. L'absorption d'un photon incident induit localement une augmentation de la température supérieure à la température de transition supraconductrice. Une polarisation en tension continue permet de réduire le temps mort du détecteur [109]. L'énergie dissipée par effet joule n'est pas entretenue et le détecteur revient à son état d'équilibre de lui même. Le courant photo-induit est mesuré et amplifié par des SQUID DC. Dans l'infrarouge les détecteurs en tungstène montrent une efficacité quantique de 80%, néanmoins leur temps de réponse est lent ( $20\mu\text{s}$ ) [110].

### Les détecteurs à point chaud (SSPD)

Ces dispositifs sont basés sur la formation d'un point chaud qui est une zone locale où le supraconducteur devient métallique. Dans des fils de section étroite, le photon incident génère une cascade d'excitations de quasiparticules sur un temps de l'ordre de la picoseconde. Le point se thermalise rapidement vers le substrat [87][111]. Le détecteur est polarisé en courant proche de son courant critique. Un point chaud se forme et s'étale sur toute la largeur de la piste. Loin de sa transition ces dispositifs sont des détecteurs de fluctuation quantiques de la phase du nanofil supraconducteur.

Les dispositifs en NbN ont l'avantage d'avoir une résistance par carré élevée au dessus de la transition supraconducteur-normal, ce qui induit un pulse de tension suffisamment important ( $\mu\text{V}$ ) pour être détecté. Le temps de jitter des détecteurs est de l'ordre de 18ps et le temps mort de l'ordre de 50ps [90] [112]. Ce temps mort dépend du temps de diffusion des quasiparticules et de la conductivité thermique des matériaux utilisés [113]. Nous revenons plus en détails sur ces détecteurs que nous avons réalisés et caractérisés, dans la suite ce manuscrit.

Les détecteurs supraconducteurs fonctionnent sans grille avec une simple source de polarisation. Leur gap ( $\sim\text{meV}$ ) est de plusieurs ordres de grandeur plus faible que celui des semi-conducteurs. Celui-ci peut être contrôlé en température et en champ magnétique. Les photons incidents, même dans l'infra rouge lointain, ont une énergie (eV) près de mille fois supé-

rière au gap supraconducteur (sec.1.2.1). Contrairement aux dispositifs semiconducteurs, ces détecteurs permettent de discerner le nombre de photons absorbés et de réaliser une réelle électronique de comptage de photons.

#### 1.2.4 Comparaison des paramètres relevant des détecteurs optiques

Le tableau 4.1 résume et compare les caractéristiques des détecteurs supraconducteurs et semiconducteurs. Les paramètres relevant sont schématiquement représentés sur la figure 1.5. Il illustre les trois points décisifs pour le choix des détecteurs à point chaud pour la détection

Détecteur	Efficacité quantique	Bruit d'obscurité	Taux maximum de détection	Jitter Jitter	Résolution en énergie ( $E/\Delta E$ )
PM (Hamamatsu)	40% (500nm)	100Hz	10MHz		aucune
Si APD (Perkin-Elmer)	76% (700nm)	<100Hz	10 MHz	300ps	aucune
InGaAs/InP APD (id-quantique)	10% (1550nm)	100kHz	100 kHz	800ps	aucune
APD ([104])	88% (694nm)	10kHz			aucune
APD ([114])	70% (702nm)	10kHz		2ns	15
APD (Hamamatsu)	85% (702nm)				
SIS-JT [105][106]	50% (200-500nm)	$\sim 0$	50kHz	<2ns	10
MKID [107][108]	50% (200-500nm)	$\sim 0$	50kHz	<2ns	10
TES [110]	20% (200-1800nm)	$10^{-3} Hz$	20kHz	350ps	15
SSPD [99]	57% (1550nm)	$10^{-1} Hz$	>GHz	18ps	1

TABLE 1.1 – Comparaison des paramètres relevant des détecteurs à un photon semiconducteurs et supraconducteurs. Inspiré de [115]

du photon unique (SSPD) : leur sensibilité et leur rapidité plus élevée ainsi que leur bruit d'obscurité plus faibles que ceux des détecteurs semiconducteurs. L'autre avantage des SSPD est de pouvoir discerner le nombre de photons absorbés.

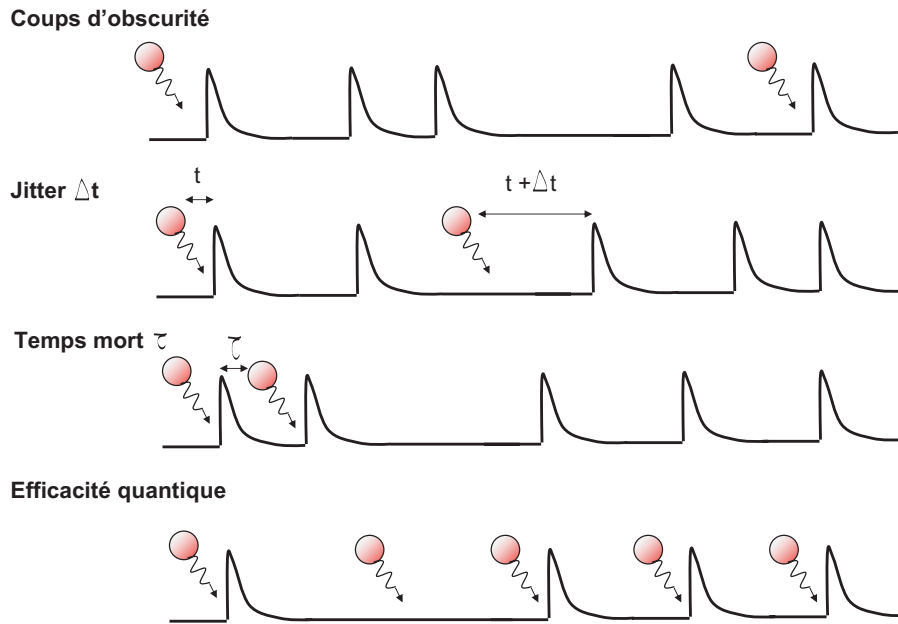


FIGURE 1.5 – Paramètres relevant des détecteurs supraconducteurs à un photon, le bruit, le Jitter, la bande passante et l'efficacité quantique.

### 1.3 Paramètres et propriétés caractéristiques des détecteurs à point chaud

A présent, nous présentons plus en détails les paramètres relevant des détecteurs à point chaud et dans quelle mesure ils peuvent être améliorés.

#### 1.3.1 Sensibilité

La sensibilité du détecteur définit la plus grande longueur d'onde pour laquelle le détecteur est sensible au photon unique. Elle correspond donc au nombre de photons absorbés nécessaires pour induire un point chaud. La sensibilité du détecteur est définie par sa section. La largeur du fil supraconducteur doit être suffisamment étroite pour permettre la formation d'un point chaud. Son étalement le long du nanofil doit être supérieure à  $\xi$ .

Pour augmenter la sensibilité des détecteurs il est possible de diminuer la largeur de la piste. Le temps d'étalement d'un point chaud, utile à la détection, est alors diminué. De plus, l'obtention de nanofils étroits permet aussi d'élargir la gamme de longueur d'onde détectable. Un point important est de conserver une densité de courant critique homogène le long du nanofil. Les bords de pistes doivent donc être réguliers, ce qui devient de plus en plus difficile à mesurer que la section est réduite.

La longueur d'onde pour laquelle l'efficacité quantique chute (la saturation ou le cut-off) est de l'ordre de  $3\mu\text{m}$  pour les détecteurs en NbN. Elle est repoussée aux longueurs d'onde submillimétriques avec l'utilisation de supraconducteurs de plus faible gap comme le titane (Ti) [96].

### 1.3.2 Bruit d'obscurité

Le bruit d'obscurité correspond aux perturbations induites par l'environnement direct du détecteur. Ces perturbations peuvent induire un signal comparable à celui de l'absorption d'un photon. Dans un supraconducteur, ce bruit correspond à une fluctuation de la phase du condensat qui peut être thermique ou quantique. Les fluctuations thermiques sont importantes près de la température de transition supraconductrice, elles sont réduites aux plus basses températures. Les détecteurs supraconducteurs montrent les plus faibles bruits d'obscurité. Avant l'arrivée du photon, ils sont dans un état stable, contrairement aux détecteurs semiconducteurs.

### 1.3.3 Jitter

Le jitter correspond au temps que met le point chaud à s'étaler et à former la barrière résistive à partir du moment où le photon est absorbé (fig.1.2). Il dépend de la constante de diffusion des quasiparticules, de la taille de la zone normale induite par l'absorption du photon, et donc de son énergie, et du courant de polarisation du fil comparé à son courant critique.

### 1.3.4 Taux de répétition maximal

Le taux de répétition maximal définit la bande passante du détecteur. Il traduit le temps durant lequel le détecteur est aveugle ou du moins le temps durant lequel son efficacité quantique est très réduite. Ce temps est dominé par le temps de relaxation des quasiparticules et le temps d'évasion des phonons. Il est relié à l'inductance cinétique du fil et à sa conductivité thermique.

A  $4K$ , le temps de réponse d'un détecteur supraconducteur est de l'ordre de  $50\text{ps}$  [115] ce qui assure une bande passante dans le GHz. Une résistance en parallèle, permet d'éviter un échauffement thermique par effet joule de la zone normale et de diminuer le temps mort du détecteur.

### 1.3.5 Efficacité quantique

L'efficacité quantique du détecteur correspond au rapport entre le nombre de photons incidents et le nombre de photons détectés. Nous avons vu qu'elle peut être augmentée par une

cavité résonnante. Elle dépend en grande partie du couplage entre le détecteur et l'onde électromagnétique incidente.

L'efficacité quantique des détecteurs à point chaud est de 30% à une longueur d'onde de  $\lambda = 1550\text{nm}$ . Elle est améliorée en couplant le détecteur à une cavité optique réfléchissante. La cavité est obtenue par une mince couche de résine. Un miroir Ti/Au à une distance  $d \sim \lambda/4$  permet d'augmenter l'efficacité quantique du détecteur à 50% pour ces longueurs d'onde [99].

## 1.4 Apport de la lithographie AFM pour les détecteurs à point chaud

Pour réaliser les détecteurs supraconducteurs à un photon, nous avons utilisé la technique d'oxydation anodique locale (LAO) contrôlée sous la pointe métallisée d'un microscope à force atomique (AFM). Des lignes d'oxyde isolantes de 20nm de large, façonnent la piste métallique de NbN, dans une atmosphère chargée d'humidité. Cette technique permet de réaliser les dispositifs en écriture directe. La technique d'oxydation locale par AFM est présentée en détail dans la partie IV. Dans ce paragraphe nous montrons comment la lithographie AFM permet de réaliser des détecteurs supraconducteurs à un photon (SSPD) prometteurs, en augmentant leur efficacité quantique.

### 1.4.1 Améliorer l'efficacité quantique des détecteurs

#### Augmenter leur sensibilité et leur rendement

La lithographie AFM permet d'augmenter la surface optiquement active du détecteur. Sa haute résolution (20nm) permet de réaliser des lignes d'oxydes isolantes plus étroites et plus serrées que ne le permet la lithographie électronique. Cette technique permet donc d'obtenir des lignes méandres supraconductrices plus denses et plus étroites ce qui augmente à la fois la sensibilité et le rendement du détecteur. Une réduction de la largeur du ruban permet d'augmenter sa sensibilité et d'élargir la gamme des longueurs d'ondes détectables. Un gap plus étroit entre les lignes supraconductrices permet d'augmenter la probabilité d'absorber un photon et donc d'augmenter le rendement (ou absorbance) du détecteur.

L'encadré 1.6 souligne ces deux intérêts en comparant deux dispositifs : l'un est réalisé par lithographie AFM, l'autre est réalisé par lithographie électronique.

Nous comparons la surface optiquement active d'un des premiers détecteurs réalisés par oxydation locale AFM à un des premiers détecteurs réalisés par lithographie électronique (Ebeam). Les surfaces isolantes (blanches sur la micrographie AFM et noires sur la micrographie électronique à balayage) constituent les parties optiquement inactives du détecteurs. Ce sont ces zones que nous tentons de diminuer pour améliorer le rendement du détecteur. Pour les dispositifs que nous avons réalisés, la surface des lignes isolantes d'oxyde de NbN est toujours bien

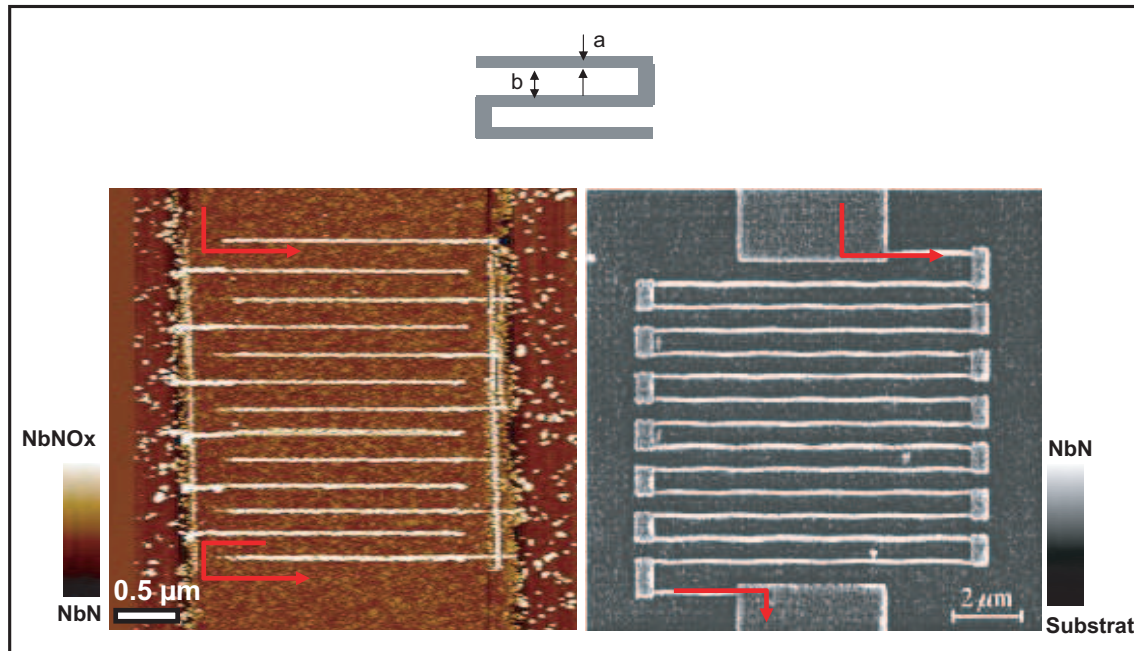


FIGURE 1.6 – L’encadré compare deux détecteurs réalisés par lithographie AFM (gauche) et par lithographie électronique (droite). La figure montre l’apport de la technique de lithographie AFM : en diminuant la section des méandres (a) pour augmenter leur sensibilité et en diminuant la section des zones isolante (b) pour augmenter leur rendement. La surface absorbante des dispositifs réalisés par lithographie AFM est ainsi de l’ordre de 80% tandis qu’elle est de l’ordre de 40% dans les détecteurs réalisés par lithographie électronique.

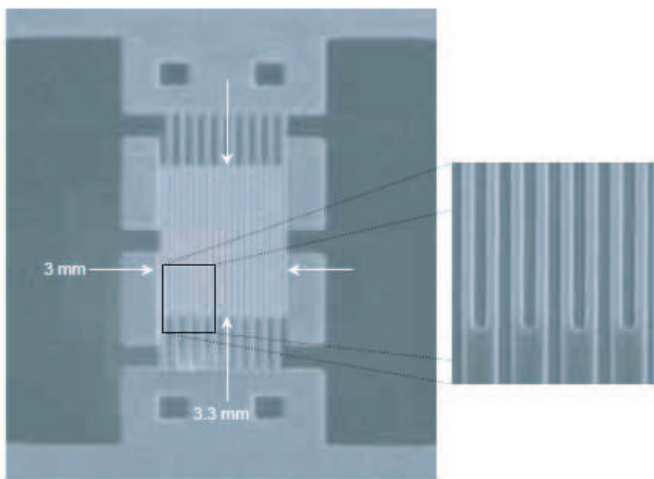


FIGURE 1.7 – Micrographie électronique à balayage du motif de résine utilisé pour réaliser les détecteurs à photon par lithographie électronique. Le dispositif est constitué d’un fil supraconducteur de 100nm de large. L’espacement entre deux lignes supraconductrices du méandre,  $b$ , est au moins égale à la largeur du fil (100nm). Reproduit de Berggren et al [116]

inférieure à la surface active du méandre en NbN. La largeur des lignes d’oxyde est de l’ordre de 50nm.

La comparaison entre les deux micrographies met en évidence le gain en surface absorbante (supraconductrices) pour les détecteurs réalisés par la lithographie AFM. Nous obtenons une surface active au minimum de 80%, alors que les détecteurs réalisés par lithographie électronique ont une surface active de 40%.

La surface inactive des dispositifs réalisés par E-beam est au mieux de l'ordre de la surface du supraconducteur. La figure 1.7 présente un détecteur récemment réalisés par Ebeam. L'espacement entre les lignes supraconductrices est au mieux comparable à leur largeur.

### Préserver un courant critique homogène

La lithographie AFM n'est pas soumise à des effets de diffraction ou de diffusion du faisceau d'électron. Les bords des lignes d'oxyde sont réguliers et la formation de point faible dans le dispositif est diminuée. Les dispositifs réalisés par AFM ont ainsi des courants critiques homogènes. La probabilité d'absorber un photon est alors identique sur chaque bras du méandre, ce qui augmente l'efficacité quantique des détecteurs.

#### 1.4.2 Préserver la supraconductivité des nanofils

La supraconductivité d'un film mince de quelques nanomètres d'épaisseur est affaiblie par rapport aux matériaux massifs. Nous avons vu dans la partie I que les procédés de micro-fabrications standards sont invasifs pour la supraconductivité des films ultra-minces.

La lithographie AFM permet une écriture directe en négatif du motif du dispositif supraconducteur. Elle constitue la dernière étape de nano fabrication et permet donc de s'affranchir de ces procédés de micro-fabrication au moment où le dispositif est le plus fragile.

#### 1.4.3 Coupler le détecteur à un nano-émetteur

La précision d'imagerie de l'AFM associée à sa haute résolution spatiale permet de repérer et de s'aligner précisément sur un nano-objet. Le nanofil est ensuite réalisé par oxydation locale directement sur le nano-objet à mesurer. La lithographie AFM est un outil prometteur pour caractériser le rayonnement thermique ou l'émission spontanée de nano-objets. Cette technique a déjà prouvé son efficacité dans l'amélioration du couplage magnétique entre des îlots de Fer et un SQUID réalisé par lithographie AFM.[117] [118].

## 1.5 Principe des détecteurs supraconducteurs à point chaud

Nous présentons les mécanismes de formation et de relaxation d'un point chaud assisté en courant. Nous verrons que la réponse du nanofil face à une onde électromagnétique incidente



peut être d'interpréter en utilisant le formalisme développé pour décrire les régimes dissipatifs associé aux fluctuations de phase du supraconducteur.

### 1.5.1 Mécanisme de formation d'un point chaud assisté en courant

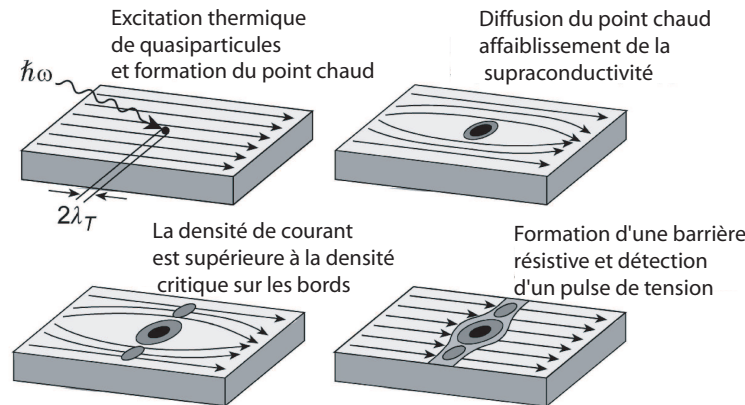


FIGURE 1.8 – Formation d'un point chaud assisté en courant induit par l'absorption d'un photon, d'énergie  $h\nu(eV) \gg \Delta(meV)$ . Le photon incident transfère suffisamment d'énergie au supraconducteur pour induire une zone normale de section  $\xi^2$  ( $\xi < 5nm$  pour le NbN). La section du fil doit être suffisamment petite pour permettre la formation du point chaud. Reproduit d'après Semenov et al.

La figure 1.8 présente schématiquement le mécanisme de formation d'un point chaud assisté en courant. Le détecteur est un ruban ultra-mince (nm) supraconducteur. L'absorption d'un photon d'énergie supérieure au gap supraconducteur  $h\nu(1eV) \gg \Delta(T)(meV)$  génère une gerbe de quasiparticules très énergétiques et diminue localement la densité de paire de Cooper.

Pour un courant de polarisation constant, les paires de Cooper sont accélérées sur les bords du point chaud. La vitesse du condensat devient plus grande que la vitesse critique et un point chaud s'étale, formant temporairement une barrière résistive.

La figure 1.9 schématise les mécanismes de relaxation du point chaud. Les quasiparticules excitées par l'absorption du photon sont très énergétiques. Elles diffusent dans le fil et excitent à leur tour d'autres quasiparticules, de telle sorte que leur densité devient maximale à un niveau d'énergie juste supérieur au gap supraconducteur ( $E_{QP} = E_F + \Delta$ , avec  $2\Delta$  l'énergie du gap supraconducteur). Dans ce premier processus de relaxation les quasiparticules interagissent avec les phonons du fil et du substrat. Ceux-ci permettent la thermalisation des quasiparticules en portant l'énergie thermique loin du point chaud. A leur tour, ils excitent des quasiparticules et affaiblissent la supraconductivité des lignes supraconductrices voisines. Les phonons sont finalement évacués par le substrat et le point chaud se relaxe. Le fil redevient totalement supraconducteur.

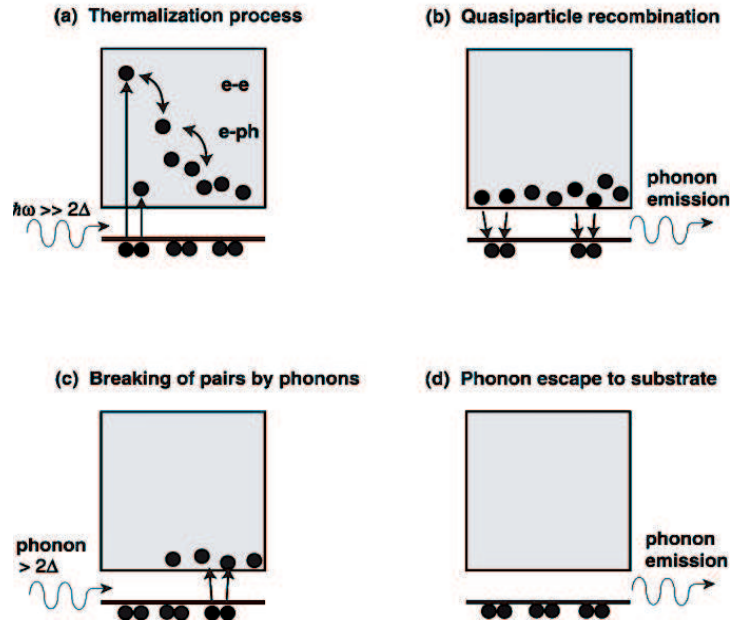


FIGURE 1.9 – Relaxation du point chaud : a) le photon absorbé brise des paires de Cooper. Les quasiparticules très énergétiques induisent à leur tour d'autres quasiparticules par un effet d'avalanche lors du premier processus de relaxation. b) lors de leur diffusion dans le fil elles interagissent avec les phonons du fil et du substrat. La diffusion de la chaleur peut se faire sur des longueurs supérieures à la largeur d'un bras et affaiblir la supraconductivité des bras voisins. La structure en ligne méandre dense permet un bon couplage thermique entre les lignes et augmente le temps de relaxation du point chaud. Reproduit d'après Semenov et al.

### 1.5.2 Mécanisme d'écrantage lors de l'absorption du photon

Les conditions de stabilité du point chaud ont été étudiées en détails dans la deuxième partie de ce manuscrit. Nous avons montré que la stabilité du point chaud est gouvernée par la température et le courant de polarisation. Pour des températures de l'ordre de  $T_c/2$ , le courant critique de point chaud est inférieur au courant critique d'un glissement de phase. Pour qu'un point chaud apparaisse, le photon doit induire une fluctuation de phase [65]. A ces températures les fluctuations de phase sont de natures quantiques.

#### Longueur de pénétration

Une onde électromagnétique se propage à travers le nanofil sur une épaisseur de peau,  $\delta$  qui dépend de la conductivité du matériau ( $\sigma$ ). Pour un fil conducteur elle s'exprime telle que,

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\omega \cdot \mu \cdot \sigma}} \quad (1.1)$$

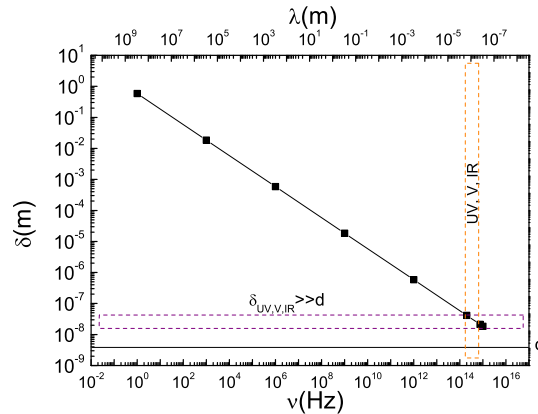


FIGURE 1.10 – Épaisseur de peau ( $\delta$ ) en fonction de la fréquence de l'onde électromagnétique (OEM),  $\nu$  déterminée pour un nanofil de résistivité  $1.35\mu\Omega \cdot m$ . La figure montre que l'épaisseur de peau est supérieure à l'épaisseur du nanofil ( $d=4nm$ ) pour toute la gamme de longueur d'onde étudiée.

avec  $\omega$  la pulsation de l'onde électromagnétique ( $\omega = 2\pi \cdot \nu$ ) et  $\mu = \mu_0 \mu_r$  la perméabilité magnétique du matériau. La longueur de pénétration magnétique est estimée dans la limite sale à 4.2K à  $0.26\mu m$ , avec  $\lambda_{GL} = 6.42 \cdot 10^{-3} \sqrt{\rho/T_c}$ , [119]. La longueur de pénétration magnétique est bien plus grande que la largeur du fil,  $\lambda \gg d$ . Les lignes de champ ne sont pas déviées, elles sont homogènes sur la section du fil. Nous considérons alors que la perméabilité du fil est égale à la perméabilité du vide  $\mu_0$ . (avec  $\mu_r \ll 1$  pour des matériaux diamagnétiques).

La figure 1.10 présente l'évolution de l'épaisseur de peau en fonction de la fréquence de l'onde électromagnétique incidente. L'épaisseur de peau est supérieure à l'épaisseur des nanofils ( $\delta \gg d$ ) dans la gamme des longueurs d'ondes qui nous intéressent. L'onde électromagnétique induit donc un courant d'écrantage dont la distribution est homogène sur l'épaisseur du nanofil.

### Analogie avec une création de paire de vortex-antivortex

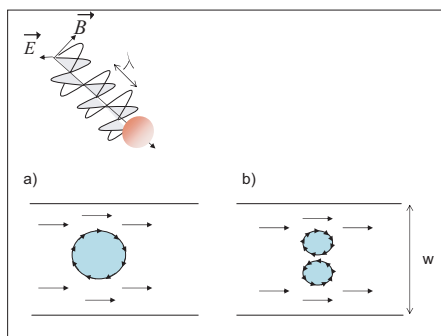


FIGURE 1.11 – Création d'une paire vortex-antivortex assistée par un photon [82]. Le photon incident induit des courants d'écrantage de surface, dont la distribution est comparable à celle d'une paire de vortex-antivortex très proche. La paire se sépare par la polarisation courant et induit la formation d'une barrière résistive. Reproduit d'après [82].

Kadin et Johnson [87], [90] montrent que la distribution de courant associée à un point chaud

peut être comparée à celle d'une paire de vortex-antivortex (PVAV). Elle est schématisée par la figure 1.11.

Ils suggèrent que le photon incident assiste la création d'une PVAV. Nous avons présenté ce mécanisme dans la deuxième partie de ce manuscrit et nous avons montré que de telles fluctuations étaient possibles dans nos nanofils de NbN.

Nous pouvons étendre cette interprétation aux glissements de phase et supposer que les fluctuations de la phase du condensat supraconducteur sont un mécanisme initiateur possible pour la formation du point chaud. Ceci nous permet alors d'utiliser les modèles décrivant l'étalement d'un centre de glissement de phase en point chaud. Du visible à l'infrarouge, l'énergie des photons incidents est suffisante induire une fluctuation de phase.

### 1.5.3 Fluctuations thermiques et quantiques

Nous présentons les modèles développés pour déterminer les tensions induites par des centres de glissement de phase (PSC), quantiques ou thermiques. Nous comparons leur dépendance en courant afin de comparer ces prédictions à nos mesures

#### Tension induite par des glissements de phase thermiques

Langer, Ambegaokar, McCumber et Halperin (LAMH) [58] ont développé la théorie qui permet de déterminer la tension induite aux bornes du nanofil par des centres de glissement de phase thermiques (PSCT). A fort courant, la probabilité de saut est favorisée dans un sens  $+(ou-)$  $2\pi$ , et l'expression 1.2, peut se ramener à l'expression simplifiée :

$$V_{sth} = \frac{\hbar\Omega}{2e} \cdot \exp(-\Delta F/k_B T) \cdot \exp(I/I_0) = Cte(T)\exp(I/I_0) \quad (\text{CGS}) \quad (1.2)$$

Le supraconducteur répond comme une impédance non linéaire. La résistance effective est telle que  $R_{eff} \propto R_N L/\xi \cdot \exp(-B_c^0 K \xi A/k_B T)$ .

#### Tension induite par des glissements de phase quantiques

Aux plus basses températures, l'énergie thermique n'est plus suffisante pour permettre un saut de phase  $\Delta F_0$ . On a alors un phénomène d'effet tunnel entre 2 états correspondant à des différences de phase de  $\pm 2\pi$  (PSCQ), [120],[121]. Le taux de fluctuation de phase et la résistance associée pour un courant de polarisation sont,

$$R = V/I = 2\pi R_q (L/\xi_0) \exp(-\pi c/8) \quad (1.3)$$

$$w = (R/2\pi R_q)(1/\tau_{GL}) \quad (1.4)$$

La longueur de cohérence supraconductrice ( $\xi_0$ ) et l'énergie libre du condensat ( $\Delta F_0$ ) sont estimées à température nulle. Cette approche est utilisée par Kitaygorsky et al[122] pour expliquer l'origine des coups d'obscurité dans les SSPDs.

Ces deux formalismes permettent de décrire la fréquence d'apparition et la tension induite par les PSC (thermiques et quantiques) aux bornes d'un nanofil. Nous soulignons que :

- *La tension induite par les glissements de phase thermiques* présente une dépendance exponentielle avec le courant de polarisation.
- *La tension induite par des glissements de phase quantiques* décrite par une approche macroscopique présente une dépendance linéaire avec le courant de polarisation.

Pour discerner les fluctuations thermiques et quantiques, les échelles d'énergie à comparer sont d'une part la barrière d'énergie libre à franchir ( $\Delta F$ ) ou l'énergie de séparation d'une paire de vortex-antivortex avec l'énergie d'agitation thermique  $k_B T$  (ou celle d'un photon thermique  $h\nu$ ). Ces énergies dépendent de la température et du courant de polarisation.

Dans la description macroscopique des PSCQ, à 4.2K, nous obtenons  $\Delta F(4.2K) = 0.077eV$  avec  $\Delta F = \sqrt{6}\hbar/2eI_c$  [123] pour un ruban dont le courant critique est de  $I_c(4.2K) = 16.2\mu A$  (part.II. Nous comparons cette énergie à l'énergie thermique,  $k_B T = 0.36meV$ . Sans irradiation, les fluctuations de phase seront alors d'origine quantique. Ce modèle permet en effet d'interpréter le bruit d'obscurité des détecteurs [122]. Par contre, l'énergie des photons (1eV), du visible à l'infra-rouge est nettement supérieure à  $\Delta F$  ainsi qu'à l'énergie d'une paire VAV  $4k_B T_K$ . L'absorption d'un photon peut induire une ligne de glissement de phase ou une paire de vortex-antivortex [87]. Nous comparons ces modèles à la tension et à la fréquence d'apparition des points chauds que nous observons dans nos dispositifs et nous verrons dans quelle mesure ils permettent d'expliquer le mode de détection de nos dispositifs.

## Chapitre 2

# Protocole expérimental

Dans ce chapitre, nous présentons la géométrie des détecteurs supraconducteurs à un photon que nous avons réalisés par lithographie AFM. Nous détaillons également les dispositifs de mesure utilisés pour leur caractérisation optique en mode de comptage de photon et en mode de détection continue. Dans les chapitres suivant, nous présentons leurs caractérisations optiques. Leur caractérisation dans l'obscurité a été étudiée en détail dans la deuxième partie de ce manuscrit (Part.II).

### 2.1 Fabrication et géométrie du dispositif

Dans cette section, nous présentons les films ultra-minces de NbN sur lesquels nous avons réalisés les détecteurs. Nous décrivons également la géométrie et la micro fabrication des contacts électriques utilisés pour la caractérisation optique des détecteurs à basses températures. La technique de lithographie est présentée plus en détail dans la dernière partie de ce manuscrit.

#### 2.1.1 Les films ultra minces de NbN

Nous réalisons les détecteurs sur des films ultra minces de NbN déposés sur des substrats de saphir R-plan (part.I, chap.2 sec.2.2). Le dépôt de NbN est réalisé par pulvérisation cathodique à partir d'une cible de Nb dans un plasma d'azote.

Un premier lot de film ultra-minces de NbN est réalisé par l'équipe de J.C.Villegier au CEA de Grenoble (DRFMC) [75]. L'épaisseur des films est comprise entre 3nm et 4nm. Les films sont protégés d'une oxydation à l'air par une couche de passivation de 3nm d'épaisseur d'AlN.

Un deuxième lot de films de NbN est réalisé par l'équipe de B.Voronov à l'université de Moscou (MPS). L'épaisseur de ces films est plus importante, comprise entre 6nm et 8nm. Ces films sont laissés à l'air, de sorte qu'une couche d'oxyde natif de plusieurs nanomètres d'épaisseur les recouvre. De la même manière, les films sont déposés sur du saphir R-plan,

néanmoins ces substrats sont polis double face. Ils permettent d'irradier les détecteurs par la face arrière du saphir, ce qui a permis leur caractérisation dans le dispositif expérimental développé à l'université de Moscou (MPSU) (chap.3, sec.3.1).

La qualité de surface et l'épaisseur des films sont contrôlées par imagerie AFM. L'observation de la surface vicinale du saphir répliquée à la surface des films garantit un dépôt de haute qualité et une micro-fabrication des contacts propres. Cette surface vicinale est observée à la surface des films déposés par J.C.Villegier et al. Ces films ultra-minces dont la qualité de surface est excellente a permis d'atteindre la plus haute résolution de lithographie AFM obtenue pour nos détecteurs. La figure 2.3 montre une micrographie AFM de ces dispositifs. Les détecteurs sont longs, étroits et denses. La régularité du tracé d'oxyde de NbN est très homogène.

