



**HAL**  
open science

# Spectroscopie tunnel dans des films minces proche de la transition supraconducteur-isolant

Benjamin Sacépé

► **To cite this version:**

Benjamin Sacépé. Spectroscopie tunnel dans des films minces proche de la transition supraconducteur-isolant. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT: . tel-00339647

**HAL Id: tel-00339647**

**<https://theses.hal.science/tel-00339647v1>**

Submitted on 18 Nov 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.

# THÈSE

Soutenue publiquement le 30 Novembre 2007

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER

Discipline : Physique des Solides

par

Benjamin SACÉPÉ

## Spectroscopie tunnel dans des films minces proches de la transition supraconducteur-isolant

**Composition du jury :** H. BOUCHIAT (rapporteur)  
C. CHAPELIER (encadrant)  
M. V. FEIGEL'MAN (examineur)  
Ø. FISCHER (rapporteur)  
F. W. J. HEKKING (président)  
M. SANQUER (directeur de thèse)

Thèse préparée au :

Laboratoire de Transport Électronique Quantique et Supraconductivité  
CEA-Grenoble / DRFMC / SPSMS



*À Cécilia.*





# Remerciements

*Ce travail de thèse a été effectué au CEA-Grenoble dans le Laboratoire de Transport Électronique Quantique et Supraconductivité (LaTEQS), anciennement Laboratoire de Cryo-Physique (LCP), du Service de Physique Statistique Magnétisme et Supraconductivité (SPSMS). Je tiens à remercier Louis Jansen et Jean-Pascal Brison, chefs de service du SPSMS, ainsi que Bernard Salce et Marc Sanquer, chefs du LCP et du LaTEQS, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire durant ces trois années de thèse et pour m'avoir fait bénéficier de conditions de travail idéales, tant au niveau humain qu'au niveau matériel.*

*Je remercie vivement Hélène Bouchiat, Claude Chapelier, Mikhail Feigel'man, Øystein Fischer, Frank Hekking et Marc Sanquer d'avoir accepté d'être membres du jury et rapporteurs de ma thèse.*

*Je remercie mon directeur de thèse Marc Sanquer pour son soutien et la confiance qu'il m'a accordés mais aussi pour ses nombreux conseils scientifiques qui m'ont permis de m'orienter dans cette physique complexe de la transition supraconducteur-isolant.*

*Je remercie tout particulièrement Claude pour m'avoir accepté en thèse il y a de cela trois ans. Tout ce travail de thèse tient en grande partie à son soutien permanent et au temps considérable qu'il m'a consacré, d'une part pour me former et d'autre part pour m'aider dans les mesures, notamment pendant les nombreuses nuits qu'il a passées à surveiller le STM. Cet instrument remarquable qu'il a développé nous a permis de faire une physique passionnante et d'une très grande richesse. Même si certaines de mes expériences étaient quelque peu farfelues (un jour, c'est juré Claude, je les trouverai ces paires de vortex-antivortex dans les films minces en champ nul...), il m'a toujours accordé sa confiance et pour cela je le remercie grandement.*

*I especially thank Mikhail Feigel'man for his continuous interest in our work and for the valuable discussions we had which greatly helped us in the comprehension of our experimental results.*

*I also thank Andrei Varlamov for his interest in our work and for his one week visit throughout which we worked on superconducting fluctuations.*

*Je tiens à dire un grand merci à tous les membres du laboratoire grâce à qui ces trois années ont vraiment été agréables. La bonne humeur et l'entraide constante sont sans doute les points forts qui m'ont le plus marqué. Je remercie pour cela Xavier et François pour leurs nombreux conseils de fins expérimentateurs, Manuel pour sa gentillesse et sa patience lorsqu'à de multiples reprises je suis venu l'ennuyer pour qu'il m'explique d'obscures articles théoriques, Jean-Claude pour son intérêt constant dans mes activités et pour ses fameuses couches de NbN, Pierre avec qui l'électronique n'a jamais été aussi facile, et Silvano pour ses conseils bienveillants concernant l'après thèse. Merci à Jean-Luc, Frédéric(s), Michel, Marie-Jo et Marielle qui ont toujours été présents pour sauver les thésards en situation technique ou administrative difficile. Merci à Jean-Michel pour tous ses inestimables conseils*

---

*en cryogénie (merci d'avoir gardé ton coupe tube pour la dilution de Xavier lorsque la nôtre était bouchée!). Merci à Elsa pour m'avoir supporté deux ans dans le bureau. Merci à tous les "Fermions lourds" et en particulier Andrew qui a toujours été présent pour discuter de physique.*

*Je remercie l'équipe Diamant, Etienne, Thierry, Christophe et Philipp, pour nous avoir fourni des échantillons remarquables.*

*Merci aussi à Tatyana Baturina pour ses échantillons de nitrure de titane qui m'ont occupé une bonne partie de cette thèse. Merci à Dan Shahar et Maoz Ovadia pour les échantillons d'oxyde d'indium.*

*Et les compagnons d'infortunes, Olivier et Max, de grands amis maintenant, et tous les autres, Hélène, Sarah, Marie-Aude, Estelle, Roch, Laurent, Vratislav, Romano, Emanuele Julien, Rodolphe, Georgios, Massimo, Mathieu. Merci à tous. Bon courage à Thomas le nouveau maître du STM.*

*Enfin, vivre avec un thésard n'est pas chose facile. Il faut faire preuve d'une immense compréhension, de beaucoup de patience mais aussi de courage lors de la correction du manuscrit et pour cela je ne remercierai jamais assez Cécilia.*

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>xi</b>
<b>I Microscopie et spectroscopie tunnel à basse température</b>	<b>1</b>
<b>1 Microscope à effet tunnel à basse température</b>	<b>3</b>
1.1 Principe de fonctionnement . . . . .	4
1.2 Description du microscope . . . . .	6
1.2.1 Scanner : tube piezoélectrique . . . . .	6
1.2.2 Moteurs de positionnement . . . . .	7
1.2.3 Pointes . . . . .	10
1.3 Électronique de mesure . . . . .	12
1.3.1 Électroniques de contrôle . . . . .	12
1.3.2 Convertisseur courant-tension . . . . .	13
1.4 Cryogénie . . . . .	14
1.4.1 Dilution inversée . . . . .	14
1.4.2 Refroidissement du STM : mode contrôle . . . . .	16
<b>2 Spectroscopie tunnel à balayage</b>	<b>19</b>
2.1 Spectroscopie tunnel . . . . .	20
2.1.1 Courant tunnel à travers une jonction . . . . .	20
2.1.2 Cas d'une jonction métal-isolant-métal . . . . .	21
2.1.3 Cas d'une jonction métal-isolant-supraconducteur . . . . .	22
2.2 Mesure de la conductance tunnel . . . . .	23
2.3 Résolution énergétique . . . . .	23
2.4 Imagerie de Vortex . . . . .	26
<b>II Désordre, localisation et interaction</b>	<b>29</b>
<b>3 Films minces supraconducteurs</b>	<b>31</b>
3.1 Phénoménologie des systèmes quasi-bidimensionnels . . . . .	32
3.1.1 Systèmes diffusifs : localisation et interaction . . . . .	32
3.1.2 Supraconductivité quasi-bidimensionnelle . . . . .	34
3.2 Films minces de $TiN$ et $InO_x$ . . . . .	35
3.2.1 Films minces polycristallins de $TiN$ . . . . .	35
3.2.2 Films minces amorphes d' $InO_x$ . . . . .	36

---

<b>4</b>	<b>Localisation</b>	<b>39</b>
4.1	Localisation faible . . . . .	41
4.2	Localisation forte . . . . .	43
4.2.1	Transition d'Anderson . . . . .	43
4.2.2	Critère de Thouless . . . . .	44
4.2.3	Théorie d'échelle de la localisation . . . . .	45
4.2.4	Conséquences pour les films minces à température non nulle . . . . .	47
4.2.5	Conduction activée thermiquement dans les films minces . . . . .	48
4.3	Localisation et supraconductivité . . . . .	49
4.3.1	Extension du théorème d'Anderson . . . . .	49
4.3.2	Supraconductivité inhomogène . . . . .	51
4.3.3	Paires de Cooper localisées . . . . .	57
<b>5</b>	<b>Interaction électron-électron</b>	<b>61</b>
5.1	Interaction et désordre . . . . .	62
5.1.1	Correction à la densité d'états . . . . .	62
5.1.2	Correction à la conductivité . . . . .	64
5.1.3	Longueur de localisation en dimension 2 en présence d'interaction . . . . .	65
5.2	Interaction Coulombienne et supraconductivité . . . . .	66
5.2.1	Suppression de la température critique . . . . .	66
5.2.2	Suppression du paramètre d'ordre supraconducteur . . . . .	67
5.3	Fluctuations mésoscopiques et interaction Coulombienne . . . . .	68
<b>6</b>	<b>Localisation et supraconductivité dans <math>TiN</math></b>	<b>71</b>
6.1	Transport et corrections quantiques . . . . .	73
6.2	Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur . . . . .	75
6.2.1	Gap supraconducteur . . . . .	75
6.2.2	Inhomogénéités spatiales . . . . .	76
6.2.3	Suppression coulombienne de $T_c$ et fluctuations mésoscopiques . . . . .	78
6.3	Localisation et supraconductivité . . . . .	81
6.4	Paires de Cooper localisées . . . . .	83
6.4.1	Loi d'activation . . . . .	83
6.4.2	Nuances sur l'interprétation des lois d'activation . . . . .	83
6.4.3	Gap isolant dans la DOS . . . . .	84
6.5	Diagramme de phase . . . . .	86
<b>7</b>	<b>Supraconductivité granulaire dans <math>InO_x</math> amorphe</b>	<b>89</b>
7.1	Transport . . . . .	90
7.2	Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur . . . . .	91
7.3	Paires de Cooper localisées . . . . .	92
7.3.1	Absence de pic de cohérence . . . . .	92
7.3.2	Évolution en température de la DOS . . . . .	92
7.3.3	Pseudogap . . . . .	95

---

<b>III</b>	<b>Fluctuations supraconductrices</b>	<b>99</b>
<b>8</b>	<b>Fluctuations supraconductrices thermodynamiques</b>	<b>101</b>
8.1	Fluctuations supraconductrices . . . . .	102
8.1.1	Fonctionnelle de Ginzburg-Landau . . . . .	102
8.1.2	Régime gaussien et paramètre de Ginzburg-Levanyuk . . . . .	105
8.2	Pseudogap de fluctuations . . . . .	106
8.2.1	Renormalisation de la densité d'états . . . . .	107
8.2.2	Renormalisation de la conductance tunnel différentielle . . . . .	107
8.3	Paraconductivité . . . . .	108
8.3.1	Contribution d'Aslamasov-Larkin . . . . .	109
8.3.2	Contribution de la densité d'états . . . . .	109
8.3.3	Contribution de Maki-Thompson . . . . .	109
8.4	Fluctuations de phase dans les systèmes bidimensionnels . . . . .	110
8.4.1	Quasi-ordre à longue distance . . . . .	110
8.4.2	Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless . . . . .	112
8.4.3	Conséquences sur les films minces supraconducteurs . . . . .	114
8.5	Renormalisation de la température critique . . . . .	114
<b>9</b>	<b>Fluctuations supraconductrices dans <math>TiN</math></b>	<b>117</b>
9.1	Fluctuations supraconductrices dans $TiN$ . . . . .	118
9.1.1	Paraconductivité . . . . .	118
9.1.2	Transition de Beresinskii-Kosterlitz-Thouless . . . . .	120
9.2	Pseudogap de fluctuations dans les films de $TiN$ . . . . .	121
9.2.1	Anomalie de la densité d'états au-dessus de $T_c$ . . . . .	122
9.2.2	Pseudogap de fluctuations supraconductrices . . . . .	123
<b>10</b>	<b>Transition de phase quantique</b>	<b>129</b>
10.1	Théorie quantique de M. Fisher . . . . .	131
10.1.1	Introduction : les transitions de phase quantiques . . . . .	131
10.1.2	Modèle de fluctuations de phase . . . . .	132
10.1.3	Discussion . . . . .	134
10.2	Fluctuations supraconductrices au-dessus de $H_{c2}(0)$ . . . . .	135
<b>11</b>	<b>Transition Supraconducteur-Isolant induite par le champ</b>	<b>137</b>
11.1	Echantillon peu résistif de $TiN$ . . . . .	138
11.1.1	Magnétorésistance . . . . .	138
11.1.2	Correction quantique de Galitski-Larkin . . . . .	139
11.1.3	Transport non-linéaire . . . . .	140
11.2	Échantillon de $TiN$ proche du désordre critique . . . . .	141
11.2.1	Magnétorésistance géante . . . . .	141
11.2.2	Transport non-linéaire . . . . .	143
11.3	TSI induite par le champ dans $InO_x$ . . . . .	144
11.3.1	Magnétorésistance géante . . . . .	144
11.3.2	Sur la dualité "paires de Cooper-vortex" . . . . .	144
11.3.3	Loi d'échelle . . . . .	146

---

Conclusion	149
A Méthodes de mesure de résistances hautes impédances	153

# Introduction

D'après la théorie d'échelle de la localisation [86], nous savons qu'il n'existe pas, à température nulle, d'état métallique en dimension  $d = 2$ , dans un système désordonné sans interaction. Si l'on en croit ce résultat, la résistance de tout système bidimensionnel ou quasi-bidimensionnel diverge à température nulle vers un état isolant, dans lequel les fonctions d'onde électroniques sont localisées par le désordre. Par contre, s'il existe une interaction attractive entre électrons, cette divergence peut être court-circuitée par l'établissement d'un état supraconducteur. Cette situation est a priori contre-intuitive puisque la supraconductivité, qui induit une cohérence quantique à l'échelle macroscopique, est en contradiction avec le phénomène de localisation qui a plutôt tendance, quant à lui, à restreindre l'extension spatiale des fonctions d'onde électroniques. Aussi, supprimer la supraconductivité dans de tels systèmes, en appliquant un champ magnétique ou en augmentant le désordre par exemple, est susceptible, en principe, de restaurer l'état isolant sous-jacent. Nous avons alors affaire, à température nulle, à une transition de phase quantique entre deux états fondamentaux complètement antinomiques : l'état supraconducteur et l'état isolant.

L'approche de la localisation des fonctions d'ondes par le désordre n'est cependant pas suffisante pour saisir toute la physique d'une telle Transition Supraconducteur-Isolant (TSI). En effet, l'interaction Coulombienne, qui est efficacement écrantée dans un métal massif, l'est beaucoup moins dans un film mince. Son renforcement, notamment par la réduction de l'épaisseur, va nécessairement entrer en compétition avec l'interaction attractive à l'origine de la supraconductivité. La TSI réunit, par conséquent, trois problématiques d'envergure de la physique des solides : la localisation, l'effet de l'interaction Coulombienne et la supraconductivité.

Depuis plus de vingt ans, deux descriptions de la TSI s'opposent sans jamais converger [83]. La première considère la compétition entre l'interaction attractive et le renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre. Elle conduit à une suppression coulombienne de la supraconductivité pour un désordre critique qui ne dépend que des propriétés microscopiques du matériau. Développée par Finkel'stein [41], cette théorie est une extension de la théorie BCS de champ moyen qui tient compte de l'affaiblissement de l'écrantage de l'interaction Coulombienne dans les systèmes quasi-bidimensionnels. Elle a permis notamment de décrire quantitativement la suppression de la température critique avec la diminution de l'épaisseur de films minces pour plusieurs matériaux. La seconde approche a été proposée par Fisher en 1990 [43]. Elle considère une TSI induite par les fluctuations de phase du paramètre d'ordre supraconducteur. Basée sur un modèle effectif de bosons en interaction dans un potentiel désordonné, la transition de l'état supraconducteur vers l'état isolant, lorsque le désordre ou le champ magnétique augmente, a, cette fois-ci, un caractère universel, indépendant de la nature du matériau. Elle présente notamment des propriétés d'échelle propres aux transitions de phase quantiques mais aussi, dans certaines conditions, une résistance à



---

la transition universelle, égale au quantum de résistance d'une paire de Cooper  $h/4e^2$ . De tels prédictions ont fait l'objet d'une multitude d'études expérimentales, se soldant par une importante dispersion des résultats, peu compatible avec un comportement universel. Dans ce modèle de fluctuation de phase, contrairement à la théorie de Finkel'stein qui prédit une suppression de la supraconductivité au désordre critique, l'amplitude du paramètre d'ordre supraconducteur est supposée non-nulle à la transition et même dans l'état isolant. Cette hypothèse capitale a, cependant, été contredite en 1992 par Valles *et al.* [140], qui ont mesuré, avec des jonctions tunnel lithographiées sur des films minces de bismuth amorphe, une suppression simultanée de la température critique et du gap supraconducteur. Depuis lors, aucune autre étude n'est venue vérifier leurs résultats.

Récemment, il a été mis en évidence dans deux matériaux, le nitrure de titane ( $TiN$ ) et l'oxyde d'indium amorphe ( $InO_x$ ), un comportement sous champ magnétique spectaculaire de la résistance. Pour des films minces proches du désordre critique de la TSI, l'application d'un champ magnétique produit une magnétorésistance géante passant de zéro dans l'état supraconducteur à champ nul, à une résistance "infinie" à la limite de résolution des instruments de mesure, pour un champ non-nul. L'interprétation de ce comportement hors-norme est encore ouvert et les quelques propositions disponibles à ce jour suggèrent la présence d'une phase supraconductrice inhomogène. Une étude locale de la densité d'états s'avère, par conséquent, indispensable dans cette physique, afin de vérifier expérimentalement certaines hypothèses microscopiques inaccessibles avec des mesures de transport.