Recouvert d'un oxyde natif, les premiers détecteurs obtenus sur les films de NbN plus épais (épaisseur totale de l'ordre de 12nm ) fournis par l'équipe de B.Voronov sont de moins bonne résolution (part.IV). Néanmoins, ce sont ces détecteurs ont permis d'obtenir nos premiers ré-

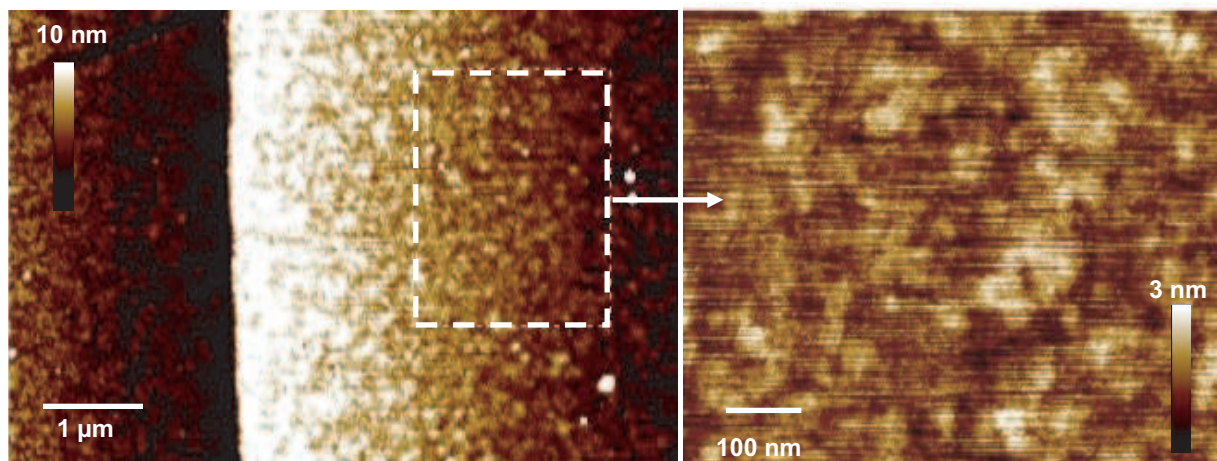


FIGURE 2.1 – Micrographie AFM d'un film de NbN recouvert d'une couche d'oxyde natif qui rend la surface rugueuse. La rugosité moyenne mesurée par AFM est de l'ordre de 1nm.

sultats en mode de comptage de photon [124].

Par la suite, nous avons élaboré un procédé de nettoyage à base de soude qui a permis le retrait de cet oxyde natif. Ce nettoyage était invasif pour la supraconductivité de nos dispositifs. Nous avons donc réalisé les derniers détecteurs sur des films de NbN non oxydés. Ces films sont protégés par un film d'or (Au) ou par une pellicule de résine. Ceci a permis d'améliorer la qualité de la surface ainsi que la lithographie AFM.

### 2.1.2 Micro fabrication des contacts

#### Géométrie des contacts

La figure 2.2 schématise la géométrie des contacts électriques des détecteurs (SSPD). Le méandre est réalisé au centre d'un pixel de NbN. Le pixel est connecté à des électrodes en or (Au). La géométrie des contacts est choisie pour pouvoir câbler toute la chaîne de mesure en préservant une impédance des lignes de  $50\Omega$  et permettre les mesures hautes fréquences. Des câbles électriques semi rigides sont utilisés. Des détecteurs SMA étanches placés en tête de cryostat assurent la connexion avec l'électronique de mesure.

Ce câblage est dédié aux mesures hautes fréquences, pour la caractérisation des SSPD en mode de comptage de photon. En mode de détection continue, les fréquences de mesure sont bien plus faibles et ces câblages ne sont pas utiles. Nous présentons en détails ces deux protocoles et dispositifs de mesure dans la section suivante (sec.2.3).

#### Procédés de Micro fabrication

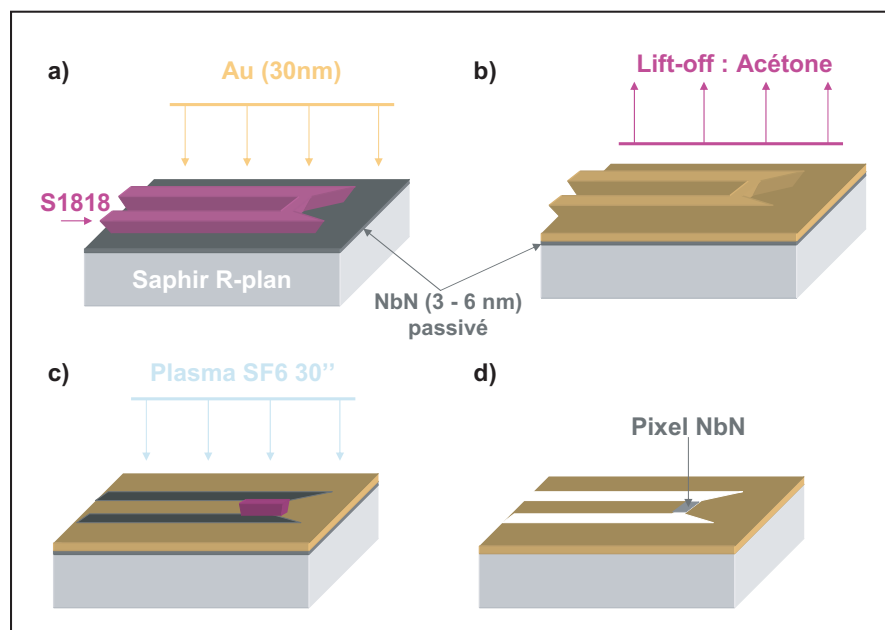


FIGURE 2.2 – Procédé de micro-fabrication des SSPD : a) Lithographie des contact en Au : résine positive S1818 - insolation UV - développement au Microposit 30s - dépôt technique Au (30nm), à  $P = 1.10^{-6} \text{mbar}$ . b) Lift-off : acétone durant 30min. c) Alignement d'un pixel  $20\mu\text{m} \times 40\mu\text{m}$  de résine S1818 au centre des contacts Au - insolation UV - développement au Microposit 30s . d) gravure plasma SF6 30s - retrait de la résine dans un bain d'acétone.



La figure 2.2 schématise toutes les étapes du procédé de micro-fabrication des contacts électriques.

Tout d'abord un film de NbN de 3nm à 10nm d'épaisseur est déposé sur un substrat de saphir R-plan. Le masque des contacts d'Au est obtenu par une insolation UV de la résine positive S1818. La résine est développée dans un bain de Microposit durant 30s. Un dépôt technique de 30nm d'Au est réalisé sous un vide de  $1.10^{-6}mbar$ . Le Lift-off du film d'Au est obtenu dans un bain d'acétone durant 30 min. Enfin, le pixel de NbN est obtenu par une seconde étape d'insolation UV puis de développement de la résine S1818. Cette étape nécessite l'alignement d'un rectangle de  $20\mu m \times 40\mu m$  de résine qui protège le film de NbN au centre des contacts d'Au. La gravure du NbN est effectuée dans un plasma de SF<sub>6</sub>, durant 30s. La résine est ensuite enlevée dans un bain d'acétone.

La difficulté de ce protocole de micro-fabrication est dans le retrait de la résine pour obtenir des surfaces de très haute qualité ce qui est indispensable pour réaliser la lithographie AFM dans les meilleures conditions. La surface du film doit être propre à l'échelle atomique. Chaque adsorbat constitue un masque pour l'oxydation AFM.

## 2.2 Lithographie AFM des nanofils

L'anodisation locale du pixel de NbN est effectuée en dernière étape. Deux peignes interdigités de ligne d'oxyde sont réalisés en mode contact intermittent. La technique de lithographie AFM est présentée en détails dans la partie IV.

Les paramètres de lithographie AFM dépendent du matériau et de l'épaisseur à oxyder. De manière générale, l'amplitude du signal en tension est comprise entre -15V à -20V. La lithographie est réalisée à température ambiante dans une atmosphère humide (à 25°C de 40% à 50%). L'amplitude d'oscillation de la pointe AFM est réduite au maximum d'un facteur 10 pendant la lithographie. La vitesse d'écriture est de l'ordre de  $0.1\mu m.s^{-1}$ . La technique est présentée en détail dans la dernière partie de ce manuscrit (Part.IV)

L'épaisseur du film à oxyder est comprise entre 3nm et 6nm. La largeur des lignes d'oxyde obtenue dans un régime d'oxydation totale du film est de 50nm. L'obtention d'une hauteur d'oxyde 3 fois égale à celle du NbN (fig. 2.3) est en accord avec la création d'un oxyde  $NbN_xO_y$  isolant, à forte concentration en oxygène [125] [126]. La largeur des détecteurs réalisés par AFM est de l'ordre de 150nm. La figure 2.4 montre la transparence des lignes d'oxydes, en microscopie optique dans le visible.

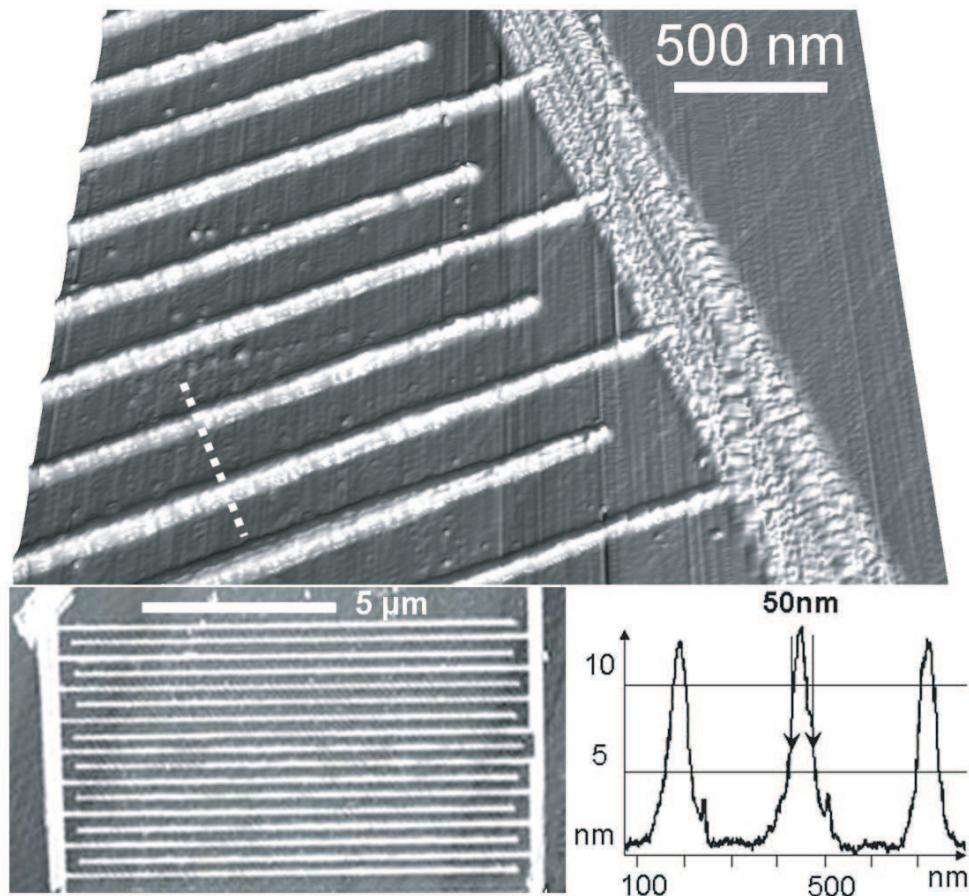


FIGURE 2.3 – Nanofil réalisé par lithographie AFM en mode intermittent, sur un film de NbN (CEA-Grenoble) de 4nm d'épaisseur. La largeur du fil est de 150nm. La longueur développée est de l'ordre de  $160\mu\text{m}$ . La largeur des lignes d'oxyde de NbN sont de 50nm de large.

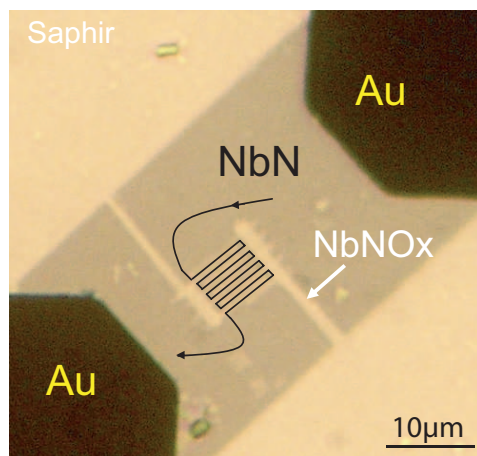


FIGURE 2.4 – Image par microscopie optique d'un SSPD réalisé par lithographie AFM. Le pixel de NbN est de  $20\mu\text{m} \times 40\mu\text{m}$ . L'oxyde est transparent à l'optique.

## 2.3 Protocole de mesure

Nous avons caractérisé nos détecteurs en mode de comptage de photon<sup>1</sup> [111] et en mode de détection continue [87]. Nous présentons, dans cette partie, la méthode et le dispositif

1. collaboration avec G.Goltsman et al (MPSU-Moscou) et J-P.Poizat et al (Institut Néel-Grenoble)

expérimental utilisé.

### 2.3.1 Caractérisation en mode comptage de photon

#### Principe de la mesure

Le principe de cette mesure est de compter le nombre de photons détectés par nos SSPD en fonction du nombre de photons incidents [111]. Le signal attendu pour l'absorption d'un photon est une impulsion de tension. Amplifiées, ces impulsions sont ensuite comptées. Ce protocole expérimental permet la mesure du taux d'apparition des impulsions de tensions. Nous la comparerons au nombre de photons incidents pour caractériser l'efficacité quantique et la sensibilité des détecteurs.

Les détecteurs sont refroidis à  $4K$ , ce qui correspond à une température de l'ordre de  $T_c/2$ . Une cavité de pompage de l'hélium, reliée à l'échantillon par un doigt froid permet de le refroidir à  $\sim 1K$ .

#### Électronique de mesure

La figure 2.5 présente le montage expérimental utilisé en mode de comptage de photon.

Le détecteur est polarisé sous  $I < I_c$  par une source de courant sur batterie. La source de courant est obtenue par une source de tension, une pile de standard de  $\pm 9V$  mise en série avec une forte résistance.

Un 'T' de polarisation est placé en tête de cryostat à  $300K$  en aval de la source de courant. Il permet la polarisation en courant  $dc$  du détecteur et la mesure  $ac$  des impulsions de tensions générées à ses bornes par l'absorption d'un photon.

En amont du détecteur, une résistance  $R_1 = 100\Omega$  est mise en série avec la source de tension et une capacité  $C_1 = 1000pF$  est placée en parallèle. Cette configuration forme un filtre  $\pi$  passe bas couramment utilisé pour les mesures bas bruit.

En aval du détecteur, une capacité  $C_2 = 1 - 10pF$  et un amplificateur (+75dB) sont placés en série. Sa bande passante est  $\Delta w = [0.001 - 400M]Hz$ . La durée des impulsions attendues est de l'ordre de 50ps. La bande passante de l'amplificateur limite donc la durée des impulsions à 2.5ns.

Les impulsions de tensions sont mesurées à l'aide d'un oscilloscope rapide. Une ligne à retard de 1m est placée après le 'T' de polarisation à  $300K$  entre le connecteur de déclenchement (trigger) et celui du signal d'entrée de l'oscilloscope pour permettre de visualiser les impulsions

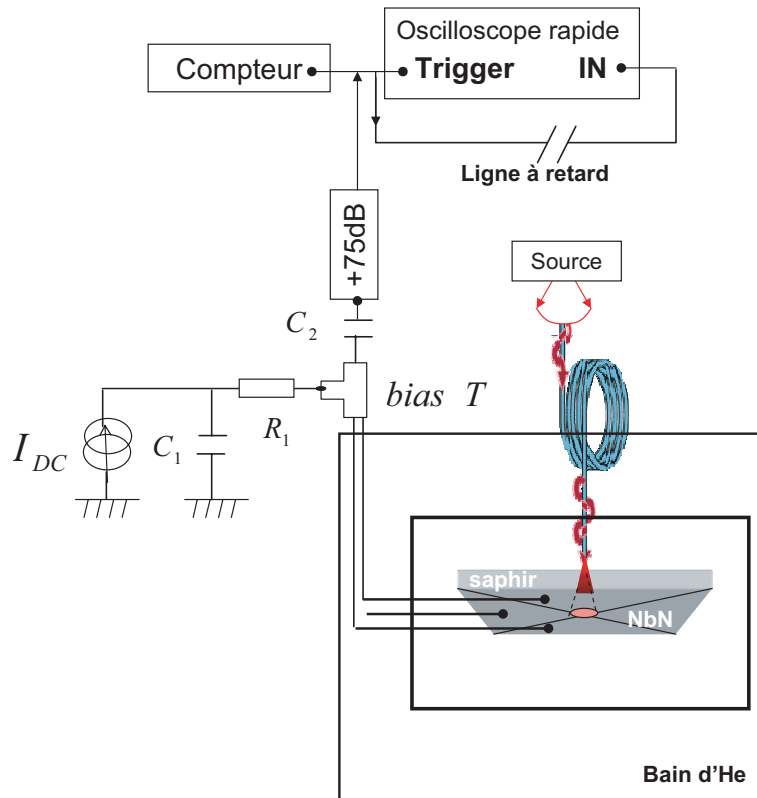


FIGURE 2.5 – Schéma du dispositif expérimental utilisé en mode de comptage de photon au MPSU à Moscou. Les mesures sont effectuées à 4.2K.

de tension. L'intervalle de temps est tel que  $\Delta t = c/\sqrt{\varepsilon_r} \cdot L$ , avec  $\varepsilon_r$  la perméabilité des lignes.

Un compteur est placé en parallèle avec l'entrée de l'oscilloscope. Il compte le nombre d'impulsion de tension aux bornes du SSPD par unité de temps. Le compteur donne accès à la mesure de  $\Gamma(s^{-1})$  qui correspond au taux d'apparition des impulsions de tension.

Une fibre multimode permet de coupler les SSPDs refroidis aux basses températures avec les sources optiques à 300K. Les SSPDs sont plaqués sur l'embout de la fibre optique par les trois 'griffes' de contact électrique. Les photons incidents aux SSPDs arrivent donc par la face arrière transparente et polie du substrat de saphir. Le plaquage entre le substrat et la fibre assure un bon couplage, limitant ainsi la transmission dans l'air, plus diffuse.

Nous avons utilisé quatre sources lumineuses : une lampe blanche Tungstène, une diode laser bleu ( $\lambda = 400nm$ ), une diode laser rouge ( $\lambda = 660nm$ ), et un laser dans le proche infra-rouge ( $\lambda = 850nm$ ), dont la durée des impulsions est de 20ns. Les longueurs d'onde correspondent à l'intensité maximale d'émission des sources. La puissance d'émission est choisie pour être maximale et insensible au bruit électronique. Leur caractéristique est présentée en détails en

annexe B.

### Détecteur caractérisé

Le détecteur dont nous présentons la caractérisation en mode de comptage de photon est celui présenté sur la figure 2.4. La ligne méandre supraconductrice a une section de  $200nm \times 6nm$  et une longueur de  $44\mu m$ . Sa résistivité à  $300K$  est de  $\rho_{300K} = 98\mu\Omega \cdot cm$ , et de  $\rho_{10K} = 1200\mu\Omega \cdot cm$  à  $10^\circ K$ . Sa température de transition supraconductrice est de  $T_c = 9.5^\circ K$ . A  $4.2K$ , son courant critique mesuré est de  $I_c = 47\mu A$  et son courant de point chaud est de  $I_c = 17\mu A$ . Sa caractérisation dans l'obscurité est étudiée dans la deuxième partie de ce manuscrit. Nous n'avons pas pu tester les détecteurs réalisés sur les films de NbN de J.C.Villegier qui étaient pourtant de meilleures qualités au niveau de la lithographie AFM. Ces films ont malheureusement été déposés sur des substrats de saphir non poli en face arrière ce qui a empêché leur caractérisation dans le montage du MPSU à Moscou.

### 2.3.2 Mesure en mode de détection continue

#### Principe de la mesure

Le principe de la détection continue est de mesurer en continu la tension aux bornes du SSPD à la fréquence d'incidence des photons par une méthode de détection synchrone [87]. Contrairement à la caractérisation précédente, cette mesure est une moyenne de la tension photo-induite par unité de temps. Elle a l'avantage d'être facile à monter sur n'importe quel montage de mesure bas bruit aux basses températures.

#### Électronique de mesure

La figure 2.6 présente le montage expérimental des mesures de détection synchrone mis en place dans le réfrigérateur à dilution.

Le dispositif est polarisé par une source de courant *dc* Yokogawa. Cette source de courant offre l'avantage de pouvoir être mise sur batterie.

Des filtres  $\pi$  commerciaux<sup>2</sup> sont placés près des connecteurs étanches en tête de cryostat à  $300K$ , pour filtrer les lignes de polarisation des dispositifs. Leur capacité est de  $1000pf$  et leur résistance de  $100\Omega$ . Ils montrent une atténuation de  $-65dB$  à  $100MHz$ <sup>3</sup>.

Nous utilisons un amplificateur différentiel<sup>4</sup> qui permet d'ajuster le gain et la bande passante en fonction de la fréquence de mesure. La fréquence coupure est typiquement fixée à

2. Tusonix PI4201-502

3. La caractérisation détaillée de ces filtres peut être trouvée dans la thèse de F.Balestro [127]

4. TEKTRONIX AM502

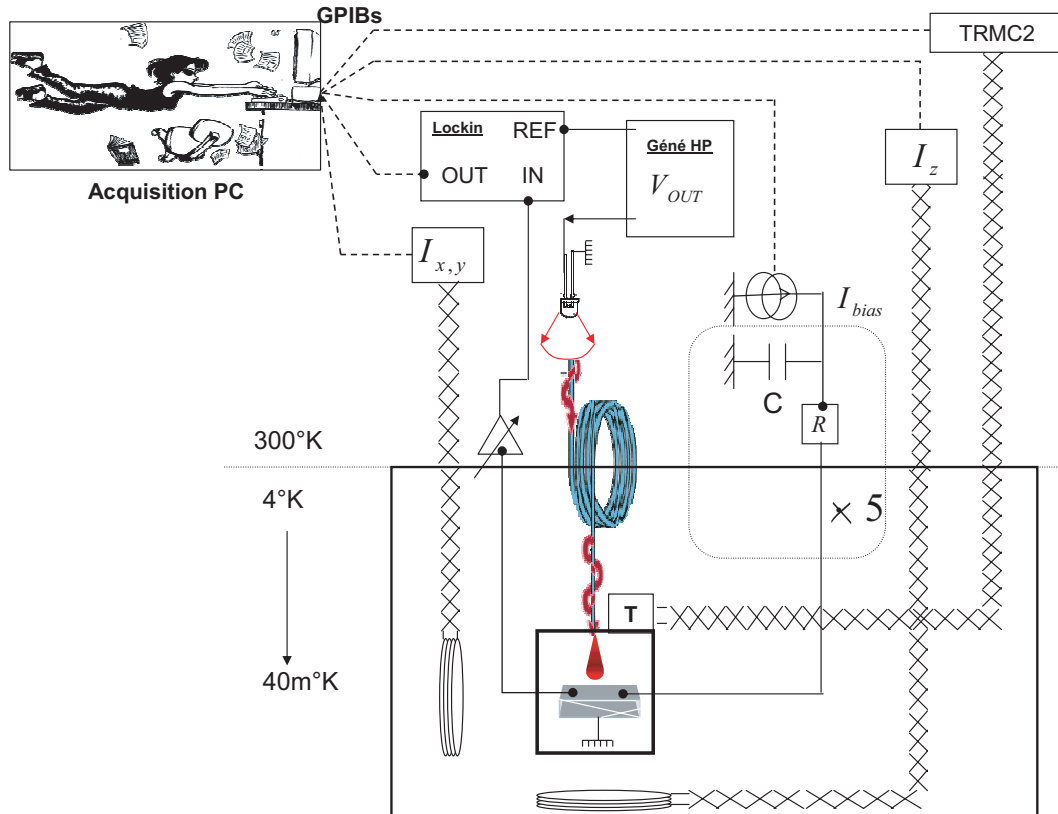


FIGURE 2.6 – Schéma du dispositif expérimental en mode de détection synchrone.

0.3Mhz. Il induit très peu de bruit sur le SSPD comparé à des amplificateurs plus communément utilisés au laboratoire.

La mesure en détection synchrone est effectuée en continu par un lockin<sup>5</sup>. Le signal de polarisation des sources lumineuses est le signal de référence du lockin. Le temps d'intégration du lockin est fixé à 100ms.

Une fibre optique multimode permet de coupler les détecteurs refroidis aux basses températures avec les sources optiques à 300K. La fibre optique arrive directement face aux détecteurs. Elle est placée à une distance inférieure à 1cm du dispositif. Le spot lumineux est ainsi suffisamment large pour éclairer une zone plus grande que le détecteur. Les photons issus de la fibre optique diffusent dans l'air avant d'interagir avec le détecteur.

Toute l'électronique de mesure est programmable et connectée au PC avec des ports GPIB. La mesure et l'acquisition sont programmées sous Labview.

5. National Instrument 7265 et Standford research system 848

Des diodes laser électroluminescentes sont utilisées de l'ultra-violet (400nm) à l'infrarouge proche (900nm). Les sources lumineuses sont polarisées par un générateur HP classique (10V maximum, 15MHz). De la même manière que précédemment les sources sont polarisées pour émettre une puissance lumineuse maximale et pour être stables face à des fluctuations de polarisation. Une caractérisation de toutes ces sources peut être trouvée en annexe.

Trois résistances de thermométrie sont mesurées en continu par TRMC2<sup>6</sup>, une au niveau du bouilleur et deux au niveau de l'échantillon pour couvrir toute la gamme de température de 300K aux plus basses températures. L'ensemble du dispositif est piloté par Labview. Une résistance placée près de l'échantillon permet son chauffage local en mode PID.

### Détecteur caractérisé

Ce montage optique permet de caractériser les détecteurs plus étroits obtenus sur les films de NbN épitaxiés déposés par l'équipe de J.C.Villegier. Les caractéristiques géométriques de la lignes méandre testée sont mesurées par micrographie AFM (fig.1.6). Sa largeur est égale à  $w = 140\text{nm}$ , son épaisseur est égale à  $d = 3\text{nm}$  et sa longueur développée est égale  $L = 24\mu\text{m}$ . Ses propriétés électriques et son comportement dans l'obscurité ont été également présentées en détail dans la deuxième partie de ce manuscrit. Sa température de transition supraconductrice est telle que  $T_{c0} = 8.7\text{K}$ . Sa densité de courant critique est telle que :  $j_c = 3.86\text{MA.cm}^{-2}$  et  $j_c = 4.4\text{MA.cm}^{-2}$ , avec  $I_c = 16.2\mu\text{A}$  et  $I_c = 18.5\mu\text{A}$ .

---

6. <http://crtbt.grenoble.cnrs.fr/instruments/trmc2/Produits.htm>

## Chapitre 3

# Caractérisation des détecteurs

Dans ce chapitre nous présentons la caractérisation des détecteurs supraconducteurs à un photon réalisés par lithographie AFM, tout d'abord en mode de comptage de photon puis en mode de détection continue. Les protocoles de mesure ont été présentés en détails dans le chapitre précédent<sup>1</sup>.

### 3.1 En mode de comptage de photon

Nous présentons dans cette partie les caractérisations en mode de comptage de photon des SSPD réalisés par lithographie AFM. Nous comptons les impulsions de tension générées aux bornes du SSPD par l'absorption d'un photon. La mesure est effectuée en fonction courant de la polarisation du SSPD pour diverses longueurs d'onde.

#### 3.1.1 Résolution temporelle du détecteur

La figure 3.1 montre en insert une impulsion de tension isolée correspondant à la formation d'un point chaud sur toute la section de la ligne méandre de NbN polarisée en courant. Pour cette mesure le nanofil est irradié par une diode laser bleu ( $\lambda = 400nm$ ). A la même température, nous rappelons la caractéristique IV mesurée dans l'obscurité, en polarisation tension, du même détecteur (part.II).

La figure montre qu'à cette température, 4.2K (soit  $\sim T_c/2$ ) les points chauds sont stables au détriment des lignes de glissements de phase. L'absorption d'un photon peut donc induire la formation d'une barrière résistive et générer l'impulsion de tension que nous observons (part.II). Nous verrons par la suite que la fréquence d'apparition de ces impulsions est largement supérieure à celle des impulsions dues au bruit d'obscurité. Elles correspondent à l'absorption d'un photon.

---

1. La caractérisation dans l'obscurité des détecteurs est étudiée dans la deuxième partie de ce manuscrit



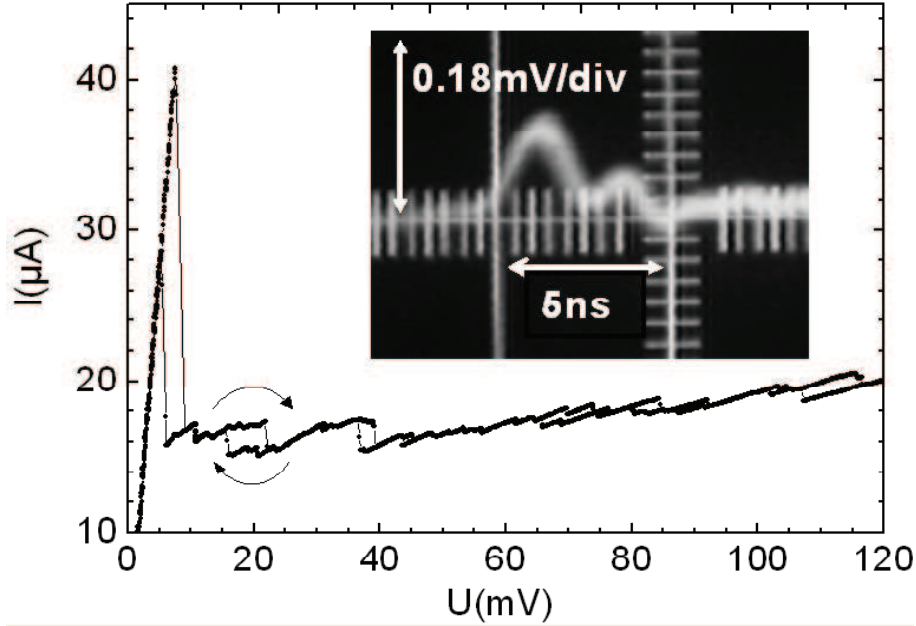


FIGURE 3.1 – Caractéristique IV d’un SSPD réalisé par AFM polarisé en tension à basse fréquence (part.II). Le courant associé au plateau de point chaud est de  $16\mu\text{A}$ , ce qui correspond à  $1/3$  du courant critique du détecteur. En encadré : trace temporelle d’une impulsion isolée mesurée dans les mêmes conditions avec des lignes haute fréquence et une polarisation en courant. L’amplification de  $+75\text{dB}$  a été soustraite.

La tension et la durée de l’impulsion sont respectivement de :

$$V_{pulse} = 100\mu\text{V} \text{ et } \tau_{pulse} = 2.5\text{ns} \quad (3.1)$$

L’amplitude de l’impulsion induit une résistance effective de l’ordre de  $R_{eff} \sim 2\Omega$  avec une polarisation en courant de  $I = 0.95I_c$ , avec  $I_c = 47\mu\text{A}$  à  $4.2\text{K}$ .

Nous pouvons comparer ces résultats à la durée et à l’amplitude induite par une ligne de glissement de phase (PSL), qui serait la taille minimale du point chaud. Elle est estimée à partir des caractéristiques  $I(V)$  du nanofil (part.II). Elle est de l’ordre de  $\tau_{PSL} = 1.2\text{ps}$ . La durée d’un point chaud souvent donnée dans la littérature est de l’ordre de  $50\text{ps}$  [115]. La résistance effective associée à un PSL, résistance minimale du point chaud, est de  $R_{eff} = 5\Omega$  avec  $R_{eff} \sim R_N \xi / L$ , et  $R_N = 44\text{k}\Omega$ ,  $\xi = 5\text{nm}$  et  $L = 44\mu\text{m}$ . L’amplitude d’une impulsion en tension serait donc au moins de l’ordre de  $225\mu\text{V}$ , pour  $I \sim 45\mu\text{A}$ .

Nous pouvons donc supposer que l’impulsion en tension induite par l’absorption d’un pho-

ton a une amplitude supérieure à  $100\mu V$  et une durée inférieure  $\leq 2.5ns$  et que la mesure est limitée par la résolution temporelle du montage électrique, en particulier par l'amplificateur ( $\Delta w \leq 400MHz$ ).

### 3.1.2 Résolution spectrale du détecteur

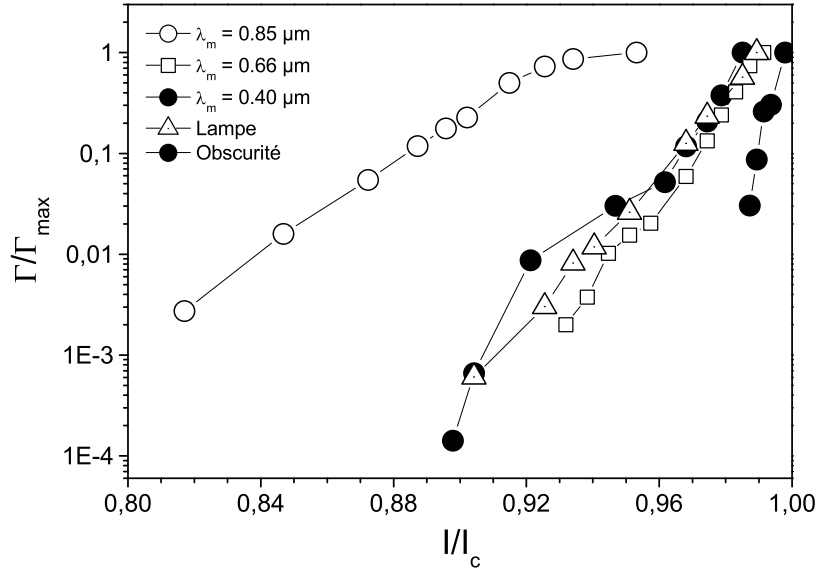


FIGURE 3.2 – Taux d'apparition des impulsions normalisé aux taux d'apparition maximal à  $I^* (< I_c)$ , en fonction du courant de polarisation normalisé par le courant critique du nanofil, pour diverses longueurs d'onde. La mesure est effectuée à  $4.2K$  (soit  $T \sim 0.44T_c$ ). L'irradiation est émise par une lampe Tungstène, une diode laser bleu et rouge et par un laser infra-rouge dont la durée des impulsions est fixée à  $20ns$ . La détection est comparée au taux de fluctuations d'obscurité.

La figure B.2 présente la fréquence d'apparition des impulsions  $\Gamma$  en fonction du courant de polarisation pour diverses longueurs d'onde, du bleu à l'infrarouge. Elles sont comparées à la fréquence des impulsions induites par le bruit d'obscurité (ronds noirs).