Notre étude de spectroscopie tunnel à balayage, que nous décrivons dans ce manuscrit, est une première sur les films minces proches de la TSI. Les questions auxquelles nous avons tenté de répondre sont très simples. Pour l'état supraconducteur proche de la TSI, une des questions cruciales est de vérifier l'homogénéité spatiale du gap supraconducteur qui constitue l'une des hypothèses de base des théories disponibles. Par ailleurs, si l'on s'en tient aux expériences de Valles *et al.* [140], ce gap, qui est relié à l'amplitude du paramètre d'ordre supraconducteur, s'annule à la TSI. Ce résultat, lourd de conséquence, mérite vérification et nous avons pour cela à notre disposition un instrument de mesure plus qu'adéquat.

Nous avons eu la chance, dans cette thèse de pouvoir étudier les deux seuls matériaux connus,  $TiN$  et  $InO_x$  amorphe, qui présentent une magnétorésistance géante à basse température. Bien que les études de la TSI soient généralement orientées vers la transition de phase quantique proposée par Fisher, nous avons choisi d'analyser nos résultats au regard des théories standards sur la localisation et sur l'effet de l'interaction Coulombienne dans les films minces désordonnés, mais aussi à partir des théories, plus rares, alliant localisation et supraconductivité. Cette approche se justifie notamment par le fait que la TSI induite par le désordre dans nos échantillons semble dominée par la localisation. Nous présentons, par conséquent, dans ce manuscrit une étude de spectroscopie tunnel alliée à des mesures de transport, en champ nul et sous champ. Étant donné la richesse de la TSI qui réunit la physique de la localisation, les effet de l'interaction Coulombienne, mais aussi les fluctuations supraconductrices thermodynamiques et quantiques ainsi qu'une transition de phase quantique, le programme d'étude est particulièrement complexe. C'est pourquoi, nous avons tenté d'aborder, d'un point de vue expérimental, la plupart des phénomènes physiques importants, en introduisant au préalable les théories mises en jeu.

Ce manuscrit est composé de trois parties détaillées ci-dessous :

---

## I Microscopie et spectroscopie tunnel à basse température .

La première partie concerne la microscopie et spectroscopie tunnel à balayage. Nous décrivons dans le chapitre 1 le principe de fonctionnement du microscope à effet tunnel, les électroniques de mesure et de contrôle associées, ainsi que le réfrigérateur à dilution qui permet de refroidir le microscope à une température de  $45\text{ mK}$ . Le chapitre 2 est consacré spécifiquement à la spectroscopie tunnel, à son principe, à sa mise en oeuvre mais aussi à ses limitations.

## II Désordre, localisation et interactions

Les effets de localisation et d'interaction Coulombienne associés à la supraconductivité sont l'objet de la seconde partie du manuscrit. Après une introduction à la phénoménologie des films minces désordonnés au chapitre 3, nous présentons dans le chapitre 4 une revue théorique de la localisation, orientée notamment sur le comportement des films minces. La supraconductivité dans un régime de localisation est un problème complexe qui fait l'objet, encore aujourd'hui de nombreuses propositions théoriques. Nous présentons, dans la seconde partie de ce chapitre, les principaux résultats de ces études qui nous seront particulièrement utiles pour analyser nos mesures. Vient ensuite le chapitre 5 dédié aux effets de l'interaction Coulombienne dans les films minces. Il ne s'agit ici que de théories perturbatives, loin du régime de localisation forte, mais qui ont, malgré tout, des conséquences importantes sur la supraconductivité.

Dans le chapitre 6 est abordée l'étude de spectroscopie tunnel, associée à des mesures de transport en champ nul, de trois échantillons de  $TiN$  de désordres différents, proche de la TSI. Elle est analysée à la lumière des théories de localisation et d'interaction décrites précédemment. Le cas d' $InO_x$ , quelque peu différent de  $TiN$ , est ensuite présenté dans le chapitre 7.

## III Fluctuations supraconductrices

Dans cette dernière partie nous discutons la physique des fluctuations supraconductrices. Cette dernière, dont les effets sont renforcés par le désordre et le caractère quasi-bidimensionnel, est particulièrement riche dans le cas des films minces, notamment parce qu'elle entre dans le cadre de la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless. Nous présentons, dans le chapitre 8, la théorie des fluctuations supraconductrices en nous appuyant sur la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau. Le régime de fluctuations supraconductrices dans  $TiN$  est ensuite analysé en détails dans le chapitre 9, à partir des mesures de transport et des mesures de spectroscopie tunnel au-dessus de la température critique.

Les deux derniers chapitres sont consacrés à la TSI induite par un champ magnétique perpendiculaire. Nous introduisons, dans le chapitre 10, le modèle de Fisher qui décrit la TSI comme une transition de phase quantique régie par les fluctuations de phase. Enfin, nous présentons, dans le chapitre 11, le comportement de nos échantillons sous champ magnétique, notamment la magnétorésistance géante, en le confrontant au modèle de Fisher, mais aussi à nos résultats présentés dans la partie II.



# Première partie

## Microscopie et spectroscopie tunnel à basse température



# Chapitre 1

## Microscope à effet tunnel à basse température

### Sommaire

---

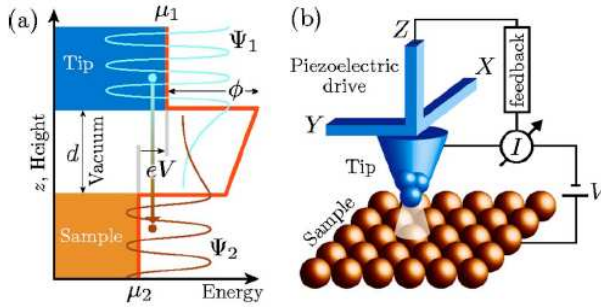
<b>1.1</b>	<b>Principe de fonctionnement</b>	<b>4</b>
<b>1.2</b>	<b>Description du microscope</b>	<b>6</b>
1.2.1	Scanner : tube piezoélectrique	6
1.2.2	Moteurs de positionnement	7
1.2.3	Pointes	10
<b>1.3</b>	<b>Électronique de mesure</b>	<b>12</b>
1.3.1	Électroniques de contrôle	12
1.3.2	Convertisseur courant-tension	13
<b>1.4</b>	<b>Cryogénie</b>	<b>14</b>
1.4.1	Dilution inversée	14
1.4.2	Refroidissement du STM : mode contrôle	16

---

## Introduction

Ce chapitre est dédié à l'instrumentation et la cryogénie. Nous présentons, ici, le microscope à effet tunnel fabriqué au laboratoire ainsi que le principe de fonctionnement de ses éléments principaux (moteurs piézoélectriques, pointes, életroniques de mesure et de contrôle). La cryogénie sub-Kelvin est, quant à elle, présentée dans la dernière section.

### 1.1 Principe de fonctionnement



**FIG. 1.1:** (a) Processus de tunneling entre la pointe et l'échantillon à travers une barrière de largeur  $d$  et de hauteur  $\phi$  formée par le vide. De part et d'autre de la jonction, les fonctions d'ondes électroniques  $\Psi$  décroissent exponentiellement dans le vide. Le recouvrement non nul de ces dernières permet aux électrons de la pointe de traverser la barrière par effet tunnel. (b) Schéma de principe du STM. D'après [42].

Le principe du microscope à effet tunnel (STM<sup>1</sup>) consiste à créer une jonction métal-isolant-métal à partir d'une pointe métallique, séparée de la surface d'un échantillon par du vide [21]. À la surface des deux métaux, la décroissance exponentielle des fonctions d'onde électroniques dans le vide conduit à un recouvrement non nul de ces dernières lorsque la distance pointe-échantillon est suffisamment faible<sup>2</sup>. Le transfert de charge d'une électrode à l'autre s'effectue alors par effet tunnel, qui a pour particularité une dépendance exponentielle du courant avec la distance pointe-échantillon  $d$  :

$$I_t \sim e^{-2\kappa d}, \quad \kappa = \sqrt{\frac{2m\phi}{\hbar^2}} \approx 0.5\sqrt{\phi(eV)} \text{ \AA}^{-1} \quad (1.1)$$

où  $\phi$  est le travail de sortie des électrons dans le métal (typiquement  $\phi \sim 5 eV$ ). L'élément technologique crucial est le tube piézoélectrique au bout duquel est montée la pointe [21]. Il permet, en effet, de contrôler des déplacements à l'Angström près, et ce dans les trois dimensions, par simple application d'une tension continue sur ses électrodes. Lorsque la pointe est à quelques Angströms de la surface de l'échantillon, une différence de potentiel aux bornes de la jonction induit un courant tunnel facilement mesurable (typiquement  $0.01 - 10 nA$ ). Ce régime tunnel est alors défini par trois paramètres : la distance pointe-échantillon  $d$ , le courant tunnel  $I_t$  et la tension de polarisation  $V_b$ . Dans un régime linéaire, la résistance de la jonction  $R_t = \frac{V_b}{I_t}$  est choisie suffisamment grande pour garantir un régime tunnel (typiquement  $1 - 10^3 M\Omega$ ). Cependant varier  $V_b$  ou  $I_t$  ne produit pas le même effet sur la jonction : la tension de polarisation détermine les états d'énergies sondés, alors qu'une variation de courant tunnel se traduit simplement par une variation de la distance pointe-échantillon.

<sup>1</sup>Acronyme de Scanning Tunneling Microscope.

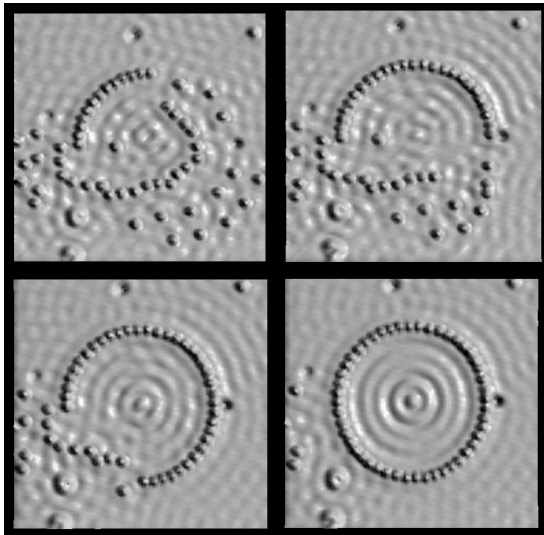
<sup>2</sup>L'ordre de grandeur est de quelques Angströms, cependant la distance exacte reste toujours une inconnue dans une expérience de STM. Seule la variation relative de distance est mesurée.

Pour obtenir une image topographique de la surface de l'échantillon, le tube piloté en tension par l'électronique de contrôle, balaye ligne par ligne la zone étudiée. Deux techniques d'imagerie sont alors possibles :

- **image à courant constant** : le courant est maintenu constant à l'aide d'une régulation pilotant l'élongation  $Z$  du tube, et donc la distance pointe-échantillon.
- **image à allongement constant** : l'allongement  $Z$  du tube est maintenu constant lors du balayage en bloquant la régulation<sup>3</sup>. Sur des surfaces atomiquement planes, la variation spatiale de la densité d'électrons, i.e. de la densité d'états, induit de fortes variations de courant qui permettent de reconstruire une carte de la densité électronique à une énergie donnée.

Ainsi la pointe survole la surface à courant (allongement) constant et les coordonnées spatiales  $\{X,Y,Z\}$  ( $\{X,Y,I\}$ ) du tube permettent de reconstruire une image de la zone étudiée.

L'intérêt majeur du STM réside dans sa résolution spatiale. Etant donné l'extrême sensibilité du courant aux variations de  $d$  (cf. éq. 1.1), le courant tunnel va nécessairement se concentrer sur l'atome à l'apex de la pointe le plus proche de l'échantillon. On obtient alors, selon la géométrie de l'apex et selon les orbitales électroniques de la pointe, la résolution atomique. Avant l'invention du STM, le réseau atomique dans les solides n'était connu que par les techniques indirectes de diffraction de rayon X ou avec les microscopes électroniques à transmission. Les techniques de microscopie de champ proche permettent désormais d'imager directement l'agencement des atomes à la surface d'un échantillon et même de les manipuler. Preuve en est la figure 1.2 qui présente des images remarquables de manipulation d'atomes de fer adsorbés sur une surface de cuivre (111), obtenues par le groupe d'Eigler à IBM Almaden [27].



**FIG. 1.2:** Manipulation d'atomes de fer sur une surface de cuivre (111). Les atomes de fer forment un billard circulaire dans lequel les fonctions d'ondes électroniques sont confinées. L'image STM révèle la répartition spatiale de la densité électronique, plus précisément du plasmon de surface d'énergie  $\epsilon = eV_b$ . D'après [27].

<sup>3</sup>En pratique, la régulation n'est pas arrêtée mais seulement ralentie avec un temps de réponse très long (gain faible).



## 1.2 Description du microscope

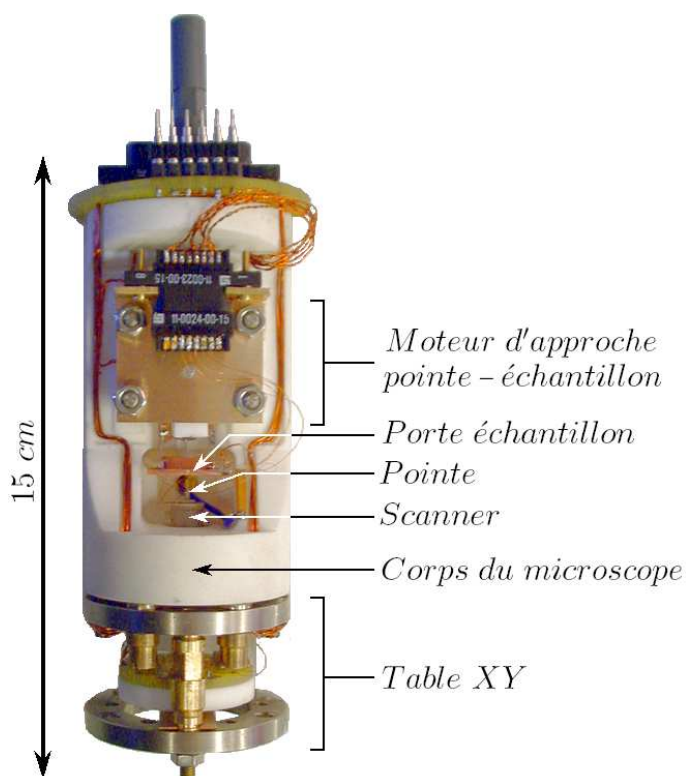
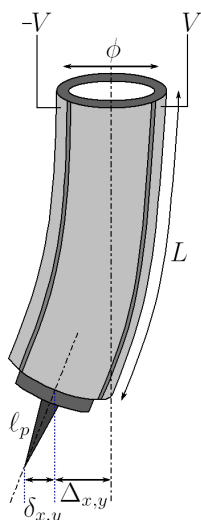


FIG. 1.3: Photographie du microscope.

Le microscope a été entièrement conçu et fabriqué au laboratoire. Il permet, en plus du mode STM, d'effectuer des mesures de transport en fonction de la température. Le thermomètre, ainsi que la résistance de chauffage, sont directement montés sur le porte-échantillon. Cette section présente les éléments principaux du STM, à savoir : le tube piézoélectrique, les moteurs de positionnement et les pointes.

### 1.2.1 Scanner : tube piezoélectrique



Le tube piézoélectrique est l'élément central du microscope. Il permet d'effectuer le balayage de la pointe dans le plan  $x,y$  et de contrôler la distance pointe-échantillon. Le matériau piézoélectrique est une céramique de formule générale  $PbTi_{1-x}Zr_xO_3$  (avec  $x$  voisin de 0.5) polarisée radialement [137]. L'intérieur et l'extérieur du tube sont métallisés, formant ainsi une capacité de l'ordre de  $\sim 5 nF$ . La surface extérieure est divisée en 4 segments dans la longueur du tube, isolés électriquement afin d'obtenir deux paires d'électrodes en regard. En appliquant une différence de potentiel entre deux électrodes extérieures opposées, le tube fléchit selon les directions  $x$  ou  $y$ . Un balayage ligne par ligne peut ainsi être réalisé à l'aide de signaux de tension bipolaires triangulaires. Lorsque la tension de l'électrode interne varie, le tube s'allonge ou se raccourcit selon le sens de la polarisation. Les déplacements théoriques d'un tube sont :

$$\Delta_{x,y} = \frac{1.8V_{xy}d_{31}L^2}{\phi e} \quad \text{et} \quad \Delta_z = \frac{d_{31}V_zL}{e} \quad (1.2)$$

où  $V_{xy}$  est la différence de potentiel appliquée entre deux électrodes extérieures en regard,  $V_z$  la tension sur l'électrode interne,  $d_{31}$  le coefficient piézoélectrique,  $L$  la longueur du tube,

$\phi$  son diamètre moyen et  $e$  sa toile. Les caractéristiques du tube utilisé sont reportées dans le tableau 1.1. À titre indicatif, les déplacements latéraux et verticaux théoriques sont d'environ  $145 \text{ nm}/V$  et  $10 \text{ nm}/V$ . Une tension de  $10 \text{ mV}$  produit donc un déplacement vertical d'un Angström. En pratique, un tube doit être régulièrement étalonné car le matériau piézoélectrique se dépolarise naturellement dans le temps mais aussi avec les cyclages thermiques. Seul un étalonnage régulier avec un échantillon connu permet de garantir une mesure absolue de la topographie. Par ailleurs, le coefficient piézoélectrique diminue à basse température d'un facteur 10 environ, réduisant par conséquent la taille maximale des images. Avec le tube installé dans le microscope, les tailles maximales d'images sont d'environ  $30 \times 30 \mu\text{m}^2$  à température ambiante et de  $3 \times 3 \mu\text{m}^2$  à froid ( $T < 4.2 \text{ K}$ ).