Le taux d'apparition des impulsions est normalisé avec le taux d'apparition maximal. Il correspond à un courant de polarisation  $I^*$  inférieur au courant critique du nanofil ( $I_c$ ). Au delà du courant de saturation ( $I^*$ ) la fréquence d'apparition des impulsions  $\Gamma$  est constante.

Les mesures sont représentées en échelle logarithmique. Pour  $I < I^*$ ,  $\Gamma$  suit une dépendance exponentielle avec le courant de polarisation,

$$\Gamma(I) \sim \exp\left(A \cdot \frac{I}{I_c}\right) \quad (3.2)$$

Nous comparons la pente mesurée sur la figure B.2 pour chacune des irradiations. Elle correspond au facteur  $A$  dans la relation 3.2. Pour une irradiation infra-rouge  $A_{IR} \sim 8$ , pour une irradiation dans le visible  $A_V \sim 16$ .  $A$  semble donc diminuer avec l'énergie des photons incidents. Les coups d'obscurité sont non nuls mais très inférieurs au signal photo-induit loin de  $I_c$ . Leur fréquence augmente très rapidement pour  $0.98I_c < I < I_c$ , avec  $A_{obs} \sim 33$ .

Nous comparons le courant de saturation  $I^*$  à partir duquel  $\Gamma$  est constante pour chacune des irradiations. Dans l'infrarouge,  $I^* = 0.95I_c$ , dans le visible  $I^* = 0.99I_c$ . Il semble que  $I^*$  diminue avec la longueur d'onde de l'irradiation ( $\lambda$ ).

Nous comparons le courant correspondant au seuil de détection  $I_1$  en fonction de la longueur d'onde de l'irradiation : dans l'infrarouge  $I_1 = 0.81I_c$ , dans le visible  $I_1 = 0.90I_c$ . Le seuil de détection diminue aux plus grandes longueurs d'onde.

A faible courant, l'efficacité des détecteurs dépend de la longueur d'onde des photons incidents :

$$\frac{\Gamma(0.91I_c)}{\Gamma(I^*)} = 20\%, \lambda = 850nm$$

$$\frac{\Gamma(0.91I_c)}{\Gamma(I^*)} = 0.06\%, \lambda < 660nm$$

Si l'on considère que la normalisation de  $\Gamma$  permet de s'affranchir de l'incertitude sur la puissance relative des sources, alors on peut supposer que la résolution spectrale des détecteurs diminue quand  $I$  tend vers  $I_c$ .

La fréquence d'apparition des impulsions de tension augmente donc avec la longueur d'onde des photons incidents. Le point semble donc s'étaler et relaxer plus rapidement. Nous montrons dans le paragraphe suivant pourquoi la taille du point chaud induit par l'absorption d'un photon moins énergétique dans l'infrarouge, est plus importante que celle induite dans le visible.

### 3.1.3 Sensibilité et efficacité quantiques des détecteurs

La probabilité qu'un photon incident génère un pulse de tension suit une loi de Poisson. Elle s'exprime telle que,

$$P(n) \sim \frac{e^{-m} m^n}{n!} \quad (3.3)$$

avec  $m$  le nombre moyen de photon par impulsion lumineuse et  $n$  le nombre de photon absorbés durant ce pulse et donnant lieu à signal.

Nous nous intéressons à la limite de détection du photon unique qui correspond à  $m=1$ . En pratique cette limite est difficilement accessible (boîtes quantiques, [128]). Le cas  $m \ll 1$  est

plus facilement réalisable expérimentalement. Il peut être obtenu en atténuant fortement la puissance lumineuse incidente. Sur la durée des impulsions lumineuse, la probabilité d'émettre un photon est alors très faible devant 1. Dans cette limite ( $m \ll 1$ ), nous obtenons la relation suivante pour la probabilité de détecté  $n$  photon sur les  $m$  incidents :

$$P(n) \sim \frac{m^n}{n!} \quad (3.4)$$

La probabilité d'absorber 1 photon est donc proportionnelle à  $m$ , la probabilité d'absorber 2 photons est proportionnelle à  $m^2$ ... Le rapport entre le nombre de coups détectés et l'atténuation de la source est une mesure de la sensibilité du détecteur.

La figure B.2 en haut, montre la dépendance du nombre d'impulsions mesurées,  $\Gamma$ , en fonction de l'atténuation des sources lumineuses. Les valeurs de  $\Gamma$  sont représentées en échelle logarithmique. La pente donne directement accès à la sensibilité du détecteur. Une pente de 1, correspond à l'absorption d'un photon unique,  $n = 1$  et  $\Gamma \sim m$ . Une pente de 2, correspond à l'absorption de deux photons,  $n = 2$  et  $\Gamma \sim m^2$ . Nous mesurons et comparons ces valeurs à partir de la figure B.2 en haut pour chacune des irradiations. Nous trouvons une pente de 1 dans le bleu, proche de 1 dans le rouge et une pente de 2 dans l'infrarouge. Le détecteur montre une sensibilité au photon unique dans le bleu (400nm) et le rouge (800nm) et à deux photons dans le proche infrarouge (850nm). Ceci explique l'augmentation de la taille du point

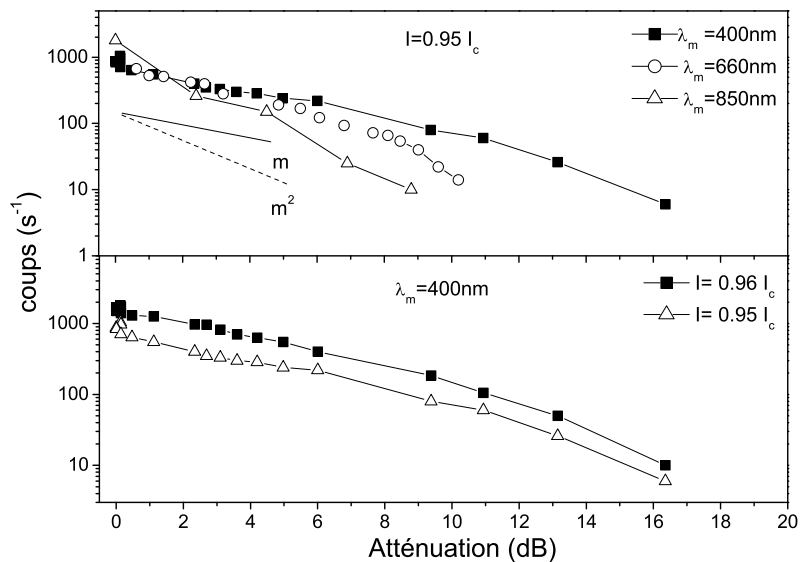


FIGURE 3.3 – Coups vs atténuation de la puissance lumineuse incidente en fonction de  $\lambda$  à  $I/I_c = 0.95$  (haut) et de  $I/I_c$  pour  $\lambda = 400\text{nm}$  (bas). La pente donne le seuil de détection du méandre (eq.3.4).

chaud pour des longueurs d'onde plus grandes, et ainsi la dépendance spectrale du courant de seuil  $I_1$  et du courant de saturation ( $I^*$ ).

La figure B.2 (en bas), montre que la sensibilité du détecteur est stable avec une variation de 1% du courant de polarisation. Elle semble donc indépendante des faibles fluctuations du courant, induites par le bruit électronique par exemple.

### Conclusion

Cette étude montre donc que la réponse du nanofil à une irradiation est un pulse de tension dont l'amplitude est  $\geq 100\mu V$  et la durée  $\leq 2.5ns$ , en accord avec l'ordre de grandeur d'une ligne glissement de phase. L'efficacité de détection augmente avec le rapport  $I/I_c$ . Les courants de seuil ( $I_1$ ) et de saturation ( $I^*$ ) donnent accès à la taille de la zone résistive formée par l'absorption d'un photon, avec  $j_c \sim (w\xi - \xi^2) \times I_1/2$ ,  $w$  et  $\xi$  la largeur du fil et  $\xi$  le diamètre minimale de la zone normale. Nous montrons qu'un nanofil réalisés par lithographie AFM, dont la section est de 200nm de large, a une sensibilité de 1 photon dans le visible et à 2 photons dans le proche infrarouge.

## 3.2 En mode de détection synchrone

Nous présentons la caractérisation des SSPD en mode de détection continue. Le protocole expérimental est présenté dans le chapitre 2.

Nous irradiions le détecteur à l'aide de trois diodes laser émettant dans 3 régions différentes du spectre, l'ultraviolet (400nm), le visible ([400nm-800nm]) et le proche infra-rouge (850nm). Nous présentons les mesures lockin effectuées à 4.2K et à 1K sur le figure 3.4. La tension mesurée par le lockin aux bornes du détecteur,  $\delta V$  dépend du courant de polarisation, de la longueur d'onde des photons incidents, de la température et de la fréquence de mesure. Nous commentons chacune de ces dépendances dans les paragraphes suivants.

### 3.2.1 Dépendance en courant, I

Nous avons montré dans la deuxième partie de ce manuscrit, que pour  $I_h < I < I_c$  le point chaud s'étend, que pour  $I = I_h$  il est stable et finalement que pour  $I_1 < I < I_h$  il régresse [65]. Nous avons alors mesuré une différence entre le courant de point chaud (PC) et le courant critique associé à des centres de glissement de phase (PSC) de l'ordre de 0.55% (fig.4.4, Part2). Nous avons estimé le point de croisement entre ces deux domaines de stabilité (PC) et (PSC) à une température  $T^*$  de l'ordre de 6K. Cette étude permet de valider les conditions requise pour une détection à un photon par le mécanisme de formation d'un point chaud assisté en courant.

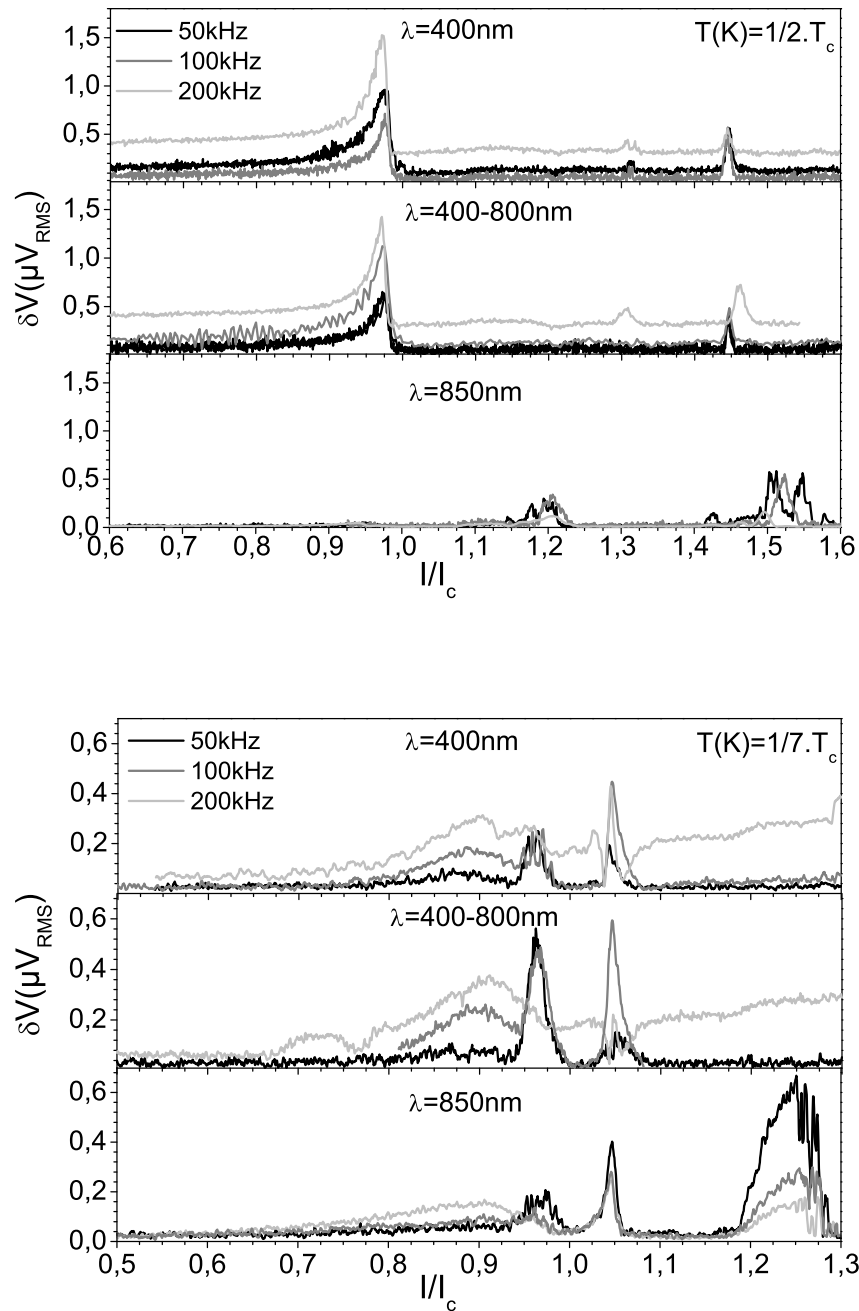


FIGURE 3.4 – Tension mesurée aux bornes d’un SSPD en fonction du rapport  $I/I_c$  pour trois irradiances différentes à 4.2K (haut) et à 1.2K (bas). Nous montrons également la dépendance de la tension photovoltaïque avec la fréquence de mesure égale à la fréquence de l’irradiation.

La figure 3.4 montre la valeur de la tension photovoltaïque aux bornes d’un SSPD en fonction du courant de polarisation, qui est normalisé avec le courant critique du dispositif.

Nous commentons tout d'abord la dépendance en courant de la tension photovoltaïque sous le courant critique, lorsque le détecteur est totalement supraconducteur. A partir des mesures en mode de comptage de photon, nous suggérons une dépendance exponentielle de la fréquence de détection (proportionnelle à la tension photo-induite) avec le courant de polarisation (sec.3.1.2). Ce comportement peut s'interpréter en comparant le mécanisme de formation d'un point chaud à celui des PSC thermiquement activés (sec.1.5.3). L'énergie du photon est en effet au moins égale à  $k_B T_c$ . Maintenant que nous couvrons une plus large gamme de courant, nous constatons qu'il devient de plus difficile de confirmer cette dépendance exponentielle. Nous pouvons plus facilement observer cette différence à partir de la figure 3.5. Nous en discutons plus en détails dans le dernier chapitre de cette partie.

Nous remarquons que le détecteur sature pour un courant ( $I^*$ ) inférieur au courant critique. Nous avons vérifié si la valeur du courant critique était diminuée par un effet de chauffage induit par les sources lumineuses. Nous avons suivi l'évolution du courant critique avec et sans irradiation par des mesures de résistance différentielle au lockin. Nous n'avons observé aucun décalage. Nous remarquerons néanmoins que cette différence est très faible de l'ordre de 2%.

Au dessus du courant de saturation ( $I^*$ ), la réponse photovoltaïque est nulle. Nous supposons que le méandre transite alors partiellement dans son état métallique. Les photons incidents sont réfléchis ou absorbés par des zones métalliques ou des zones supraconductrices plus larges. Ces contributions n'induisent pas à un signal de tension à la fréquence de la mesure. Néanmoins pour  $I > I_c$ , nous mesurons d'autres pics de tension photovoltaïque. Nous comparons ces résultats à la mesure de résistance différentielle du méandre mesurée avec le lockin dans l'obscurité. La valeur du courant associé à ces signaux correspond à des pics de résistance. Nous discutons de cette contribution dans la section 3.2.4.

### 3.2.2 Dépendance en température, T

Quels sont les effets supposés d'une réduction de la température sur le mécanisme de formation du point chaud ?

Aux plus basses températures le courant critique augmente et la longueur de cohérence diminue, ainsi que le taux de fluctuations thermiques.

D'une part, l'énergie cinétique des quasiparticules, excitées par l'absorption d'un photon ou d'un PSC, est plus importante puisque la vitesse critique augmente. L'énergie dissipée par effet Joule est donc plus importante et plus difficile à thermaliser. La taille du point chaud augmente. L'effet d'une augmentation de la taille des points chauds aurait donc pour conséquence d'augmenter le temps de relaxation du point chaud (le temps mort du détecteur) et

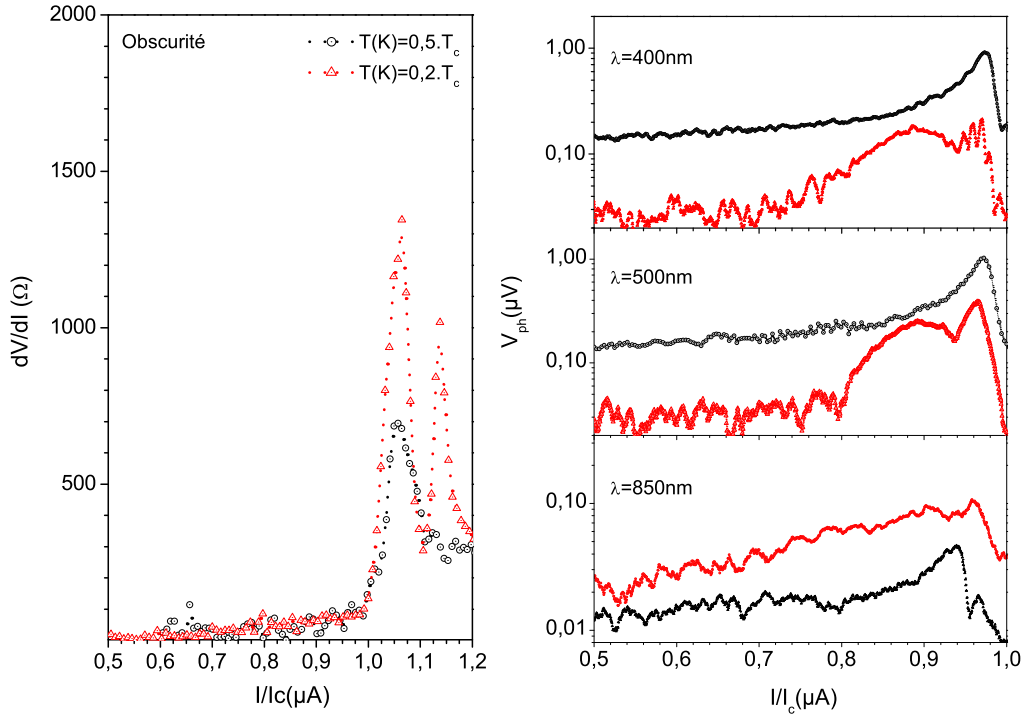


FIGURE 3.5 – A gauche : Résistance différentielle mesurée dans l’obscurité en fonction du courant de polarisation normalisé avec le courant critique à 4.2K (triangle rouge) et 1.2K (rond noir). Le courant de polarisation est une superposition d’un courant dc et d’un courant ac de faible amplitude dont la fréquence fixe celle de mesure du lockin. A droite : Mesure lockin de la tension aux bornes du nanofil irradié par trois sources d’irradiations. Les mesures à 4.2K et 1K sont comparées à chaque fois. L’irradiation est modulée à  $f_0 = 100kHz$ . La figure montre la dépendance en température de l’efficacité de détection du détecteur :  $\delta V(T) |_{I,\lambda}$ .

donc de diminuer son taux de répétition que nous avons associé à  $\Gamma$ .

D’autre part, nous avons implicitement considéré jusqu’à présent que le point de nucléation du point chaud était un PSC et que nous pouvions comprendre ce PSC comme la réponse du détecteur à l’incidence du photon par des courants d’écrantage définissant le PSC. Dans cette interprétation, une réduction de la longueur de cohérence conduit à augmenter le temps de formation de la barrière résistive sur la section du méandre, puisque les zones entre ce PSC et les bords du méandres sont plus grandes. Néanmoins, nous pouvons remarquer que loin de  $T_c$  la longueur de cohérence varie lentement et que cette différence de temps est sans doute faible. Elle est de plus associée à un temps de nucléation du PSC en PC quasi instantané. Ce comportement peut néanmoins contribuer à diminuer le taux de répétition du détecteur.

Le dernier point concerne le taux de fluctuations thermiques et donc le nombre de bruit d’obs-



curité. Les fluctuations thermiques diminuent à mesure que l'on s'éloigne de  $T_c$ , car l'énergie pour briser une paire de Cooper augmente aux basses températures. La séparation d'une paire de vortex-antivortex assistée par l'absorption d'un photon est plus difficile. Par analogie, si l'on considère qu'un photon transfère une énergie au moins égale à  $k_B T_c$ , il faut alors comparer le rapport entre le gap supraconducteur et  $k_B T_c$  [87].

Nous nous attendons donc à une diminution de la sensibilité et de l'efficacité quantique des détecteurs aux plus basses températures. Comparons à présent cette discussion à nos mesures.

La figure 3.5 présente (à droite) la tension photovoltaïque du SSPD en échelle logarithmique en fonction de la température pour chacune des trois longueurs d'onde. La figure est obtenue à partir des mesures présentées sur la figure 3.4. Nous comparons ces mesures à la résistance différentielle du SSPD mesurée au lockin, dans l'obscurité, pour les deux températures (fig.3.5 gauche).

Sauf pour l'infra-rouge, la tension photovoltaïque mesurée à 1.2K est plus faible qu'à 4.2K, ce qui est cohérent avec l'approche que nous avons présentée en début de ce paragraphe. Une diminution de la température semble induire une diminution de l'efficacité de détection des SSPD.

A 1K, la dépendance en courant du signal photovoltaïque (sous  $I_c$ ) est différente de celle à 4.2K. Le courant de seuil  $I_1$ , pour lequel la fréquence de détection devient importante, est plus faible. Il en est de même pour la pente sous  $I_c$ .

Nous avons observé le même comportement pour le détecteur caractérisé en mode de comptage de photon en passant d'une irradiation dans le visible à l'infrarouge. Nous avons montré que cette différence s'expliquait par une moindre sensibilité dans l'infra-rouge (absorption à 2 photons) que dans le visible (absorption à 1 photon). Les points chauds plus larges tendent à diminuer la fréquence de détection, puisque pour une même puissance d'incidence, le nombre d'absorption de deux photons sera plus faible que le nombre d'absorption d'un seul photon.

En comparant ces résultats, nous pouvons supposer qu'une diminution de la température entraîne une diminution de la sensibilité des détecteurs. Par contre nous ne pouvons pas conclure sur la sensibilité au photon unique, nous ne pouvons que la suggérer compte tenu des précédents résultats en mode de comptage de photon.

### 3.2.3 Dépendance avec la fréquence de mesure, $f_0$

Nous observons que la tension mesurée par le lockin dépend de la fréquence de référence, c'est à dire de la fréquence des impulsions lumineuses. Nous rappelons que le fil est polarisé en  $dc$  et que seules les impulsions lumineuses sont responsables d'une tension ou champ électrique  $ac$ .

Nous remarquons deux comportements différents suivant la valeur du rapport  $I/I_c$ . Nous différencions donc deux régimes, celui où le détecteur est totalement supraconducteur ( $I/I_c < 1$ ) de celui où il y a coexistence entre des zones normales et supraconductrice ( $I/I_c > 1$ ). Nous remarquons que sur toute la gamme de courant présentée dans cette partie, le courant de polarisation est tel que le détecteur n'est jamais totalement métallique.

Pour  $I > I_c$ , la figure 3.4 montre que l'amplitude des pics de tension diminue lorsque la fréquence de l'irradiation augmente. Dans ce régime, le méandre est partiellement métallique. La réponse que nous mesurons est-elle la contribution des électrons normaux ou celle de la densité de paire de Cooper ?

En effet, au delà de la gamme de courant balayée (soit  $I > 1.6I_c$  ou  $I > 26\mu A$ ) la résistance du fil ( $2.4k\Omega$ ) est inférieure à la résistance d'un bras du méandre ( $4.8k\Omega$ ) (part. II, fig.??). Les courants de polarisation tels que la tension  $\delta V$  est maximale au dessus de  $I_c$ , correspondent à des résistances de  $R = 903\Omega$  et  $702\Omega$ , par comparaison avec les caractéristiques  $V(I)$  du nanofil polarisé en courant dans l'obscurité (Part.II fig.3.4). En polarisation tension, le nanofil serait sur le plateau de point chaud.

Dans la partie II, nous avons associé ces sauts de tension ou de courant, à des PSC (part.II

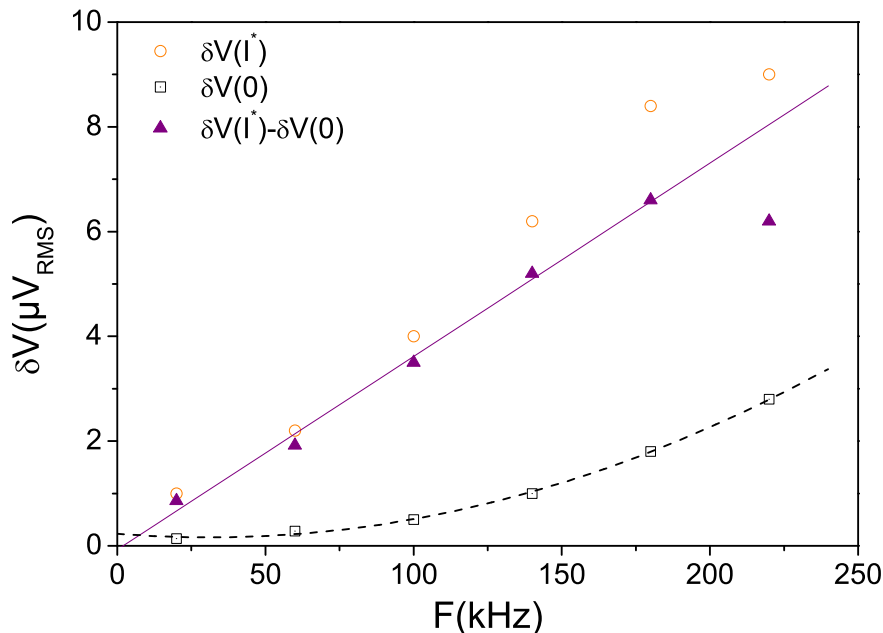


FIGURE 3.6 – Tension lockin mesurée à 400mK en fonction de la fréquence des impulsions lumineuses pour un détecteur étroit (100nm). La figure montre l'augmentation de l'efficacité du détecteur à mesure que la fréquence de l'irradiation augmente.

chap.4 fig.4.3) et déterminé le rapport des densités d'électrons normaux et de paires de Cooper,  $n_s/n_n$  de l'ordre de  $\beta = 1/2$ . Ces courants correspondent également à des pics de résistance différentielle.

Avec un temps de relaxation plus long, le signal bolométrique que l'on associe à la contribution des électrons normaux, se déphase avec la fréquence de la modulation. Sa contribution au signal de tension mesuré à  $f_0$ , devrait donc diminuer à mesure que la fréquence de mesure augmente. Ce comportement est en accord nos observations. Pour  $I > I_c$ , le signal de tension correspond à une réponse bolométrique des zone métalliques du détecteur.

Au contraire, ce n'est pas ce que nous observons dans le régime où le détecteur est totalement supraconducteur ( $I < I_c$ ). L'amplitude maximale du signal au courant de saturation ( $\delta V(I^*)$ ) augmente avec la fréquence des impulsions lumineuses ( $f_0$ ). Les mesure effectuées à très basses fréquence à l'aide d'un chopper ne montrent aucun signal photovoltaïque sous  $I_c$ . Sa contribution ne fait par contre qu'augmenter à mesure que la fréquence de référence augmente.

La figure 3.6 présente la dépendance en fréquence de la tension induite aux bornes d'un détecteur plus étroit (100nm) à 400mK. Nous la comparons au signal mesuré à un courant de polarisation nul, pour finalement soustraire cette contribution.

La tension photo-induite  $\delta V(I^*)$  présente une dépendance linéaire avec la fréquence de mesure. Ces résultats écartent l'existence d'une contribution bolométrique dans le régime de détection des SSPDs. Nous discutons de la contribution bolométrique induite par un éventuel chauffage du substrat dans le chapitre suivant.

Nous associons donc la dépendance en fréquence de la réponse en tension au dessus de  $I_c$  à un mode de détection bolométrique. Sous  $I_c$ , le bruit d'obscurité et l'efficacité des détecteurs augmentent à haute fréquence. La détection photonique par le supraconducteur n'est pas un effet bolométrique en accord avec les précédents résultats (sec.4.1.1).

### 3.2.4 Bruit d'obscurité des détecteurs

Nous avons mesuré la tension aux bornes du détecteur sans irradiation. Le dispositif est placé dans les mêmes conditions expérimentales que pour les mesures présentées sur la figure 3.6. Les sources lumineuses LED, ou Laser sont éteintes. Les sources de rayonnement provenant de la lumière ambiante doivent être faibles. L'embout de la fibre optique à 300K est protégé par un cache. La figure montre que le bruit du détecteur présente une dépendance en  $f_0^2$  (fig.3.7).

Le bruit du détecteur ( $\delta V(I = 0)$ ) peut être intrinsèque et fonction des fluctuations de phase du condensat (sec.1.5.3 et Part.II)[123]. Une seconde source de bruit du détecteur peut être

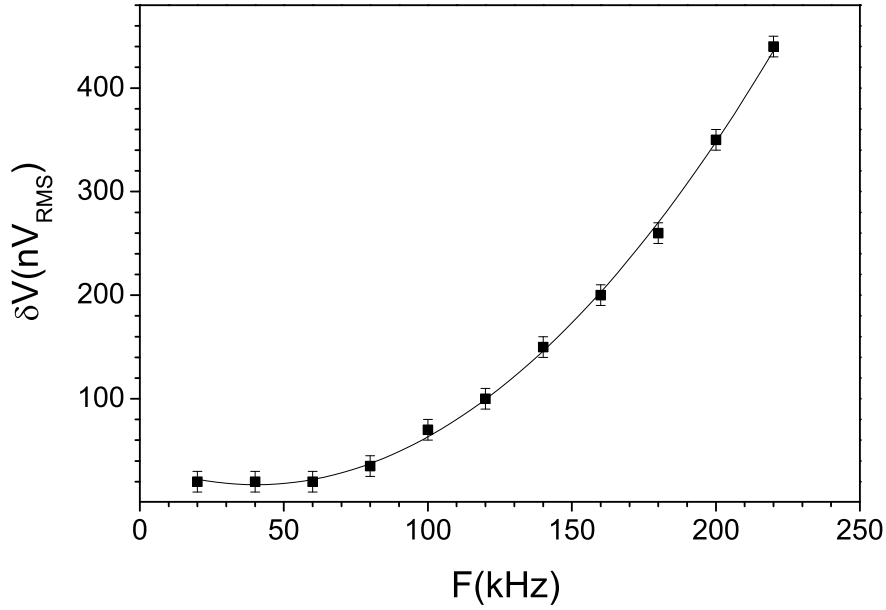


FIGURE 3.7 – Tension lockin mesurée à 40mK en fonction de la fréquence de mesure. La figure montre une dépendance en  $f_0^2$ .

induite par le rayonnement électromagnétique de son environnement, et en particulier par les photons thermiques micro-ondes, dont la fréquence est inférieure à celle du gap. Le rayonnement de la dilution, est une émission de corps noir. Le maximum du spectre d'émission est donné par la loi de Wien, en fonction de la température du corps :

$$\lambda_{max} = \frac{hc}{4.965 \cdot k_B T} = \frac{2.898 \cdot 10^{-3}}{T(^{\circ}K)}$$

De 300°K à 40m°K, les longueurs d'ondes des photons thermiques sont comprises entre 9.6μm et 0.07m. La densité de flux peut être calculée à l'aide de la relation  $\sigma T^4$  ( $\sigma$  est la constante de Stéfán-Boltzmann ( $\sigma = 5.67 \cdot 10^{-8} JK^{-1}m^{-2}s^{-1}$ )). Pour le rayonnement émis les parties chaudes et froides de la dilution nous obtenons un flux compris entre 46pW et 0.2pW.m<sup>-2</sup>. Le diamètre de coeur de la fibre étant égale à 50μm, le flux capté est faible, compris entre 0.002pW et 0,7pW.

Le bruit thermique à 300K est dans la gamme des micro-ondes. L'énergie correspondante est faible, de l'ordre du gap supraconducteur  $h\nu = 0.129eV$ . Néanmoins de tels photons peuvent être absorbés ou réfléchis à la surface du fil. Nous discutons plus en détail de la dépendance en fréquence de ce signal induit par des photons de faible énergie (réflexion, absorption) dans la partie suivante. En particulier, nous verrons que ces ondes électromagnétiques peuvent être à

l'origine d'une circulation non nulle du courant de surface. Avec une épaisseur de peau grande devant l'épaisseur du nanofil (fig. 1.10), cela revient également à décrire la formation d'un vortex ou d'une PVAV (fig.1.11).

### 3.3 Comparaison entre les deux modes de mesure

Dans cette partie, nous tentons de décrire la mesure de détection synchrone par analogie avec une mesure de bruit grenaille afin d'estimer un nombre de photon détecté. Nous comparons ensuite le résultat aux mesures obtenus en mode de comptage de photons.

#### 3.3.1 Une mesure de bruit grenaille

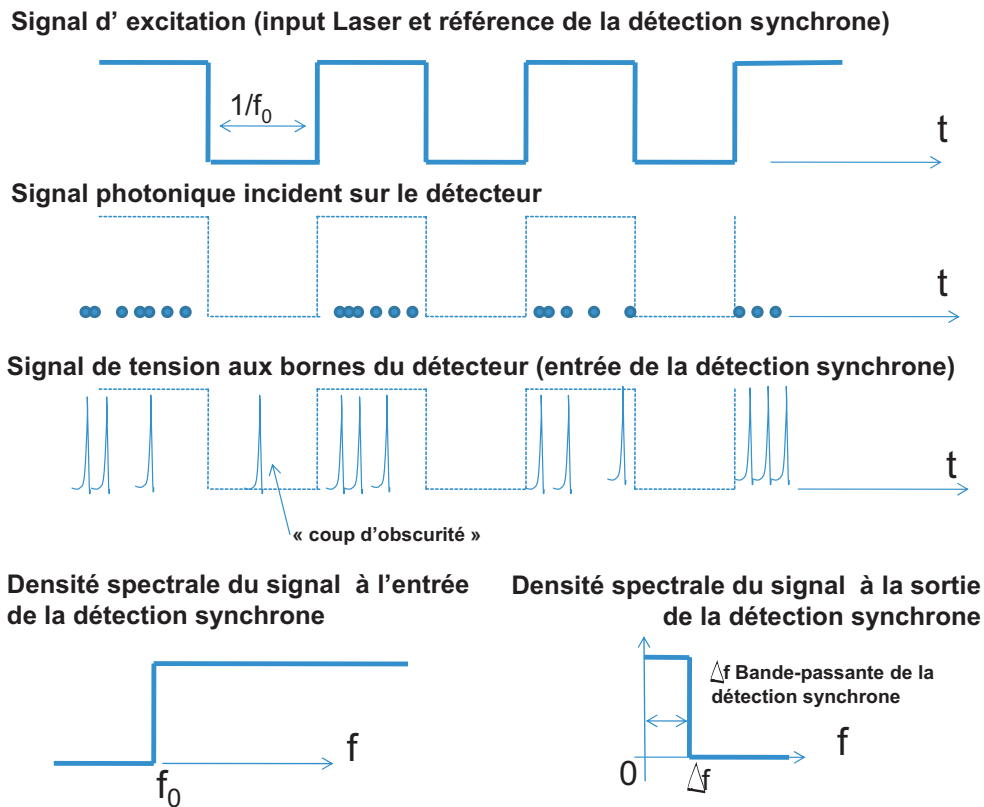


FIGURE 3.8 – Principe de la mesure continue en détection synchrone. Le point chaud induit temporairement une tension non nulle aux bornes du nanofil. Le nombre d'impulsion est donné par la probabilité d'absorber  $n$  photons sur  $m$  photons incidents. La densité de photons détectés par unité de temps définit l'efficacité quantique du détecteur. Aux impulsions de tensions générées durant l'irradiation est associé un signal constant dans l'espace des fréquences. Nous avons symbolisé ce signal constant par une porte dont la largeur dépend de la dispersion en fréquence du signal de référence, c'est à dire celle du générateur).