Description	symbole	valeur
Longueur du tube [ $mm$ ]	$L$	23
Diamètre [ $mm$ ]	$\phi$	6
Toile [ $mm$ ]	$e$	0.38
Coef. Piézo. [ $mm/V$ ]	$d_{31}$	$1.73 \cdot 10^{-7}$

TABLE 1.1: Caractéristiques physiques du tube piézoélectrique.

Lors d'un balayage, le tube est excité mécaniquement. Sa fréquence de résonance mécanique doit être évidemment supérieure à la bande passante de l'électronique de contrôle. Cette dernière est limitée par le convertisseur courant-tension dont la fréquence de coupure est de l'ordre d' $1 \text{ kHz}$  (cf. §1.3.2). Le tube peut être modélisé par une poutre encastree à une extrémité et chargée par une masse à l'autre<sup>4</sup>. La plus basse fréquence de résonance mécanique est donnée par [61] :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{3EI}{(M + 0.23m)L^3}} \quad (1.3)$$

avec  $E$  le module d'Young,  $I$  le moment quadratique,  $m$  la masse de la poutre et  $M$  la masse de la charge à son extrémité libre. La fréquence de résonance de notre tube est estimée à  $5 \text{ kHz}$ . Le choix du tube résulte donc d'un compromis sur la longueur pour avoir une taille d'image maximale et une fréquence de résonance supérieure à la bande passante du système d'acquisition.

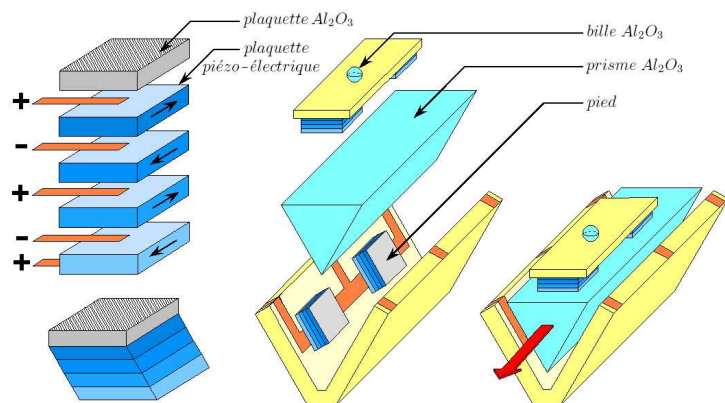
## 1.2.2 Moteurs de positionnement

**Moteur piézoélectrique** Si le déplacement d'une pointe à quelques Angström d'une surface est aisément réalisable avec un tube et une régulation du courant tunnel, l'approche macroscopique de l'échantillon en direction de la pointe jusqu'au "*contact tunnel*" constitue une étape des plus délicates, surtout à basse température. On utilise pour ce faire un moteur piézoélectrique schématisé sur la figure 1.4. Six pieds maintiennent mécaniquement un prisme de saphire au bout duquel est fixé le porte échantillon. Ces pieds sont des empilements de 4 plaquettes piézoélectriques métallisées sur chaque face et collées les unes aux

---

<sup>4</sup>Cette modélisation ne s'applique que si  $x, y \ll L$  où  $x$  et  $y$  sont les dimensions caractéristiques de la section.

autres avec une fine bandelette de cuivre contactant les électrodes<sup>5</sup>. Une cinquième plaquette d'alumine polie, collée sur le dessus du pied, permet de réduire au minimum le frottement avec le saphire. En appliquant une tension à leurs bornes, ces céramiques piézoélectriques se cisailent ce qui produit un mouvement latéral de tout le pied.



**FIG. 1.4:** Schéma d'un pied piézo-électrique et du moteur d'approche de l'échantillon vers la pointe. Les six pieds piézoélectriques sont collés sur le corps du microscope en macor (Céramique vitreuse). Le prisme est maintenu mécaniquement contre ces pieds grâce à une fine plaque en cuivre-béryllium percée d'un trou, qui appuie sur une bille d'alumine. Ce système de ressort permet d'une part de régler la pression des pieds, et d'autre part de corriger les défauts de parallélisme.

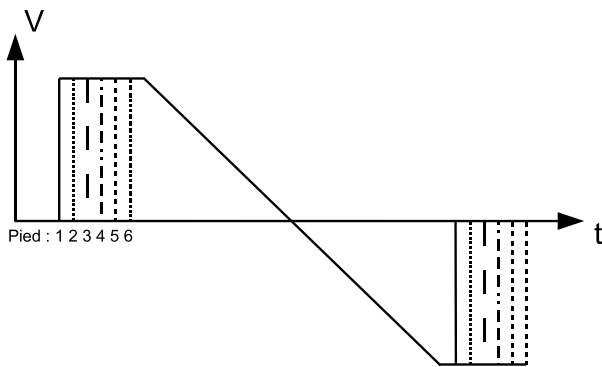
Pour faire fonctionner un tel mécanisme, deux méthodes sont envisageables :

- **la méthode "Pan"**. Développé par S.H. Pan *et al.* [108], ce mécanisme d'approche schématisé sur la figure 1.7, consiste à faire glisser chaque pied successivement en maintenant le prisme bloqué par les cinq autres restés inactifs. Après avoir déplacé les six pieds en position de cisaillement, la tension appliquée aux bornes des céramiques piézoélectriques est lentement remise à zéro simultanément sur tous les pieds entraînant ainsi le prisme dans la direction désirée.
- **la méthode inertielle**. Elle consiste à augmenter progressivement la tension aux bornes des six pieds de manière à entraîner le prisme dans la direction désirée, puis faire glisser les six pieds simultanément vers leurs positions initiales par un changement de polarité rapide de la tension. Cette méthode a pour principal mérite d'adresser tous les pieds avec seulement deux fils, ce qui est un avantage pour travailler à basse température.

L'efficacité des deux méthodes est similaire bien qu'à basse température la méthode Pan semble plus robuste [36]. Cette dernière a été, par conséquent, privilégiée. Une électronique dédiée, mise au point au laboratoire [110], génère les signaux adéquats pour la méthode Pan (voir figure 1.5) et permet d'effectuer toutes les procédures d'approche et de contrôle pendant le refroidissement ((cf. §1.4.2)).

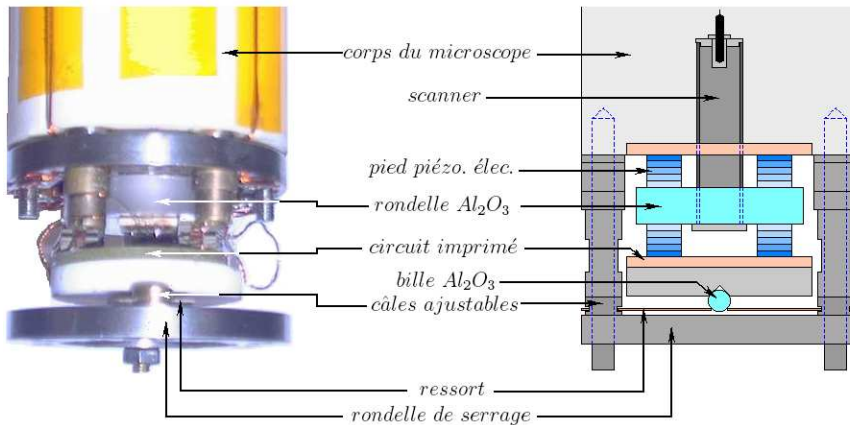
**Table XY** Un moteur de positionnement latéral, appelé table XY, a été développé pour augmenter le champ d'observation du STM [36]. Basée sur le même principe de fonctionnement que le moteur en Z décrit précédemment, six pieds piézoélectriques maintiennent un disque de saphire sur lequel est collé le tube piézoélectrique (cf. fig. 1.6). La pression des pieds sur le saphire est réglée comme pour le moteur en Z (cf. légende fig. 1.4) à l'aide

<sup>5</sup>Ce système a été remplacé en fin de thèse par un empilement de deux céramiques deux fois plus épaisses simplifiant le collage des plaquettes.



**FIG. 1.5:** Signaux de commande du moteur Pan. Les six créneaux de tension font glisser successivement les six pieds, puis la rampe lente permet d'entraîner lentement le prisme. Cette rampe est suivie d'un retour en position de repos des pieds par une seconde séquence de six créneaux.

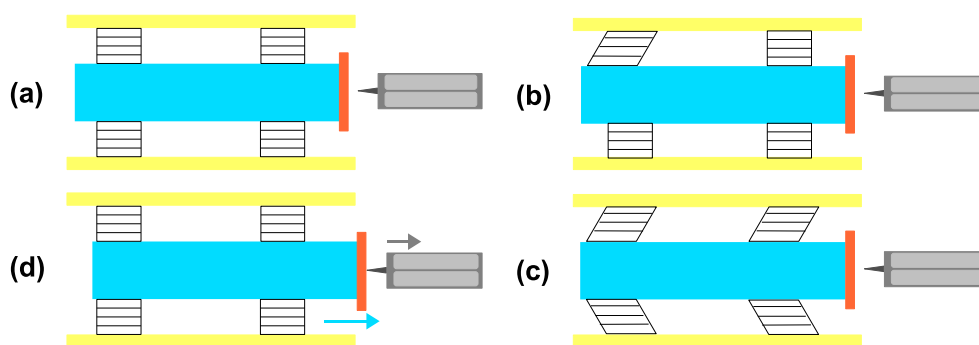
d'un système de ressort constitué d'une plaque de cuivre-béryllium et d'une bille d'alumine. En raison des deux degrés de liberté XY, l'empilement des céramiques est cette fois-ci plus complexe et nécessite 8 plaquettes correctement orientées. Ce système de positionnement grossier sur presque  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  s'avère indispensable pour des études de nanostructures lithographiées [36] ou de nano-objets dispersés sur une surface.



**FIG. 1.6:** Photo et schéma de la table XY.

**Procédure d'approche** L'approche de l'échantillon vers la pointe est l'une des phases les plus délicates des expériences de STM. Cette procédure doit impérativement éviter le "crash" de la pointe et, par ailleurs, fonctionner à basse température. L'instant critique d'une telle procédure arrive lorsque le pas du moteur en Z atteint la zone d'excursion du tube. Notre méthode schématisée fig. 1.7 est la suivante : en laissant la régulation active, l'électronique de contrôle du STM, qui mesure alors un courant tunnel nul, va allonger le tube au maximum. Dès que le "contact tunnel" apparaît pendant le lent déplacement de l'échantillon lors du dernier pas, la régulation compense immédiatement l'avancée du moteur en Z et garde ainsi une distance pointe-échantillon constante, sans crash. Il faut bien évidemment veiller à ce que le déplacement du moteur soit suffisamment lent par rapport au temps de réponse de la régulation. Sa vitesse est fixée par la pente de la rampe en tension figure 1.5. Par ailleurs, l'électronique des moteurs mesure, après chaque pas, le courant tunnel et s'arrête automatiquement dès que celui-ci est non nul.

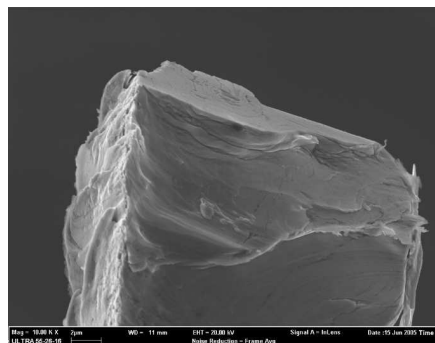
Il est important de noter que lors d'un refroidissement, il est impossible de prédire si le moteur fonctionnera à basse température. Malgré des nettoyages systématiques (acétone,



**FIG. 1.7:** Schéma de principe du moteur d'approche Pan (seuls quatre pieds sont dessinés). (a) : vue de dessus du moteur inactif, du tube et de la pointe. (b) : un pied est polarisé et glisse par cisaillement sur le prisme immobile. (c) : l'opération est répétée pour les six pieds successivement qui se retrouvent dans la même position. (d) : La tension de polarisation est remise à zéro lentement sur tous les pieds en même temps, entraînant cette fois-ci le prisme en direction de la pointe. Pour éviter le crash de la pointe, la régulation est maintenue active ce qui permet au tube de se rétracter pour compenser l'avance du dernier pas du moteur.

isopropanol) des pieds et du saphire, le moteur s'est retrouvé bloqué plusieurs fois à basse température arrêtant d'office les expériences.

### 1.2.3 Pointes



**FIG. 1.8:** Image MEB de l'apex d'une pointe de Pt/Ir coupée. La largeur de l'image est de 30  $\mu\text{m}$ .

La plupart des pointes que nous utilisons sont obtenues en sectionnant un fil de Platine/Iridium (90/10) de diamètre 0.5 ou 0.25  $\text{mm}$ . L'alliage de Pt/Ir est plus rigide que le platine pur ce qui assure des fréquences de résonance mécanique élevées, et reste par ailleurs inoxydable. Ces pointes sont encastrées dans un tube métallique de diamètre légèrement supérieur ou collées directement sur ce dernier. L'apex de la pointe n'étant absolument pas contrôlé et souvent très large (voir fig. 1.8), ces pointes peuvent induire des artefacts de double pointe<sup>6</sup> sur les échantillons à fort relief (ex : nanostructures lithographiées).

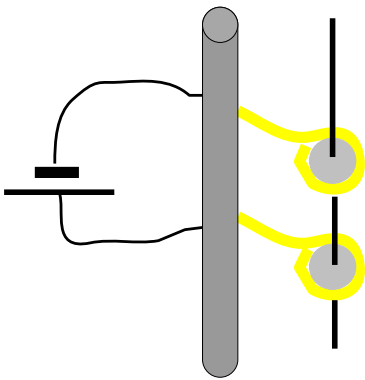
Nous avons, par ailleurs, utilisé une méthode électrochimique<sup>7</sup> permettant de fabriquer des pointes de tungstène ultra-fines. L'électro-érosion du tungstène s'obtient par une réaction d'oxydo-réduction en présence de soude<sup>8</sup>. Cette technique bien connue nécessite toutefois une petite astuce. En effet, tremper un fil de tungstène directement dans de la soude en présence d'une contre électrode produit un amincissement du fil par électro-érosion au niveau du ménisque de soude. Cependant, lorsque le fil se coupe, la pointe résultante reste toujours immergée et l'électro-érosion se poursuit et arrondit l'apex.

<sup>6</sup>Lors du balayage, deux protubérances à l'apex de la pointe peuvent "tunneler" successivement sur la même rugosité de l'échantillon provoquant sur l'image un dédoublement du relief.

<sup>7</sup>Cette méthode nous a été conseillée par H. Lesueur, P. Joyez, J. Senzier et H. Courtois.

<sup>8</sup> $W + 2HO^- + 2H_2O \longrightarrow WO_4^{2-} + 3H_2$

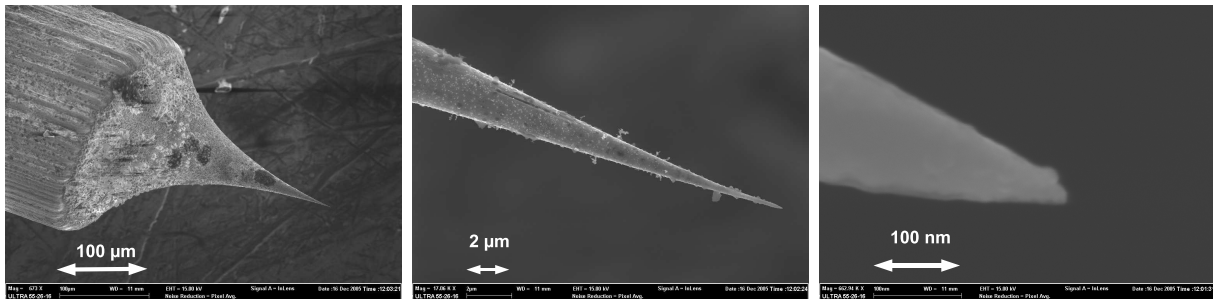




**FIG. 1.9:** Schéma du montage d'électro-érosion. Le contact électrique entre le fil de tungstène (trait vertical noir) et les électrodes en or se fait par l'intermédiaire des deux ménisques de soude (en gris).