La détection synchrone mesure et moyenne la tension aux bornes du SSPD sur un intervalle

de temps supérieur au temps séparant deux photons. L'apparition d'une tension est associée à un glissement de la phase de  $2\pi$ . Nous pouvons relier la tension moyenne délivrée par le lockin au nombre d'impulsions correspondant au nombre de photons absorbés durant une période de modulation.

Le signal  $ac$  à la fréquence  $f_0$  module la source lumineuse. Le signal lumineux alors peut être vu comme une succession d'impulsions séparées en temps de  $T = 1/f_0$  et contenant chacune  $\phi/f_0$  photons ( $\phi$ , le flux de photons incidents).

Nous considérons alors que le signal de tension aux bornes du SSPD est constitué d'impulsions discrètes, d'amplitude  $V_{pulse}$  et de durée  $\tau_{pulse}$  (sec.3.1). Nous avons vu dans le paragraphe précédent que le taux de détection d'un photon n'est pas régulier mais suit une loi de Poisson. Nous remarquons cependant que l'écart quadratique est égal au nombre moyen de photons détectés (ou d'impulsion de tension) :  $\delta(n) = \langle n \rangle$ .

Nous considérons que les impulsions de tensions sont vues comme des pics de Dirac par le lockin et que leur distribution dans le temps est aléatoire. Nous considérons également que le temps du pulse  $\tau_{pulse}$  et son amplitude,  $V_{pulse}$ , sont des constantes (fig.3.1.B). Par cette hypothèse nous supposons que la probabilité pour que deux photons incidents soit absorbés en même temps est nulle. En toute rigueur cette probabilité est non nulle.

La mesure peut être comparée à une mesure de bruit grenaille. La figure 3.8 présente le principe de la mesure de détection synchrone. Elle permet de comprendre le lien entre le signal de tension mesuré par le lockin ( $V_{ph}$ ) et le nombre d'impulsions détectées sur une période  $T_0$ .

Dans cette approximation, un signal constant dans l'espace des fréquences est associé aux impulsions de tensions générées durant l'irradiation. Ce signal peut alors être considéré comme un bruit blanc. La fenêtre de mesure correspond alors à la dispersion en fréquence du signal de référence. Elle correspond à celle du générateur tension qui alimente les diodes. Elle donc très étroite. Les filtres de la ligne et de l'impédance du lockin, n'interviennent que si le signal de référence est très dispersif.

La composante temporelle du signal de tension  $ac$  peut s'exprimer telle que :

$$V(t) = \sum_j V_{pulse} \delta(t - t_j) \quad (3.5)$$

avec  $\langle n_{pulse} \rangle = \delta V / V_{pulse} \cdot \Delta t$ ,  $\Delta t = T_{meas}$  est fixé par l'expérimentateur, et  $\delta V = \sqrt{\langle V_{ac}^2 \rangle}$  est la mesure du lockin. Cet intervalle donne la valeur moyenne du nombre de pulse par période,

$T_0/2$ , avec  $T_0$  la période d'oscillation du signal lumineux. Dans l'espace des fréquences, le signal se traduit par un spectre blanc. La densité spectrale est telle :

$$S_{ph}(f) = 2V_{pulse} \langle V_{ph} \rangle \text{ soit, } S_{ph}(f) = \frac{2V_{pulse}^2}{\Delta t} \cdot \langle n_{pulse} \rangle \quad (3.6)$$

On obtient finalement :

$$\langle n_{pulse} \rangle = \frac{S_{ph}(f_0)}{2V_{pulse}^2 \Delta t} \quad (3.7)$$

Nous notons  $\Gamma_{eq}$  le nombre d'impulsions par unité de temps ( $\langle n_{pulse} \rangle$ ) correspondant au signal en tension mesuré par le lockin.

### 3.3.2 Estimation du nombre de photons détectés

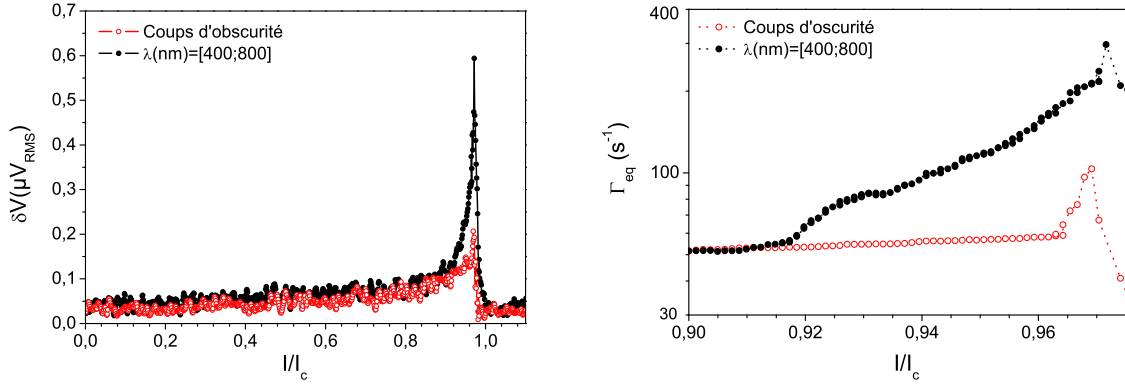


FIGURE 3.9 – A gauche : Tension mesurée par le lockin aux bornes du détecteur en fonction du rapport  $I/I_c$  à 4.2K. Le détecteur est irradié par une lumière blanche modulée à 50kHz. A droite : Nombre d'impulsions équivalentes  $\Gamma_{eq}$  en fonction du rapport  $I/I_c$ , obtenu à partir de la relation 3.7 avec  $\Delta t = 100ms$ ,  $V_{pulse} = 100\mu V$  (sec.3.1.1).

La figure 3.9 (gauche) présente la tension aux bornes du méandre, mesurée par la détection synchrone verrouillée à la fréquence du signal lumineux. Le détecteur est irradié par une diode laser blanche dont la longueur d'onde est comprise entre 400nm et 800nm.

La figure 3.9 (droite) présente le nombre de impulsions équivalentes ( $\Gamma_{eq}$ ) obtenues à partir de la relation 3.7 (sec.??) :  $\langle n_{pulse} \rangle = S_{ph}(f_0)/2V_{pulse}^2 \Delta t$ .  $S_{ph}$  est la densité spectrale du signal de tension mesuré.  $S_{ph}(f_0)$  correspond au signal à la fréquence d'incidence du signal lumineux. Dans ce cas  $f_0 = 50kHz$ . On considère que la tension moyenne mesurée à  $f_0$ , est telle que  $\delta V = S_{ph}/\Delta t$ , avec  $\Delta t = 100ms$  le temps d'intégration.

Nous comparons le résultat précédant à ceux obtenus en mode de comptage de photon

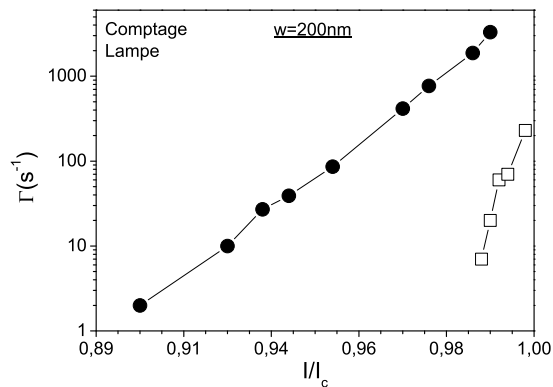


FIGURE 3.10 –  $\Gamma$  vs  $I/I_c$  du détecteur ID1051 mesuré en mode de comptage de photon (fig.B.2).

(fig.3.10).

Pour les deux mesures nous retrouvons une dépendance logarithmique entre le nombre de photons détectés et le courant de polarisation. Le bruit d'obscurité est du même ordre de grandeur pour chacune des mesures ( $<100\text{cps/s}$ ).

Le nombre de photons détectés en mode de détection synchrone est inférieur à celui mesuré en mode de comptage de photon. L'incertitude sur la puissance relative des deux sources lumineuses nous empêche de comparer l'efficacité quantique de ces deux détecteurs. Nous pouvons néanmoins remarquer que la lampe Tungsten utilisée comme source en mode de comptage de photon a une puissance d'émission largement supérieure à celle de la LED blanche utilisée en mode de détection continue. Les pertes lumineuses sont également très importantes dans notre dispositif en raison d'une incidence face à l'échantillon et d'une diffusion dans l'air. Le couplage optique du montage en mode de comptage est nettement meilleur. Nous pouvons également supposer une incertitude quant à la détermination du nombre d'impulsions équivalentes au signal de tension mesuré par le lockin.





## Chapitre 4

# Interprétation du mécanisme d'absorption photonique

Dans ce chapitre, nous nous interrogeons sur les mécanismes responsables de la formation d'un point chaud. Pour cela, nous comparons nos résultats avec une contribution purement bolométrique qui serait due au chauffage du substrat ainsi qu'avec un effet de fluctuation de phase comme la création d'une paire de vortex-antivortex assisté en photon. Puis, nous soulignons le rôle de l'inductance cinétique des nanofils dans le mécanisme de détection. Enfin, nous discutons de l'absorbance d'un nanofil supraconducteur.

### 4.1 Détection quantique et bolométrique

Nous comparons la tension induite dans le gap supraconducteur, mesurée en mode de détection continue, avec celle attendue pour un effet purement bolométrique par un effet de chauffage du substrat par exemple. Nous souhaitons ainsi comparer le signal d'une réponse purement bolométrique à celui que nous mesurons.

#### 4.1.1 Comparaison avec un effet purement bolométrique

Un effet bolométrique est un effet thermodynamique lié à la conversion du photon incident en phonons dans un petit volume thermiquement mal couplé. Il peut être caractérisé par le modèle de point chaud [64]. Pour discerner un effet bolométrique d'un effet de nature quantique nous allons comparer la résistance thermique effective déterminée à partir de nos mesures, avec la valeur attendue pour un effet purement bolométrique.

Tout d'abord, nous montrons comment relier la tension photovoltaïque que nous mesurons avec une résistance thermique effective. Celle ci est donnée par la relation suivante :

$$R_{eff} = \frac{\delta T_{eff}}{P_{inc}} \cdot S_d \quad (4.1)$$

$S_d$  est la surface du détecteur.  $P_{inc}$  correspond la puissance reçue. Nous la prenons égale à la puissance lumineuse des diodes, dans l'infra-rouge  $P_{IR} = 14pW$ , dans le visible  $P_V = 0.3pW$  et dans l'ultra-violet  $P_{UV} = 0.01pW$ .  $\delta T_{eff}$  est l'élévation de température induite par l'absorption d'un photon et la formation d'un point chaud. A la transition (SN) de cette zone normale, nous avons  $R = \partial R / \partial T \times T$ . Nous pouvons ainsi déterminer la température effective à partir de la tension photovoltaïque. Nous déterminons  $\delta T_{eff}$  telle que :

$$\delta T_{eff} = \frac{\delta V_I}{I} \times \delta T / \delta R \quad (4.2)$$

$\delta R / \delta T$  est la pente à la transition (SN) déterminée à partir de la mesure de la résistivité du nanofil en fonction de la température.

Nous présentons sur la figure 4.1 la résistance effective thermique déterminée à partir de la relation 4.1. Nous estimons la pente à la transition supraconductrice du nanofil (part.II, fig.2.2),

$$\delta R / \delta T (1\mu A) \sim 1.10^5 \Omega / K$$

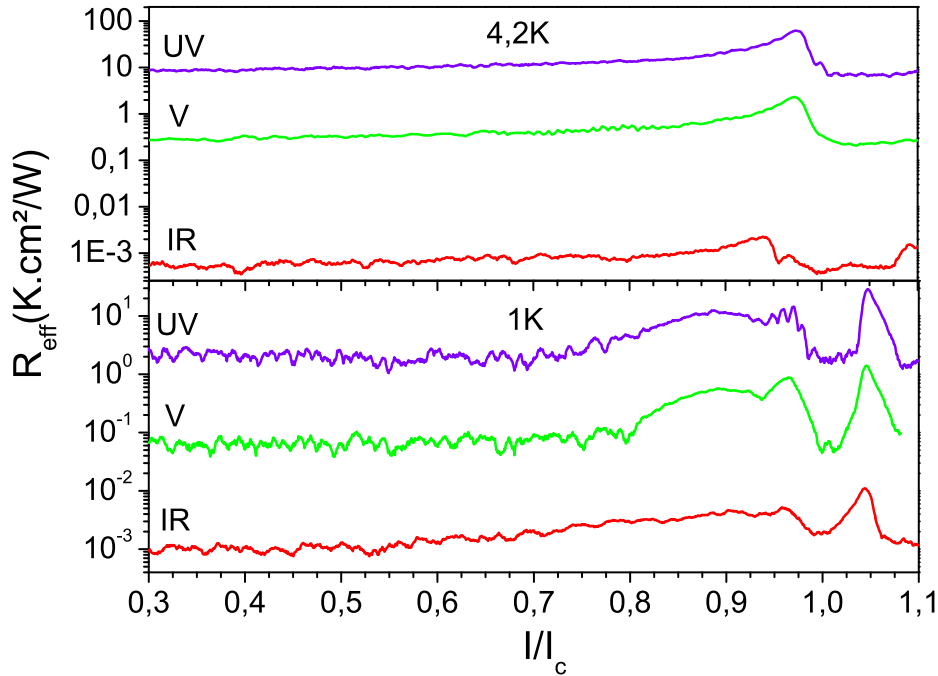


FIGURE 4.1 – Résistance thermique effective calculée (eq.4.1) à partir de la réponse ac vs.  $I/I_c$ , à 4.2K (haut) et à 1.2K (bas).

Nous présentons les données de manière analogue à la figure ??, ce qui nous permet de comparer ces résultats en fonction de la puissance normalisée des trois irradiations. Nous rappelons que la puissance lumineuse est normalisée à la puissance de la diode infrarouge (sec.??).

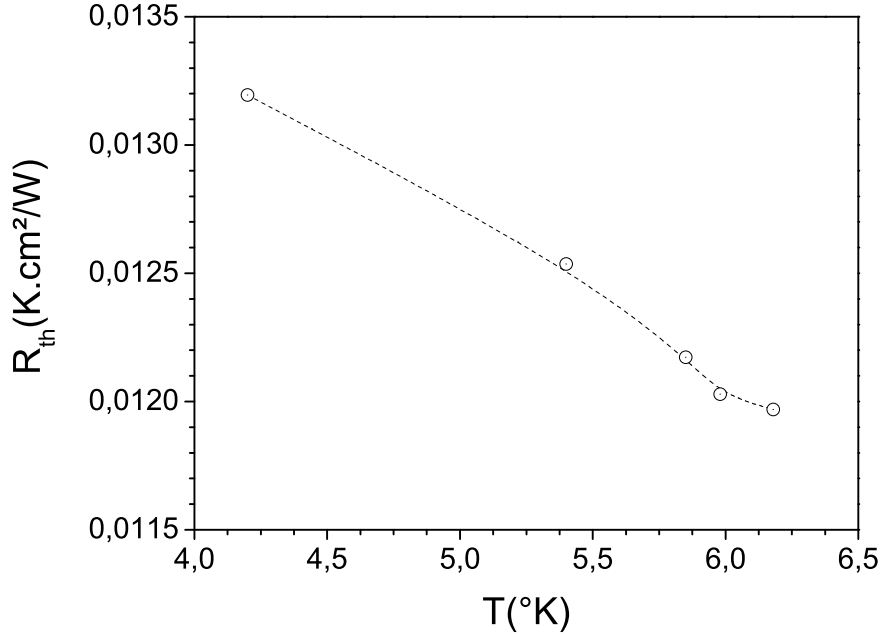


FIGURE 4.2 – Résistance thermique effective calculée à partir du modèle de point chaud [64].

A présent, nous calculons la résistance thermique  $R_{th}$  attendue aux borne du détecteur pour un effet purement bolométrique. Elle est déterminée par le modèle de point chaud [64] en fonction du courant de point chaud ( $I_h$ ). Dans la limite où la longueur et la largeur du nanofil sont grands devant la longueur de traînage thermique,  $I_h$  s'exprime telle que [64] :

$$I_h \simeq \sqrt{w^2 T_c / R_{th} R_{\square}} \cdot \sqrt{1 - T/T_c} \quad (4.3)$$

avec  $w$  la largeur du nanofil. Nous rappelons que  $I_h$  est le courant minimum pour maintenir par effet Joule une zone résistive sur le nanofil en contact avec un substrat à la température du bain (part.II). Nous l'avons déterminé à partir des caractéristiques courant-tension du détecteur mesurées aux différentes températures (part.II, fig.4.4).

La figure 4.2, montre les valeurs de la  $R_{th}$  calculées à partir de l'équation 4.3 en fonction de la température.

La résistance thermique effective mesurée est plus grande que la résistance thermique calculée

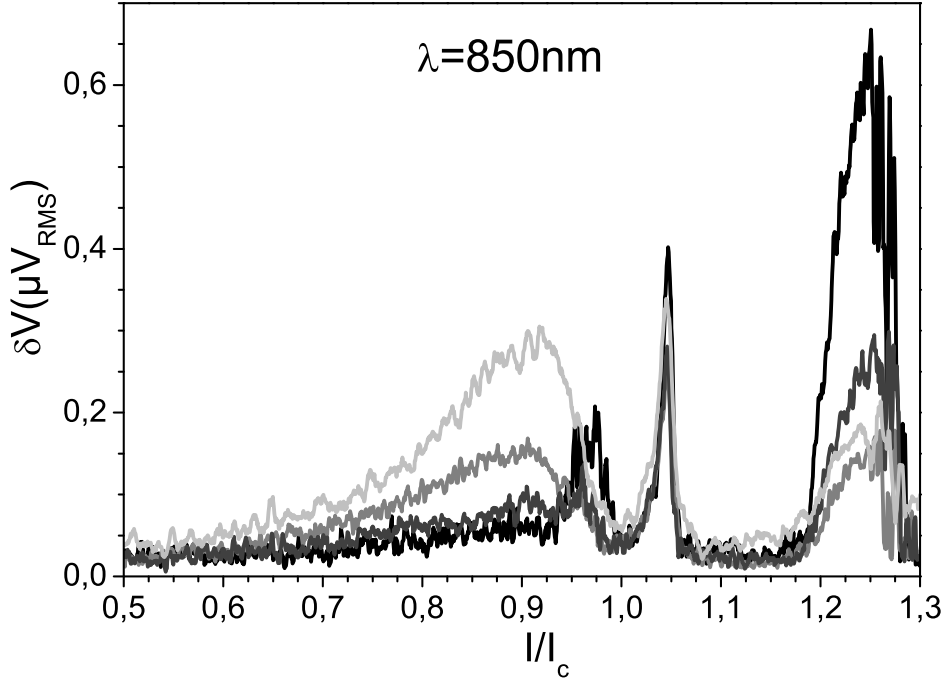


FIGURE 4.3 – Dépendance en fréquence de la valeur efficace de réponse en tension  $\delta V$  vs  $I/I_c$  du nanofil R12 irradié dans l'infrarouge à  $T=1.2^\circ K$ . La fréquence de modulation est incrémenté telle que :  $F_{pulse} = 50kHz$  (noir),  $100kHz$  (gris foncé),  $200kHz$  (gris) et  $250kHz$  (gris clair).

à partir du modèle de point chaud,  $R_{eff} > R_{th}$ . Dans le visible et l'ultra-violet, la résistance thermique associée à un effet purement bolométrique  $R_{th}(T)$  est respectivement de 10 fois et 100 fois plus faible que les résistances thermiques effectives associées aux mesures photovoltaïques.

Nous remarquons que dans ce calcul nous supposons que la longueur de traînage thermique ( $L \sim \mu m$ ) est plus faible que la section du méandre ce qui n'est pas le cas. Dans tous les cas, la résistance thermique dépend du couplage électron photon  $R_{eph}$  et de la résistance kapitsa  $R_K$  entre le détecteur et le substrat.  $R_{eph}$  varie comme  $T^{-1}$  tandis que  $R_K$  varie en  $T^{-3}$ .  $R_{th}$  augmente aux plus faibles températures (fig.4.2). Ce n'est pas ce que nous observons dans la gamme des courtes longueurs d'onde, puisque l'efficacité des détecteur diminue avec la température de mesure (fig.4.1).

Au contraire la détection des plus grandes longueurs d'onde augmente avec la température, comme nous l'observons dans l'infrarouge. De plus la valeur de la résistance thermique calculée

lée par le modèle de point chaud est du même ordre de grandeur que la résistance thermique effective mesurée. Cette mesure n'est pas complètement représentative de la tension photovoltaïque induite par une irradiation dans l'infrarouge. Nous avons comparé les réponses du détecteur pour les trois irradiations à une même fréquence, qui pour l'infrarouge ne correspond pas au signal photovoltaïque maximal. En effet, nous avons vu que la tension photovoltaïque augmente avec la fréquence des impulsions lumineuses (fig.4.3). De plus, cette dépendance est en désaccord avec une réponse bolométrique.

La réponse en tension à une irradiation de l'ultra violet à l'infrarouge, est de plusieurs ordre de grandeur plus importante que la résistance induite par un effet de chauffage du substrat. Il nous semble donc que la réponse du détecteur dans son état supraconducteur ( $I < I_c$ ) ne correspond pas à un effet uniquement bolométrique.

#### 4.1.2 L'effet 'photofluxonic'

Nous avons présenté en introduction de ce chapitre l'effet de création d'une paire de vortex-antivortex assistée par l'absorption d'un photon (effet 'photofluxonic') proposé par Kadin et al [87] afin d'interpréter le mécanisme d'absorption d'un photon. Dans ce modèle, ils supposent que le photon incident d'énergie  $h\nu$  est suffisamment énergétique pour briser une paire de vortex-antivortex, même sous la température de transition de Kosterlitz Thouless ( $T_{KT} \sim 2\pi\phi_0 da_0 J_0 / 4k_b$ , avec  $\phi_0$  le quantum de flux,  $d$  l'épaisseur du fil,  $a_0$  la taille de coeur effective du vortex et  $J_0$  la densité de courant ). Les deux vortex sont libres et se repoussent par la polarisation en courant. Ils s'échappent vers les bords opposés du fil. Ils induisent l'analogue d'une ligne de glissement de phase qui s'étale en point chaud.

Nous présentons l'analogie entre les mécanismes de détection du photon par les détecteurs semiconducteurs et ces détecteurs supraconducteurs.

	Paire $e^- - h$	Paire de vortex
Porteur	$\pm e$	$\pm\phi_0$
Mesure	Pulse de courant $\propto e$	Pulse de tension $\propto \phi_0$
Efficacité quantique	$EQ_i = e/h\nu$ [A/W]	$EQ_i = \phi_0/h\nu$ [V/W]
Seuil de séparation des paires	$V = 2\Delta/e$	$I = I_c$
Saut assisté en photon	$\Delta V = h\nu/e$	$\Delta I \sim h\nu/\phi_0$

TABLE 4.1 – Analogie entre les mécanismes de détection d'un photon ( $h\nu$ ) par la création d'une paire électron-trou dans un semiconducteurs et d'une paire de vortex-antivortex dans un supraconducteur. Reproduit d'après [87]

Dans ce modèle, la tension (par unité de puissance) correspond à la création d'une paire

de vortex-antivortex assistée par l'absorption d'un photon. Elle est donnée par

$$\delta V = \Phi_0/h\nu \quad (4.4)$$

Dans l'infra-rouge ( $\lambda > 1\mu m$ ) Murakami et al mesurent une réponse de l'ordre de  $10^4 V/W$  en accord avec la relation 4.5 [?]. Nous souhaitons comparer cette valeur à nos mesures. Considérons la mesure pour laquelle la tension photovoltaïque est maximale. Dans l'infrarouge, elle correspond à une fréquence d'impulsion lumineuse de 200kHz. Avec une puissance lumineuse de 14pW, nous mesurons dans l'infrarouge une réponse de  $1.10^4 V/W$  à  $1.2K$  et  $0.4.10^4 V/W$  à  $4.2K$ . Dans l'infrarouge, ces résultats sont en accord avec le modèle de département de vortex assisté en photon. Nous avons montré dans la deuxième partie de ce manuscrit que les conditions de création de PVAV étaient validées pour ces dispositifs (Part.II).

La dépendance en courant de la tension induite par la création de paires de vortex-antivortex est telle que [87] :

$$V(I) \sim \frac{I}{I_c} \frac{\pi K_0}{k_B T} \quad (4.5)$$

avec  $K_0 = 1/2\pi \times \phi_0 da_0 J_0$ . La dépendance en courant suit une loi en puissance, ce qui est en accord avec nos mesures. En vertu des résultats et des précédentes remarques nous observons donc un mécanisme de détection photonique qui peut s'interpréter par l'effet 'photofluxionics' proposé par Kadin et al.

## 4.2 Contribution de l'inductance cinétique des fils

L'inductance cinétique des paires de Cooper ( $L_{kin}$ ) est définie par une relation courant-tension qui est dépendante du temps,  $V = L_{kin} \partial I / \partial t$ . Cette relation est déterminée à partir de l'équation Josephson,  $\partial \varphi / \partial t = 2eV/\hbar$ . En présence d'un potentiel électrique, la phase du condensat fluctue. Ses fluctuations entraînent une accélération constante du condensat telle que  $\partial v_s / \partial t = e \nabla V / m$ , avec  $v_s = (\hbar \nabla \varphi - 2e/c.A) / 2m$ . Le courant traversant une zone de glissement de phase oscille dans le temps (part.II, [56]). Nous obtenons alors la relation suivante pour l'inductance cinétique du fil  $L_{kin}$ , telle que :

$$\nabla V \sim \frac{m}{e^2 n_s} \cdot \frac{L}{wd} \frac{\partial I}{\partial t} \quad (4.6)$$

avec  $L$ ,  $w$  et  $d$  la longueur, largeur et épaisseur du fil.  $\nabla V$  correspond à la réponse en tension du nanofil parcouru par un courant  $I$ . L'inductance cinétique du fil peut s'exprimer en fonction de la longueur de pénétration magnétique ( $\lambda$ ) telle que  $L_{kin} = \mu_0 \lambda(T)^2 L / wd$ , en supposant que  $\lambda_{\perp} = \lambda^2 / d \gg w$ .

La relation 4.6 peut se ré-formuler en fonction de la fréquence et de la température de mesure

telle que :

$$\delta V_{ac} \sim (I\mu_0\lambda_0^2 \times 2\pi F) \frac{1}{1 - T/T_c} \quad (4.7)$$

La réponse induite par l'inductance cinétique du fil est proportionnelle à la fréquence de mesure et inversement proportionnelle à la température. Ceci est cohérent avec la dépendance en fréquence de la tension photovoltaïque de nos détecteurs.

Pour  $F=100\text{kHz}$ , on estime la contribution de l'inductance cinétique à la réponse en tension de détecteurs polarisés à  $\sim 10\mu\text{A}$ , telle que  $V_{L_{kin}} \sim 0.06\mu\text{V}$  à 1.2K et  $V_{L_{kin}} \sim 0.09\mu\text{V}$  à 4.2K, avec  $\lambda_0 = 0.250\mu\text{m}$  [119] pour un fil de  $24\mu\text{m}$  de long, 140nm de large et de 3nm d'épaisseur, dont la résistivité est de  $135\mu\text{A.cm}$ .

La contribution de l'inductance cinétique du fil explique la dépendance linéaire en fréquence de la tension photovoltaïque. Elle est néanmoins insuffisante pour induire la tension mesurée sous irradiation de l'ordre du  $\mu\text{V}$  à 4.2K et de  $400\text{nV}$  à 1.2K. (fig.3.4), ce qui confirme l'existence d'un mécanisme assisté en photon.

### 4.3 L'absorbance d'un fil supraconducteur

L'absorbance optique d'une couche de NbN est un point fondamental pour le calcul de l'efficacité quantique du détecteur à un photon. C'est d'ailleurs un des « talon d'Achille » du dispositif car un dispositif sensible électriquement est basé sur une couche ultra-mince donc transparente aux photons [129] [130].

#### 4.3.1 Cas d'un film métallique

L'absorbance optique d'une couche fine métallique peut se calculer à partir du concept de désadaptation d'impédance d'une onde électromagnétique [131]. L'impédance optique d'un diélectrique est reliée à l'indice optique par la relation :  $Z = Z_0/n$ , où  $Z_0$  est l'impédance caractéristique du vide  $Z_0 = \mu_0 c = 377\Omega$ . Pour un métal, l'impédance optique elle est donnée [132] par  $Z = Z_0/(1 + Z_0/R_s)$  où  $R_s$  est la résistance par carré de surface. Pour un film d'épaisseur inférieure à la longueur de peau, elle correspond à sa résistance par carré.

Considérons une onde plane se propageant dans un milieu d'impédance caractéristique  $Z_{in}$  rencontrant un milieu d'impédance caractéristique  $Z_{out}$ . Les coefficients de réflexion et de transmission de l'amplitude de l'onde respectivement  $R$  et  $T$  sont données par [131] :

$$R = \frac{1 - Z_{out}/Z_{in}}{1 + Z_{out}/Z_{in}} \text{ et } T = 2 \frac{Z_{out}/Z_{in}}{1 + Z_{out}/Z_{in}} \quad (4.8)$$

La fraction d'énergie transmise est  $T^2$  et la fraction d'énergie réfléchie est  $R^2$ . L'absorbance se calcule comme étant la fraction complémentaire dissipée dans le film, telle que  $\eta_{th}=1-T^2$



$-R^2$ , soit :

$$\eta_{th} = 4 \frac{Z_{out}}{Z_{in}} \left( \frac{1 - Z_{out}/Z_{in}}{(1 + Z_{out}/Z_{in})^2} \right) \quad (4.9)$$

On obtient :

$$\eta_{th} = \frac{4R_s/Z_0}{\left( \left( \frac{R_s}{Z_0} \right) (n_{sub} + 1) + 1 \right)^2} \quad (4.10)$$

Nous considérons alors le saphir comme étant le premier milieu rencontré par le photon. Il est caractérisé par un indice  $n_{sub} = 1.72$  et une impédance  $Z_{in} = Z_0/n_s$ . Le milieu émergeant est le NbN d'indice  $Z_{out} = Z_0/(1 + Z_0/R_s)$ .

Ce modèle suppose que l'absorbance d'un fil métallique polarisé et refroidi aux basses températures est équivalente à l'absorbance d'un film à température ambiante.

L'absorbance est d'autant plus grande que la résistance de surface du film est faible et donc que le film est épais. Pour nos détecteurs, de 3 à 6nm d'épaisseur on obtient en moyenne  $\eta_{th} \sim [25 - 30]\%$ , ce qui correspond aux valeurs données dans la littérature ( $\eta_{exp} = 30\%$ ) [111].

#### 4.3.2 Cas d'un film supraconducteur

L'absorbance que nous venons de définir est communément utilisée pour décrire les détecteurs à un photon [87][111]. Cette définition correspond à un film métallique. Comme nous l'avons précédemment remarqué pour le calcul de l'épaisseur de peau, la définition de l'absorbance pour un supraconducteur est quelque peu différente, puisque sa résistivité  $dc$  est nulle. Elle peut alors être déterminée par la composante  $ac$  de la résistivité du supraconducteur, qui est par contre non nulle. Le modèle à deux fluides permet de l'estimer [56]. Nous en présentons les résultats en fonction de l'énergie des photons incidents, de manière à traiter aussi le cas des photons thermiques qui constituent le bruit d'obscurité des détecteurs.

#### Coefficient de réflexion d'un photon

L'onde électromagnétique (OEM), que constitue le photon, est essentiellement réfléchi par le supraconducteur en raison de son impédance très faible comparée à celle du vide. A la surface du supraconducteur, se superpose l'OEM incidente et réfléchi. L'amplitude du champ oscillant est égale au double du champ incident  $B = 2B_{inc}$ . En accord avec l'équation de Maxwell

$$\oint_c \vec{B} dl = \mu_0 \int_S \vec{j} dS$$

la réflexion du photon induit une densité de courant de surface,  $j_B$  telle que :

$$j_B = \frac{B_{inc}}{2\mu_0} \quad (4.11)$$

Ces courants de surface induisent une dissipation par effet Joules dont la puissance est telle que  $j_B^2 R_s$ , avec  $R_s$  la résistance de surface. Dans le cas de nos détecteurs, leur épaisseur est inférieure à l'épaisseur de peau  $\delta = \sqrt{2\rho/w\mu}$ <sup>1</sup>. La distribution de courant est donc homogène sur toute l'épaisseur du fil et la résistance est égale à la résistance par carré du fil. Cette épaisseur de peau est déterminée dans l'état normal, résistif, du fil. Elle peut être déterminée par le modèle à deux fluides [56]. Dans ce cas  $R_s$  dépend de manière non triviale aux conductivités du fil.

L'énergie absorbée par la réflexion d'un photon est donc telle que :

$$A = \frac{P_{abs}}{P_{inc}} = \frac{j_B^2 R_s}{B_{inc}^2 / 2\mu_0} = \frac{R_s}{2\mu_0} \quad (4.12)$$

L'énergie absorbée par la réflexion d'un photon ne dépend que de la résistance de surface du fil.

Nous pouvons comparer cette définition, qui correspond à une absorbance de la réflexion d'un photon avec celle d'un film métallique présentée dans la section précédente pour des photons très énergétiques. L'absorbance du fil est telle que  $A = P_{abs}/P_{inc} = 3.6$ , avec  $R_s = R_{\square} = 337\Omega$  et  $A = \sqrt{2\epsilon_0/\mu_0}R_s$ .

J.P. Turneure et al [133], ont mesuré le facteur de qualité d'une cavité de niobium (Nb) ( $\lambda \sim \mu m$ ). Elle peut s'exprimer en fonction de l'absorbance du matériau (quantité d'énergie absorbée par le supraconducteur lors de la réflexion des photons) ,

$$Q \sim L/\lambda \cdot 1/A \quad (4.13)$$

avec  $\lambda$  la longueur d'onde des photons incidents et  $L$  la longueur du fil qui dissipe. Ils montrent que la dépendance en température du facteur de qualité varie en  $exp(-\Delta/k_B T)$ . La montée exponentielle du facteur de qualité aux basses températures correspond à la diminution de la densité d'électron normal.

### Coefficient de transmission d'un supraconducteur

Le coefficient de transmission d'un film mince supraconducteur  $T_s$  peut s'exprimer par la relation suivante [56] :

$$T_s = \frac{1}{\left(1 + \frac{\sigma_1(w)dZ_0}{n+1}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_2(w)dZ_0}{n+1}\right)^2} \quad (4.14)$$

$n$  est l'indice de réfraction du substrat, en l'occurrence du saphir et  $Z_0$  l'impédance du vide.  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  sont respectivement les parties réelle et complexe de la conductivité  $\sigma(w)$  du fil supraconducteur d'épaisseur  $d$ ,  $w$  étant la pulsation du champ électrique correspondant aux

1. Avec  $\mu = \mu_0\mu_r \sim \mu_0$  pour  $\lambda \gg d$ , les lignes de champ ne sont pas déviées. La longueur de pénétration magnétique est estimée dans la limite sale à 4.2K à  $0.26\mu m$ , avec  $\lambda_{GL} = 6.42 \cdot 10^{-3} \sqrt{\rho/T_c}$ , [119]

courants normaux et supraconducteurs (ou l'inverse). La fréquence  $w$  correspond à celle du champ électrique responsable de l'apparition d'une tension.