Pour éviter ce problème, une méthode très simple illustrée par la figure 1.9 consiste à utiliser deux anneaux d'or comme électrodes, placés l'un au dessus de l'autre, et dans lesquels on dépose un film mince de soude suspendu par capillarité. En faisant traverser les deux anneaux par le fil de tungstène, les deux électrodes sont court-circuitées par ce dernier et l'électro-érosion s'effectue sur l'anneau supérieur, au niveau du ménisque soude/tungstène. Au terme de l'électro-érosion, le fil se coupe et sa partie inférieure tombe naturellement par gravité, coupant ainsi immédiatement le circuit électrique et donc l'érosion de l'apex. Pour une tension de 6 V et une solution 2M de NaOH, l'électro-érosion d'un fil de 0.25 mm de diamètre dure environ 15 min et produit des pointes se réduisant à un diamètre typique de 200 nm sur quelques micromètres, pour finir avec un apex de rayon de courbure de l'ordre de la dizaine de nanomètres (fig. 1.10). Avec de telles pointes, la qualité des images est excellente comme le prouve sur la figure 1.11 la résolution des terrasses atomiques obtenue

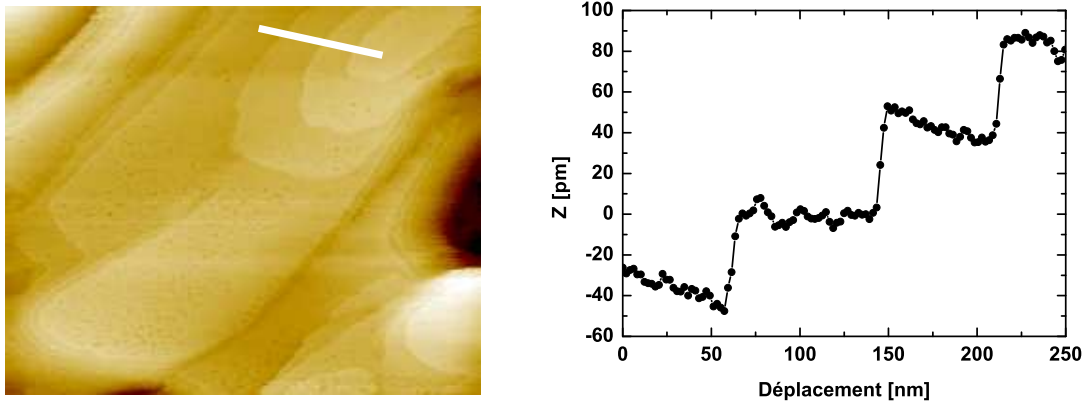
sur de l'or épitaxié<sup>9</sup>.



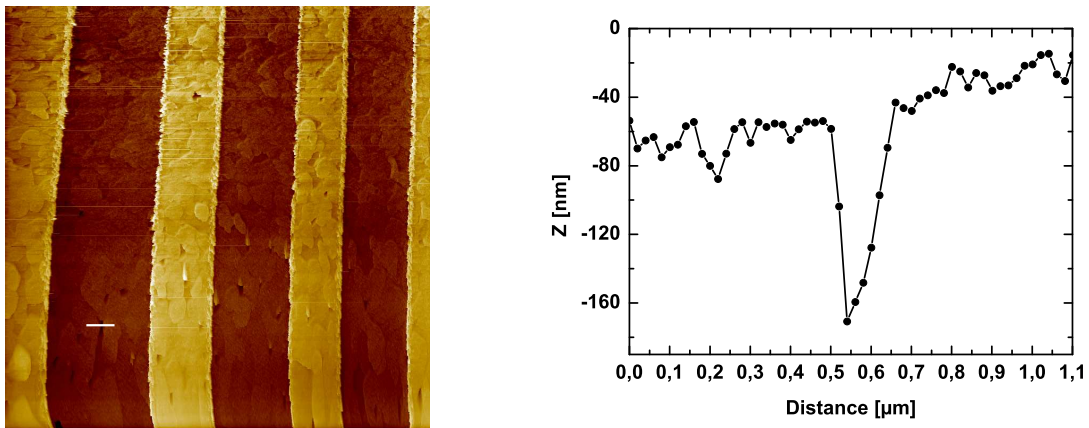
**FIG. 1.10:** Images MEB d'une pointe de tungstène obtenue par électro-chimie.

Une image STM résulte de la convolution de la topographie de la surface étudiée avec la géométrie de la pointe. Ainsi, l'étude d'échantillons de forte rugosité ou lithographiés nécessite impérativement des pointes ultra-fines. La résolution latérale pour des marches, par exemple, sera limitée par la géométrie de la pointe. La figure 1.12 présente une image STM obtenue sur de l'or épitaxié avec une pointe en tungstène électro-érodée. Les marches de 230 nm préalablement gravées sont très nettement définies et, par ailleurs, les trous présents à la surface de cet échantillon permettent de définir grossièrement la finesse de la pointe. Le profil d'un de ces trous (trait blanc sur l'image STM), figure 1.12, donne en effet une idée des dimensions maximales de l'extrémité de la pointe.

<sup>9</sup>Ce film mince d'or épitaxié sur un substrat de mica fraîchement clivé nous a été fourni par D. Mailly (LPN, Marcoussis)



**FIG. 1.11:** À gauche : Image STM de  $1 \times 0.82 \mu\text{m}^2$  obtenue sur de l'or épitaxié avec une pointe en tungstène électro-érodée. Les terrasses atomiques sont nettement résolues. À droite : le profil en Z selon le trait blanc sur l'image STM donne une hauteur de marche d'environ  $4 \text{ \AA}$  ce qui correspond au paramètre de maille de l'or :  $4.07 \text{ \AA}$ .



**FIG. 1.12:** À gauche : Image STM de  $16 \times 16 \mu\text{m}^2$  obtenue sur de l'or épitaxié avec une pointe en tungstène électro-érodée. Des lignes de  $2.5 \mu\text{m}$  ont été gravées à l'usineur après une lithographie électronique. Les bourrelets sur les bords des lignes sont certainement des résidus de flan de résine toujours difficiles à dissoudre après une gravure. À droite : profil en Z selon le trait blanc sur l'image STM.

## 1.3 Électronique de mesure

### 1.3.1 Électroniques de contrôle

L'électronique de contrôle réalise les opérations suivantes :

- acquisition du signal du courant tunnel,
- génération de la tension de polarisation de la jonction,
- génération des cinq signaux haute tension  $\{x^+, x^-, y^+, y^-, z\}$  pour le tube,
- génération des signaux haute tension pour les moteurs piézoélectriques,
- et régulation du courant tunnel.

Durant cette thèse, nous avons travaillé avec deux électroniques de contrôle dont l'une d'elle est arrivée au milieu de la thèse.

**Ancienne électronique** Fabriquée par WA-Technologies en 1997, l'électronique *TopSystem II* est construite autour d'une régulation numérique. Le contrôle du tube se fait par quatre convertisseurs numérique-analogique (CNA) 14 bits amplifiés sur  $\pm 130 V$ . Le signal de contre-réaction appliqué sur l'électrode interne du tube est, quant à lui, codé sur 20 bits et amplifié sur  $\pm 130 V$ , soit une résolution de  $0.25 mV \Leftrightarrow 0.02 \text{ \AA}$ . La tension de polarisation de la jonction  $V_b$  comprise entre  $\pm 10 V$  est générée par un CNA 12 bits. Pour la spectroscopie cette tension est divisée par 500, soit une résolution de  $10 \mu V$ . Piloté par un PC 486, l'électronique *TopSystem II* ne permet d'acquérir que 256 courbes  $I(V)$  ce qui limite fortement les études de spectroscopie. Par ailleurs, l'acquisition d'un signal supplémentaire, tel que la sortie d'une détection synchrone par exemple, n'est pas possible. Les spectres sont par conséquent enregistrés par une carte d'acquisition<sup>10</sup> synchronisée avec l'électronique via un port TTL.

**Nouvelle électronique** Fabriquée par Omicron NanoTechnology, l'électronique *Matrix* est entièrement numérique. Elle est composée de nombreux modules à tâche dédiée équipés de DSP<sup>11</sup> permettant l'évolution vers des systèmes hybrides STM/AFM. La communication entre chaque module se fait par liaison Fast-Ethernet. Les cinq signaux haute tension  $\{x^+, x^-, y^+, y^-, z\}$  sont codés sur 20 bits. Toutes les entrées et sorties analogiques sont codées en 16 bits, et contrairement à l'électronique *TopSystem II*, l'acquisition de signaux analogiques extérieurs supplémentaires est possible. L'évolution majeure par rapport à l'ancienne électronique réside dans la possibilité d'acquérir une matrice de spectre sans limitation de mémoire (cf. §2.2). Malgré le potentiel impressionnant de cette électronique, le logiciel la pilotant n'est malheureusement pas au point et nous a fait perdre de nombreuses données expérimentales. Les versions de mise à jour n'ont permis d'améliorer que la stabilité laissant les fonctionnalités au niveau le plus basique et le lancement des acquisitions particulièrement lent.

### 1.3.2 Convertisseur courant-tension

La mesure du courant tunnel d'un STM nécessite un convertisseur courant-tension (ou amplificateur de courant) de gain élevé avec une bande passante supérieure au  $kHz$ . La figure 1.13 présente le schéma de principe d'un convertisseur courant-tension standard. Dans notre cas le gain fixé par la résistance de contre-réaction est de  $10^8 V/A$ , ce qui permet de travailler sans problème dans une gamme de courant allant de 50 à  $0.05 nA$ . La bande passante, quant à elle, est limitée par la capacité de contre-réaction  $C_R$  qui coupe à environ  $\frac{1}{2\pi RC_R}$ . Cette capacité<sup>12</sup>, de l'ordre du  $pF$ , est indispensable pour couper le bruit en sortie de l'amplificateur qui augmente avec la capacité  $C_F$  (cf. légende fig. 1.13). Le bruit total de notre convertisseur courant-tension est dominé par le bruit Johnson de la résistance de contre-réaction, soit  $\sim 1.3 \mu V/\sqrt{Hz}$ , et la bande passante par la capacité du câble reliant le convertisseur à la pointe tunnel, soit  $\sim 3 kHz$ .

Cette configuration de mesure deux fils est extrêmement sensible au câble reliant la pointe et l'amplificateur de courant. Sa longueur doit être la plus courte possible de manière à réduire  $C_F$  au maximum. Par ailleurs, les mesures de très faibles courants sur de fortes

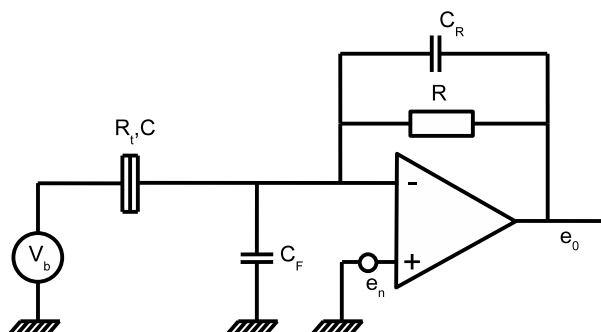
---

<sup>10</sup>Keithley DAS 1802ST (12 bits).

<sup>11</sup>Digital Signal Processor.

<sup>12</sup>Cette capacité est fabriquée et ajustée au laboratoire.





**FIG. 1.13:** Schéma de l'amplificateur de courant. La jonction tunnel est modélisée par une résistance tunnel  $R_t$  en parallèle avec une capacité  $C$ .  $C_F$  est la capacité du fil de mesure du courant tunnel.  $C_R$  est la capacité de contre-réaction.  $e_n$  représente le générateur de bruit de l'amplificateur ramené à l'entrée tandis que  $e_0$  est le bruit en sortie de formule  $e_0 = e_n \frac{1+f/f_R}{1+f/f_F}$  avec  $f_F = 1/2\pi RC_F$ ,  $f_R = 1/2\pi R(C_R + C_F)$ . Pour l'amplificateur opérationnel utilisé, AD795,  $e_n = 9nV/\sqrt{Hz}$  à 10 kHz.

impédances sont particulièrement sensibles au bruit tribologique des câbles coaxiaux. En présence de vibrations mécaniques, le frottement de la gaine des câbles avec le diélectrique provoque des fluctuations de charge dans le diélectrique et donc des fluctuations de courant. Ce bruit disparaît avec des câbles "faible bruit" dont le diélectrique est recouvert d'un vernis conducteur ce qui permet d'évacuer les charges parasites<sup>13</sup>.

## 1.4 Cryogénie

Durant cette thèse, la quasi totalité des mesures STM ont été effectuées en dilution sauf quelques unes dans le cryostat à bain d' $^4He$  pompé atteignant 1.6 K. Par conséquent, nous ne décrirons dans cette section que le cryostat à dilution<sup>14</sup>.

### 1.4.1 Dilution inversée

#### Sionludi

La dilution inversée, aussi appelée *Sionludi*, repose sur le même principe cryogénique qu'une dilution standard, à savoir le pompage de la pression de vapeur saturante d' $^3He$  dilué dans de  $^4He$  superfluide. Par contre, sa conception est quelque peu différente. Alors que le circuit de dilution est habituellement situé dans la partie basse du système cryogénique de manière à pouvoir tremper ce dernier dans un bain  $^4He$  liquide, la partie froide d'un Sionludi est au sommet du cryostat avec le calorimètre directement à température ambiante. Le sionludi compte cinq étages (100, 20, 4.2, 1, 0.05 K) maintenus les uns aux autres par des tubes en verre époxy réduisant fortement les couplages thermiques tout en garantissant une bonne rigidité mécanique. Les pertes par rayonnement thermique sont limitées par des écrans en cuivre vissés sur chaque étage. L'absence de bain à 4.2 K nécessite un circuit de pré-refroidissement spécifique. Installé directement sous la dilution, un vase d' $^4He$  liquide maintenu sous pression (typiquement 50 mBar), permet de faire circuler de  $^4He$  jusqu'à l'étage à 4.2 K dans un circuit distinct du circuit de dilution. Pour refroidir

<sup>13</sup>Cet effet est facilement observable, notamment en régime de dilution : une mesure de bruit avec l'amplificateur de courant branché sur un câble coaxial "normal" révèle les vibrations mécaniques du système cryogénique transmises au câble. Par contre, l'amplificateur branché sur le câble coaxial "faible bruit" ne produit que le bruit Johnson de la résistance de contre-réaction.

<sup>14</sup>Pour la description du cryostat à 1.6 K, voir [145, 36].

les étages supérieurs de  $300\text{ K}$  à  $4.2\text{ K}$ , le mélange  $^3\text{He}/^4\text{He}$  est injecté à fort débit dans un circuit d'injection rapide (i.e. sans impédance de condensation) et thermalisé à  $4.2\text{ K}$  par un échangeur à contre-courant par lequel sont évacuées les vapeurs d' $^4\text{He}$ . Deux autres circuits d'injection permettent d'atteindre  $1.5\text{ K}$  pour le premier (par une détente Joule-Thomson) et le régime de dilution pour le second, soit  $45\text{ mK}$ . Cette dilution ne dispose pas de pot à  $1.2\text{ K}$ . Le mélange arrive, par conséquent, à une température élevée, environ  $4.2\text{ K}$ , dans l'impédance de condensation précédant le bouilleur. Pour que la détente Joule-Thomson condense le mélange dans ces conditions, l'impédance et donc la pression d'injection (typiquement  $700\text{ mbar}$ ) sont augmentées par rapport à une dilution standard. Un compresseur en aval de la pompe étanche permet d'une part de faire circuler le mélange à fort débit pendant la phase de refroidissement à  $4.2\text{ K}$ , et d'autre part de supporter la pression d'injection en régime de dilution.

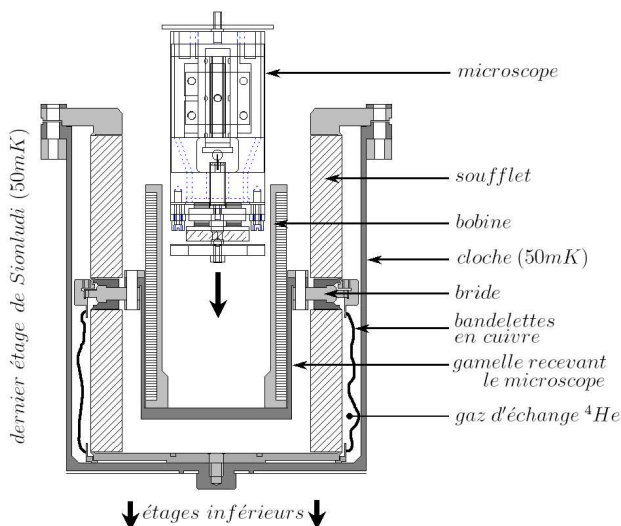
La procédure de refroidissement est assez longue :

- pompage calorimètre : une nuit,
- refroidissement  $4.2\text{ K}$  :  $\sim 18$  heures (circuit d'injection rapide),
- refroidissement  $1.5\text{ K}$  :  $\sim 1$  heure (circuit d'injection moyen),
- refroidissement  $50\text{ mK}$  :  $\sim 8$  heures (circuit d'injection lent),

soit trois jours en comptant le montage du STM dans la dilution. Pendant toutes ces étapes, une attention particulière doit être bien évidemment portée sur le STM afin d'éviter un crash de la pointe (cf. §1.4.2).

Un problème de bouchage a fortement limité les expériences pendant une bonne moitié de la thèse. L'autonomie du cryostat était réduite à 5 jours. Le déplacement du piège à azote de l'amont à l'aval du tableau de vannes, soit au plus près du cryostat, a résolu de façon définitive ce problème. Le refroidissement le plus long a duré 21 jours sans bouchage.

### Amortissement mécanique



**FIG. 1.14:** Schéma de l'installation du microscope et de la bobine de champ sur l'étage à  $50\text{ mK}$ .

L'avantage principal de ce cryostat réside dans la place importante accessible sur l'étage à  $45\text{ mK}$  permettant l'installation d'un STM avec son système d'amortissement mécanique associé. Dans notre cas, le microscope est isolé des vibrations par un système de soufflet en deux parties représenté sur la figure 1.14. Le tout est installé dans une cloche en cuivre directement vissée sur la boîte de mélange. L'espace entre le soufflet et la cloche emprisonne 1 bar d'hélium gazeux permettant la thermalisation rapide du soufflet au moins jusqu'à  $300\text{ mK}$ <sup>15</sup>. Une gamelle de fixation du microscope est vissée sur une bride en cuivre soudée aux deux soufflets. En raison de la très mauvaise conduction thermique des soufflets en acier inoxydable, des bandelettes de cuivre reliant la bride au socle de la cloche sont nécessaires pour

<sup>15</sup>En deçà, la pression de vapeur saturante d'hélium devient trop faible.

thermaliser le microscope à la température de la boîte de mélange. Une bobine supraconductrice<sup>16</sup> peut être installée dans la gamelle, autour du microscope, induisant un champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon ( $H_{max} \sim 0.3 T$ ).

### Câblage

Tous les câbles d'amenée de tension sont des câbles 6 brins en inox isolés par une gaine téflon à l'intérieur d'une tresse inox. Cette dernière est thermalisée sur tous les étages de la dilution. Les brins relient, quant à eux, directement les connecteurs à 300 K aux relais kaptons (film de polyimide) de la cloche à 50 mK. De là repartent 31 fils en cuivre vers le microscope. Le câble de polarisation de l'échantillon est un coax en inox et celui du courant tunnel est un câble faible bruit fabriqué en partie au laboratoire [145]. En supposant que le microscope est correctement isolé mécaniquement de la dilution grâce au soufflet, les vibrations mécaniques dues à la circulation des fluides cryogéniques sont principalement transmises par les fils reliant le microscope. Ces derniers doivent par conséquent être les plus fins et les plus souples possibles.

### 1.4.2 Refroidissement du STM : mode contrôle

Refroidir le sionludi est quelque peu routinier, par contre, maintenir une pointe de qualité à basse température reste toujours une entreprise périlleuse. La difficulté provient des dilatations thermiques inévitables du microscope qui tendent à approcher l'échantillon de la pointe lors du refroidissement. Pour éviter un crash, une solution évidente consiste à reculer suffisamment l'échantillon avant le refroidissement puis refaire une approche à basse température. En pratique l'efficacité du moteur n'est pas toujours garantie à basse température ; nombreux ont été les refroidissements avortés pour cause de moteur en Z bloqué. C'est pourquoi nous préférons garder l'échantillon le plus près possible de la pointe. Pour ce faire, nous avons développé un système automatisé permettant de reculer le moteur en Z dès qu'un courant tunnel apparaît du fait de la dilatation des matériaux<sup>17</sup>. La procédure consiste à lancer le refroidissement avec l'échantillon à quelques pas de la pointe et de maintenir le tube allongé au maximum. Puis, dès qu'un courant tunnel apparaît, le tube est instantanément rétracté et le moteur en Z fait quelques pas en arrière au-delà de la zone d'excursion de la pointe. Une rampe en tension permet ensuite d'allonger lentement le tube tout en mesurant simultanément le courant tunnel au cas où l'échantillon ne serait pas assez reculé.

Ce système, appelé *mode contrôle*, fonctionne avec une carte d'acquisition<sup>18</sup> disposant de sorties analogiques 16 bits. La difficulté technique réside dans la synchronisation de la tension pilotant l'électrode Z du tube et la mesure continue du courant tunnel. La sensibilité du courant tunnel avec la distance nécessite un contrôle précis du tube et donc une source de tension 16 bits<sup>19</sup>. Cependant, il n'est pas envisageable de réaliser en quelques secondes

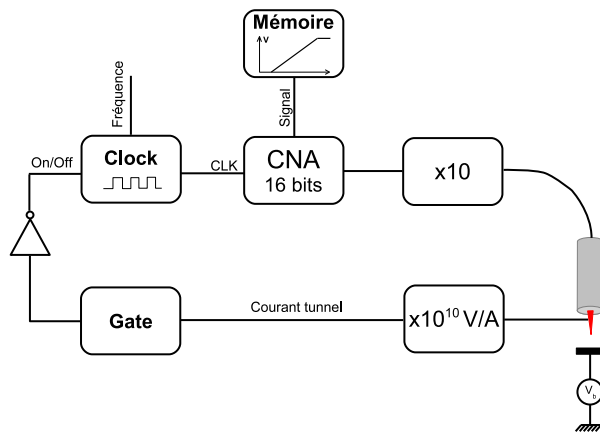
---

<sup>16</sup>Le champ magnétique théoriquement accessible avec le fil utilisé est de  $1.2 T$ , cependant le fil a été endommagé lors du bobinage créant un court-circuit à la masse de quelques ohms.

<sup>17</sup>Lors d'un refroidissement, le moteur recule d'environ 200 pas ce qui correspond à une dilatation de quelques micromètres.

<sup>18</sup>Keithley KUSB 3116 pilotée sous TestPoint.

<sup>19</sup>Un bit de résolution correspond théoriquement après amplification par 10 de la tension à  $\frac{20V \times 10}{2^{16}} \times 10 \text{ nm}/V = 0.3 \text{ \AA}$  de déplacement vertical du tube.



**FIG. 1.15:** Schéma synoptique du système de contrôle. Le CNA produit une rampe de  $-10$  à  $+10$  V codée sur 16 bits, et préalablement stockée dans un registre. Un amplificateur haute tension multiplie ce signal par 10 pour attaquer l'électrode Z du tube. L'horloge du CNA est donnée par un compteur (Clock) lui-même activé par une porte logique (Gate). Le seuil de déclenchement de la porte est de 1.3 V et son temps de réponse est de 55 ns. En amplifiant par 100 la sortie du convertisseur courant-tension, soit un gain total de  $10^{10}$  V/A, le système déclenche pour un courant tunnel de 0.13 nA.

une rampe de  $2^{16}$  valeurs de tension, de mesurer à chaque incrément le courant tunnel et d'effectuer un test logiciel pour continuer ou arrêter la rampe. Nous avons choisi une méthode *temps réel matériel* décrite figure 1.15. La rampe est prédéfinie dans un registre de la carte d'acquisition. Le CNA incrémente les valeurs de ce registre à la fréquence d'une horloge qui est générée par un compteur interne. Ce dernier est activé par une porte logique qui permet de déclencher l'horloge avec un signal externe. Ainsi, en pilotant le compteur interne avec la sortie du convertisseur courant-tension et en inversant le signal de la porte logique, le CNA produit la rampe tant que la porte logique est inférieure à son seuil. Dès que le tube entre en contact tunnel, la tension en sortie du convertisseur courant-tension active la porte qui elle-même désactive immédiatement l'horloge du CNA. Pour garantir une détection du courant tunnel sans crash, la fréquence du compteur est à la limite de la bande passante de l'amplificateur de tension, soit  $\sim 2$  kHz.



# Chapitre 2

## Spectroscopie tunnel à balayage

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Spectroscopie tunnel</b>	<b>20</b>
2.1.1	Courant tunnel à travers une jonction	20
2.1.2	Cas d'une jonction métal-isolant-métal	21
2.1.3	Cas d'une jonction métal-isolant-supraconducteur	22
<b>2.2</b>	<b>Mesure de la conductance tunnel</b>	<b>23</b>
<b>2.3</b>	<b>Résolution énergétique</b>	<b>23</b>
<b>2.4</b>	<b>Imagerie de Vortex</b>	<b>26</b>

---

## Introduction

La spectroscopie à effet tunnel avec un STM est drastiquement dépendante de la qualité de la jonction. Les critères principaux pour juger de l'état de la jonction sont [42] : la qualité des images, l'indépendance des images et des spectres avec la valeur du courant tunnel, i.e. de la résistance tunnel, et évidemment une dépendance exponentielle du courant avec la distance pointe-échantillon. Ces conditions sont délicates à obtenir dans notre système car d'une part les échantillons sont préparés à l'air, et d'autre part les occasions de crash durant le refroidissement sont nombreuses. Les images de qualité, notamment avec une résolution atomique, ne peuvent s'obtenir qu'avec des échantillons préparés in-situ ou clivés sous ultravide afin d'éviter toute contamination ou oxydation de la surface. Dans notre cas seuls quelques matériaux aux surfaces inertes se prêtent aux mesures STM à basse température : l'or, le graphite, le diamant conducteur dopé au bore,  $NbSe_2$  fraîchement clivé, mais aussi le nobium qui, malgré ses oxydes natifs en surface, permet d'obtenir des images de qualité correcte. Par ailleurs, la spectroscopie des supraconducteurs conventionnels s'effectue à basse tension, de l'ordre du millivolt, ce qui impose une distance pointe-échantillon très faible et une impédance tunnel basse, i.e.  $\sim 1 - 10 M\Omega$ . Dans ces conditions, les images de qualité sont rares et les effets de double pointe fréquents.

Dans ce chapitre, nous décrivons, dans un premier temps, le principe de la spectroscopie tunnel. Nous abordons ensuite la méthode de mesure ainsi que ses limitations, notamment en terme de résolution énergétique. La dernière section présente l'une des applications les plus remarquables de la spectroscopie tunnel à balayage : la visualisation du réseau d'Abrikosov formé par des vortex supraconducteurs.

## 2.1 Spectroscopie tunnel

Nous présentons, ici, une description théorique de l'effet tunnel basée sur la règle d'or de Fermi qui permet de traiter perturbativement le Hamiltonien tunnel.

### 2.1.1 Courant tunnel à travers une jonction

Le transfert tunnel d'électrons entre deux électrodes métalliques à travers une barrière isolante se décrit à l'aide du Hamiltonien tunnel :

$$H_T = \sum_{gd} t_{gd} c_g^\dagger c_d + h.c. \quad (2.1)$$

$c_g^\dagger$  et  $c_d$  sont les opérateurs de création et d'annihilation de quasiparticules. Les états propres indexés par les indices  $g$  et  $d$  sont localisés respectivement à gauche et à droite de la barrière. L'élément de matrice  $t_{gd}$  mesure le recouvrement des fonctions d'onde dans la barrière isolante. Il dépend de la géométrie de la jonction et des fonctions d'onde électroniques de chaque électrode. En première approximation, la décroissance exponentielle des fonctions d'onde dans la barrière se traduit par une dépendance exponentielle de  $|t_{gd}|^2$  avec l'épaisseur de la barrière (cf. éq. 1.1). Le Hamiltonien tunnel  $H_T$  couple, par conséquent, les deux électrodes : un électron est détruit dans une électrode et créé dans l'autre.

Dans un modèle d'électrons libres, le Hamiltonien décrivant la jonction est  $H = H_0 + H_T$ , où  $H_0 = \sum_g \epsilon_g c_g^\dagger c_g + \sum_d \epsilon_d c_d^\dagger c_d$ . Du fait du recouvrement exponentiellement faible

des fonctions d'onde,  $|t_{gd}|^2$  est exponentiellement petit, et le Hamiltonien tunnel peut être traité en perturbation. Le taux de transfert tunnel<sup>1</sup> total  $\vec{\Gamma}(V)$  de l'électrode gauche vers l'électrode droite est alors donné par la règle d'or de Fermi :

$$\begin{cases} \vec{\Gamma}(V) = \sum_{d,g} \Gamma_{d \rightarrow g} (1 - f_d(\epsilon_d)) f_g(\epsilon_g) \\ \Gamma_{d \rightarrow g} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle d | H_T | g \rangle|^2 \delta(\epsilon_g - \epsilon_d + eV) \end{cases} \quad (2.2)$$

où  $f_{d,g}(\epsilon)$  est la distribution de Fermi-Dirac des électrons respectivement dans l'électrode de gauche et de droite, et  $V$  la tension appliquée à la jonction (cf. fig. 1.1). Le courant total  $I(V) = e(\vec{\Gamma}(V) + \overleftarrow{\Gamma}(V))$  à travers la barrière tunnel devient :

$$I(V) = \frac{4\pi^2}{eR_Q} \sum_{d,g} |t_{gd}|^2 \delta(\epsilon_g - \epsilon_d + eV) [f_g(\epsilon_g) - f_d(\epsilon_d)] \quad (2.3)$$

où  $R_Q = h/e^2$  est le quantum de résistance.

Remplaçons maintenant l'élément de matrice  $|t_{gd}|^2$  par sa valeur moyenne  $|t|^2$  que nous supposons indépendante de l'énergie lorsque la tension  $V$  est très petite devant l'énergie de Fermi  $E_F$ . En transformant la somme en intégrale, l'équation (2.3) devient :

$$I(V) = \frac{4\pi^2}{eR_Q} |t|^2 \int dE N_g(E) N_d(E + eV) [f_g(E) - f_d(E + eV)] \quad (2.4)$$

où  $N_g(E)$  et  $N_d(E)$  sont les densités d'états respectivement dans l'électrode de gauche et de droite.

### 2.1.2 Cas d'une jonction métal-isolant-métal

Pour des électrons libres, les densités d'états varient à l'échelle de l'énergie de Fermi, et peuvent donc être remplacées par leur valeur au niveau de Fermi  $N_{d,g}$ . L'intégrale restante dans (2.4) est simplement égale à la différence de potentiel  $eV$ . Ceci conduit, pour la cas de deux électrodes métalliques, à une relation courant-tension linéaire :

$$I(V) = \frac{V}{R_T} \quad (2.5)$$

---

<sup>1</sup>Ici, nous faisons une approximation importante : nous considérons un transfert tunnel élastique. Théoriquement, la densité d'états en présence d'interaction est définie et calculée comme étant proportionnelle à la probabilité d'annihiler (ou créer) un électron à une énergie et un point donnés. Or, on ne peut pas annihiler un électron mais seulement l'extraire d'un endroit et mesurer son énergie. Mais s'il y a une interaction par laquelle l'électron peut perdre ou gagner de l'énergie lorsqu'il est extrait, le transfert tunnel devient inélastique [70]. C'est le cas notamment du blocage de Coulomb dynamique pour lequel un électron tunnel est susceptible d'exciter des modes électromagnétiques de son environnement et ainsi d'échanger de l'énergie lors du transfert tunnel. Dans le cadre de la théorie phénoménologique du Blocage de Coulomb dynamique [70], le taux de transfert tunnel entre deux électrodes métalliques se réécrit :

$$\vec{\Gamma}(V) = \frac{1}{e^2 R_T} \int dE dE' f(E) [1 - f(E' + eV)] P(E - E')$$

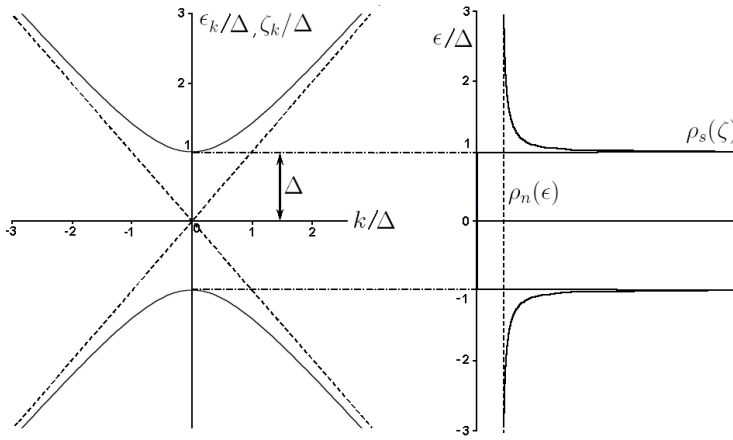
où  $P(E)$  est la probabilité d'échanger l'énergie  $E$  avec l'environnement électromagnétique de la jonction, i.e. la probabilité d'émettre un photon d'énergie  $E$ . Cette description s'applique, par exemple, lorsque le système est sujet à un renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre qui conduit à une anomalie de la densité d'états au niveau de Fermi (cf. §5.1.1) [111].



où  $R_T = R_Q/4\pi^2 N_d N_g |t|^2$  est la résistance tunnel de la jonction.

### 2.1.3 Cas d'une jonction métal-isolant-supraconducteur

Dans le cas où une seule des deux électrodes est métallique (e.g. la pointe d'un STM), l'intégrale dans (2.4) ne dépend plus que de la densité d'états de la seconde électrode (e.g. l'échantillon). La mesure de la caractéristique courant-tension d'une telle jonction permet, par conséquent, de sonder la densité d'états d'un système électronique quelconque et d'accéder ainsi au spectre des excitations électroniques de basse énergie.



**FIG. 2.1:** Spectre des excitations élémentaires et densité d'états à une particule correspondante, dans l'état supraconducteur BCS (courbe pleine) et dans l'état normal (courbe pointillée).