A partir de l'expression de  $T_s$  (eq.4.14), en remplaçant  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  on observe d'une part qu'à basse fréquence le coefficient de transmission du fil  $T_s$  s'annule, avec  $\sigma_{2s} \sim 1/w$ . Dans ce cas, la contribution  $dc$  des courants circulant dans le supraconducteur conduit à une *réflexion totale* de l'onde électromagnétique incidente.

D'autre part, pour des photons d'énergie supérieure au gap supraconducteur,  $h\nu > 2\Delta$ , on a  $\sigma_{2s}$  qui s'annule et  $\sigma_{1s}$  tend vers  $\sigma_n$ . *La transmission tend vers celle du métal*,  $T_s = T$ . Elle est définie dans la section précédente (sec.4.3.1).

Pour des photons dont l'énergie est de l'ordre du gap supraconducteur  $h\nu \sim 2\Delta$ . Dans cette région Glover et al ont montré l'existence d'un *pic de transmission du supraconducteur*, qui devient alors supérieure à celle du métal [134][135]. Dans cette région la conductivité des paires de Cooper est inférieure à celle des électrons normaux.

## Chapitre 5

# Conclusion

Nous avons caractérisé nos détecteurs en mode de comptage de photon et en mode de détection synchrone. En mode de comptage de photon, la réponse des détecteurs face à des impulsions lumineuses correspond à des pulses de tension discrets (fig.7). Nous mesurons une amplitude et une durée des pulses de tension de  $100\mu V$  et de  $2.5ns$ . Cette mesure est limitée par la bande passante de l'électronique de mesure. L'amplitude et le temps de pulse attendus sont de l'ordre de  $225\mu V$  et de quelques picosecondes. D'autre part, nous observons que le nombre de photons détectés croît exponentiellement avec le courant de polarisation (proche du courant critique). Ces résultats sont cohérents avec le modèle de création d'une fluctuation de phase assistée en courant. Enfin, dans le régime où le nombre de photons par impulsion lumineuse est inférieur à 1, nous montrons que les détecteurs sont sensibles au photon unique dans le visible et qu'ils sont sensibles à deux photons dans le proche infrarouge (fig.7).

En mode de détection synchrone, nous montrons que la sensibilité du détecteur diminue aux plus basses températures. Ces résultats sont cohérents avec le modèle de création de paires de vortex-antivortex assistées en courant.

Nous avons choisi d'utiliser le nitrure de niobium pour réaliser les détecteurs à un photon car sa résistance dans l'état normal, juste au dessus de la transition supraconductrice, est plus grande que celle du niobium. Cette haute résistivité permet de générer un pulse de plus grande amplitude lors de la formation du chaud. Le nitrure de niobium montre aussi une plus large bande de détection que le niobium. Son efficacité commence à décroître significativement au delà de  $2\mu m$  [136]. Ces comportements ne sont pas encore bien compris et en particulier les mécanismes de formation du point chaud lors de l'absorption d'un photon. Le photon induit-il la création de paire de vortex-antivortex, la formation d'un centre de glissement de phase ou d'une ligne de glissement ? Comment bien définir les contributions bolométriques et quantiques ? La microscopie à SQUID [137] serait un des moyens à utiliser pour observer la formation du point chaud lors de l'absorption d'un photon.



Quatrième partie

Techniques de lithographie par  
microscopie à sonde locale



# Chapitre 1

## Introduction

Le microscope à force atomique (AFM) permet la mesure de l'interaction mécanique entre une pointe et une surface et ainsi d'imager des surfaces avec une résolution sub-nanométrique. Le microscope à force atomique est présenté en 1986 par Binnig et al [138]. Le prototype est réalisé après l'invention du microscope à effet tunnel (1982) [139]. Il concrétise les premiers travaux de Tabor [140] et Israelachvili [141][142] sur les mesures des forces d'interaction entre surfaces [143] ou entre une sphère et une surface [144].

L'AFM peut fonctionner sous vide ou sous atmosphère contrôlée, dans l'air ou en milieu liquide [145]. Il fut appliqué aux solides puis à la matière molle. En biologie par exemple (fig.1), il est utile pour l'imagerie cellulaire [146] [147][148][149] [150] [151] [152] [153] ou comme nano-sonde pour tester, in situ, la rigidité d'un os [154]. L'AFM est basée sur des interactions mécaniques entre sa pointe et la surface du substrat. Les pointes AFM se sont diversifiées avec ses différentes applications. Des pointes métalliques ou magnétiques peuvent être utilisées. Les pointes AFM greffées avec des nanotubes sont utiles à l'imagerie de surfaces présentant des détails à l'échelle nanométrique.

Les microscopes à sonde locale peuvent être utilisés pour modifier la surface qu'il image, en déplaçant mécaniquement l'arrangement des atomes les uns par rapport aux autres [155] [156] ou en modifiant sa composition [157][158]. Il apparaît être un outil versatile pour la réalisation de composants utiles à la nanoélectronique. Outre les ambitions économiques de la microélectronique, des résolutions ultimes sont recherchées pour sonder des effets de nature quantique. Les microscopes à sonde locale sont proposés comme alternatives aux techniques de lithographie optique et électronique limitées à une résolution proche de la longueur d'onde du rayonnement utilisé.

En particulier, la pointe AFM peut être utilisée pour oxyder un substrat métallique non noble [158]. Le motif d'oxyde permet de réaliser des nanostructures. Il est l'analogue d'un



masque de résine négatif. Cette technique est appliquée à des films minces conducteurs. Elle permet de réaliser des nano-composants à base de silicium [159] et des détecteurs quantiques supraconducteurs [117]. La lithographie AFM offre une haute résolution (20nm) et évite l'utilisation des procédés usuels de micro-fabrication (solvant, gravure, laquage...). A l'échelle d'une nanostructure, ces étapes post-lithographiques altèrent l'état de surface, notamment l'usage de résine qui laisse inévitablement un dépôt moléculaire contaminant en surface.

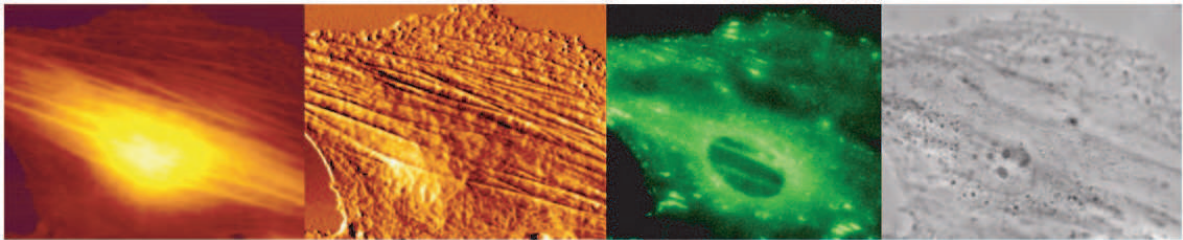


FIGURE 1.1 – *Images AFM et optiques d'un fibroblaste montrant la complémentarité de la technique. De gauche à droite : Image d'un fibroblaste vivante par AFM (image en hauteur puis en déflexion) et simultanément par épi fluorescence (troisième image) et en contraste de phase optique (dernière image). Reproduit de [147].*

Tout d'abord nous présentons le microscope à force atomique et son principe de fonctionnement. Ensuite, nous présentons la technique d'anodisation locale contrôlée appliquée à des films minces ainsi que les conditions expérimentales utilisées pour la réalisation de dispositifs quantiques supraconducteurs.

## Chapitre 2

# Le microscope à force atomique

### 2.1 Interaction pointe-surface

Le microscope à force atomique permet d'imager des surfaces conductrices et isolantes. Il est basé sur un système de régulation à force constante entre le substrat et une pointe<sup>1</sup> fixée à un micro-levier (un cantilever) (fig.2.1). Les déviations spatiales du cantilever sont enregistrées. Elles permettent de reconstituer la topographie de la surface du substrat.

Il existe autant de mode d'imagerie qu'il y a d'interactions différentes entre la pointe et le substrat. Nous présentons ces interactions et les possibilités d'imagerie qu'elles fournissent.

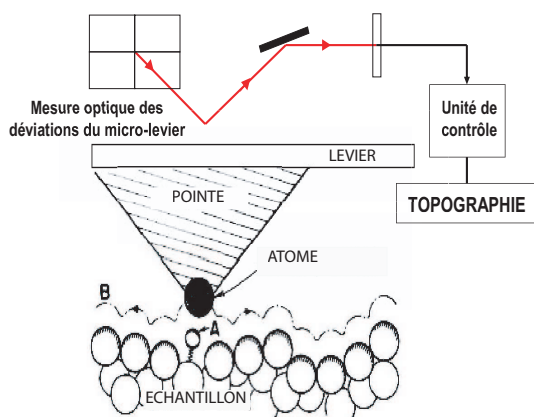


FIGURE 2.1 – Principe de fonctionnement de l'AFM. Un laser mesure les déviations de la pointe. La distance (ou force) pointe-substrat est constante [139].

### 2.2 Les forces d'interactions

La contribution des forces qui s'exercent entre la pointe et le substrat est fonction de leur distance respective. La figure 2.4 présente ces différents régimes et les distances pointes-substrat associées. Les forces toujours présentes sont la forces de Van der Waals et la force de répulsion coulombienne.

1. La rayon de courbure de la pointe, son apex, est nanométrique (15nm).

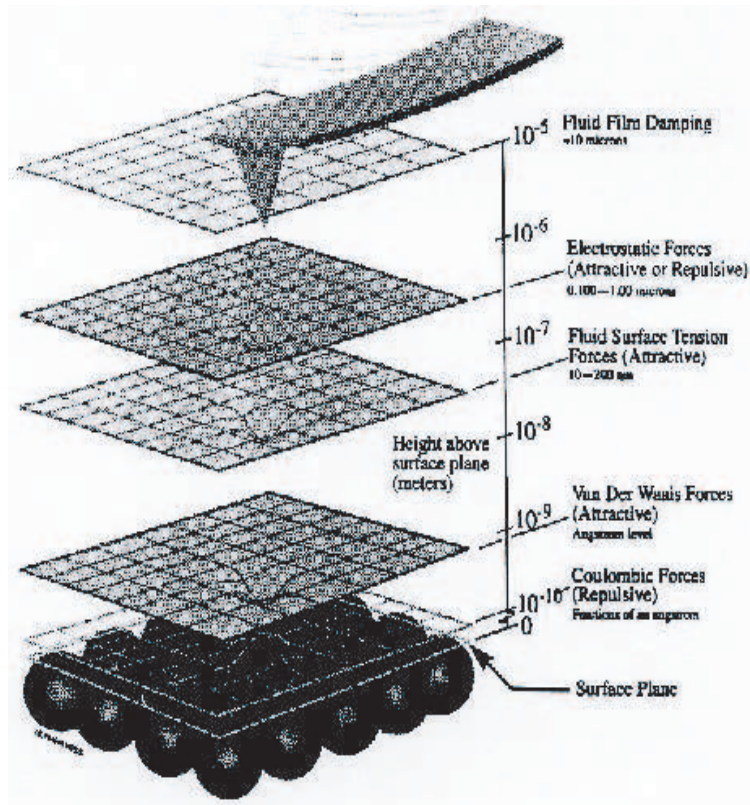


FIGURE 2.2 – Forces d'interaction entre la pointe et la surface en fonction de leur distance.

La force de Van der Waals est une force attractive à longue portée. C'est cette même force qui attire une feuille de papier vers une règle métallisée que l'on a frottée. En arrachant des atomes de la règle, on crée des liaisons pendantes et des charges qui ne sont pas compensées. Les charges de la règle et du papier s'attirent. La force de Van der Waals est une interaction entre dipôles. En fonction de leur densité de charge et de leur polarisabilité, la pointe et le substrat induisent des champs électriques qui les attirent. L'amplitude de cette force est fonction de leur distance respective. Pour un système plan-sphère, la force de Van der Waals du système pointe-substrat s'exprime telle que :  $F(z) = -\frac{HR}{6z^2}$  si  $z > a_0$  et  $F(z) = -\frac{HR}{6a_0^2}$  si  $z < a_0$ .  $H$  est la constante de Hammer. Elle est fonction de la densité de charge des dipôles et de leur polarisabilité.<sup>2</sup>  $R$  est le rayon de courbure de la pointe et  $a_0$  la distance interatomique. Le potentiel équivalent est  $U = -AR/6z^6$ .

La dernière force exercée sur la pointe lors de son approche vers le substrat est la force répulsive de coeur dur. Les nuages électroniques des atomes de la pointe et de la surface se repoussent. En raison du principe d'exclusion de Pauli, ils ne peuvent s'interpénétrer.

2. pour des solides organiques,  $H \sim 10^{-21} J$ , soit de l'ordre de l'énergie thermique  $k_B T$ ; pour des métaux ou des céramiques,  $H < 10^{-18} J$ ; dans les phases vapeurs elle est totalement négligeable.

La figure 2.2 présente une courbe de force lors de l'approche et du retrait de la pointe vers

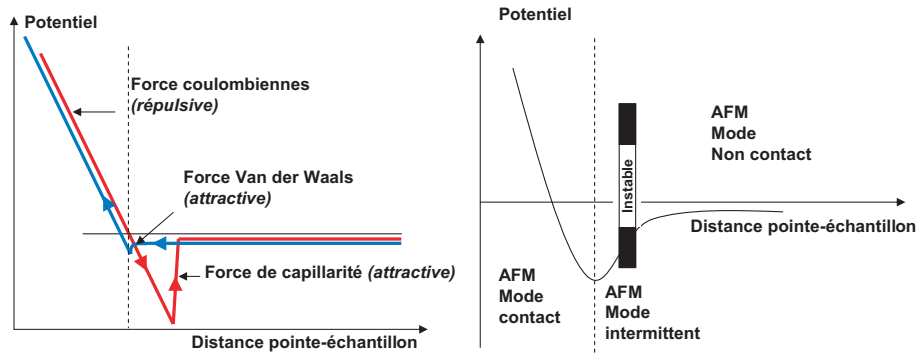


FIGURE 2.3 – A gauche : Représentation schématique d'une courbe d'approche retrait. A droite : mode d'utilisation de l'AFM en fonction du potentiel d'interaction (ou de la distance) entre la pointe et l'échantillon.

le substrat. Deux régimes, attractif et répulsif, se distinguent dépendant de la distance pointe substrat. Le système est décrit par le potentiel de Lennard-Jonnes,  $U = -\epsilon \left( 2\left(\frac{a_0}{d}\right)^6 - \left(\frac{a_0}{d}\right)^{12} \right)$ . L'hystérésis du retour provient des forces de capillarité. En atmosphère ambiante, ces forces unissent la pointe et le substrat par la formation d'un ménisque d'eau. Le ménisque se forme pour réduire la tension superficielle des deux films d'eau adsorbés à la surface de la pointe et du substrat. L'énergie dissipée peut être importante en raison de sa viscosité.

## 2.3 Imagerie en mode contact et non contact

A ces deux régimes de force, attractif et répulsif, on associe deux modes d'utilisation de l'AFM. Le mode statique (mode contact) et le mode dynamique (contact-intermittent et non contact).

Le mode contact est un mode statique. La force appliquée sur le levier en  $z$  est constante dans le temps et sert de valeur de consigne pour la régulation. La distance pointe échantillon est inférieure aux distances interatomiques. Les forces sont répulsives, empêchant les nuages électroniques des atomes de la pointe et du substrat de s'interpénétrer. La pointe repose sur la surface et la balaye.

Le mode intermittent et le mode non contact sont des modes dynamiques. Le système pointe/levier est excité à sa fréquence de résonance. Il oscille à une distance de quelques nanomètres de la surface. La proximité du substrat et les forces en présence ont pour effet de modifier la dynamique de la pointe par rapport à son mode d'équilibre. La régulation de la pointe est basée sur les variations de son amplitude (AM) ou de sa fréquence d'oscillation (FM). En mode intermittent la pointe rencontre le substrat en bout de course de son oscillation. Dans le mode non contact la pointe oscille librement. Elle est modélisée comme un oscillateur harmonique

non amorti.

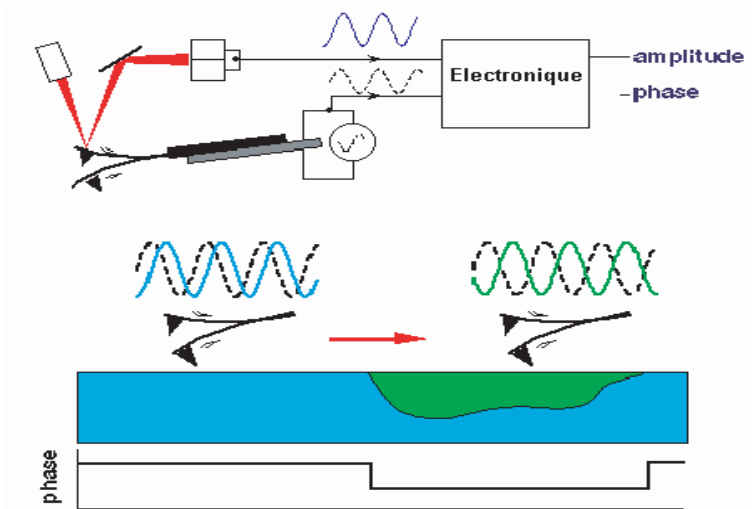


FIGURE 2.4 – Principe de fonctionnement du mode intermittent et non contact. Le décalage de phase entre l'excitation et la réponse du cantilever indique un changement de nature du substrat.

Dans ces modes, la pointe oscille dans les zones où le potentiel est attractif. Le gradient de force, dérivé de la courbe d'approche-retrait (fig.2.2) dépend fortement de la distance pointe-substrat. Un changement de force reflète un changement de distance pointe-substrat, soit un changement de topographie. Les micro-leviers des pointes répondent à ce changement de force (leur constante de raideur relative varie). Leur fréquence de résonance se décale.

L'utilisateur excite le système pointe-levier proche de sa fréquence de résonance. Lorsque la pointe s'approche et ressent la surface, sa fréquence de résonance diminue (décalage vers la gauche pour des forces attractives) ainsi que son amplitude de vibration (fig.2.3). Pour garder une amplitude d'oscillation constante, la régulation agit sur la distance pointe-échantillon pendant que la pointe scan la surface du substrat.

## 2.4 Les pointes AFM

La fabrication des pointes est adaptée à leur utilisation. Les pointes greffées à nanotube de carbone par exemple permettent d'imager des surfaces dont la topologie est importante. Elles s'affranchissent de l'erreur d'imagerie liée à la convolution de la pointe (fig.3.10). Elles ont le plus fort rapport d'aspect. Leur souplesse est utile pour l'imagerie en milieu liquide et pour l'imagerie cellulaire par exemple (fig.1).

Des pointes métalliques ou magnétiques, permettent de sonder des forces électrostatiques et

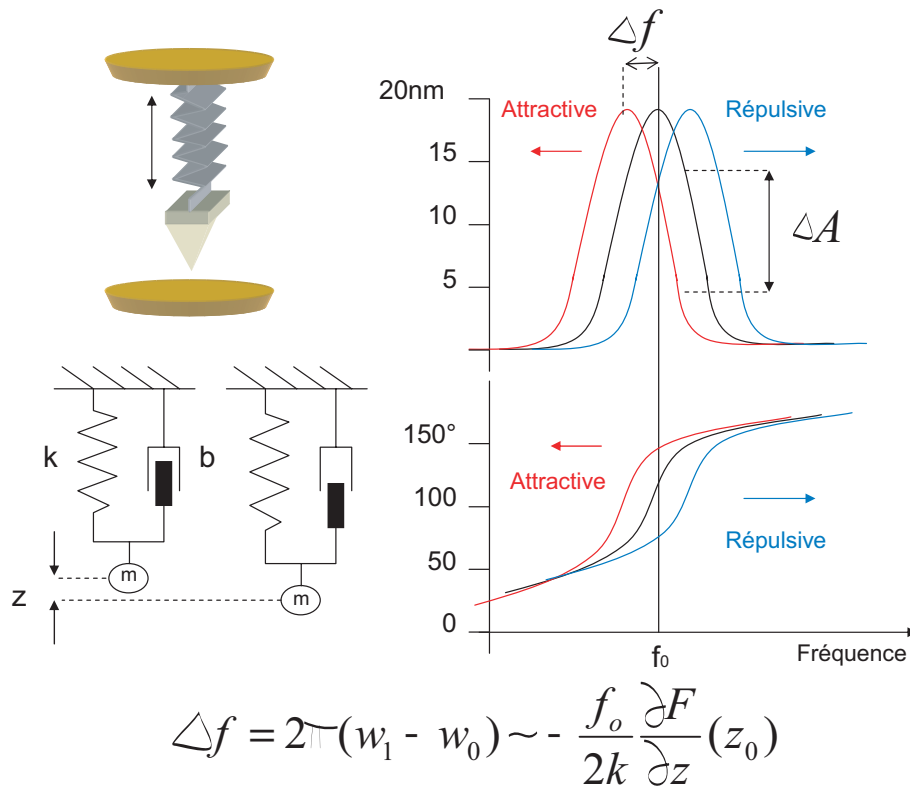


FIGURE 2.5 – Représentation schématique du système levier-pointe-substrat. Le levier est représenté comme un ressort et la viscosité à la surface de l'échantillon est représentée comme un amortisseur

magnétiques entre la pointe et le substrat. Le microscope peut alors être utilisé en mode EFM (electrostatic mode microscope) ou MFM (magnetic force microscope). La distance entre la pointe et le substrat est fixe, l'image correspond à une mesure d'énergie électrostatique ou magnétique.

### Conclusion

Nous utilisons l'AFM est mode contact ou en mode intermittent pour l'imagerie et la lithographie. Les pointes sont métalliques et de fort rapport d'aspect. Pour l'imagerie, elles permettent d'évacuer les charges de surface d'un substrat et ainsi de réduire le bruit de l'imagerie. En lithographie, les pointes métalliques permettent le passage d'un courant. Nous présentons dans les paragraphes suivant la technique de lithographie par AFM, ses avantages et ses inconvénients pour la réalisation de détecteurs quantiques supraconducteurs.



## Chapitre 3

# Lithographie en champ proche

L'invention du microscope à effet tunnel [139], [138] et du microscope à force atomique [160] (1986) a permis d'observer un atome unique, de le déplacer et d'écrire en manipulant les atomes les uns par rapport aux autres [155]. Nous présentons à quel point la longueur d'onde incidente limite la résolution des techniques de lithographie à faisceau optique et électronique et comment les microscopes à sondes locales furent développés comme des techniques de lithographie alternatives.

### 3.1 Etat de l'art des techniques de lithographie en champ proche

#### 3.1.1 Lithographie optique

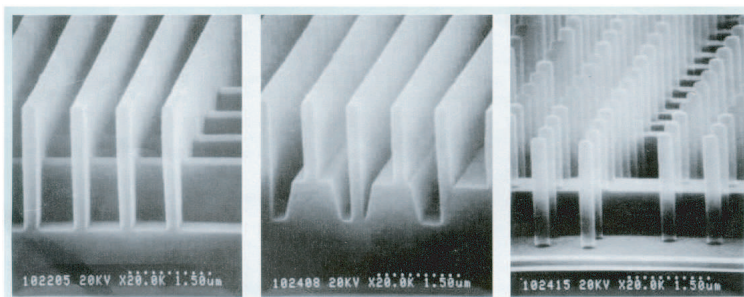


FIGURE 3.1 – Motif de résine réalisé sur différents substrats par lithographie de proximité à rayons-X [161]

La lithographie optique est la technique de lithographie conventionnelle la plus utilisée. Elle nécessite un masque et un film fin de résine déposé sur l'échantillon. Ils peuvent être comparés à un négatif photographique et à l'émulsion imprimée pour la photographie. Le motif du masque se réplique sur la résine qui est exposée à une irradiation. Les longueurs d'ondes utilisées actuellement sont l'ultra-violet et l'ultra-violet profond (résolution ultime 70nm)[162][163]. Comme pour tous les instruments optiques, sa résolution ultime est définie par le critère de Rayleigh's [164] :  $R = k \cdot \lambda / d$ ,  $d$  est l'ouverture numérique de l'optique (le diaphragme),  $\lambda$  la longueur d'onde et  $k$  ( $\sim 1.2$ ) est une constante. En générale la résolution obtenue est proche de la lon-



gueur d'onde du faisceau optique ( $d > 0.5$ ). Pour obtenir de plus hautes résolutions, il faut pouvoir réduire les longueurs d'ondes de l'irradiation. Cependant, la profondeur de champ qui définit la distance du plan sur lequel se forme l'image est telle que  $OF' = k' \cdot \lambda/d^2$ . Elle est très courte. La qualité de l'insolation est donc très sensible aux faibles variations d'épaisseur et de position de la résine [165].

Des alternatives sont développées, comme la lithographie de proximité par rayons X ( $\lambda \sim 0.4 - 8nm$ )[166][167]. Sa résolution ultime est de 15nm. Elle nécessite un masque qui absorbe les rayons X. Son ombre est imprimée sur le substrat. Elle est l'unique technique de lithographie optique qui permet de réaliser des dispositifs tridimensionnels (fig.3.1.1). Néanmoins, la fabrication des masques est complexe. Cette technique n'est pas encore industrialisée. La lithographie en extrême UV ( $\lambda \sim 13nm$ ) est également développée (résolution ultime 30nm)[168][161][169]. Le faisceau est guidé par une optique réfléchive (miroirs) qui remplace l'optique réfractrice actuellement utilisée (lentille, masque)[162][163]. (Livre détaillé de T.David [170])

### 3.1.2 Lithographie électronique

Un faisceau d'électrons remplace le faisceau de photons. Des bobines et des condensateurs créent des champs magnétiques et électrostatiques qui permettent de dévier et focaliser le faisceau. Ces composants sont les analogues des lentilles pour l'optique. Le motif est réalisé par la succession de tracés vectoriels pour commander le déplacement du faisceau d'électron et le déclenchement de l'exposition. L'avantage de cette technique est sa haute résolution (10-20nm) associée à une profondeur de champ plus grande. Son inconvénient est sa lenteur ( $1\mu m/s$ ). Des projets furent lancés pour intégrer des pointes en parallèle. Chacune focalise un faisceau d'électron et reproduit le motif [171][172][173]. La lithographie par faisceau d'ions est similaire. La masse des ions est plus importante. La rétrodiffusion par l'échantillon est donc plus faible [174], ce qui améliore les possibilités d'imagerie. Ces systèmes sont moins développés que la lithographie par faisceau d'électrons.

Les techniques de lithographie optiques et électroniques utilisent toutes deux l'aspect ondulatoire du rayonnement. La distance source substrat est grande et les effets de diffraction et de diffusion important. Le procédé de fabrication est indirect, les substrats doivent être gravés, chimiquement ou mécaniquement, pour que le motif insolé sur la résine s'y réplique. La résine est préalablement développée dans des solvants pour que les parties insolées se révèlent (pour une résine négative, inversement pour une résine positive). Ces étapes alourdissent le procédé de fabrication et sont pour certaines destructives pour les propriétés des matériaux. Une nanostructure propre et régulière dont le désordre électronique n'est pas altéré est difficile

### 3.2 Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM<sup>93</sup>

à obtenir par ces méthodes.

#### 3.1.3 Les microscopes à sonde locale

Depuis les travaux d'Abraham et al sur l'indentation (1986), d'autres modes de lithographie champ proche ont été développés. Il existe autant de possibilités d'écriture que d'interactions pointe-échantillon différentes. La figure 3.2 présente les techniques d'écriture utilisées par les microscopes à sondes locales en fonction de l'interaction mise en jeu. Les évolutions des différentes techniques de lithographie en champ proche ont conduit à des résultats majeurs pour l'électronique quantique et le transport mésoscopique. A l'heure actuelle, la manipulation d'atomes ou de molécules, l'indentation, l'insolation de résines et l'oxydation locale permettent de modifier les surfaces à l'échelle nanométrique. La figure 3.3 compare les résolutions ultimes obtenues par chacune des techniques, en champ proche et en champ lointain.

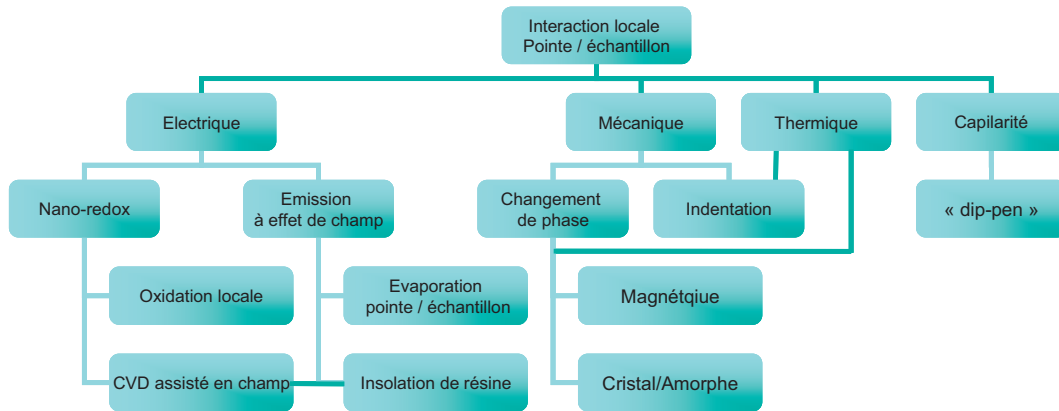


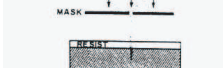

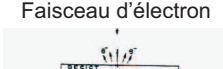
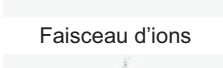


FIGURE 3.2 – Classification des techniques de lithographie par microscopie à sonde locale en fonction de l'interaction utilisée entre la pointe et l'échantillon. Reproduit d'après [175]

Les techniques de lithographies optiques et électroniques seront améliorées et la résolution ultime repoussée. Néanmoins, des solutions alternatives sont développées dans le même but, sonder des objets uniques et des interactions quantiques. Les microscopes à sonde locale sont des nano manipulateurs versatiles. Leur fonctionnement est basé sur des champs de forces et non sur un régime propagatif. Ils offrent de nombreuses possibilités pour modifier la matière à l'échelle atomique et réaliser une nanoélectronique de manière non destructive.

### 3.2 Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM

Nous présentons dans cette partie la technique d'anodisation locale contrôlée sous la pointe d'un microscope à force atomique et son application à la réalisation de détecteurs quantiques supraconducteurs.

Champ lointain			Champ proche		
Photon UV, EUV	Type de lithographie	Résolution actuelle/ultime	Sondes locales AFM, STM, SNOM	Type de lithographie	Résolution actuelle/ultime
	Projection	80 nm/10nm		Écriture directe	7 nm/1 nm
Rayons X 	Proximité	50 nm/10 nm	nano-imprint 	Contact	20 nm/5 nm
Faisceau d'électron 	Écriture directe	10 nm/1nm	<b>Limitations : pointe, qualité du matériau</b>		
Faisceau d'ions 	Écriture directe	29 nm/10 nm			

**Limitation : Diffraction, diffusion du faisceau**

FIGURE 3.3 – État de l'art des techniques de lithographie en champ lointain et en champ proche. Les résolutions et les limitations de ces techniques sont comparées. Reproduit d'après [175]

### 3.2.1 Présentation de la technique

Cette technique de lithographie est basée sur une interaction électrique entre la pointe de l'AFM et le substrat, tous deux conducteurs. La pointe constitue une source d'électrons pour une réaction locale d'oxydoréduction à la surface du substrat. Cette technique utilise donc un faisceau d'électron. Néanmoins, contrairement à la lithographie électronique, sa résolution n'est pas limitée par la diffusion des électrons. Ceux-ci ont une faible énergie. Les forts champs électriques ne sont pas utiles pour focaliser le faisceau. La distance pointe-substrat est courte (Å) et contribue à obtenir une lithographie locale sous la pointe. Sa résolution dépend du rayon de courbure de la pointe. Des pointes métalliques 'ultrasharp', de fort rapport d'aspect, sont fabriquées pour cette application.

La faisabilité de cette technique est démontrée en 1990 par Dagata et al [159]. En 1998, le premier transistor à un électron (SET) est réalisé [176]. Deux ans plus tard elle est suffisamment développée pour que nous puissions étudier le comportement de transistors en fonction de leur géométrie. La figure 3.2.1 présente un dispositif de type SET. Deux canaux de niobium (Nb) de 70nm de large connectent un îlot de 50nm × 200nm. Le transport électrique à travers cette structure met en évidence un gap de Coulomb et une modulation de grille [118].

Cette technique offre l'avantage de pouvoir réaliser des dispositifs en écriture directe comme dernière étape de fabrication. Elle n'utilise pas de résine. La figure 3.2.1 met en évidence la qualité de surface et la régularité des structures obtenues grâce à cette technique. Elle présente

### 3.2 Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM95

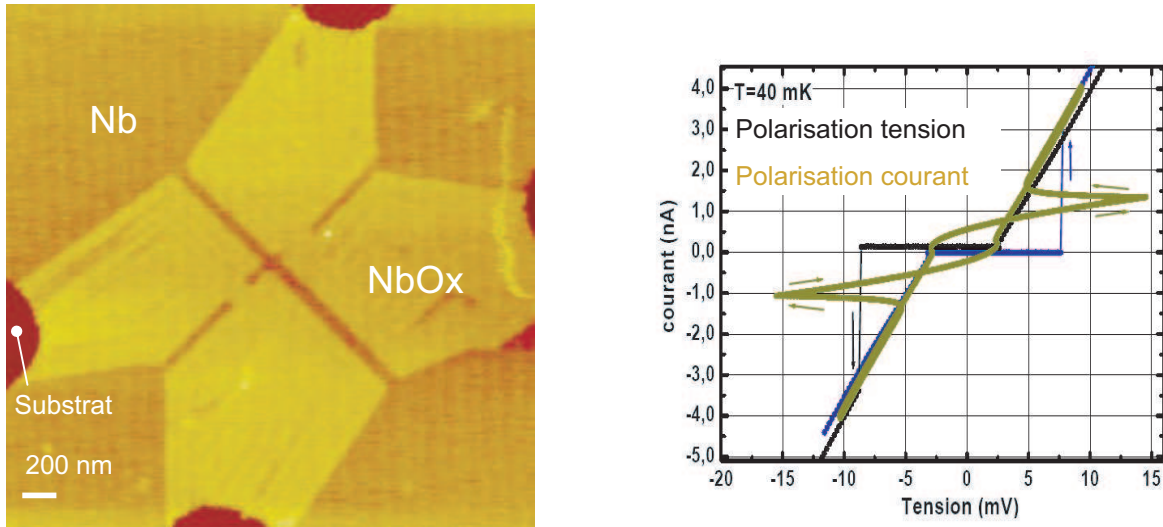


FIGURE 3.4 – Transistor réalisé par oxydation locale AFM sur un film de niobium de 2.5nm (gauche). Les zones blanches constituent l'oxyde de niobium (NbOx) isolant. Un canal de 70nm de large adresse un îlot de 50nm × 200nm. Deux grilles latérales permettent de modifier son environnement électrostatique. Sa caractéristiques courant-tension est présentée à droite. Elle montre un régime de blocage de Coulomb. Reproduit de [118]

un avantage pour coupler ou adresser des nano-objets à un détecteur.