Lorsque l'échantillon est supraconducteur, par exemple, une bande interdite ("gap") s'ouvre dans le spectre des excitations à une particule (cf. fig. 2.1). Dans le cadre de la théorie de champ moyen de Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS), ce spectre est égal à  $E_k = \sqrt{\xi_k^2 + \Delta^2}$ , où  $\xi_k = \epsilon_k - E_F$  est l'énergie d'une quasiparticule rapportée au niveau de Fermi, et  $\Delta$  est le gap BCS supraconducteur [31]. La densité d'états à une particule du supraconducteur se déduit de la correspondance entre les excitations à une particule dans l'état supraconducteur et celles dans la phase normale, soit  $N_s(E)dE = N_n(\xi)d\xi$ . Comme la densité d'états dans la phase normale,  $N_n(\xi)$ , varie peu dans la gamme d'énergie du gap supraconducteur (de l'ordre de  $10^{-3}eV$ ), on peut la remplacer par sa valeur au niveau de Fermi  $N(0)$ . La densité d'états du supraconducteur  $N_s(E)$  devient alors :

$$\frac{N_s(E)}{N_n(0)} = \frac{d\xi}{dE} = \begin{cases} \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}} & (|E| > \Delta) \\ 0 & (|E| < \Delta) \end{cases} \quad (2.6)$$

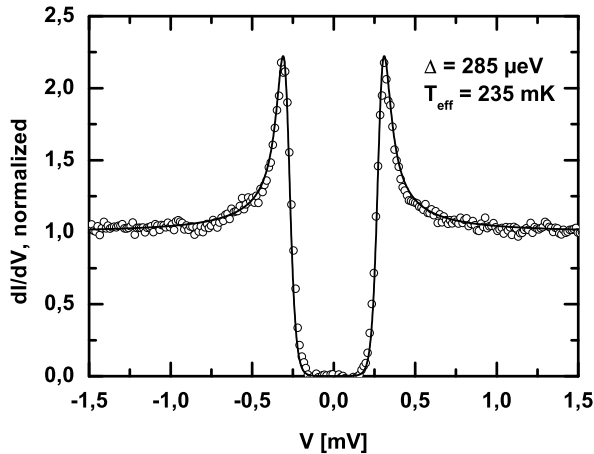
Il est parfois utile d'introduire un terme imaginaire à l'énergie, noté  $\Gamma$  dans la littérature :  $E \rightarrow E + i\Gamma$ . Ce terme a été introduit par Dynes *et al.* [33] pour tenir compte phénoménologiquement du temps de vie fini des excitations. Il correspond à un terme de brisure de paires ("pair-breaking").

## 2.2 Mesure de la conductance tunnel

La conductance différentielle de la jonction tunnel du STM s'obtient avec une technique standard de détection synchrone<sup>2</sup>. En maintenant la distance pointe-échantillon constante (régulation du microscope bloquée), une modulation sinusoïdale  $V_{ac}$  ajoutée à une rampe en tension appliquée à l'échantillon permet de mesurer la caractéristique  $I(V)$  de la jonction ainsi que sa conductance différentielle  $G(V) = \frac{dI}{dV}$  (cf. éq. (2.4)). On accède ainsi à la densité d'états locale (LDOS)  $N_{ech}(\mathbf{x}, eV)$  au point  $\mathbf{x}$ , convoluée avec la dérivée de la fonction de Fermi-Dirac  $f_p(\epsilon)$  qui décrit la distribution thermique des états d'énergie de la pointe :

$$G(\mathbf{x}, V) = \frac{dI}{dV}(\mathbf{x}, V) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon N_{ech}(\mathbf{x}, \epsilon) [-f'_p(\epsilon - eV)] \quad (2.7)$$

La figure 2.2 présente une mesure caractéristique de la conductance différentielle obtenue sur une couche mince de diamant monocristallin rendu supraconducteur par dopage au bore [115]. La densité d'états BCS (2.6) insérée dans l'éq. (2.7) permet de reproduire parfaitement la conductance tunnel mesurée et ainsi d'extraire la valeur du gap supraconducteur.



**FIG. 2.2:** Courbe en point : conductance différentielle normalisée, mesurée à 50 mK sur du diamant dopé au bore, avec une modulation  $V_{ac} = 10 \mu V$ . Trait continu : ajustement BCS donnant  $\Delta = 285 \mu eV$  et  $T_{eff} = 235 mK$ .

L'évolution spatiale de la LDOS est accessible grâce au mode CITS<sup>3</sup> (Continuous Imaging Tunneling Spectroscopy) qui permet de quadriller une image de spectres. Ce mode enregistre un maillage de spectres avec un pas prédéfini tout en enregistrant la topographie, ce qui permet notamment de corrélérer l'évolution de la LDOS avec le relief. En pratique, une acquisition de 5 000 spectres dure environ 12 heures.

## 2.3 Résolution énergétique

La température utilisée dans l'éq. 2.7 pour reproduire des données de la figure 2.2 est plus élevée que la température du porte échantillon indiquée par le thermomètre. Ceci traduit notre limite de résolution énergétique que l'on peut définir par la largeur à mi-hauteur de la dérivée de la distribution de Fermi, soit  $2 \ln(3 + 2\sqrt{2}) k_B T_{eff} \simeq 3.5 k_B T_{eff}$ . Les

<sup>2</sup>La dérivation numérique de la courbe  $I(V)$  est aussi envisageable. L'algorithme de dérivation doit être développé avec soin. Une méthode simple consiste à convoluer la courbe  $I(V)$  avec la dérivée d'une gaussienne produisant automatiquement la dérivée  $dI/dV$ , filtrée avec une moyenne pondérée glissante.

<sup>3</sup>Disponible sur l'électronique *Matrix* d'Omicron Nanotechnology.

températures effectives mesurées, typiquement comprises entre  $230-300\text{ mK}$ , correspondent à une résolution énergétique de l'ordre de  $\sim 70-90\ \mu\text{eV}$ . Pour comparaison, les températures effectives des STM en dilution développés par H. Courtois [103] et P. Joyez [85] sont de l'ordre de  $150\text{ mK}$  et  $45\text{ mK}$  respectivement. Cette température effective mesurée par spectroscopie tunnel de supraconducteurs est une mesure précise de la température du gaz d'électrons de la pointe [54]. Son écart à la température du bain de phonons mesurée par le thermomètre traduit un problème de thermalisation électronique. Dans un métal, les mécanismes de thermalisation du gaz d'électrons font intervenir des processus inélastiques : interactions électron-électron, couplage avec les phonons, couplage avec les radiations électromagnétiques ainsi qu'avec les fluctuations électromagnétiques de l'environnement. À basse température, la thermalisation par les phonons est peu efficace rendant le gaz d'électrons particulièrement sensible au rayonnement thermique des parties chaudes du cryostat. D'autre part, l'écart entre la température effective et la température mesurée par le thermomètre peut aussi s'expliquer par la présence d'un bruit en tension aux bornes de la jonction réduisant la résolution énergétique, et produisant, artificiellement, l'effet d'un échauffement.

**Rayonnement électromagnétique** À basse température, la puissance échangée avec le bain de phonons, variant comme  $P_{e-ph} \propto (T_e^5 - T_{ph}^5)$ , est négligeable devant la puissance échangée avec les radiations électromagnétiques [121]. Il a été montré que le flot de chaleur échangée avec un bain de photons à la température  $T_{em} = h\nu/k_B$  à travers les lignes de mesure<sup>4</sup> devient le mécanisme dominant à basse température avec une loi en  $P_{e-em} \propto (T_e^2 - T_{em}^2)$  [121]. Il est donc indispensable de filtrer le rayonnement thermique provenant des parties chaudes des lignes de mesure. Dans l'idéal, toutes les lignes doivent être filtrées à chaque étage de la dilution par un filtre passe-bas de fréquence de coupure  $\sim k_B T_{filtre}/h$ , soit par exemple  $1\text{ GHz}$  pour l'étage à  $50\text{ mK}$ .

**Bruit basse fréquence** H. le Sueur et P. Joyez ont récemment mis en évidence l'importance du bruit en tension généré aux bornes de la jonction par l'électronique de mesure [85]. Dans un dispositif expérimental, la tension n'est jamais parfaitement fixée, sans aucune fluctuation aux bornes de la jonction. Prendre en compte les fluctuations revient à caractériser la tension de polarisation  $V$  par une fonction de distribution  $P(V)$  de moyenne  $\bar{V} = \int VP(V)dV$ . La mesure de la conductance différentielle de la jonction (éq. (2.7)) est alors moyennée sur ces fluctuations de tension :

$$\langle G(V) \rangle(\bar{V}) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(V)P(V)dV. \quad (2.8)$$

Ainsi, le bruit en tension diminue la résolution énergétique et apparaît sous forme d'une température effective<sup>5</sup> anormalement élevée lorsque l'équation (2.7) est utilisée.

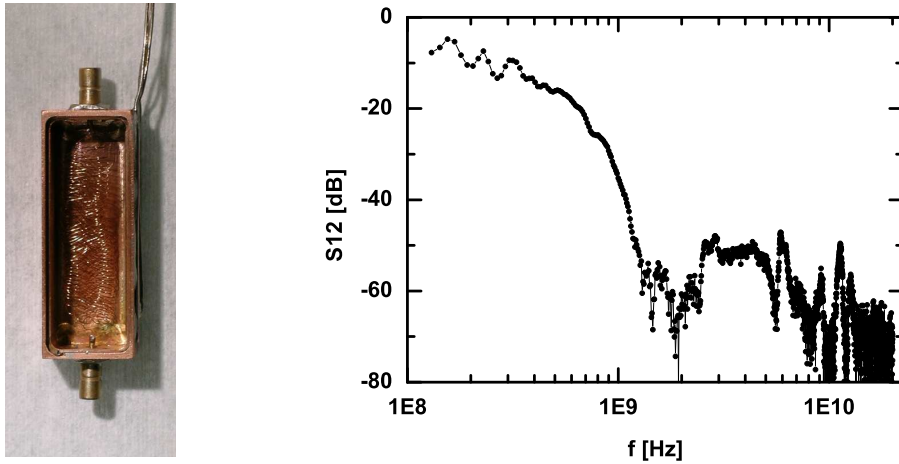
Avec un convertisseur courant-tension (CCT) standard (cf. §1.3.2), il est difficile d'avoir une mesure précise de la tension réelle appliquée aux bornes de la jonction car la tension de référence du CCT, i.e. la masse à chaud du cryostat, est physiquement séparée de l'électrode

---

<sup>4</sup>Le rayonnement thermique émis dans le vide est lui aussi négligeable puisque la loi de Stephan donne  $P \propto T^4$ .

<sup>5</sup>Pour une distribution gaussienne  $P(V)$  d'écart-type  $V_n$ , la température effective est donnée par  $T_{eff} = \sqrt{T^2 + 3(eV_n/k_B\pi)^2}$ . Avec cette hypothèse, notre température effective de  $0.3\text{ K}$  à  $T = 0.05\text{ K}$  correspondrait à  $V_n = 46\ \mu\text{V}$ .

de la jonction. En effet, les f.e.m. induites par couplage inductif aux champs magnétiques basse fréquence des deux câbles coaxiaux de la jonction (courant tunnel et polarisation) sont une source de bruit potentielle. De plus, les blindages de ces câbles étant soudés à tous les étages de la dilution, de nombreuses boucles de masse sont présentes dans ce câblage. Des courants de mode commun sont alors susceptibles de circuler et d'être transmis par couplage capacitif à l'âme des câbles et donc à la jonction. Le câblage optimal s'obtient avec une paire torsadée blindée donnant une meilleure immunité aux champs magnétiques et permettant une mesure différentielle de la tension aux bornes de la jonction.



**FIG. 2.3:** À gauche : photographie d'un filtre à poudre vide ; à droite : coefficient de transmission haute fréquence d'un filtre mesuré avec un analyseur de réseau Hewlett-Packard 8720B. Environ un mètre de fil de manganin est bobiné en huit formant ainsi un double bobinage en sens opposé. Le fil est soudé sur deux embases SMB, elles-mêmes soudées au boîtier en cuivre de  $40 \times 15$  mm. Une fois rempli avec de la poudre d'inox de diamètre moyen  $60 \mu\text{m}$ , le boîtier est scellé avec un couvercle en cuivre pressant un joint indium. Ses caractéristiques DC sont typiquement de l'ordre de  $20 \Omega$  et  $35 \text{ pF}$ . À haute fréquence, l'analyseur de réseau atteint son seuil limite de détection à  $\gtrsim 1 \text{ GHz}$ .

**Solutions envisagées** Concernant notre système, aucun filtre à froid n'est installé et, par ailleurs, il est peu probable que le soufflet formant une surface d'inox importante, soit correctement thermalisé. L'amélioration de l'environnement électromagnétique de la jonction a été engagée à la fin de cette thèse. Dans un premier temps, nous avons choisi d'installer des filtres à poudre [95, 22] sur l'étage à  $4.2 \text{ K}$  et à l'étage de la boîte de mélange, pour le câble de polarisation  $V_b$  et pour celui du courant tunnel. Ces filtres haute fréquence sont constitués d'un fil résistif bobiné dans un boîtier métallique lui-même rempli d'une poudre d'inox ultra-fine (cf. fig. 2.3). Le principe repose simplement sur l'effet de peau apparaissant dans les conducteurs à haute fréquence. En effet, puisque le courant ne circule que sur une faible épaisseur du conducteur  $\delta = \sqrt{\frac{2\rho}{\omega\mu}}$ , où  $\rho$  est la résistivité,  $\mu$  la perméabilité magnétique et  $\omega$  la fréquence, la résistance traversée par ce courant haute fréquence est d'autant plus grande que la fréquence est élevée<sup>6</sup>, formant ainsi un filtre passe-bas. Grâce à la poudre, la dissipation a lieu sur une surface d'inox considérable. Ainsi, les modes électromagnétiques

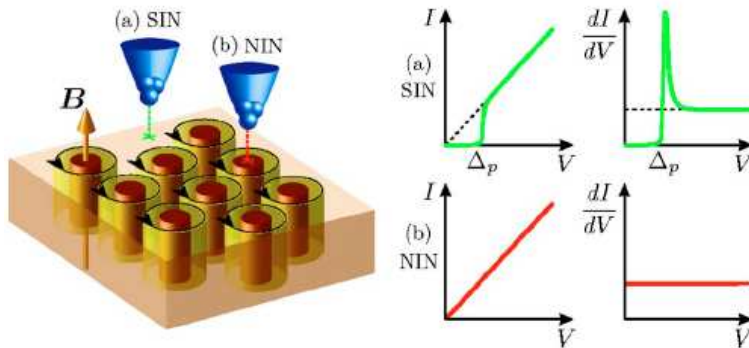
<sup>6</sup>Pour une fil de diamètre  $D$  et de longueur  $L$ , la résistance AC est  $R = \frac{\rho}{\delta} \frac{L}{\pi(D-\delta)} \approx \frac{\rho L}{\pi D \delta}$ .

se propageant dans le câble coaxial entrent dans une cavité dans laquelle le diélectrique est remplacé par une poudre fortement dissipative. La mesure du coefficient de transmission d'un tel filtre atteint le seuil de bruit de l'analyseur de réseaux aux fréquences  $\gtrsim 1 \text{ GHz}$  (cf. fig. 2.3), coupant ainsi tout rayonnement thermique de température  $\gtrsim 50 \text{ mK}$ .

Concernant l'électronique de mesure, un CCT s'inspirant de [85] est en court de développement au laboratoire. Dans cette nouvelle configuration, la pointe est cette fois-ci polarisée alors que l'échantillon est à la masse. Pour obtenir une mesure précise de la tension aux bornes de la jonction ainsi que du courant tunnel, cette masse à froid est comparée au préalable à la tension de polarisation  $V_b$  de la pointe par un étage amplificateur différentiel bas bruit. Cette différence correspondant à la tension mesurée aux bornes de la jonction est alors utilisée comme référence de tension pour le CCT.

Notre câblage n'est pas non plus favorable. Les câbles coaxiaux souples utilisés pour des mesures d'impédances élevées sont très sensibles au bruit tribologique. Ce bruit résulte du frottement mécanique de la tresse d'un câble coaxial sur le diélectrique provoquant des fluctuations de charges. Seul le câble du courant tunnel est bas-bruit. Celui amenant la polarisation est "standard" pouvant générer un bruit en tension conséquent due aux vibrations de la dilution. Le câble idéal serait donc une paire torsadée blindée et faible bruit.

## 2.4 Imagerie de Vortex



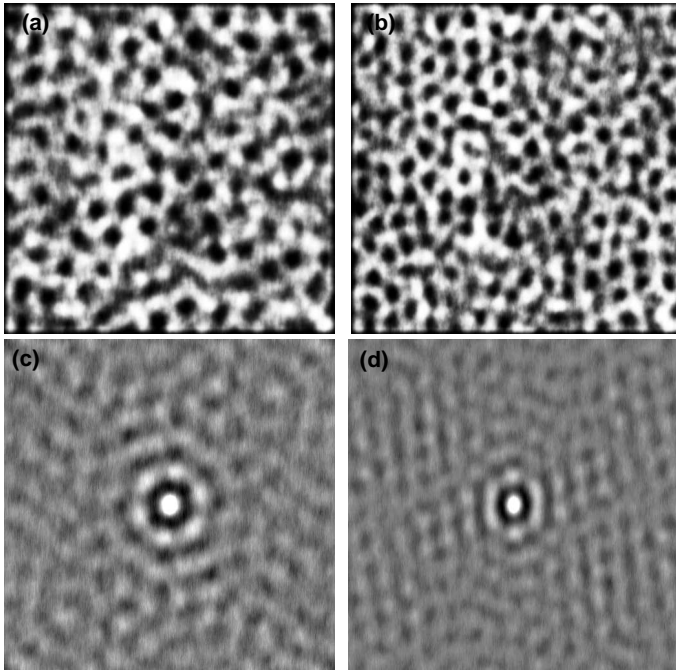
**FIG. 2.4:** Illustration de la méthode d'imagerie du réseau de vortex par STM : (a) jonction SIN mesurant une LDOS BCS lorsque la pointe tunnel est entre les vortex. (b) jonction NIN localisée au coeur d'un vortex. Le pic de cohérence est ici absent et la LDOS est constante, indépendante de l'énergie. D'après [42].

L'association de la spectroscopie et du mode balayage a permis à H.F. Hess *et al.* en 1989 l'observation du réseau de vortex d'Abrikosov [3] dans la phase mixte d'un supraconducteur de type II,  $NbSe_2$  [64]. Cette observation inédite fut la première expérience de STM basse température révélant l'agencement particulier des lignes de flux magnétiques induites par un champ magnétique. La méthode d'imagerie du réseau de vortex s'appuie sur les propriétés spectrales particulières des vortex. En première approximation, le coeur d'un vortex est une zone métallique non supraconductrice autour de laquelle circule un supercourant permettant d'écranter le champ magnétique traversant le coeur. Du point de vue spectral, la LDOS du coeur est celle d'un métal<sup>7</sup>, c'est-à-dire constante quelque soit l'énergie, alors qu'entre les vortex, la LDOS est celle d'un supraconducteur (cf. fig. 2.4). Deux méthodes d'imagerie sont

<sup>7</sup>Cette approximation est valable dans les supraconducteurs en limite sale, i.e.  $\xi \gg l_e$  où  $l_e$  est le libre parcours moyen élastique, à des températures ne permettant pas de résoudre d'éventuels états de coeurs de vortex [115].



possibles. La première consiste à effectuer une CITS (cf. §2.2) afin d'obtenir une cartographie complète de la LDOS. Bien qu'efficace, la longueur de l'acquisition d'une CITS est une contrainte importante notamment dans la phase de repérage du réseau ou d'un vortex. La seconde méthode, nettement plus rapide, consiste à acquérir une image topographique standard en polarisant la jonction à une tension voisine du pic de cohérence de la LDOS supraconductrice ( $V_b \gtrsim \Delta$ ). C'est la mesure de ce pic de cohérence, absent au coeur des vortex, qui permet d'obtenir un contraste révélant la présence de vortex sous la pointe. En enregistrant simultanément la topographie et la conductance différentielle mesurée par la détection synchrone, on obtient ainsi une seconde image donnant la hauteur relative du pic de cohérence.



**FIG. 2.5:** Images de  $1.5 \times 1.5 \mu\text{m}^2$  du réseau de vortex obtenues sur un échantillon de diamant supraconducteur fortement dopé au bore, sous deux champs magnétiques différents : (a)  $H = 1200 \text{ Oe}$  et (b)  $H = 1900 \text{ Oe}$  [115]. Les images (c) et (d) représentent le résultat de l'autocorrélation des images de vortex (a) et (b) respectivement.

En absence de désordre susceptible d'ancrer les vortex, l'interaction répulsive entre vortex résultant des courants d'écrantage produit un réseau régulier de symétrie triangulaire dont la maille élémentaire porte exactement un quantum de flux magnétique  $\phi_0 = h/2e$ . La figure 2.5 présente deux images de réseau de vortex que nous avons obtenues sur un film mince supraconducteur de diamant fortement dopé au bore (cf. §2.2 et [115]). Le flux total calculé à partir du nombre de vortex correspond parfaitement au champ magnétique appliqué sur la surface considérée. Dans ce diamant supraconducteur, le réseau est fortement désordonné traduisant un ancrage important des lignes de flux sur les défauts du matériau<sup>8</sup>. Toutefois, le calcul de l'autocorrélation<sup>9</sup> de chaque image, présenté fig. 2.5, révèle un ordre à courte distance de symétrie hexagonale, caractéristique du réseau d'Abrikosov pour les premiers, voire seconds voisins. Les pics des premiers voisins donnent par ailleurs une mesure de la distance moyenne entre vortex ( $110 \text{ nm}$  et  $140 \text{ nm}$  pour les images respectivement à  $H =$

<sup>8</sup>Les centres d'ancrage peuvent être multiples : impuretés ponctuelles, défauts cristallins, topographie accidentée...

<sup>9</sup>La fonction d'autocorrélation bidimensionnelle d'une image est définie par  $G(\delta x, \delta y) = \int I(x + \delta x, y + \delta y)I(x, y)dx dy$ , où  $I(x, y)$  est l'intensité locale. Numériquement,  $G$  se calcule aisément à l'aide de la transformée de Fourier de l'image :  $G(\delta x, \delta y) = TF^{-1}|\tilde{I}|^2$ , où  $\tilde{I} = TF[I]$ .

1900 et 1200  $Oe$ ) en parfait accord avec le paramètre de maille du réseau triangulaire  $d_{\Delta} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\phi_0}{H}$ .

Il est important de noter que, sur ces images, les taches sombres révélant les vortex ne donnent pas une mesure de la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$  mais seulement une mesure de l'affaiblissement du pic de cohérence. Cet affaiblissement apparaît loin du cœur de vortex défini par  $\xi$ , à une distance radiale correspondant typiquement au maximum de la densité de courant superfluide [55, 133]. Seule une étude de l'évolution spatiale de toute la LDOS permet d'accéder à une estimation de la longueur de cohérence supraconductrice à partir d'un vortex [115].

## Deuxième partie

### Désordre, localisation et interaction





# Chapitre 3

## Films minces supraconducteurs

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Phénoménologie des systèmes quasi-bidimensionnels</b>	<b>32</b>
3.1.1	Systèmes diffusifs : localisation et interaction	32
3.1.2	Supraconductivité quasi-bidimensionnelle	34
<b>3.2</b>	<b>Films minces de <math>TiN</math> et <math>InO_x</math></b>	<b>35</b>
3.2.1	Films minces polycristallins de $TiN$	35
3.2.2	Films minces amorphes d' $InO_x$	36

---

## Introduction

La Transition de phase quantique Supraconducteur-Isolant (TSI) abordée dans cette thèse apparaît dans des films minces de matériaux supraconducteurs lorsque ceux-ci sont soumis à un champ magnétique perpendiculaire, une diminution de l'épaisseur, ou une augmentation du désordre. La dimensionnalité de ces films est cruciale car elle détermine d'une part la nature des transitions de phase mises en jeu, que ce soit la TSI ou la transition supraconductrice thermodynamique, et d'autre part les propriétés de transport dès 300 K.

Dans ce chapitre, nous introduirons le rôle de l'épaisseur d'un film supraconducteur dans les propriétés électroniques, et notamment les effets de localisation et de fluctuations supraconductrices induits par une réduction de la dimensionnalité. Dans une deuxième partie, nous présenterons les deux types d'échantillons qui nous ont permis d'étudier le transport et la supraconductivité dans un régime *quasi-bidimensionnel*, à savoir les films minces de nitrure de titane polycristallins et les films d'oxyde d'indium amorphe.

### 3.1 Phénoménologie des systèmes quasi-bidimensionnels

Cette section introduit les effets dimensionnels propres aux systèmes désordonnés apparaissant dans les films minces supraconducteurs ainsi que les particularités de la transition de phase supraconductrice.

#### 3.1.1 Systèmes diffusifs : désordre et interaction<sup>1</sup>

Dans la limite de faible désordre, lorsque le libre parcours moyen élastique  $l_e$  est grand devant la longueur d'onde de Fermi  $\lambda_F$ , l'évolution d'un électron dans un métal désordonné peut être décrite par un processus de diffusion. Cette condition de faible désordre que l'on peut réécrire  $k_F l_e \gg 1$ , où  $k_F = 2\pi/\lambda_F$  est le vecteur d'onde de Fermi, signifie qu'entre chaque collision redistribuant aléatoirement la direction de propagation, on peut reconstruire asymptotiquement une onde plane et retrouver localement une propagation ballistique des électrons. Dans cette limite, les effets d'interférence entre collisions successives sont négligeables, rendant les événements de collision indépendants. En considérant les temps longs devant le temps de collision élastique  $\tau_e$ , ( $t \gg \tau_e \Leftrightarrow \omega\tau_e \ll 1$ ) afin de garantir un nombre de collisions important, l'évolution d'un paquet d'ondes peut se décrire par une équation de diffusion :

$$\left[ \frac{\partial}{\partial t} - D\Delta \right] P(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\delta(t) \quad (3.1)$$

où  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$  est la probabilité quantique de diffusion du paquet d'ondes d'un point  $\mathbf{r}$  au point  $\mathbf{r}'$  en un temps  $t$ .  $D$  est ici le coefficient de diffusion défini par  $D = \frac{v_F l_e}{d}$  où  $d$  est la dimension et  $v_F$  la vitesse de Fermi. Dans l'espace libre en dimension  $d$ , l'équation de diffusion a pour solution :

$$P(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \frac{1}{(4\pi Dt)^{d/2}} e^{-|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|^2/4Dt}, \quad \forall t > 0 \quad (3.2)$$

---

<sup>1</sup>Cette section s'inspire de [4, 5].

La dimensionnalité d'espace joue un rôle essentiel quant à la nature de la diffusion. Une manière de caractériser cette dépendance dimensionnelle consiste à calculer le temps passé par une particule diffusive au voisinage d'un point donné, en l'occurrence son point de départ. Dans un métal, ce temps est borné par le temps de cohérence de phase  $\tau_\phi$ , au-delà duquel la diffusion n'est plus cohérente.  $\tau_\phi$  décrit ici les processus de collisions inélastiques, interaction électron-phonon, interaction électron-électron..., conduisant à une perte de cohérence de phase du paquet d'ondes. Le temps total passé par une particule autour de son point de départ, appelé *temps de récurrence*, est alors directement relié à la probabilité de retour à l'origine  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t)$  :

$$\tau_R(\mathbf{r}, \tau_\phi) = A_d l_e^d \int_{\tau_e}^{\infty} P(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t) e^{-t/\tau_\phi} dt \quad (3.3)$$

où  $v = A_d l_e^d$  est le volume élémentaire du point de départ et  $A_d$  le volume de la sphère unité<sup>2</sup>. La probabilité de retour à l'origine,

$$P(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t) = \frac{1}{(4\pi Dt)^{d/2}}, \quad (3.4)$$

étant dépendante de la dimension, le calcul du temps de récurrence donne :

$$\begin{aligned} d = 3 & \quad \frac{\tau_R}{\tau_e} \propto 1 \\ d = 2 & \quad \frac{\tau_R}{\tau_e} \propto \ln \frac{L_\phi}{l_e} \\ d = 1 & \quad \frac{\tau_R}{\tau_e} \propto \frac{L_\phi}{l_e} \end{aligned} \quad (3.5)$$

avec  $L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$ . En dimension  $d=3$ ,  $\tau_R$  est fini, la particule dès la première collision ne repasse pas par son point de départ. Par contre, pour  $d \leq 2$ ,  $\tau_R$  dépend de la coupure aux temps longs, fixée par le temps de cohérence de phase  $\tau_\phi$ . Dans la limite  $\tau_\phi \rightarrow \infty$ , le temps de récurrence diverge, traduisant le fait que la particule repasse une infinité de fois par l'origine. La diffusion est dite récurrente en dimension  $d \leq 2$ . Ceci constitue un résultat général pour la marche au hasard dans l'espace libre : après  $n$  collisions, la particule diffusive passe typiquement un temps  $\tau_e \sqrt{n}$  ( $d = 1$ ) (ou  $\propto \ln n$  pour  $d = 2$ ) autour de son point de départ.

Ces différences de comportement en fonction de la dimensionnalité ont des répercussions physiques importantes sur les propriétés de transport. Les effets d'interférences quantiques qui apparaissent lorsque la trajectoire d'un électron s'auto-intersecte, vont être d'autant plus importants que la dimension d'espace sera basse, i.e. le temps de récurrence sera long. Le renforcement de la probabilité de retour à l'origine a alors tendance à "localiser" faiblement une partie des électrons dans des trajectoires fermées, réduisant de fait la conductivité. Dans un film métallique, la dimensionnalité de ces effets de localisation faible se détermine en comparant la longueur de cohérence de phase  $L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$  sur laquelle les électrons gardent leur cohérence quantique, avec l'épaisseur du film, notée  $t$ . Ainsi, un film mince passe d'un régime tridimensionnel à bidimensionnel lorsque  $t < L_\phi$ .

Par ailleurs, bien qu'efficacement écrantée dans un métal, l'interaction Coulombienne est fortement sensible à la nature diffusive du mouvement électronique. Le désordre et la dimensionnalité vont là aussi jouer un rôle majeur. À cause de la diffusion, le déplacement des

---

<sup>2</sup> $A_3 = \frac{4\pi}{3}$ ,  $A_2 = \pi$ ,  $A_1 = 2$ .

électrons est ralenti, augmentant ainsi la probabilité que deux électrons interagissent. L'interaction effective entre deux électrons s'en trouve par conséquent renforcée. Une réduction de dimensionnalité amplifie cet effet en raison de l'augmentation du temps de récurrence. On peut alors s'attendre à ce que l'interaction Coulombienne influence drastiquement les propriétés de transport ainsi que la supraconductivité dans les films supraconducteurs suffisamment minces. Pour que le système soit bidimensionnel du point de vue des interactions électron-électron, la longueur caractéristique à comparer à l'épaisseur est, cette fois-ci, la longueur typique de diffusion des excitations électroniques d'énergie  $k_bT$ , c'est-à-dire la longueur thermique  $L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}}$ .

L'épaisseur est, par conséquent, un paramètre clé dans la physique des films minces désordonnés. Aux effets de réduction de dimensionnalité introduits précédemment, s'ajoute l'augmentation du désordre lorsque l'épaisseur est suffisamment faible. Les interfaces deviennent effectivement une zone de diffusion importante réduisant artificiellement le libre parcours moyen élastique. Pour caractériser le désordre d'un film mince d'épaisseur  $t$ , la quantité pertinente est la résistance par carré  $R_{\square}$  :

$$R_{\square} = R_Q \frac{3\pi}{2} \frac{1}{k_F^2 l_e t} \quad (3.6)$$

où  $R_Q = h/e^2$  est le quantum de résistance. On obtient ainsi une résistance indépendante des dimensions latérales du film. Dans cette thèse, toutes les résistances sont données en Ohm par carré.

### 3.1.2 Supraconductivité quasi-bidimensionnelle

Dans la limite  $k_F l_e \gg 1$ , P.W. Anderson a démontré que la supraconductivité est insensible aux perturbations engendrées par le désordre tant que celui-ci ne détruit pas l'invariance par renversement du sens du temps [8]. Cependant, comme nous venons de le voir, *le renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre, et surtout par la réduction de la dimensionnalité, va à l'encontre de l'interaction attractive entre électrons responsable de la supraconductivité*. Lorsque l'épaisseur d'un film mince est diminuée, la compétition entre interaction Coulombienne répulsive et interaction attractive tourne en faveur d'un affaiblissement de la supraconductivité, et, par conséquent, produit un abaissement de la température critique  $T_c$  par rapport à celle d'un film épais de désordre identique.

Du point de vue de la supraconductivité, un film mince, dont l'épaisseur est inférieure à la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi$ , peut être considéré comme bidimensionnel. La transition de phase change alors de classe d'universalité. Avec une dimension d'espace égale à 2 et un paramètre d'ordre à deux composantes,  $\Psi = \Delta e^{i\phi}$ , le système est susceptible de subir une transition de phase de type *Berezinskii-Kosterlitz-Thouless* (BKT) [19, 79], c'est-à-dire une transition dominée par les fluctuations de phase à longue distance. Un tel scénario est envisageable dans un supraconducteur si l'interaction entre vortex est logarithmique, ce qui est le cas pour les distances inter-vortex :  $\xi < r < \lambda$ , où  $\lambda$  est la longueur de pénétration de London. Or, dans un film mince,  $\lambda$  est renormalisée par l'épaisseur en  $\lambda^2/t$  et peut atteindre le centimètre, rendant ainsi possible une transition de type BKT. L'ordre supraconducteur est alors un quasi-ordre à longue distance<sup>3</sup> avec pour défauts topologiques

---

<sup>3</sup>Un quasi-ordre à longue distance est défini par une décroissance algébrique, i.e. en loi de puissance, de la fonction de corrélation  $\langle \phi(r)\phi(0) \rangle \sim r^{-\eta}$ .

des paires, thermiquement activées, de vortex-antivortex liés. La température critique correspond à l'énergie nécessaire pour dissocier ces paires et rompre la cohérence de phase macroscopique de l'état supraconducteur.

La région critique d'une transition de phase du second ordre est, elle aussi, sensiblement dépendante de la dimension. Le paramètre de Ginzburg-Levanyuk [82] qui caractérise le domaine en température de cette région critique,

$$Gi_{(d)} \sim \left( \frac{1}{\nu_d T_c \xi^d} \right)^{\frac{2}{4-d}} \quad (3.7)$$

où  $\nu_d$  est la densité d'états électroniques au niveau de Fermi en dimension  $d$ , est d'autant plus grand que la dimension est basse. Les fluctuations thermodynamiques de l'amplitude  $\Delta$  du paramètre d'ordre, habituellement négligeables dans les supraconducteurs massifs, vont, par conséquent, s'avérer importantes dans une géométrie bidimensionnelle. Partant de la région critique, elles s'étendent dans la phase métallique bien au-delà de  $T_c$ , modifiant la plupart des grandeurs thermodynamiques ainsi que les propriétés de transport. Ces fluctuations supraconductrices se traduisent par la présence de paires de Cooper de temps de vie fini,  $\tau_{GL} = \frac{\pi\hbar}{8k_B(T-T_c)}$ , cohabitant avec les excitations du liquide de Fermi. On peut citer deux conséquences remarquables de cette cohabitation, particulièrement visibles dans les films minces : l'ouverture d'un nouveau canal de transport non-dissipatif produisant une augmentation de la conductivité à l'approche de  $T_c$ , appelée *paraconductivité* [9], et la renormalisation de la densité d'états à un électron due à la participation d'électrons à la formation de ces paires de Cooper hors-équilibre.