L'anodisation locale par AFM s'effectue sur tout type de matériaux conducteurs non nobles. En présence d'un film d'eau adsorbé à la surface de l'échantillon, un ménisque d'eau se forme sous la pointe. Le courant émis par la pointe traverse le ménisque d'eau. Si les électrons sont suffisamment énergétiques, ils induisent l'électrolyse de l'eau et l'oxydation du substrat. L'oxydation est commandée par un langage machine, interfacé par un logiciel facile d'utilisation. L'expérimentateur s'aligne sur la zone à oxyder par le mode imagerie. Il dessine un motif sur l'image AFM. Le motif vectoriel commande le déplacement de la pointe ainsi que la tension appliquée. Le motif lithographié est l'analogue d'une résine négative, 'ce qui est oxydé s'en va'. Certains oxydes peuvent être enlevés en plongeant le substrat dans des solvants appropriés. Nous utilisons par exemple de la soude pour le NbNOx. L'oxyde n'est jamais retiré lorsqu'une structure est dédiée à sa mesure. Néanmoins c'est utile pour observer l'évolution de l'oxyde sur la profondeur du substrats [118].

Par cette technique des alliages peuvent être obtenus. Par exemple, dans une chambre pressurisée avec un gaz de nitrogène, cette technique permettrait de réaliser des hétéro structures Nb/NbN avec la formation d'un alliage NbN à partir d'un film mince de niobium.

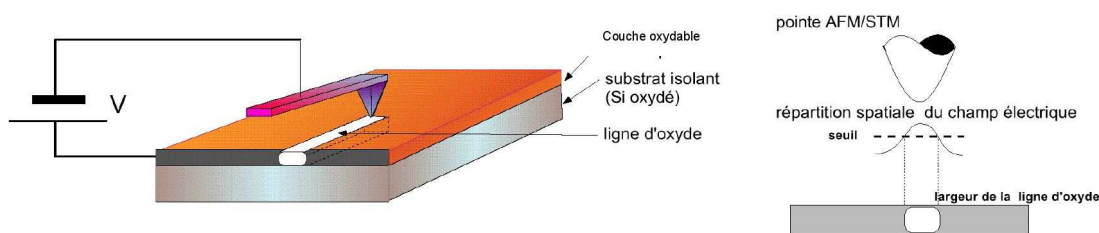


FIGURE 3.5 – A gauche : vue schématique d'un tracé isolant obtenu sous la pointe d'un AFM par oxydation locale d'un film mince métallique. A droite : représentation schématique de la distribution spatiale du champ électrique sous la pointe AFM polarisée en négatif.

### 3.2.2 Principe de l'anodisation locale

Pour pouvoir oxyder une surface, il faut pouvoir appliquer une différence de potentiel positive entre le substrat et la pointe et disposer d'un réservoir d'agents oxydants. Pour cela, la pointe et l'échantillon doivent être métalliques. La pointe est polarisée négativement tandis que l'échantillon est à la masse. Elle constitue la cathode tandis que l'échantillon constitue l'anode. En atmosphère et à température ambiante un mince film d'eau est adsorbé à la surface des électrodes. Ces films d'eau collapseront lorsque la pointe AFM et le substrat sont suffisamment proche et forment un ménisque d'eau (fig.3.2.2). Le ménisque d'eau constitue un électrolyte. En appliquant une tension suffisamment élevée, les molécules d'eau s'ionisent. Le champ électrique accélère les ions oxygènes chargés négativement vers l'anode (le substrat). Une réaction locale d'oxydoréduction a lieu. Si l'oxyde formé est isolant, il permet de réaliser des circuits en écriture négative. Pour que la réaction d'oxydoréduction ait lieu, l'échantillon doit être un métal non noble et la tension appliquée supérieure au seuil de l'électrolyse de l'eau.

#### Électrolyse de l'eau

Une molécule d'eau est fortement électro-négative. Le pôle positif est porté par les atomes d'hydrogènes tandis que le pôle négatif est porté par les atomes d'oxygènes. Ces deux pôles sont fortement attirés dans deux directions opposées, par l'électrode positive pour les oxygènes et par l'électrode négative pour les atomes d'hydrogènes. Les forces électrostatiques s'opposent à la force de liaison des molécules d'eau. Qu'elle est l'énergie minimum pour dissocier la molécule ?

Le pôle positif de la molécule d'eau est attiré par la pointe. Les molécules se dissocient en cations  $H^+$  et en anions  $OH^-$ . Les cations repoussés par l'anode se rassemblent vers la pointe. Ils se neutralisent en atomes d'hydrogène (H) avec les électrons émis par la cathode et se recombinaient en molécules de dihydrogène  $H_2$ . La réaction s'écrit telle que :  $4H_2O + 4e^- \rightarrow 2H_2 + 4OH^-$ . L'énergie de cette réaction correspond à l'énergie de formation d'une molécule de dihydrogène, soit  $E(H_2O/H_2)=0.42V$ . Les anions  $O^{2-}$  de la molécule d'eau

### 3.2 Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM97

dissociée se rassemblent vers l'anode. Les charges négatives en excès sont évacuées vers le substrat. Ils se neutralisent en molécules d'oxygène puis de dioxygène. La réaction s'écrit telle que  $H_2O \rightarrow O_2 + 4e^- + 4H^+$ . L'énergie associée est telle que  $E(O_2/OH^-)=0.81V$ .

Pour oxyder le film nous devons appliquer une tension au minimum égale à l'énergie de formation des molécules de d'hydrogène  $H_2$  et de dissociation des molécules de dioxygène  $O_2$ . La tension minimale est donc de 1.23V. Cette tension est inférieure à celle que nous avons mesurée en mode contact sur le niobium (3V) et en mode non contact sur le nitrure de niobium (4V) (sec3.3.2). Elle est par contre proche de la tension nécessaire à l'oxydation de films de silicium (2V en mode contact). Les écarts observés peuvent être expliqués par la présence d'une couche de protection déposée sur les films de Nb (film de 2nm de Si) et de NbN (film de 3nm AlN). Dans le cas du mode non contact, nous devons rajouter au seuil en tension de l'électrolyse de l'eau, celui de la formation du ménisque d'eau, dans l'hypothèse ou celui-ci se brise à chaque oscillation.

#### Ménisque d'eau

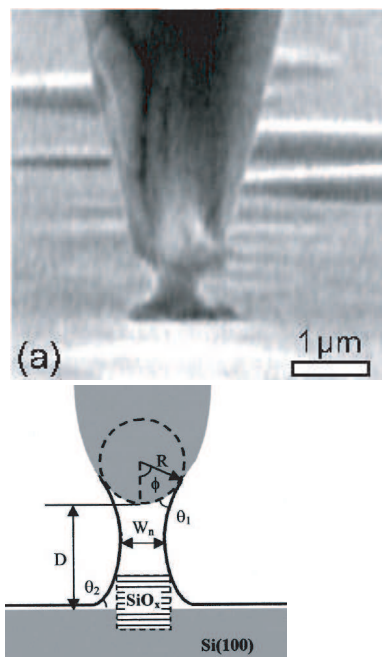


FIGURE 3.6 – Gauche : micrographie électronique du ménisque d'eau formé entre une pointe STM et la surface de l'échantillon. Droite : Représentation schématique du modèle de l'oxydation dirigée par le ménisque d'eau. Reproduit d'après [177]

Pour un taux d'humidité  $RH > 30\%$  à température ambiante le ménisque d'eau se forme de lui même en mode contact. En mode non contact, sa formation est assistée en tension. Le seuil d'oxydation est supérieur au seuil de l'électrolyse de l'eau.

La différence de perméabilité électrique à l'intérieur (81) et à l'extérieur (1) du ménisque est grande. Ceci permet de focaliser les oxy-anions pour obtenir une oxydation localisée (fig.3.2.2). Le champ est maximal dans un cylindre dont le diamètre est de l'ordre de celui du ménisque

(fig.3.2.2). Il constitue l'analogie d'une lentille pour un faisceau optique. La largeur,  $W$ , du ménisque d'eau définit celle de l'oxyde. Elle dépend du rayon de courbure,  $R$ , de la pointe et de la distance pointe-échantillon,  $D$ .

Le mode non contact fonctionne sur des interactions à plus longues portées que le mode contact. Il permet de réduire le diamètre du ménisque d'eau et d'augmenter la résolution de la lithographie. La tension seuil de l'oxydation,  $V_{th}$  dépend linéairement de la distance entre la pointe et l'échantillon,  $D$ , tel que le champ électrique critique soit constant  $E_c = V_{th}/D$  [177]. Le système anode cathode et ménisque d'eau se compare à un condensateur.

### Cinétique de croissance

Des études détaillées sont menées sur la hauteur de l'oxyde obtenu [178] [179][180][159] [158] [177]. Les premiers modèles s'orientent vers la cinétique d'une oxydation locale induite par un champ électrique [181]. Le modèle de Cabrera-Mott n'est pas suffisant. Par exemple, il ne permet pas d'expliquer la saturation de l'oxydation observée au delà d'un certain temps d'exposition. Ce modèle est donc corrigé en prenant en compte l'affaiblissement du champ électrique [179] et l'accumulation des contraintes mécaniques avec la croissance de l'oxyde. La formation d'une zone de charge d'espace est également proposée comme facteur limitant [182]. Elle est formée par des états non stoechiométriques à l'interface métal-oxyde. Les liaisons insaturées conduisent à une densité de charge non nulle en surface. L'utilisation d'une polarisation en tension pulsée améliore la résolution de la lithographie d'un facteur  $1/2$ [182] et confirme le modèle. La zone de charge est compensée. Pour une même hauteur, les traits d'oxyde obtenus sont plus fins. On aboutit ainsi à une dépendance en puissance de la hauteur de l'oxyde en fonction du temps, soit en fonction de la vitesse de balayage de la pointe. Ces modèles sont développés et adaptés aux expériences d'anodisation locale du silicium. L'extension aux films métalliques n'est pas évidente. Néanmoins un consortium est établi sur les mécanismes qui régissent la formation de l'oxyde anodique du substrat. Les observations menées sur la cinétique de croissance de l'oxyde sur les films métalliques sont similaires à celles observées sur les films semiconducteurs de silicium dopé.

### Profondeur de l'oxydation : constriction latérale 2D et 3D

La technique d'anodisation locale sous la pointe d'un AFM permet de réaliser des gravures tridimensionnelles du substrat (fig.3.2.2.haut). Elle est la seule technique à pouvoir le faire de manière contrôlée avec la lithographie de proximité à rayons X. Une difficulté est de maîtriser l'oxydation pour en fixer la transparence au passage d'un courant. L'étude cinétique de la croissance de l'oxyde permet de fixer l'amplitude du champ électrique ou du temps d'exposition, pour oxyder l'épaisseur utile. Retirer l'oxyde est possible dans des solvants adaptés et permet de vérifier l'épaisseur oxydée. Les applications sont nombreuses. Par exemple, nous avons mis en avant cette particularité pour améliorer le couplage d'un squid à pont de Dayem

### 3.2 Anodisation locale d'un film métallique contrôlée sous la pointe d'un AFM99

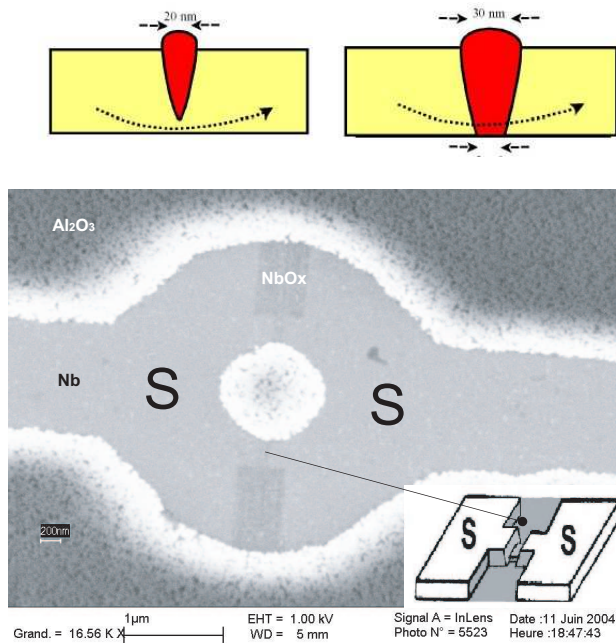


FIGURE 3.7 – Vue en coupe de l'évolution du tracé d'oxyde (rouge) sur l'épaisseur du substrat (jaune). A gauche, une constriction 3D. Le masque d'oxyde permet de réaliser une constriction de quelques nanomètres d'épaisseur. Sa longueur est égale à la largeur du trait d'oxyde. A droite, une coupure totale du fil. En bas, micrographie électronique d'un squid à pont court. Un trait d'oxyde coupe partiellement la piste au niveau du pont pour obtenir un couplage faible entre les deux supraconducteurs. Le contraste est faible car la diffusion de l'oxygène ne s'accompagne que d'un faible changement de la masse atomique globale  $\Delta Z \ll Z$ .

avec un nano-objet magnétique ainsi que pour étudier ses relations courant phase dans la limite de faible couplage [117]. L'épaisseur des deux ponts du squid est diminuée. La zone sensible ( $20\text{nm} \times 3\text{nm}$ ) est proche de la longueur supraconductrice ( $\xi \sim 5\text{nm}$ ) (fig.3.2.2.bas). L'anodisation partielle a également été utilisée pour l'étude des SETs et des jonctions par la tranche [118].

#### Résolution

Le rapport d'aspect des tracés d'oxyde est défini par le rapport de sa hauteur,  $h$ , et de sa largeur,  $w$ . Il définit la dimension latérale des lignes d'oxyde et la résolution de la lithographie. Le faisceau est focalisé par le ménisque d'eau. Les oxy-anions sont accélérés par un faible champ électrique vers l'anode tandis que les contraintes mécaniques s'opposent à leur diffusion à la verticale du film à mesure que l'oxydation augmente. L'oxyde obtenu présente un faible rapport d'aspect, tel que  $R = h/w \ll 1$ .

L'anodisation locale par AFM est une technique de surface. Elle est adaptée pour des films métalliques ultra-minces. La résolution atteinte est de 20nm sur des films de 2nm d'épaisseur en mode contact. Nous montrons dans la partie 3.3, qu'elle est améliorée en mode intermittent. La lithographie AFM est une des rares techniques à pouvoir façonner partiellement l'épaisseur du film. Elle permet ainsi de réaliser des constriction tridimensionnelles en oxydant partiellement du film.

Cette technique est moins invasive pour la supraconductivité des nanostructures, que les tech-



niques conventionnelles. L'oxydation est de plus la dernière étape de fabrication des dispositifs. Elle permet ainsi de préserver des surfaces particulièrement propres, pour le dépôt ou le repérage de nano-objets par exemple.

### 3.3 Anodisation en mode contact-intermittent

Nous avons utilisé l'AFM en mode non contact-intermittent. Le ménisque d'eau formé est plus fin ce qui permet d'augmenter la résolution de la lithographie et surtout de préserver la pointe pour réaliser des dispositifs longs. La figure 3.3 compare le rapport d'aspect obtenu en mode contact 0.1 vs 0.2 en mode non contact. La lithographie AFM en mode non contact n'est pas réalisée dans les meilleures conditions. La granularité du film est reproduite sur les tracés d'oxyde.

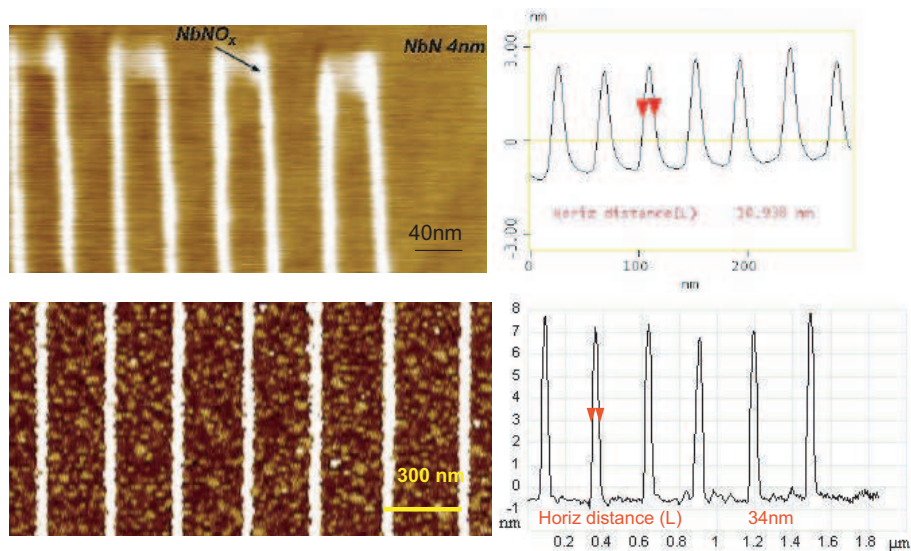


FIGURE 3.8 – A droite : image en hauteur des lignes d'oxyde (blanc) réalisées sur des films de NbN de 4nm d'épaisseur. En haut, la lithographie est effectuée en mode contact. En bas, en mode non contact. A gauche, une vue en coupe de la section des lignes d'oxyde est présentée pour chaque mode. En bas, le film est passivé par une couche de protection de 3nm d'AlN. La figure montre que le rapport d'aspect est amélioré d'un facteur 2 en passant au mode non contact.

Ce mode de lithographie permet de préserver les pointes et de réaliser des dispositifs plus longs, comme des lignes méandres.

#### 3.3.1 Montage électrique

Le montage électrique est le même que celui utilisé en mode contact. La figure (fig.3.3.1) schématise le montage électrique que nous utilisons. La pointe métallique de l'AFM est polarisée en tension pulsée. Ceci permet de diminuer l'effet de charge et d'améliorer la résolution. Une résistance en parallèle avec la pointe permet d'éliminer les charges résiduelles à l'interface

capacitive formée par le ménisque d'eau. Elle permet d'éviter une oxydation incontrôlée du film, à la fin ou au début du motif. Une seconde résistance placée en série entre la masse et l'échantillon protège la pointe et la tête de l'AFM d'un passage brutal de courant au cours de la lithographie.

Le matériel utilisé est un AFM D3100 Veeco. Un capot permet de conserver un taux d'humidité constant dans la chambre d'imagerie. Le motif vectoriel à lithographier est réalisé sur l'image de scan topographique à l'aide du logiciel Nanoman. Une boucle de rétroaction fermée, ajuste les dérives des piézoélectriques dans le plan (x, y). Elle permet de réaliser le motif isolant du dispositif en une étape.

La majorité de nos dispositifs sont lithographiés en mode intermittent. L'amplitude d'oscillation est diminuée d'un facteur 10, par rapport aux conditions d'imagerie, pour éviter la rupture du ménisque d'eau entre la pointe et la surface. La fréquence des pulses de tensions est basses. Elle est fixée à 1kHz. Les autres paramètres de régulation sont inchangés, pendant la lithographie. Ceci, permet de compenser l'application de la force électrostatique induite par la tension de polarisation. Les tensions appliquées sur la pointe sont plus élevées qu'en mode contact. Typiquement, elles sont comprises entre -10V et -20V en fonction du film et de son épaisseur, de la vitesse et de la résolution souhaitée.

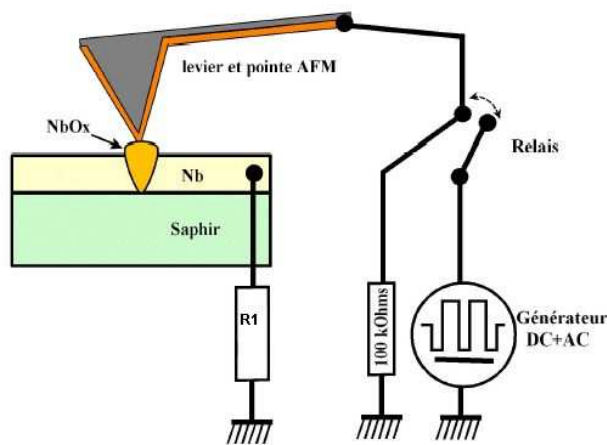


FIGURE 3.9 – Montage électrique pour la lithographie AFM. La pointe est métallisée. La résistance  $R1$  est égale à  $10k\Omega$ .

### 3.3.2 Évolution du rapport d'aspect des lignes d'oxyde en fonction des paramètres d'oxydation

Les paramètres électriques sont ajustés pour chaque type de pointe et de substrat. Les paramètres ajustables sont : la fréquence et l'amplitude des pulses de tension, la vitesse de lithographie et le taux d'humidité. Nous présentons l'évolution du rapport d'aspect de l'oxyde obtenu en mode non contact pour un film de NbN.

Pour chaque ligne d'oxyde, nous incrémentons le paramètre testé. Les paramètres fixes sont

précisés. Les coupes des lignes d'oxyde sont obtenues à partir des imageries de scan. Elles permettent d'estimer les longueurs caractéristiques des tracés d'oxyde : leur hauteur  $h$ , et leur largeur  $w$ . La mesure à mi-hauteur de la largeur d'une ligne d'oxyde donne une bonne estimation. Elle permet de s'affranchir des erreurs d'imagerie liées à la convolution de la pointe (fig.3.10).

$$W_{\text{real}} = W_{\text{apparent}} - 2(2Rh - h^2)^{1/2}$$

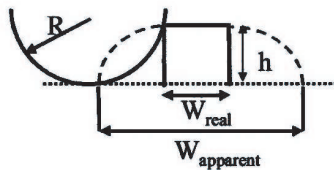


FIGURE 3.10 – Effet de convolution de pointe sur un détail topographique de l'ordre de grandeur du rayon de courbure de la pointe. Reproduit de [177]

### Cinétique de croissance

La figure 3.12A. présente la dépendance, de la largeur et de la hauteur de l'oxyde formé en fonction de la vitesse d'écriture. Nous en déduisons le rapport d'aspect correspondant.

La hauteur et la largeur des tracés d'oxyde diminuent exponentiellement avec la vitesse d'écriture. Le rapport d'aspect augmente d'abord, jusqu'à  $0.5\mu\text{m}/\text{s}$ . La pointe va plus vite. Les contraintes mécaniques diminuent. Le ménisque d'eau se reforme plus rapidement ainsi que la quantité oxy-anions disponible. Il diminue faiblement au delà cette vitesse. Sa valeur moyenne est de l'ordre de 16%, pour des vitesses inférieures à  $1.5\mu\text{m}/\text{s}$  puis, il chute brusquement. La largeur minimale mesurée est de 15nm. Elle correspond au diamètre du ménisque d'eau, de l'ordre de la taille de l'apex de la pointe (20nm)

Le nombre de ligne par scan ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) est de 128. Un trait de  $1\mu\text{m}$  est constitué de  $\sim 25$  pixels. Le temps de croissance est tel que  $t = v \times L/N_{\text{pixel}}$ , avec  $L$  la longueur du trait.

La figure B. présente la dépendance en tension de l'oxydation. La hauteur de l'oxyde croît linéairement avec la tension appliquée. Le seuil d'oxydation est de 4V. Le rapport d'aspect devient constant pour une tension appliquée de 8V. Les observations semblent en accord avec les modèles analytiques d'une oxydation sous champ développées pour le silicium [179].

### Dépendance en humidité

En mode contact un taux d'humidité supérieur à 30% à température ambiante suffit pour oxyder la surface d'un film de Nb ou de NbN. En mode non contact, nous observons un seuil d'humidité de 40% à 45%. Cette différence compense une distance pointe-échantillon plus grande. En mode non contact, la lithographie est beaucoup plus sensible aux variations d'humidité. L'humidité influence la taille du ménisque d'eau et les paramètres dynamiques

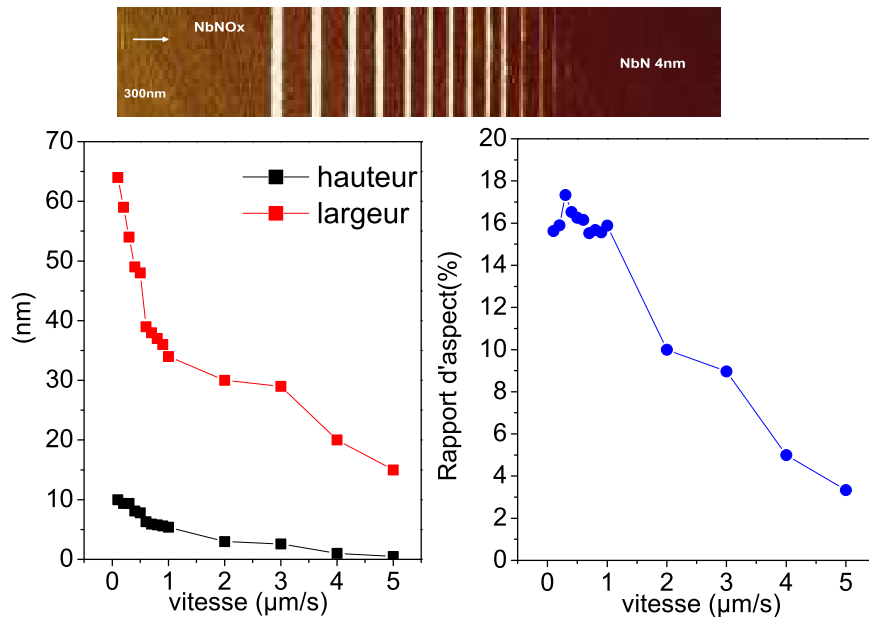


FIGURE 3.11 – Évolution du rapport d'aspect hauteur sur largeur en fonction de la vitesse de la pointe. L'oxydation est réalisée sur un film de 4nm de NbN recouvert d'une couche de passivation de AlN. Le taux d'humidité est de 48%, la fréquence des pulses de tension est de 1kHz. Leur amplitude est de  $\pm 7V$ .

de la pointe. Le poids de l'eau modifie la réponse du cantilever et induit une dérive de sa fréquence d'oscillation. Le taux d'humidité doit donc être très stable pour réaliser de grands dispositifs sans avoir à réajuster les paramètres de régulation de la pointe.

### Dépendance avec la qualité de surface

Nous montrons dans ce paragraphe à quel point la qualité de la surface est importante pour l'oxydation. Elle influence sa régularité et sa transparence. La figure 3.3.2 présente la rugosité de la surface d'un film mince de NbN. Le film laissé à l'air est recouvert d'une couche d'oxyde natif. La surface est granulaire, la rugosité moyenne est de 0.16nm. Nous avons réalisés des traits d'oxyde à sa surface. La figure 3.3.2 présente leur image en phase et en hauteur. La rugosité du film se réplique à la surface de l'oxyde. Les tracés sont inhomogènes et granulaires.

La qualité de la surface est donc très importante pour réaliser des traits réguliers et très résistifs. La lithographie AFM doit être effectuée immédiatement après la préparation de l'échantillon.

Le mode non contact permet de doubler la résolution de la lithographie AFM. La distance

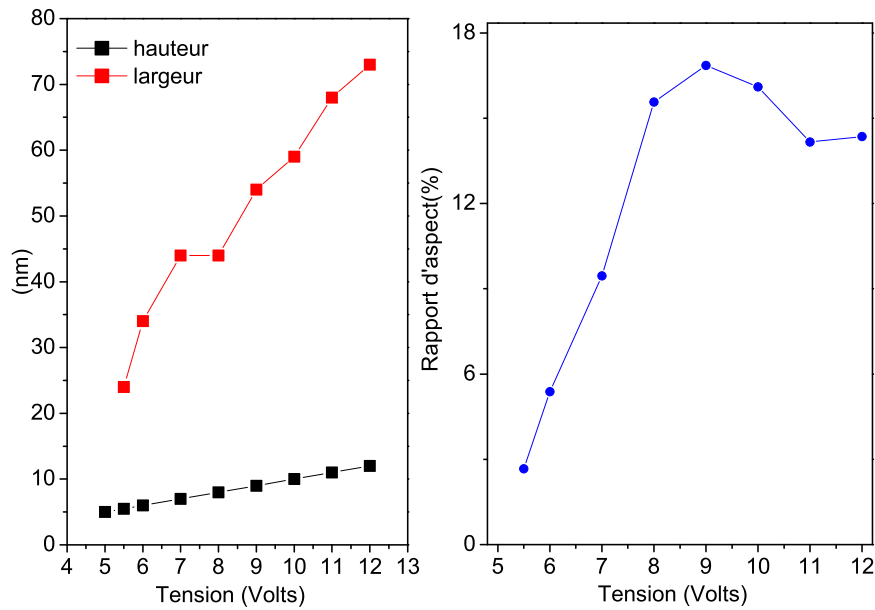


FIGURE 3.12 – Évolution du rapport d'aspect hauteur sur largeur en fonction de la tension appliquée. L'oxydation est réalisée sur un film de 4nm de NbN recouvert d'une couche de passivation de AlN. Le taux d'humidité est de 48%, la fréquence des pulses de tension est de 1kHz. La vitesse de la pointe est de  $0.1\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

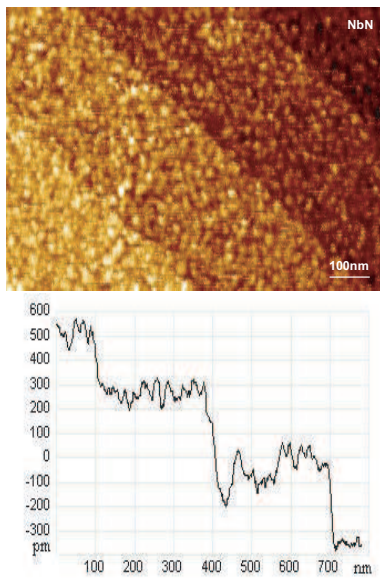


FIGURE 3.13 – Image en hauteur d'un film de NbN de 4nm d'épaisseur. Les marches (0.3nm de hauteur) et les terrasses ( $\sim 300\text{nm}$  de large) du substrat (saphir) sont répliquées lors du dépôt. Le film, laissé à l'air plusieurs jours, présente une rugosité de 0.16nm.

pointe-échantillon est plus grande qu'en mode contact. Elle devient un paramètre ajustable. Le ménisque d'eau est plus fin. Lors de la croissance de l'oxyde, l'encombrement sous la pointe est moins grand. Les contraintes mécaniques sont plus faibles. La croissance auto limitée (ref)

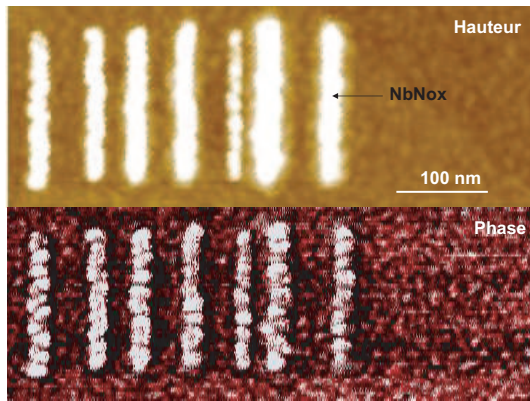


FIGURE 3.14 – Image en hauteur (haut) et en phase (bas) de traits d'oxyde réalisés en mode non contact sur un film de NbN. La rugosité se réplique à la surface de l'oxyde. Elle conduit à un tracé irrégulier et granulaire. Le contraste est bien marqué sur l'image en phase.

n'est pas observée en mode non contact. Néanmoins, la technique devient très sensible à l'hydrométrie ambiante dans la chambre d'oxydation.



## Chapitre 4

# Application aux dispositifs supraconducteurs

Nous appliquons cette technique à des films ultra-minces (10nm-2nm d'épaisseur) de niobium (Nb) et de nitrure de niobium (NbN). Ces films sont recouverts d'une couche de protection de silicium pour le Nb et d'AlN pour le NbN. Nous présentons les caractéristiques de l'oxyde obtenu et sa résistivité.

### 4.1 Film ultra minces de Nb et de NbN

Les films sont déposés sous vide sur des substrats de saphir R-plan (chapitre 1). Le saphir recuit présente des marches de 0.3nm de hauteur et des terrasses de 300nm de large . Elles sont répliquées lors du dépôt des films. Les surfaces très peu rugueuses des terrasses nous placent dans les meilleures conditions pour la lithographie AFM.

Les pistes de contacts sont préalablement réalisées par lithographie optique. Un film d'aluminium de 30nm d'épaisseur est déposé sur les films de Nb et de NbN. Nous utilisons l'aluminium comme masque. Il permet de diminuer l'exposition des films aux solvants et le retrait du film de résine. La résine est difficile à éliminer lorsqu'elle est chauffée et exposée au plasma de gravure. Les résidus de résine sur les films agissent comme un masque pour la lithographie AFM. Ils empêchent l'oxydation du film et induisent des fuites dans les nanostructures finales. Un laquage (plasma oxygène) est souvent nécessaire pour obtenir des surfaces propres. Les ions d'oxygènes sont très énergétiques et pénètrent dans les films. Cette étape est très destructive pour la supraconductivité. Le masque l'aluminium est une solution alternative très efficace. La fig. présente la surface d'une piste de NbN obtenue par ce procédé (procédé présenté en annexe).



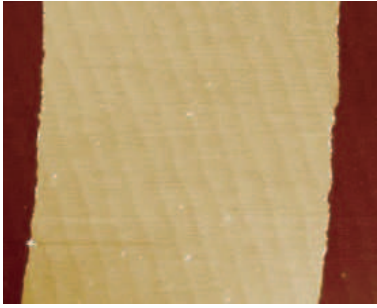


FIGURE 4.1 – Image AFM en hauteur d’une piste de Nb  $5\mu\text{m}$  de large. La piste est obtenue par lithographie optique avec le procédé de masquage aluminium (annexe). La micrographie discerne des terrasses et des marches de  $0.3\text{nm}$  de hauteur. La surface vicinale du saphir est répliquée lors de l’épitaxie du film. La surface de la piste de Nb est atomiquement propre.

## 4.2 Nature de l’oxyde anodique

Il existe trois espèces d’oxyde de niobium de stoechiométrie différente,  $\text{NbO}$ ,  $\text{NbO}_2$  et  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . L’oxyde  $\text{NbO}$  est métallique. La stoechiométrie de l’oxyde donne une information rapide sur le comportement isolant du masque d’oxyde. Elle peut être estimée par imagerie AFM en fonction du rapport d’aspect de l’oxyde, avec la loi de conservation des masses. En connaissant la masse molaire  $M$  et la densité des oxydes,  $\rho$ , nous pouvons estimer le volume ( $V = M/\rho$ ) et donc la hauteur attendue pour un oxyde donné. La hauteur que nous mesurons par imagerie AFM,  $d_{\text{MOx}}$ , correspond à la partie ‘immergée’ de l’oxyde. Pour estimer sa hauteur totale  $h_{\text{MOx}}$ , nous devons rajouter l’épaisseur du film,  $d_M$ , à la hauteur mesurée, telle que  $h_{\text{MOx}} = d_{\text{MOx}} + d_M$ . On obtient alors la relation suivante :

$$\frac{h_{\text{MOx}}}{h_M} = \frac{V_{\text{MOx}}}{V_M} = \frac{M_{\text{MOx}}}{M_M} \cdot \frac{\rho_M}{\rho_{\text{MOx}}} \quad (4.1)$$

Le rapport théorique de protusion des oxydes et de l’épaisseur du film de Nb est respectivement de 1.36, 1.94 et 2.73 pour  $\text{NbO}$ ,  $\text{NbO}_2$  et  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . Ces résultats donnent une estimation de la composition de l’oxyde. De manière générale, la résistivité mesurée de l’oxyde (isolant ou métallique) est en accord avec ces rapports théoriques.

## 4.3 Résistance d’un tracé d’oxyde

La réalisation de jonction par la tranche permet de confirmer la nature isolante de l’oxyde formé. La figure 4.3 présente la mesure in situ de la conductance d’une piste de Nb de  $2.5\text{nm}$  d’épaisseur. La mesure montre la fermeture des canaux de conduction de la piste à mesure que le tracé d’oxyde coupe la piste. La résistance finale de la jonction est de  $10M\Omega$ . La largeur du tracé d’oxyde est de  $30\text{nm}$ .

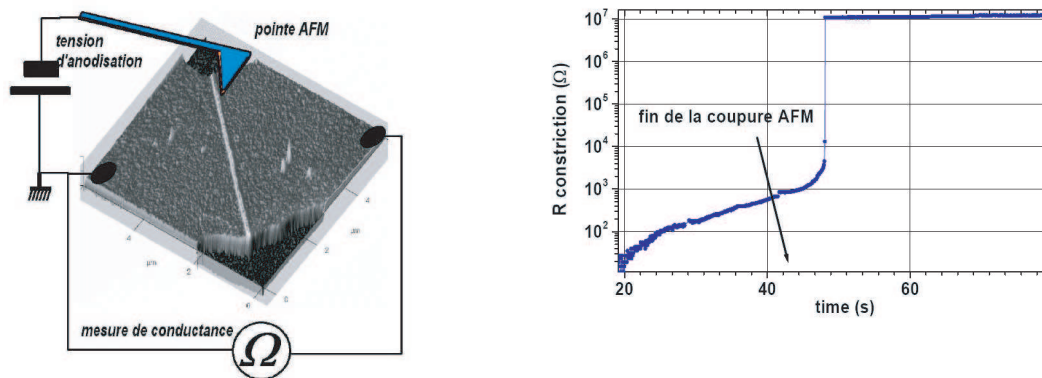


FIGURE 4.2 – Évolution de la résistance (droite) en fonction du temps d'une jonction par la tranche mesurée durant la coupure d'une piste mince de Nb de 5nm d'épaisseur (gauche). La vitesse de l'oxydation est de  $0.1\mu\text{m/s}$ . La résistance de la jonction Métal-oxyde-Métal obtenue est de  $10\text{M}\Omega$ . Reproduit de [118].

#### 4.4 Les dispositifs supraconducteurs

La lithographie AFM est versatile. Contrairement à la lithographie optique, les motifs d'oxyde (analogue aux motifs d'une résine négative) sont programmés via une interface de travail. Cette interface est très simple d'utilisation. Nous ne faisons que tracer par des segments vectoriels le dessin du motif d'oxyde sur l'image de la zone à lithographier (préalablement imagée). Elle ne nécessite pas la fabrication de masques, longue et coûteuse. Il est obtenu par des tracés vectoriels sur l'image de scan. Une image bitmap peut également être importée et vectorisée par le logiciel de lithographie (ref).

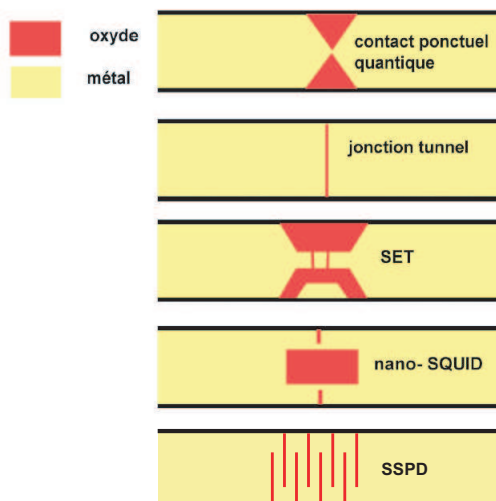


FIGURE 4.3 – Exemple de dispositifs quantiques réalisés par anodisation locale AFM. De bas en haut : un contact atomique [158], un transistor à un électron [176] (l'îlot est obtenu par deux barrières d'oxyde résistives), une jonction tunnel par la tranche [183][184][185], un interféromètre magnétique quantique à pont de Dayem [117] (les ponts peuvent être partiellement oxydés pour diminuer leur section) et enfin un détecteur supraconducteur à un photon [124].

La lithographie AFM montre une plus grande flexibilité que les lithographies convention-

nelles. Elle permet de tester rapidement une nouvelle configuration des circuits. La figure 4.4 présente schématiquement quelques exemples de dispositifs réalisés par lithographie AFM. Les dispositifs sont utilisés comme détecteurs quantiques.

#### 4.4.1 Apport de la technique aux détecteurs quantiques

Nous présentons les nouvelles possibilités et les avantages offerts par la lithographie AFM pour les détecteurs supraconducteurs.

##### Préserver la supraconductivité des nano-circuits

La supraconductivité est affaiblie dans des systèmes de basses dimensionnalités (chaps.1 et ??). A cela s'ajoutent les effets des procédés de micro-fabrication. Les résines, les développeurs et les gravures plasma, contribuent à la perte de la supraconductivité dans les nanostructures réalisées. Pour éviter cela, nous utilisons la technique d'oxydation locale contrôlée par AFM. Les lignes d'oxyde isolantes de 20nm de large façonnent les pistes métalliques de Nb et de NbN à température ambiante dans une atmosphère chargée d'humidité. Cette technique permet de réaliser des dispositifs en écriture directe et de contrôler la lithographie in situ.

##### Lithographie à 3D

L'anodisation locale par AFM est une des rares techniques à pouvoir structurer un film dans les trois dimensions. En ajustant les paramètres électriques de la lithographie nous pouvons contrôler l'épaisseur oxydée du film. L'oxydation partielle permet d'obtenir des constriction à 3D de petite section. Elle réduit l'épaisseur du substrat sur une longueur au minimum égale à la largeur du trait d'oxyde (15nm). Elle peut être appliquée à la réalisation d'îlots pour les SET [118] ou à la réalisation de squid à pont à épaisseur variable [117].

##### Alignement sub nanométrique avec un nano-objet à mesurer

La lithographie AFM est combinée à un mode d'imagerie de haute résolution. Le microscope permet d'imager des détails sub nanométriques à la surface d'un substrat. Un objet peut être repéré par sa taille (image topographique), par sa composition (image en phase) et par sa densité de charge (image en mode électrostatique, EFM) (ref) si elles sont différentes de celles du substrat. La combinaison du mode d'imagerie et de lithographie permet d'aligner très précisément le circuit à l'objet [117]. L'objet est détecté par des mesures de transport. Dans cette configuration, le couplage est optimal. Le signal de détection est maximal.

#### 4.4.2 Réalisation de SQUID sur des films ultra-mince de Nb

La lithographie par anodisation AFM propose une nouvelle approche pour la magnétométrie à SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) et à sonde de Hall. Cette technique

permet la fabrication de détecteurs idéalement couplés à une particule nanométrique unique. Ceci est rendu possible par la haute résolution d'imagerie de l'AFM. Elle permet de repérer des objets nanoscopiques et d'aligner très précisément le détecteur pour le mesurer.

Elle permet de réaliser des SQUID à pont court, avec des constriction tridimensionnelles. La longueur des ponts correspond à la largeur des tracés d'oxyde, au mieux égale à 15nm. Dans cette limite, les deux réservoirs supraconducteurs, situés de part et d'autre du pont, sont dans une limite de couplage faible. Les modulations courant-flux, triangulaires dans le cas de SQUID à pont de Dayem, s'arrondissent à mesure que la longueur du pont devient comparable à la longueur de cohérence supraconductrice.

La flexibilité des motifs d'oxyde permet de tester de nouvelles configurations. Par exemple, nous avons pu réduire le bruit de flux des SQUID, en traçant des lignes isolantes perpendiculaires au passage du courant.



FIGURE 4.4 – Image AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) en hauteur, d'un SQUID de Nb à ponts longs. Le SQUID est lithographié par AFM sur un film de 3nm d'épaisseur. Sa largeur est de 30nm et sa longueur de 200nm. Les tracés d'oxyde, perpendiculaires au passage du courant, permettent de diminuer le bruit de flux qui élargit les histogrammes du courant d'échappement.

#### 4.4.3 Réalisation de détecteurs à un photon sur des films ultra-mince de NbN

Cette technique permet d'obtenir des lignes méandres étroites, denses et régulières. Ces caractéristiques géométriques améliorent respectivement la sensibilité du détecteur et son efficacité quantique. Nous présentons brièvement pourquoi la lithographie AFM permet d'améliorer les détecteurs supraconducteurs à un photon.

La largeur des lignes d'oxyde (15nm) est inférieure aux résolutions atteintes par les techniques

de lithographie conventionnelles (MEB) (50nm). En quoi leur largeur influence l'efficacité de détection du circuit ? Les lignes d'oxyde sont transparentes. Elles constituent des zones inactives pour la détection optique. L'efficacité du détecteur est mesurée en fonction du nombre de photons incidents et du nombre de photons détectés, par unité de surface. Si la surface active est plus importante que la surface inactive alors la probabilité d'absorber un photon est plus importante. L'efficacité de détection est améliorée pour des lignes méandres serrées. La lithographie AFM permet de réaliser des lignes méandres denses.

Les fils conducteurs sont étroits. L'absence d'effet de proximité, permet d'obtenir des lignes d'oxyde régulières et proches les unes des autres. La largeur des fils, n'est pas limitée par la technique mais par la persistance d'une transition supraconductrice. Quand leur section est inférieure à  $3nm \times 100nm$ , les fils longs,  $L \geq \mu m$ , sont proches d'une transition métal isolant. La régularité des tracés d'oxyde permet de s'affranchir des constriction présentes le long du fil. La présence de joints faibles induit des variations du courant critique et diminue l'efficacité des détecteurs. Son point de fonctionnement correspond à celui du joint faible. La zone sensible du détecteur correspond alors à une fraction du fil. La probabilité de détecter un photon est réduite.

La lithographie en mode non contact est particulièrement adaptée à ces dispositifs. Nous devons réaliser des traits d'oxyde uniques et longs (plusieurs microns) pour définir la structure en méandre. L'apex de la pointe ne doit pas être dégradé au cours de l'oxydation. La figure 4.5 présente un détecteur typique. Les films ont une épaisseur de 6nm (4nm de NbN et

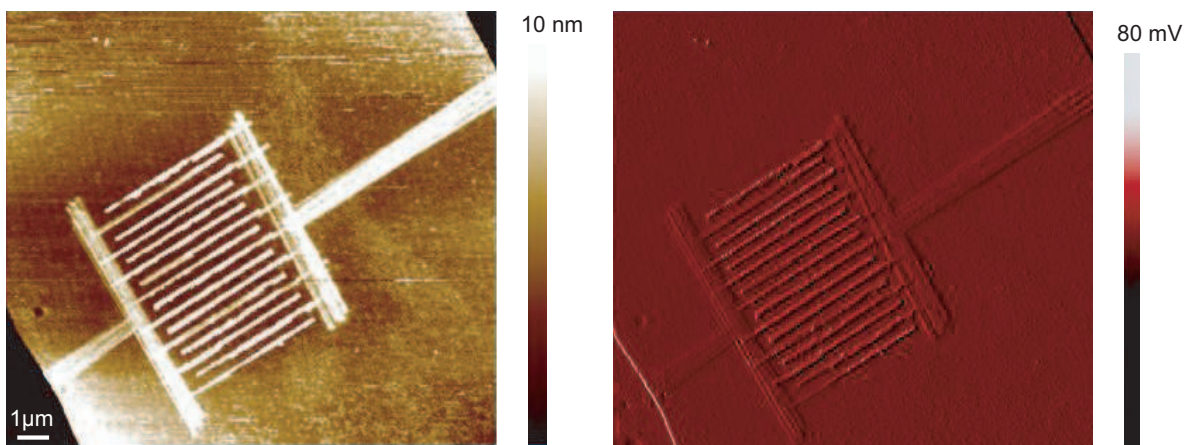


FIGURE 4.5 – Image AFM en hauteur (gauche) et en déflexion (droite) d'une ligne méandre obtenue par oxydation anodique locale en mode intermittent, sur un 'pixel' de NbN de 4nm d'épaisseur. Les marches et terrasses du saphir recuit sont répliquées à la surface du film. La largeur du nanofil est de 200nm. La vitesse de l'imagerie trop rapide pour estimer précisément la largeur des lignes d'oxyde. Nous estimons qu'elle est de l'ordre de 80nm. Le rapport d'aspect obtenu est de 25%.

3nm de AlN). Ils sont déposés sous vide sur des substrats de saphir recuit.

#### 4.4.4 Vers d'autre matériau : Application au Graphène

Ces surfaces sont adéquates pour la lithographie AFM, elles présentent très peu de défauts. La figure 4.6 montre une image réalisée sur du graphène obtenu sur des substrats de SiC.

Nous en avons également pris avantage de la flexibilité des motifs d'oxyde pour percer localement des croix de Hall de graphène. Les trous obtenus par l'oxydation du carbone pourraient induire un désordre supplémentaire et localiser les états de bords pour l'observation de l'effet Hall quantique (fig.4.7).

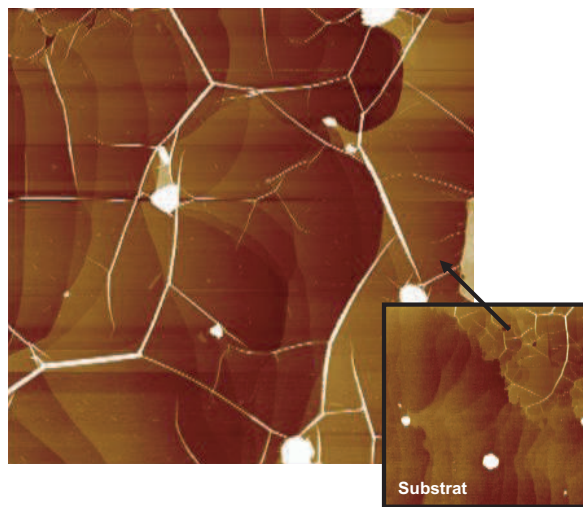


FIGURE 4.6 – Image AFM ( $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ ) en hauteur d'un plan de graphène. La surface est caractérisée par ses plis à la surface. L'encadrée montre la différence entre le substrat de SiC et les feuillets de carbone.

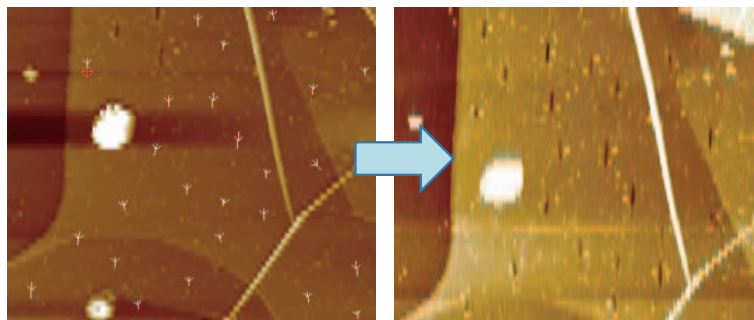


FIGURE 4.7 – Image AFM ( $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ ) en hauteur, d'un plan de graphène. A droite, les flèches blanches sont le motif vectoriel de l'anodisation. A gauche, l'image présente le même endroit après oxydation. Les traits pointillés correspondent au graphène oxydé ( $\text{CO}_2$ ). Leur longueur est de 50nm.



## Chapitre 5

# Conclusion

L'anodisation contrôlée sous la pointe d'un AFM est une technique de lithographie haute résolution flexible pour le dessin des masques d'oxyde. Elle permet de préserver la supraconductivité des structures dont les dimensions sont comparables à la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ . Avec la lithographie de proximité par rayon X, elle est la seule technique à pouvoir réaliser des constriction tridimensionnelles. Une des nouvelles possibilités qu'offre l'AFM est l'alignement du circuit lithographié à un nano-objet à mesurer. Le microscope combine un mode de lithographie à un mode d'imagerie de haute résolution.

Nous l'avons appliqué à la réalisation de détecteurs quantiques pour la magnétométrie et pour l'optique à un photon. Sa flexibilité nous permet de comparer la réponse des SQUID à un champ magnétique en fonction de la géométrie de leur pont. Sa haute résolution, nous permet de réaliser des lignes méandres denses et régulières.



### Conclusion au contenu de cette thèse

Dans la première partie, nous avons présenté l'étude des propriétés cristallines et électriques de films ultra-minces de niobium. La caractérisation est effectuée en fonction de l'épaisseur des films de niobium. L'épaisseur des films est comprise entre 2nm et 10nm.

Nous avons montré que les films plus épais que 4nm sont hétéro-épitaxiés lors d'un dépôt à chaud ( $660^{\circ}C$ ) sur des substrats de saphir. Pour les films les plus minces la diffraction en incidence rasante indique la présence de cristallites et suggère fortement une structure polycristalline. Ce résultat est en accord avec les modèles de croissance utilisés dans la littérature. Nous avons montré qu'une transition supraconducteur-isolant a lieu sur une gamme d'épaisseur très étroite, comprise entre 2.5nm et 2.98nm. L'épaisseur critique à la transition peut être améliorée avec la qualité des films et de leur interface. Nous supposons que les effets du désordre et de proximité affaiblissent la supraconductivité de nos films. A la manière des impuretés magnétiques, nous montrons que leurs effets peuvent être formalisés avec le modèle des perturbations de "pair breaking".

Dans la deuxième partie de ce manuscrit, nous avons caractérisé les propriétés de transport des nanofils réalisés par microscopie à force atomique sur des films de nitrure de niobium ultra-minces. La présence temporaire d'une zone normale dans le fil, induit un pulse de tension dont l'amplitude est reliée à la résistance normal du fil à la transition. La haute résistance du nitrure de niobium à la transition, permet d'amplifier et de mesurer la réponse du nanofil à une perturbation.

Nous avons montré que ces fils peuvent être soumis à des fluctuations de phase. Ces fluctuations peuvent correspondre à la création de paire de vortex-antivortex ou à la formation de ligne de glissement de phase. Nous avons discuté de ces régimes dissipatifs en fonction de la température et du champ magnétique. Nous avons montré que ces résultats pouvaient s'interpréter avec un modèle de point chaud. Le diagramme de stabilité de ce modèle permet de définir des régions de travail où les points chauds vont être stables et détectables par une mesure de transport rapide.

Dans la troisième partie de ce manuscrit nous montrons la caractérisation optique de ces nanofils. Dans un montage haute fréquence adapté, les mesures de comptage de photon nous permettent de définir la sensibilité des nanofils pour diverses fréquences d'irradiation. Nous montrons que les détecteurs que nous avons réalisés par lithographie AFM ont une sensibilité à un photon dans le visible et à deux photons dans l'infra-rouge.

Dans la quatrième partie de ce manuscrit nous présentons la technique de lithographie que nous avons utilisée pour réaliser les nanofils de nitrure de niobium. Les nanofils sont obtenus par oxydation locale sous la pointe métallisée d'un microscope à force atomique. Nous

---

montrons comment nous avons appliquée cette technique aux films ultra-minces supraconducteurs et comment nous avons réussi à augmenter la durée de vie des pointes pour réaliser des structures, fines, homogènes et longues.

### Perspective,

Il n'était pas évident que l'on pourrait caractériser par rayons X des échantillons aussi minces. Pourtant des résultats ont été obtenus même sur les films les plus minces. Pour compléter cette partie, une mesure de diffraction dans le plan et une caractérisation RHEED serait adéquate pour qualifier la qualité des films de niobium durant les premiers stades de croissance. La transition supraconducteur-isolant en épaisseur a lieu sur une gamme très étroite en épaisseur. Pour mieux la caractériser nous avons réalisé des dépôts de niobium en épaisseur variable. Les mesures sont en cours et devraient nous permettre d'être plus précis sur le comportement électrique des films à la transition.

Nous avons choisi d'utiliser le nitrure de niobium pour réaliser les détecteurs à un photon car sa résistance normale au dessus de la transition est plus grande que le niobium. Elle permet de générer un pulse de grande amplitude lors de la formation du chaud. Le nitrure de niobium montre aussi une sensibilité à des longueurs plus grandes que le niobium. Son efficacité commence à décroître significativement au delà de  $2\mu m$  [136]. Ces comportements ne sont pas encore bien compris et en particulier les mécanismes de formation du point chaud lors de l'absorption d'un photon. Le photon induit-il la création de paire de vortex-antivortex, la formation d'un centre de glissement de phase ou d'une ligne de glissement ? Comment bien définir les contributions bolométriques et quantiques ? La microscopie à SQUID serait un des moyens à utiliser pour observer la formation du point chaud lors de l'absorption d'un photon.

La lithographie AFM permet de réaliser des détecteurs denses et étroits. Cette technique serait particulièrement adaptée pour coupler idéalement un détecteur à un photon sur un nano-objet fluorescent ou une boîte quantique. Elle permet en effet d'obtenir un alignement d'une précision nanométrique inégalé avec les techniques de lithographie conventionnelles.



## Annexe A

# Étude AFM des surfaces vicinales du saphir

### C-plan, (0001)

Avant recuit, les surfaces vicinales des wafers C-plan ont une hauteur moyenne de 0.18nm et une largeur de 49nm. Le miscut est de  $\alpha=3\text{mrad}$ . Les bords de marche sont ondulés. Un recuit de 1h à 1100°C active un processus de coalescence, par deux, des mono-marches. La hauteur des terrasses est de 0.44nm et leur largeur de 82nm. La longueur de coalescence de ces mono-marches est de 120nm (fig.A.1). Après un recuit de 1h à 1200°C, la reconstruction des surfaces vicinales se poursuit avec des coalescences multiples de mono-marches (jusqu'à 7 mono-marches par endroit). La hauteur des terrasses est de 1.4nm et la largeur de 280nm (fig.A.2).

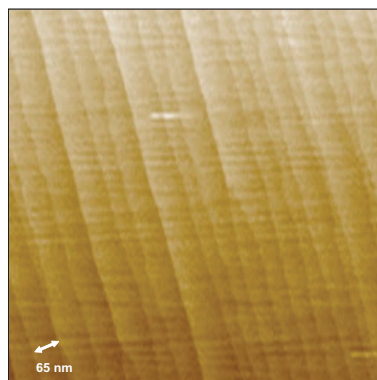


FIGURE A.1 – Micrographie AFM ( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir C-plan (0001). La surface est nettoyé par un bain un ultrason dans une solution surfactante (RBS dilué). L'image montre l'évolution des surfaces vicinales du saphir après un recuit à 1100°C, 1h. On peut distinguer les zones de coalescence par 2 des mono-marches.

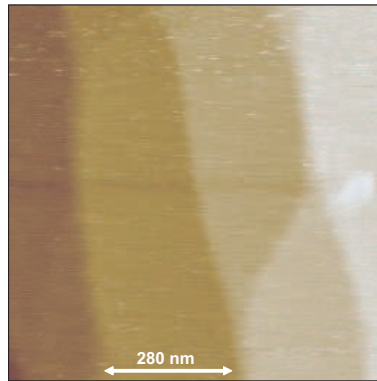


FIGURE A.2 – Micrographie AFM ( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir C-plan (0001). Le saphir est recuit à  $1200^\circ\text{C}$ , 1h. L'image montre une zone de coalescence de 4 mono-marches.

### A-plan, $(11\bar{2}0)$

Les marches atomiques du saphir A-plan non recuit, ont une hauteur moyenne de 0.19nm, et une largeur de 64nm. Le miscut est de  $3.5\text{mrad}$  (fig.A.3). Après un recuit de 1h à  $1100^\circ\text{C}$ , les terrasses ont une largeur moyenne de 183nm et une hauteur de 0.34nm. Elles sont très peu rugueuses. Le bord de ces terrasses est cranté (fig.A.4). Après un recuit de 1h à  $1200^\circ\text{C}$ , les marches sont monoatomiques, avec une hauteur de 0.24nm correspondant à la distance entre deux plans  $(0006)_{\text{Al}_2\text{O}_3}$  successifs. La longueur des terrasses est de 180 nm, leur largeur est de 26nm,(fig.A.6),[186].

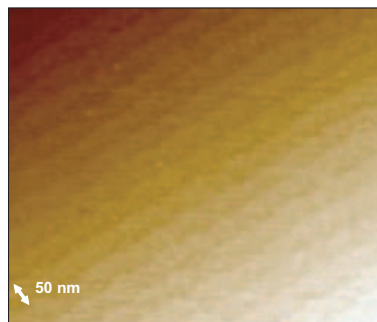


FIGURE A.3 – Micrographie AFM ( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir A-plan  $(11\bar{2}0)$ . La surface est nettoyé par un bain un ultrason dans une solution à base de surfactants (RBS dilué). L'image montre les surfaces vicinales du saphir. Les terrasses ont une rugosité apparente.

### R-plan, $(1\bar{1}02)$

Après un recuit de 1h à  $1100^\circ\text{C}$ , la surface des saphirs R-plan présente des terrasses de 0.33nm de haut et large de 300nm (fig.A.6). Cette structure est homogène sur de grandes distances. Cependant le miscut est par endroit  $\ll 0.5\text{mrad}$ . On observe alors des terrasses en cours de croissance. Leur bord est 'dentelé'. Elles s'étalent par endroit sur  $5\mu\text{m}$  de large. Par de

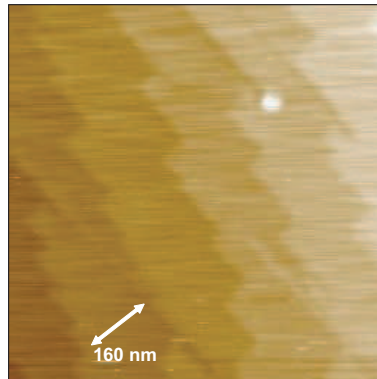


FIGURE A.4 – Micrographie AFM ( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir A-plan ( $11\bar{2}0$ ). L'image montre l'évolution des surfaces vicinales après un recuit à  $1100^\circ\text{C}$ , 1h. Le bord des terrasses est irrégulier.

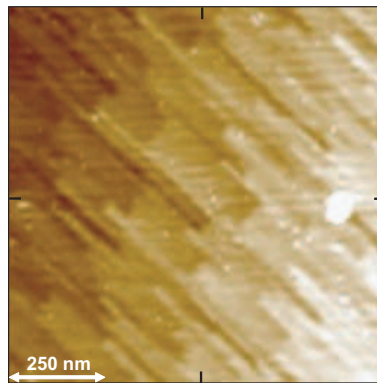


FIGURE A.5 – Micrographie AFM ( $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir A-plan ( $11\bar{2}0$ ). L'image montre l'évolution des surfaces vicinales après un recuit à  $1200^\circ\text{C}$ , 1h.

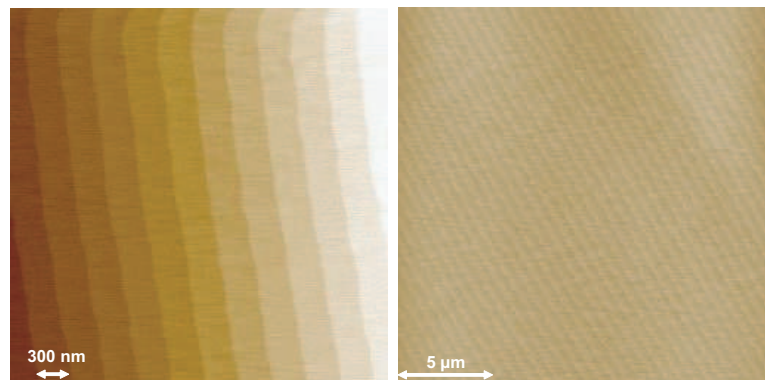


FIGURE A.6 – Gauche : Micrographie AFM ( $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) en mode intermittent d'une surface de saphir R-plan ( $1\bar{1}02$ ). L'image montre les surfaces vicinales après un recuit à  $1100^\circ\text{C}$ , 1h. Droite : Micrographie AFM ( $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ ) du même échantillon. L'image montre la grande régularité et homogénéité de la surface.

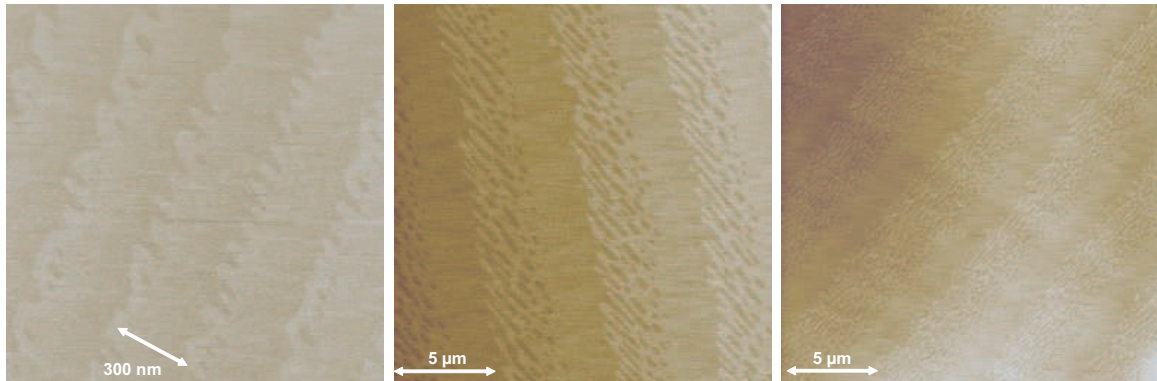


FIGURE A.7 – De gauche à droite : Micrographie AFM en mode intermittent d’une surface de saphir  $R$ -plan ( $1\bar{1}02$ ), ( $5\mu m \times 5\mu m$ ), ( $20\mu m \times 20\mu m$ ), ( $25\mu m \times 25\mu m$ ). L’image montre des terrasses en cours de croissance après un recuit de 1h à  $1100^\circ C$ . Le miscut est  $< 0.5 mrad$ .

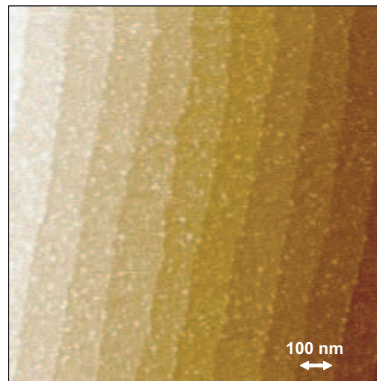


FIGURE A.8 – Micrographie AFM ( $5\mu m \times 5\mu m$ ) en mode intermittent d’une surface de saphir  $R$ -plan ( $1\bar{1}02$ ). L’image montre la surface d’un saphir non nettoyé, recuit 1h à  $1100^\circ C$ . Les adsorbats présent sur la surface brute font quelques dizaines de nm de hauteur. un recuit sans nettoyage induit leur diffusion dans le saphir. Ceci induit une rugosité importante sur les terrasses.

plus long recuit, ce faible miscut donne accès à de très larges surfaces atomiquement plates (fig.A.7). Le nettoyage des wafers de saphir est nécessaire pour obtenir des surfaces prêtes pour l’épitaxie. Sans nettoyage on obtient des terrasses rugueuses, après l’étape du recuit (fig.A.8). Ceci diminue la qualité de l’interface saphir–niobium. De plus, cet état de surface se réplique à la surface des films ultra minces de niobium. Elle diminue la résolution de la lithographie AFM.

### Conclusion

Cette étude montre que l’optimisation du traitement de surface du saphir est possible par quelques procédés physico–chimiques simples. Ils sont nettoyés dans un bain à ultrason dans une solution de RBS dilué, puis recuit à l’air à  $1100^\circ C$ , 1h.

Suivant l’orientation et le miscut de découpe des wafers, les surfaces vicinales du saphir présentent des terrasses atomiquement plates dont on peut contrôler la formation par différent

cycle thermique. La nature et l'arrangement atomique à la surface de l' $Al_2O_3$  est déterminant pour la qualité de l'épitaxie et donc pour les propriétés électroniques du film ultra mince épitaxié.

Les surfaces vicinales des saphirs sont répliquées lors de la croissance de film ultra-minces de niobium. La surface des saphirs R-plan,  $(1\bar{1}02)$ , est la mieux adaptée pour réaliser nos échantillons. Ces surfaces permettent l'épitaxie sous UHV de film ultra mince de haute qualité. Les terrasses sont larges et présentent des bords réguliers. Nous en prenons avantage pour optimiser la résolution de la lithographie AFM. La hauteur des marches est de 0,3nm, ce qui correspond à moins d'une épaisseur d'un plan atomique de niobium. Cette hauteur est minimale mais elle n'empêche pas la propagation de dislocations dans le prolongement des marches.





## Annexe B

# Présentation technique des montages optiques

### Couplage optique au sein du cryostat

Une fibre optique multimode, de diamètre de coeur  $50\mu\text{m}$ , permet d'acheminer l'irradiation optique depuis la source à température ambiante jusqu'au détecteur placé à l'intérieur d'une chambre en cuivre ancrée à la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution transfère le signal optique des diodes placées en tête de cryostat jusqu'à l'échantillon. Il est important de contrôler la distance entre la fibre optique et l'échantillon. Elle est de 1cm. Le flux incident couvre une surface large, de l'ordre de  $10\text{mm}^2$ . Le détecteur de taille micrométrique reçoit un flux homogène. La figure \*, schématise le dispositif expérimental.

Le signal optique est délivré par trois diodes laser électroluminescentes émettant dans le visible, l'ultra-violet et le proche infrarouge. L'émission de la LED infra-rouge a été caractérisée à  $25^\circ\text{C}$  par une photodiode rapide Silicium<sup>1</sup>.

Les diodes sont polarisées en positif par un signal continu sinusoïdal. La fréquence du signal est variée de 1kHz à 15MHz. L'amplitude de consigne maximale est  $\pm 3\text{V}$ , avec un offset de +3V.

### Estimation de la fluence sur le détecteur en fonction de la puissance de la source

Le nombre moyen de photon moyen incident sur l'échantillon, par seconde, est estimé en fonction du rapport des surfaces, tel que :

$$m \sim \frac{\Phi_{inc} S_d}{h\nu}$$

soit,

$$m \sim \frac{P_{LED}}{h\nu} \frac{S_d}{S_{inc}} \frac{S_{fibre}}{S_{LED}}$$

---

1. BPW34 - Silicon PIN Photodiode - VISHAY. La longueur d'onde de sensibilité maximale est de  $\lambda_p = 900\text{nm}$ . La largeur de bande spectrale est de  $[600\text{nm}-1050\text{nm}]$ .

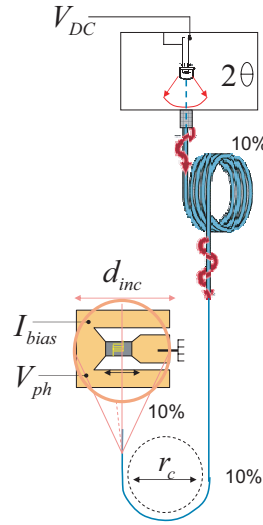


FIGURE B.1 – Schéma du dispositif d'irradiation du détecteur dans la dilution. Les diodes sont caractérisées par leur angle de divergence (ou de vue)  $2\theta$ . Les sources sont connectées à une fibre optique multimode à 300K. En raison de l'encombrement au niveau de l'échantillon, la fibre est tordue pour être en incidence normale avec l'échantillon. Elle est guidée par une gaine thermo-rétractable, avec un rayon de courbure  $r_0 \sim 1\text{cm}$ . La distance entre la fibre et l'échantillon est de telle qu'une grande surface est irradiée ( $d_{inc} \sim 1\text{mm}$ ). L'ensemble échantillon-fibre optique sont sous un vide  $< 1.10^{-4}\text{mbar}$ . On estime à  $1.10^{-3}$  les pertes moyennes : 10% au niveau du couplage entre la LED et la fibre optique à 300K, de même au niveau du coude et au niveau de l'échantillon, à bases température.

Le rapport des surfaces entre les diodes ( $S_{LED} \equiv 100\text{mm}^2$ ) et la fibre optique ( $S_{fibre} \equiv 1.10^{-2}\text{mm}^2$ ), est de l'ordre de  $\equiv 1.10^{-4}$ . Le rapport des surfaces entre le spot lumineux incident à l'échantillon ( $S_{inc} \equiv 10\text{mm}^2$ ) et la taille moyenne de dispositif de ( $S_d \equiv 10.10^{-5}\text{mm}^2$ ) est de l'ordre de  $\equiv 1.10^{-5}$ . La LED IR a été calibrée en sortie de fibre optique en bas du cryostat au seuil maximale de polarisation de la diode. La puissance incidente à l'échantillon est estimée à partir du rapport entre le coeur de la fibre optique et l'échantillon, de l'ordre de  $\equiv 1.10^{-2}\text{mm}^2$ .

Sans perte, le nombre de photon moyen incident sur la ligne méandre est tel que,  $m \sim P_{LED}/\hbar\omega \times 1.10^{-8}$ . On l'estime exactement en fonction des caractéristiques techniques des diodes :

#### LED ultra-violet

- Longueur d'onde du maximum d'émission :  $\lambda_m = 400\text{nm}$
- Puissance maximale émise à  $\lambda$  :  $P_e = 0.5\text{mW}$
- Angle de vue :  $2\theta = 30^\circ$
- Diamètre :  $d = 8.61\text{mm}$
- Estimation de la puissance effective reçue par le dispositif :  $P_{eff} \sim 0.01\text{pW}$
- Estimation du nombre de photon moyen incident :  $N \sim 2.10^4\text{photon.s}^{-1}$

### LED visible

- Longueur d'onde du maximum d'émission :  $\lambda_m = 400nm - 800nm$
- Puissance maximale émise à  $\lambda_m$  :  $P_e = 4.4mW$
- Angle de vue :  $\theta = 30^\circ$
- Diamètre :  $d=5mm$
- Estimation de la puissance effective reçue par le dispositif :  $P_{eff} \sim 0.3pW$
- Estimation du nombre de photon moyen incident :  $N \sim 1.10^6 photon.s^{-1}$  (pour  $\lambda_m = 600nm$ )

### LED infra-rouge

- Longueur d'onde d'émission :  $\lambda_m = 900nm$
- Puissance maximale mesuré  $P_e = 0.2\mu W.cm^{-2}$  en sortie de fibre.
- Surface totale du nanofil  $S \sim 2.10^{-4} \times 3.5.10^{-4}$
- Estimation de la puissance effective reçue par le dispositif :  $P_{eff} \sim 14pW$
- Estimation du nombre de photon moyen incident :  $N \sim 5.10^{11} photon.s^{-1}$

### Puissance des LED v. courant de polarisation

Nous présentons la caractérisation de la puissance d'émission des diodes laser en fonction du courant de polarisation des diodes utilisée au MPSU.

L'atténuation des diodes est calibrée en fonction de son courant de polarisation, à l'aide d'une photodiode commerciale standard.

L'atténuation est donnée en fonction de la puissance maximale d'émission des diodes,  $P_0$ .  $P_0$  est obtenue pour un courant de polarisation tel que la puissance rayonnée est constante, soit proche de 14mA, avec :

$$Attenuation(dB) = 10\log_{10}(P_{att}(W)/P_0(W))$$

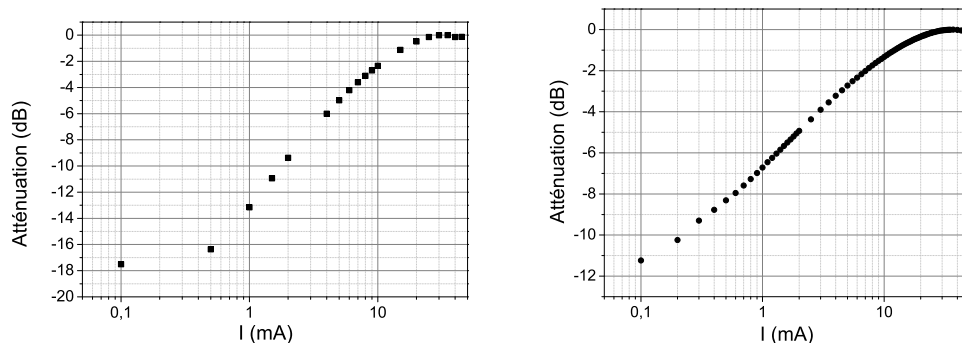


FIGURE B.2 – Atténuation vs  $I$  de la diode laser bleu ( $\lambda = 400nm$ )(gauche)et de la diode laser rouge ( $\lambda = 660nm$ ) (droite), mesurée par une photodiode commerciale standard.



## Annexe C

# Publications

" *Superconducting single photon detectors made by local oxidation with an atomic force microscope*"

C. Delacour, J. Claudon, J.Ph. Poizat, R. Espiau de Lamaestre, J.C. Villegier, M. Tarkov, B. Voronov, G. Goltsman, B. Pannetier and V. Bouchiat, Appl. Phys. Lett., 69, 191116 (2007)

" *Fabrication of High-Speed Single Photon Detectors in NbN for Quantum Information Processing*"

J.C. Villégier, B. Delaet, Ph. Feautrier, L. Frey, C. Delacour, V. Bouchiat, J. of Phys., Conf. series 43, 1373 (2006)

" *Pushing limits of ultrathin film*"

C.Delacour, L.Ortega, T.Crozes, T.Fournier, B.Pannetier, V.Bouchiat, en préparation.



# Bibliographie

- [1] J.Senzier, P.S.Luo, and H.Courtois. *Appl. Phys. Lett.*, 90 :043114, 2007.
- [2] D.B.Haviland et al. *Phys. Rev. Lett.*, 62 :18, 1989.
- [3] A.R.Wildes, J.Mayer, and K.Theis-Bröhl. *Thin solid films*, 401 :7, 2001.
- [4] A.Gibaud, R..Cowley, D.F.McMorrow, R.C.C.Ward, and R.Wells. High-resolution x-ray scattering study of the structure of niobium thin films on sapphire. *Phys. Rev. B*, 48 :14463, 1993.
- [5] D.X.Li, P.Pirouz, A.H.Heuer, S.Yadavalli, and C.P.Flynn. *Acta. Metall. Mater.*, 40 :S237, 1992.
- [6] S.Di Nunzio, K.Theis-Brohl, and H. Zabel. Epitaxial growth of co/cu(001) superlattices on sapphire substrates. *Thin Solid Films*, 279 :180, 1996.
- [7] G., J.Mayer, and M.Ruhle. *Philos. Mag. A*, 75 :1329, 1997.
- [8] K.M.Knowles, K.B. Alexander, R.E. Somekh, and W.M. Stobbs. *Inst. Phys. Conf. Ser.*, 90 :245, 1987.
- [9] G.I.Oya, M.Koishi, and Y.Sawada. *J. Appl. lett.*, 60 :1440, 1986.
- [10] C.Sürgers and H.v.Löhneysen<sup>1</sup>. Effect of oxygen segregation on the surface structure of single-crystalline niobium films on sapphire. *App. Phys. A Materials Science and Processing*, 54 :350, 1992.
- [11] Y.Guo et al. *Science*, 306 :1915, 2004.
- [12] I.G.Batirev, A.Alavi, M.W.Finnis, and T.Deutsh. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1510, 1999.
- [13] D.M.Tricker and W.M.Stobbs. Interface structure overgrowth orientation for niobium and molybdenum films on sapphir substrates. *Philos. Mag.*, 71 :1051, 1995.
- [14] J.C.Bravman, W.D.Nix, D.M.Barnett, and D.A.Smith. Thin films : stress and mechanical properties. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 130 :139, 1989.
- [15] E.J.Grier, M.L.Jenkins, A.K.Petford-Long, R.C.C.Ward, and M.R.Wells. Misfit dislocations of epitaxial (110)nb//(11 $\bar{2}$ 0) sapphire interfaces grown by molecular beam epitaxy. *Thin Solid Films*, 358 :94, 2000.



- [16] J.Senzier. *Spectroscopie locale de nanostructures supraconductrices par microscopie combinée AFM-STM à très basse température*, These de Doctorat :Université Joseph–Fourier, 2007.
- [17] D. Chateignier. *thèse UJF*, 1994.
- [18] A.H.Compton and S.K.Allison. *X rays in theory and experiment*, ed. Van Nost Reinhold, 1935.
- [19] C.A. Marrache-Kikuchi. *Effets dimensionnels dans un systeme desordonne au voisinage des transitions metal-isolant et supraconducteur isolant*, These de Doctorat :Universit de Paris–Sud XI, 2002.
- [20] S.Marnieros. *Couches minces d’isolant d’Anderson. Application à la bolométrie à très basses températures*, Manuscrit de thèse :C.S.N.S.N. Orsay, 1998.
- [21] J.Mayer, C.P.Flynn, and M.Ruhle. High-resolution electron microscopy studies of nb/ $al_2o_3$  interfaces. *Ultramicroscopy*, 33 :51, 1990.
- [22] V.Oderno, C.Dufour, K.Dumesnil, P.Mangin, and G.Marchal. *Philos. Mag.‘ Lett.*, 78 :419, 1998.
- [23] C.P.Flynn. *J. Phys. F : Met. Phys.*, 18 :L195, 1988.
- [24] M.P.A.Fisher, G.Grinstein, and S.Girvin. *Phys. Rev. Lett*, 64 :587, 1990.
- [25] N.W.Ashcroft and N.DavidMermin. *Physique du solide*, (EDP Sciences, 2002).
- [26] G.W.Webb. Low temperature electrical resistivity of pure niobium. *Phys. Rev.*, 181 :1127, 1969.
- [27] S.Moehlecke and Z.Ovadyahu. Anomalous magnetoresistance in ultrathin nb films. *Phys. Rev. B*, 29 :6203, 1984.
- [28] E.Fawcett, W.A.Reed, and R.R.Soden. High field galvanomagnetic properties of niobium and tantalum. *Phys. Rev.*, 159 :533, 1967.
- [29] G.Bergmann. *Phys. rep.*, 107 :1, 1983.
- [30] E.Akkermans and G.Montambaux. *Physique mésoscopique des électrons et des photons*, (EDP Sciences, CNRS Editions, 2004).
- [31] A.M.Finkelstein. *Phys. B*, 197 :636, 1994.
- [32] A.M.Goldman and N.Markovic. *Phys. Today*, 51 :39, 1963.
- [33] M.V.Feigel’man, A.I.Larkin, and M.A.Skvortsov. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1869, 2001.
- [34] N.F.Mott. *J. Non-Crystal. Solids*, 1 :1, 1968.
- [35] P.W.Anderson. *Phys. Rev.*, 124 :41, 1958.
- [36] O.Bourgeois, A.Frydman, and R.C.Dynes. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :18, 2002.
- [37] P.W.Anderson. *J. Phys. Chem. Solids*, 11 :26, 1959.

- [38] K.Yoshii, H.Yamamoto, K.Saiki, and A.Koma. *Phys. Rev. B*, 52 :13570, 1995.
- [39] G.M.Graubeal and M.R.Beasley. Superconducting tunnelling in ultrathin nb film. *Phys. Rev. B*, 29 :4167, 1994.
- [40] S.Maekawa and H.Fukuyama. Superconducting tunnelling in ultrathin nb film. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 51 :1380, 1981.
- [41] H.Takagi and Y.Kuroda. Superconducting tunnelling in ultrathin nb film. *Solid State Commun.*, 41 :643, 1982.
- [42] W.L.McMillan. *Phys. Rev.*, 175 :537, 1968.
- [43] A.F.Morpurgo, J.Kong, C.M.Marcus, and H.Dai. Gate-controlled superconducting proximity effect in carbon nanotubes. *Science*, 286 :263, 1999.
- [44] M.Ferrier, A.De Martino, A.Kasumov, S.Guéron, M.Kociak, R.Egger, and H. Bouchiat. *Solid State Communications*, 131 :615, 2004.
- [45] J-P.Cleuziou, W.Wernsdorfer, V.Bouchiat, T.Ondarçuhu, and M.Monthieux. *Nature Technology*, 1 :1, 2006.
- [46] C.Marrache Kikushi. *Couches minces d'isolant d'Anderson. Application à la bolométrie à très basses températures*, Manuscrit de thèse :C.S.N.S.N. Orsay, 1998.
- [47] A.A.Abrikosov and L.P.Gor'kov. *Soviet. Phys. JETP*, 12 :1243, 1961.
- [48] P.G. de Gennes. *Superconductivity of metals and alloys*, (W.A.Banjamin, New-York), 1966.
- [49] K.Maki and P.Fulde. *Phys. Rev.*, 140 :A1586, 1965.
- [50] J.S.Langer and V.Ambegaokar. *Phys. Rev.*, 164 :498, 1967.
- [51] D.E.McCumber and B.I.Halperin. *Phys. Rev. B*, 1 :1054, 1970.
- [52] N.Giordano. *PhysicaB*, 203 :406, 1994.
- [53] A.G.Sivakov, A.M.Glukhov, A.N.Omelyanchouk, Y.Koval, P.Müller, and A.V.Ustinov. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :267001, 2003.
- [54] D.C.Ralph, C.T.Black, and M.Tinkham. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :3241, 1995.
- [55] B.Mühlschlegel. *PhysicaB*, 203 :444, 1994.
- [56] M.Tinkham. *Introduction to superconductivity*, 2<sup>nd</sup> ed., (McGraw-Hill, New-york), 1996.
- [57] A.T.Bollinger, A.Rogachev, M.Remeika, and A.Bezryadin. *Phys. Rev. B*, 69 :180503, 2004.
- [58] C.Lau, N.Markovic, M.Bockrath, A.Bezryadin, and M.Tinkham. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :217003, 2001.
- [59] A.Bezryadin, C.N.Lau, and M.Tinkham. *Nature*, 404 :971, 2000.
- [60] M.Zgirski, K.P.Riikonen, V.Touboltsev, and K.Arutyunov. *Nano letters*, 5,6 :1029, 2005.

- [61] R.Warburton and W.Webb. *Critical phenomena in alloys, magnets and superconductors*, McGraw-Hill Book Compagny, 451-469, 1971.
- [62] J.M.Kosterlitz and D.J.Thouless. *J. Phys. C*, 6 :1181, 1973.
- [63] K.K.Likharev. *Rev. Mod. Phys.*, 51 :101, 1979.
- [64] W.S.Skocpol, M.R.Beasley, and M.Tinkham. *J. Low Temp. Phys.*, 16 :145, 1974.
- [65] J.P.Maneval, F.Boyer, Kh.Harrabi, and F.R.Ladan. *J. of Supercond.*, 14 :347, 2001.
- [66] W.S.Skocpol, M.R.Beasley, and M.Tinkham. *J. Appl. Phys.*, 45 :4054, 1974.
- [67] K.Harrabi. *Discrimination des différents modes dissipatifs dans les supraconducteurs hautes  $T_c$  métalliques*, Thèse :ENS, 2000.
- [68] Z.L.Berezinskii. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 59 :907, 1970.
- [69] Z.L. Berezinskii. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 561 :1144, 1971.
- [70] B.I.Halperin and D.R.Nelson. *J. Low Temp. Phys.*, 36 :599, 1979.
- [71] J.E.Mooij. *Percolation, Localization and superconductivity*, NATO ASI series, plenum, New York, p.325, 1984.
- [72] A.M.Kadin, K.Epstein, and A.M.Goldman. *Phys. Rev. B*, 27 :6691, 1983.
- [73] N.Lütke-Entrup, B.Plaçais, P.Mathieu, and Y.Simon. *Ann. Phys. Fr.*, 25, No 4 :1-112, 2000.
- [74] M.Giroud et al. *J. Low Temp. Phys.*, 87 :683, 1992.
- [75] N.Hadacek. *Thèse, Etude de films minces et de jonctions Josephson en nitrure supraconducteur (TiN et NbN), application à la logique RSFQ*, 2002.
- [76] T.Yamashita, S.Kitahara, Y.Onodera, Y.Gto, and T.Aso. *J. Appl. Phys.*, 43 :4749, 1972.
- [77] H.Jones, O.Fisher, and G.Bongi. *Solid State Comm.*, 14 :1061, 1974.
- [78] H.C.Jones. *Appl. Phys. Lett.*, 27 :471, 1975.
- [79] A.Shoji, S.Kirryu, and S.Kohjiro. *Appl. Phys. Lett.*, 60 :1624, 1992.
- [80] L.G.Aslamasov and A.I.Larkin. *Sov. Phys. Solid State*, 10 :875, 1968.
- [81] A.T.Fiory, A.F.Hebard, and W.I.Glaberson. *Phys. Rev. B*, 28 :5075, 1983.
- [82] A.M.Kadin, M.Leung, and A.D.Smith. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :3193, 1990.
- [83] J.D.Meyer and G.V.Minnigerode. *Phys. Lett*, 38A :529, 1972.
- [84] J.D.Meyer. *Appl. Phys.*, 2 :303, 1973.
- [85] I.M. Dmitrenko. *Low Temp. Phys.*, 22 :648, 1996.
- [86] A.M.Kadin, W.J.Skocpol, and M.Tinkham. *J. Low Temp. Phys.*, 33 :481, 1978.
- [87] A.M.Kadin and M.W.Johnson. *Appl. Phys. Lett.*, 69 :3938, 1996.
- [88] A.Schmid and G.Schön. *J. Low Temp. Phys.*, 20 :207, 1975.

- [89] K.II'in, M.Lindgren, M.Currier, A.Semenov, G.N.Gol'tsman, R.Sobolewski and S.Cherednichenko, and E.Gershenson. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :2752, 2000.
- [90] A.D.Semenov et al. *Physica C*, 351 :349, 2001.
- [91] Z.Wang et al. *J. Appl. Phys.*, 79 :7837, 1996.
- [92] J.B.Clem et al. *Phys. Rev. B*, 35 :6637, 1981.
- [93] N.Gisin et al. *Rev. Mod. Phys.*, 74 :145, 2002.
- [94] C.H.Bennett, G.Brassard, and A.K.Ekert. *Sc. Am.*, 267 :50, 1992.
- [95] R.J.Hughes, W.T.Buttler, P.G.Kwiat, S.K.Lamoreaux, G.L. Morgia, J.E.Nordholt, and C.G.Peterson. Free-space quantum cryptography in daylight. *SPIE Photonics, West Conference, San Jose, CA*, 2000 Jan 22-28.
- [96] A.Semenov, G.Goltsman, and R.Sobolewski. *Topic. revi. Supercond. Sci. Technol.*, 15 :R1, 2002.
- [97] G.Goltsman, A.Semenov, K.Smirnov, and B.Voronov. *Proc. 12th Int. Symp. on Space Terahertz technology 5Pasadena, CA, Feb. 2001*, p469, 2001.
- [98] A.Verevkin, J.Zhang, W.Slysz, R.Sobolewski, A.Lipatov, O.Okunev, G.Chulkova, A.Korneev, and G.N.Goltsman. *IEEE Appl. Superconductivity*, 15 :579, 2005.
- [99] K.Rosfjord, J.K.W.Yang, E.A.Dauler, A.J.Kerman, V.Aant, B.M.Voronov, G.N.Goltsman, and K.K.Berggren. *Opt. Express*, 14 :527, 2006.
- [100] R.Engstrom. Photomultiplier handbook. *RCA*, 1980.
- [101] W.D.Oldham, R.R.Samuelson, and P.Antognetti. Photomultiplier handbook. *IEEE Trans. Electron. Dev.*, ED-19 :1056, 1972.
- [102] G.S.Buller et al. Semiconductor avalanche diode detectors for quantum cryptography. *IEEE LEOS NEWSLETTER*, page 21, 2006.
- [103] P.G.Kwiat, A.M.Steinberg, R.Y.Chiao, P.H.Everhard, and M.D.Petroff. Photomultiplier handbook. *Phys. Rev. A.*, 48 :R867, 1993.
- [104] S.Takeuschi, J.Kim, Y.Yamamoto, and H.H.Hogue. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :1063, 1999.
- [105] A.Peacock et al. *Nature*, 381 :135, 1996.
- [106] D.D.E.Martin et al. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 520 :512, 2004.
- [107] P.K.Day et al. *Nature*, 425 :817, 2003.
- [108] B.A.Mazin, B.Bumble, and P.K.Day. *Appl. Phys. Lett.*, 89 :222507, 2006.
- [109] P.L.Richards. *J. Appl. Phys.*, 76 :1, 1994.
- [110] D.Rosenberg, A.E.Lita, A.J.Miller, and S.W.Nam. *Quant-ph/0506175*, 2005.
- [111] G.Goltsman et al. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :705, 2001.
- [112] A.Korneev et al. *Appl. Phys. Lett.*, 84 :5338, 2004.

- [113] D.Prober. *Appl. Phys. Lett.*, 62 :2119, 1993.
- [114] J.Kim, S.Takeuchi, Y.Yamamoto, and H.H.Hogue. *Appl. Phys. Lett.*, 74 :902, 1999.
- [115] R.Romestain, B.Delaet, P.Renaud-Goud, I.Wang, C.Jorel, J.C.Villegier, and J.Ph.Poizat. *New J. of Phys.*, 6 :129, 2004.
- [116] K.K.Berggren et al. Superconducting nanowire photon counting detectors for optical communications. *IEEE LEOS NEWSLETTER*, Oct :37, 2006.
- [117] M.Faucher, T. Fournier, B. Pannetier, C. Thirion, W. Wernsdorfer, J.C. Villegier, and V. Bouchiat. *Phys. C*, 368 :211, 2002.
- [118] M.Faucher. *Nano-circuit métalliques quantiques élaborés par microscopie à force atomique*, Manuscrit de thèse :C.R.T.B.T. Grenoble, 2003.
- [119] T.Orlando, E.J.McNiff, Jr., S.Foner, and M.R.Beasley. *Phys. Rev. B*, 19 :4545, 1979.
- [120] A.Zaikin, D.Golubev, A.Van Otterlo, and G.Zimanyi. *Phys. Rev. Lett*, 78 :1552, 1997.
- [121] D.Golubev and A.Zaikin. *Phys. Rev. B*, 64 :014504, 2001.
- [122] J.Kitaygorsky, J.Zhang, A.Verevkin, A.Sergeev, A.Korneev, V.Matvienko, P.Kouminov, K.Smirnov, B.Voronov, G.Goltsman, and R.Sobolewski. *IEEE Appl. Supercond.*, 15 :1051, 2005.
- [123] M.Tinkham and C.N.Lau. *Appl. Phys. Lett*, 80 :2946, 2002.
- [124] C.Delacour et al. *Appl. Phys. Lett.*, 90 :191116, 2007.
- [125] V.Schwartz and S.T.Oyama. *Chem. Mater.*, 9 :3052, 1997.
- [126] V.E.Shaternik, G.V.Kurdyumov, and M.A.Belogolovskii. *Low Temp. Phys.*, 29 :993, 2003.
- [127] F.Balestro. Dynamique quantique d'un squid-dc. *Manuscrit de thèse*, 2003.
- [128] R.H.Hadfield, M.J.Stevens, S.S.Gruber, A.J.Miller, R.E.Schwall, R.P.Mirin, and S.Woo Nam. Single photon source characterization with a superconducting single photon detector. *Optics Express*, 13 :10846, 2005.
- [129] H.A. Macleod. Thin-film optical filters. *3rd ed.* , *Institute of Physics Pub.*, 2001.
- [130] M.Torche, G.Schmerber, M.Guemmaz, A.Mosser, and J.C.Parlebas. Non-stoichiometric niobium nitrides : structure and properties. *3rd ed.* , *Institute of Physics Pub.*, 436 :208, 2003.
- [131] Simon Ramo, John R. Whinnery, and Theodore Van Duzer. *Fields and waves in communication electronics*, page 217, 1994.
- [132] K.E.Kornelsen, M.Dressel, and J.E.Eldridge. Far-infrared optical absorption and reflectivity of a superconducting nbn film. *Phys. Rev. B*, 44 :11882, 1991.
- [133] J.P. Turneure and I. Weissman. *J. Appl. Phys*, 39 :4417, 1968.
- [134] R.E.Glover and M.Tinkham. *Phys. Rev.*, 104 :844, 1956.

- [135] R.E.Glover and M.Tinkham. *Phys. Rev.*, 108 :243, 1957.
- [136] A.Semenov, A.Engel and K.Ilin, G.Goltsman, M.Siegel, and H.W.Hübers. *Eur. Phys. J.*, AP21 :171, 2003.
- [137] K. Hasselbach et al. High resolution magnetic imaging : microsquid force microscopy. *Jnal. of Phys. Conf. series*, 97 :012330, 2007.
- [138] G.Binnig, C.Quate, and G.Gerber. *Phys. Rev. Lett.*, 56 :930, 1986.
- [139] G. Binnig, H.Rohrer, C.Gerber, and E.Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :57, 1982.
- [140] D.Tabor and R.H.Winterton. *S. Proc. Roy. Soc.*, A312 :451, 1969.
- [141] J.N.Israelachvili and D.Tabor. *D. Progress in surface and membrane Science*, 7 :1, 1973.
- [142] J.N.Israelachvili and G.Adam. *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, I 74 :975, 1978.
- [143] J.N.Israelachvili and D.Tabor. *D. Proc. Roy. Soc.*, A 331 :19, 1972.
- [144] A.Tonck, J.M.Georges, and J.L.Loubet. *Colloid and Interface Sci.*, 126 :1, 1988.
- [145] T.Fukuma, K.Kobayashi, K.Matsushige, and H.Yamada. True molecular resolution in liquid by frequency-modulation atomic force microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 86 :193108, 2005.
- [146] M.Q.Li. *Appl. Phys. A*, 68 :n°2, 1999.
- [147] H.M.Birch and J.Clayton. *Nature*, 446 :937, 2007.
- [148] M.Crèvecoeur, E.Lesniewska, V.Vié, J.P.Goudonnet, H.Greppin, and C.Le Grimellec. Atomic-force microscopy imaging of plasma membranes purified from spinach leaves. *Protoplasma*, 212 :46, 2000.
- [149] Y.F.Dufrêne. Atomic force microscopy of microbial cells. *Microsc. Analysis*, 3 :27, 2001.
- [150] C.Le Grimellec, E.Lesniewska, C.Cachia, J.P.Schreiber, F.de Fornel, and J.P.Goudonnet. Imaging the membrane surface of mdck cells by atomic force microscopy. *Biophys. J.*, 67 :36, 1994.
- [151] M.Radmacher, R.W.Tillmann, M.Fritz, and H.E.Gaub. From molecules to cells : imaging soft samples with the atomic force microscope. *Science*, 257 :1900, 1992.
- [152] A.Engel, H.E.Gaub, and D.J.Müller. Atomic force microscopy : a forceful way with single molecules. *Curr. Biol.*, 9 :R133, 1999.
- [153] S.Kasas. La microscopie à force atomique dans la recherche en biologie. *Med. Sci.*, 8 :140, 1992.
- [154] G.Konygin, O.Karban, E.Yelsukov, N.Strelkov, V.Pozdeev, P.Maksimov, and A.Filippov. Methode for treating hypocalcemia, osteoporosis and fractures. *Int. conf. on nanosci. and techn. (Basel, Switzerland July 30)*, World intel. propert. org. /105118, 2006.

- [155] D.M.Eigler and E.K.Schweizer. *Nature*, 344 :524, 1990.
- [156] R.D.Piner, J.Zhu, F.Xu, S.Hong, and C.A.Mirkin. Methode for treating hypocalcemias, osteoporosis and fractures. *Science*, 1999.
- [157] Kent, A.D.Shaw, and T.M.von Molnar. Methode for treating hypocalcemias, osteoporosis and fractures. *Science*, 262 :1249, 1993.
- [158] E.S.Snow and P.M.Campbell. *Science*, 270 :1639, 1995.
- [159] J.A.Dagata, J.Schneir, H.H.Harary, C.J.Evans, M.T.Postek, and J.Bennett. *Appl. Phys. Lett.*, 56 :2001, 1990.
- [160] G. Binning, C. F. Quate, and C. Gerber. Atomic force microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 56 :930, 1986.
- [161] T. and S.Okazaki. Pushing the limits of lithography. *Nature*, 406 :1027, 2000.
- [162] H.Kinoshita et al. *J. vac. sci. techn. B*, 7 :1648, 1989.
- [163] J.E.Bjorkholm et al. *J. vac. sci. techn. B*, 8 :1509, 1990.
- [164] Klein. *M.V.Optics (Wiley, New York)*, 1970.
- [165] S.Okazaki. *J. vac. sci. techn. B*, 9 :2829, 1991.
- [166] J.P. Silverman. X-ray lithography : Status, challenges, and outlook for 0.13  $\mu\text{m}$ . *J. vac. sci. techn. B*, 15 :2117, 1997.
- [167] W.Ehrfeld and H.Lehr. Deep x-ray lithography for the production of three-dimensional microstructures from metals, polymers and ceramics. *Int. j. radiat. applic. instrum. Part C Radiat. phys. chem.*, 45 :349, 1997.
- [168] H.Oizumi et al. *Jpn. J. Appl.*, 7 :1648, 1989.
- [169] C.W.Gwyn, R.Stulen, D.Sweeney, and D.Attwood. Extreme ultraviolet lithography. *J. vac. sci. techn. B*, 16 :3142, 1998.
- [170] T.David. Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation principles and applications. *Attwood, Cambridge University, Press*, 2007.
- [171] Y.Nakayama et al. *J. vac. sci. techn. B*, 8 :1836, 1990.
- [172] S.D.Berger et al. *J. vac. sci. techn. B*, 9 :2996, 1991.
- [173] H.C.Pfeiffer and Stickel. *Microelectron. Eng.*, 27 :143, 1995.
- [174] J.Gierak. *Microelectron. Eng.*, 57 :865, 2001.
- [175] V.Bouchiat. *Manuscrit HDR*, 2007.
- [176] J.I.Shirakashi, K.Matsumoto, N.Miura, and M.Konagai. *Appl. Phys. Lett.*, 72 :1893, 1998.
- [177] R.Garcia, M.Calleja, and H.Rohrer. Patterning of silicon surfaces with noncontact atomic force microscopy : Field-induced formation of nanometer-size water bridges. *J. Appl. Phys.*, 86 :1898, 1999.

- [178] A.E.Gordon, R.T.Fayfield, D.D.Liftin, and T.K.Higman. *Jnal. Vac. Sci. Technol.*, 13 :2805, 1995.
- [179] D.Stievenard, P.A.Fontaine, and E. Dubois. Nanooxidation using a scanning probe microscope : An analytical model based on field induced oxidation. *Appl. Phys. Lett.*, 70 :3272, 1997.
- [180] P.Avoiris, T.HHertel, and R.Martel. *Appl. Phys. Lett.*, 71 :285, 1997.
- [181] N.Cabrera et al. *Rep. Prog. Phys.*, 12 :163, 1948.
- [182] E.Dubois and J.L.Budendorff. *Jnal of Appl. Phys.*, 87 :8148, 2000.
- [183] R.J.M.Vullers, M.Ahlskog, M.Cannaerts, and C.Van Haesendonck. *Appl. Phys. Lett.*, 76 :1947, 2000.
- [184] K.Matsumoto, M.Ishii, K.Segawa, Y.Oka, B.J.Vartanian, and J.S.Harris. *Appl. Phys. Lett.*, 68 :34, 1996.
- [185] T.Itatani, K.Segawa, K.matsumoto, M.Ishii, T.Nakagawa, K.Ohta, and Y. Sugiyama. *Jap. Jnal. of Appl. Phys.*, 35 :1387, 1996.
- [186] B.Wolfing, K.Theis-Brohl, C.Sutter, and H.Zabel. *J. Phys. Cond. Mat*, 11 :2669, 1999.



---

**Abstract :** this work concerns the realization and the measurement of superconducting quantum devices. For patterning these devices, we use a technique of near field lithography : the local oxydation of a thin metallic layer with an atomic force microscope (AFM). We apply this technique to Nb and NbN ultra-thin films (2-10 Nm) epitaxially grown on sapphire substrates. The ultimate resolution that we obtain is of 10nm. It enables us to carry out crystalline nanowires whose section is nanometric ( $100nm^2$ ) and homogeneous at long distances ( $40\mu m$ ). In preliminary studies, we characterize the crystalline quality of films and we measure their electrical properties at the lowest temperatures. These studies are performed for several film's thicknesses and allow the analyse of the superconducting-insulating transition in ultra-thin films according to the disorder measured in the layers. We determine the dissipative modes of the superconducting nanowires at very low temperatures. In the hot-spot mode, we show that the nanowires allow fast detection of single photons. The detectors are sensitive to one photon in the visible and two photons in infrared. These superconducting devices have an unequalled temporal resolution. They can be used like photons counters and then be useful for implementing a quantum cryptography and making safe transmission of the informations.

**Keywords :** Ultra thin film, superconductivity, Nb, NbN, epitaxy, reflectivity, diffraction, AFM, local oxydation, nanowire, phase slip, hot spot, mesoscopic transport, quantum detection, single photon, SSPD, SQUIDs, quantum cryptography.

**Résumé :** ce travail porte sur la fabrication et la mesure de détecteurs quantiques supraconducteurs. Pour nano-structurer ces dispositifs, nous utilisons une technique de lithographie en champ proche : l'anodisation locale sous la pointe d'un microscope à force atomique (AFM). Nous appliquons cette technique à des films ultra-minces (2-10 nm) à base de niobium (Nb, NbN) épitaxiés sur des substrats de saphir. La résolution ultime que nous obtenons est de 10nm. Elle nous permet de réaliser des nanofils cristallins dont la section est nanométrique ( $100nm^2$ ) et homogène sur de grandes distances ( $40\mu m$ ). Nous caractérisons en amont la qualité cristalline des films et mesurons leurs propriétés électriques jusqu'aux plus basses températures. Ces expertises sont menées en parallèle, sur des films d'épaisseur variable et nous permettent l'analyse de la transition supraconducteur-isolant dans les films ultra-mince en fonction du désordre mesuré dans les couches. Nous déterminons les régimes dissipatifs des nanofils supraconducteurs à très basses températures. Dans le régime de point chaud, nous montrons que les nanofils permettent la détection rapide d'un photon unique. Les détecteurs sont sensibles au photon unique dans le visible et à deux photons dans l'infrarouge. Ces détecteurs supraconducteurs ont une résolution temporelle inégalée par les détecteurs semiconducteurs. Ils peuvent être utilisés comme des compteurs de photons et être utiles à l'implémentation d'une cryptographie classique et quantique pour la transmission d'information sécurisée.

**Mots clefs :** Films ultra minces, supraconducteurs, Nb, NbN, épitaxie, réflectivité, diffraction, AFM, oxydation locale, nanofil, glissement de phase, point chaud, transport mesoscopique, détection quantique, photon unique, SSPD, SQUIDs, cryptographie quantique.