Comme nous venons de le décrire, réduire l'épaisseur d'un film mince désordonné modifie drastiquement ses propriétés électroniques. Les effets de localisation et d'interaction, combinés à une transition de phase supraconductrice affectée par les fluctuations thermodynamiques, donnent lieu à une physique particulièrement riche. Les théories perturbatives que nous présenterons dans les chapitres suivants permettent de décrire chaque effet séparément. Cependant, nous verrons qu'au-delà des régimes perturbatifs, notamment à l'approche de la transition supraconducteur-isolant, les effets deviennent spectaculaires et se mélangent de façon non triviale.

## 3.2 Films minces de $TiN$ et $InO_x$

Deux types d'échantillons ont été étudiés durant cette thèse. Cette section présente les méthodes de fabrication ainsi que les caractéristiques structurales des matériaux.

### 3.2.1 Films minces polycristallins de $TiN$

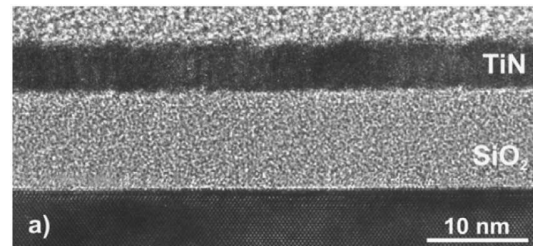
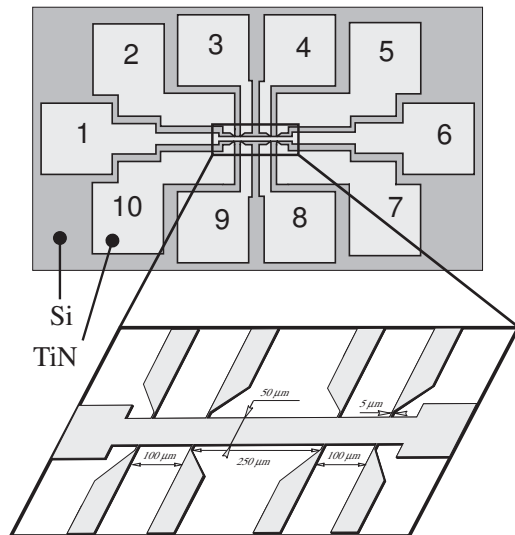
Les échantillons de nitrure de titane nous ont été fournis par T. Baturina<sup>4</sup> et fabriqués par M. Baklanov<sup>5</sup> à l'IMEC. Les films minces sont obtenus par un procédé de dépôt appelé Atomic Layer Chemical Vapor Deposition (ALCVD) sur un substrat de silicium oxydé thermiquement. La croissance s'effectue par adsorption successive d'organométalliques en phase

---

<sup>4</sup>Institute of Semiconductor Physics, Novosibirsk, 630090 Russia

<sup>5</sup>IMEC Kapeldreef 75, B-3001 Leuven, Belgium

gazeuse. Les liaisons covalentes entre les couches atomiques de titane et d'azote s'effectuent par réaction chimique entre les groupements organiques de la couche de surface et ceux des molécules du gaz. La saturation de la surface arrête le mécanisme de dépôt. Les gaz étant introduits successivement dans le réacteur, cette technique permet de contrôler le dépôt, couche atomique par couche atomique, et d'obtenir des couches d'excellente qualité cristallographique. Cette méthode chimique laisse, cependant, une certaine quantité de chlore issu de la chimie des composés organo-métalliques.



**FIG. 3.1:** À gauche : schéma de la croix de Hall. La largeur du fil de courant est de  $50\ \mu\text{m}$ . La surface des contacts est de  $500 \times 500\ \mu\text{m}^2$ . Ci-dessus : image de microscope électronique à transmission d'une couche de  $\text{TiN}$  d'épaisseur  $5\ \text{nm}$  déposée sur de la silice.

Les films ultra-minces de  $\text{TiN}$  sont toutefois délicats à obtenir car les premières couches atomiques ne mouillent pas complètement la surface de silice. La croissance démarre par formation de cristallites et le mouillage complet de la surface ne s'obtient qu'au bout de quelques nanomètres d'épaisseur [120]. La structure des films est polycristalline avec des domaines cristallins d'environ  $30\ \text{nm}$  de diamètre. L'interface entre ces cristallites est d'une à deux couches atomiques. Pour augmenter la résistance par carré, les films, initialement de  $20\ \text{nm}$ , sont gravés par plasma jusqu'à des épaisseurs inférieures à  $5\ \text{nm}$  (cf. fig. 3.1). Des études de micrographie électronique en transmission et de diffraction de rayons X n'ont révélé aucun changement structural après gravure [14]. Pour les mesures de transport quatre fils, une lithographie UV permet d'obtenir une croix de Hall, schématisée figure 3.1. Les contacts, très difficiles à réaliser sur le  $\text{TiN}$ , sont obtenus en pressant un petit morceau d'indium. La pointe du STM est, quant à elle, alignée sur l'un des contacts libres.

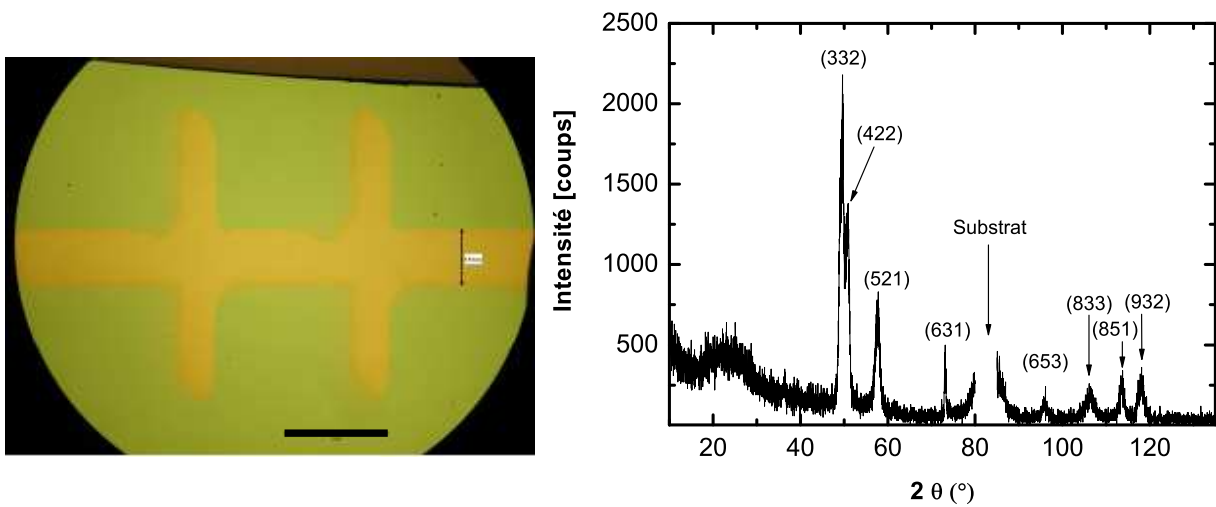
### 3.2.2 Films minces amorphes d' $\text{InO}_x$

Les films d'oxyde d'indium amorphe nous ont été fournis par D. Shahar et M. Ovidia<sup>6</sup>. Ils sont obtenus par évaporation au canon à électrons d'une cible d' $\text{In}_2\text{O}_3$  de pureté 99.999 % sur un substrat de silicium. Un masque mécanique en forme de croix de Hall est utilisé lors du dépôt pour s'affranchir d'éventuelles étapes de lithographie (cf. fig. 3.2). L'épaisseur des films est de  $15\ \text{nm}$ . La structure amorphe a été confirmée par microscopie électronique à transmission [118] par l'équipe d'Israël. Nous avons toutefois mesuré le diagramme de diffraction de rayons X en mode  $\theta$ - $2\theta$  sur un échantillon pleine plaque identique à celui

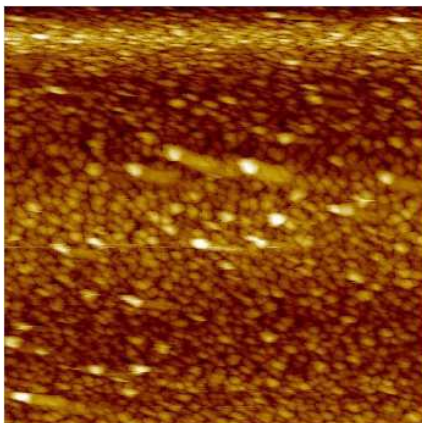
<sup>6</sup>Department of Condensed Matter Physics, Weizmann Institut of Science, Rehovot 76100, Israel.



mesuré en spectroscopie tunnel. Ce diagramme présenté figure 3.2 révèle la présence de pics de Bragg que l'on peut attribuer à une phase cristalline d' $In_2O_3$  cubique. La largeur de ces pics est significative de cristaux de très petite taille. Nous ne pouvons pas déterminer si cette phase d' $In_2O_3$  est dans l'épaisseur du film ou constitue l'oxyde natif de surface. Par ailleurs, les pics de diffraction les plus intenses attendus pour l' $In_2O_3$  cubique n'étant pas présents dans le diagramme, on peut en déduire que les cristaux possèdent une orientation préférentielle. D'après l'équipe d'Israël, il arrive, notamment dans les études de microscopie électronique à transmission, que l'énergie du faisceau d'électrons soit suffisante pour faire cristalliser localement l'oxyde d'indium amorphe. Cet effet pourrait expliquer la présence de ces cristallites  $In_2O_3$  cubiques, alors générés par les rayons X. Le fond diffus maximum vers  $25^\circ$  et s'étalant jusqu'à  $70^\circ$  est, quant à lui, caractéristique d'une structure amorphe.



**FIG. 3.2:** À gauche : échantillon d' $InO_x$  de 15 nm d'épaisseur, en forme de croix de Hall. Le trait horizontal noir mesure 1 mm. À droite : diagramme de diffraction de rayon X  $\theta$ - $2\theta$  du même échantillon. L'indexation des pics de Bragg correspond à la phase d' $In_2O_3$  cubique. La remontée du bruit de fond aux petits angles est caractéristique d'une structure amorphe.



**FIG. 3.3:** Image STM  $1 \times 1 \mu m^2$  d'un échantillon d' $InO_x$  de 15 nm d'épaisseur. La rugosité rms est de 1 nm.

Les images STM de topographie, obtenues à température ambiante, ont révélé une rugosité de surface de l'ordre de 1 nm. La figure 3.3 montre une image de  $500 \times 500 \text{ nm}^2$ . La forte granularité qui ressort de cette image est un effet d'ajustement des couleurs qui accentue la rugosité. On peut remarquer des effets de double pointe, notamment lorsque l'on retrouve les mêmes rugosités à différents endroits. Comme pour  $TiN$ , les contacts sont obtenus en pressant un petit morceau d'indium. La pointe du STM est, quant à elle, alignée au centre de la croix de Hall.





# Chapitre 4

## Localisation

### Sommaire

---

<b>4.1 Localisation faible</b> . . . . .	<b>41</b>
<b>4.2 Localisation forte</b> . . . . .	<b>43</b>
4.2.1 Transition d'Anderson . . . . .	43
4.2.2 Critère de Thouless . . . . .	44
4.2.3 Théorie d'échelle de la localisation . . . . .	45
4.2.4 Conséquences pour les films minces à température non nulle . . . . .	47
4.2.5 Conduction activée thermiquement dans les films minces . . . . .	48
<b>4.3 Localisation et supraconductivité</b> . . . . .	<b>49</b>
4.3.1 Extension du théorème d'Anderson . . . . .	49
4.3.2 Supraconductivité inhomogène . . . . .	51
4.3.3 Paires de Cooper localisées . . . . .	57

---

---

## Introduction

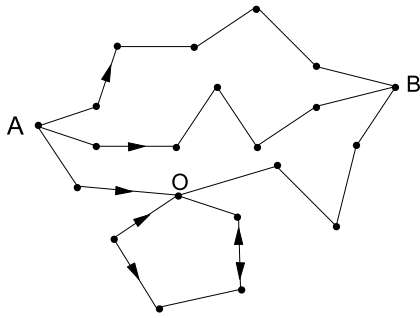
Dans les métaux, la résistance résiduelle est déterminée par la diffusion élastique des électrons sur les impuretés statiques du réseau. Dans la limite de faible désordre,  $k_F l_e \gg 1$ , une description des électrons en particules classiques conduit à l'expression de Drude de la conductivité :

$$\sigma_0 = \frac{ne^2\tau_e}{m} \quad (4.1)$$

où  $n$  est la densité d'électron,  $m$  la masse effective et  $\tau_e$  le temps moyen entre collisions. Cependant même pour les bon métaux, des corrections quantiques de la conductivité dues aux effets d'interférences entre paquets d'ondes électroniques apparaissent, notamment à basse température. Dans la limite  $k_F l_e \lesssim 1$ , lorsque le désordre devient tel que le libre parcours moyen est inférieur à la longueur d'onde de Fermi, les états électroniques se localisent et ne participent plus à la conduction. Le passage d'états délocalisés à localisés induit par une augmentation du désordre s'appelle la transition métal-isolant d'Anderson [7]. L'ajout de la supraconductivité dans cette transition est un problème complexe et particulièrement intéressant, puisque la cohérence de phase macroscopique, nécessaire à l'établissement de l'état supraconducteur, est en contradiction avec le phénomène de localisation, qui impose une limitation spatiale des fonctions d'ondes électroniques.

Après avoir introduit les principaux effets du désordre sur les propriétés électroniques, notamment la théorie d'échelle de la localisation, nous allons discuter, dans ce chapitre, les conditions d'existence de l'état supraconducteur en présence de fort désordre. Nous nous attarderons notamment sur une simulation numérique de l'état BCS en présence de fort désordre, qui capture les effets physiques essentiels que nous retrouverons dans les chapitres expérimentaux. Nous verrons, en particulier, que les fluctuations du désordre peuvent conduire à la formation d'une phase supraconductrice spatialement inhomogène. Nous discuterons aussi les signatures expérimentales des corrélations supraconductrices persistant du côté isolant de la Transition Supraconducteur-Isolant, ainsi que leur description théorique.

## 4.1 Localisation faible



**FIG. 4.1:** Représentation de la diffusion d'un électron par les impuretés d'un point A à un point B suivant différents chemins. Le point O est un point d'intersection d'une trajectoire avec elle-même.

Si l'on considère un système sans interaction, le trajet d'un électron diffusé par les impuretés d'un point A à un point B peut suivre différents chemins (cf. fig. 4.1). La probabilité totale de diffusion du point A au point B s'obtient avec le module carré de la somme des amplitudes de probabilité de tous les chemins possibles :

$$P_{AB} = \left| \sum_i A_i \right|^2 = \sum_i |A_i|^2 + \sum_{i \neq j} A_i A_j^* \quad (4.2)$$

Le premier terme de l'équation (4.2) représente la somme des probabilités de chaque chemin, et le second résulte de l'interférence des différentes amplitudes. Le déphasage acquis au point B pour un électron d'impulsion  $\mathbf{p}$ ,

$$\Delta\varphi = \frac{1}{\hbar} \int_A^B \mathbf{p} \cdot d\mathbf{l}, \quad (4.3)$$

varie fortement entre toutes ces trajectoires. À cause de sa nature oscillante, le terme d'interférence tend vers zéro en sommant sur tous les chemins. Ainsi, pour la plupart des trajectoires dont les longueurs sont significativement différentes, les interférences ne sont pas importantes.

Il y a cependant des trajectoires particulières pour lesquelles les interférences ne peuvent être négligées. Il s'agit des trajectoires qui s'auto-intersectent comme celle représentée figure 4.1. La boucle ainsi formée pouvant être parcourue dans les deux sens, deux amplitudes  $A_1$  et  $A_2$  sont nécessaires pour décrire chaque sens de parcours. Ces deux amplitudes restent cohérentes puisque remplacer  $\mathbf{p}$  par  $-\mathbf{p}$  et  $d\mathbf{l}$  par  $-d\mathbf{l}$  dans la formule (4.3) ne change pas le déphasage. Le terme d'interférence double alors la probabilité de présence au point O :

$$|A_1 + A_2|^2 = |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2\text{Re}A_1 A_2^* = 4|A_1|^2 \quad (4.4)$$

et par conséquent diminue la probabilité de trouver l'électron au point B, ce qui se traduit par une *réduction de la conductivité*. Les corrections quantiques de la conductivité dues aux effets d'interférences<sup>1</sup> sont donc liées à la probabilité de retour à l'origine du système diffusif. La théorie de la réponse linéaire [4] permet d'exprimer la correction de conductivité :

$$\delta\sigma = \sigma_0 - \sigma = -\frac{2e^2 D}{\pi \hbar \Omega} \int_0^\infty dt Z(t) \left( e^{-\frac{t}{\tau_\phi}} - e^{-\frac{t}{\tau_e}} \right) \quad (4.5)$$

<sup>1</sup>La correction de localisation faible peut être mise en évidence en appliquant un champ magnétique  $H$  de manière à déphaser les trajectoires circulant en sens inverse dans les boucles de rétrodiffusion. Dans la limite  $\omega_c \tau_e \ll 1$  où  $\omega_c = eH/m$  est la fréquence cyclotron, la courbure des trajectoires électroniques entre deux collisions élastiques est faible. Les amplitudes de probabilité  $A_1$  et  $A_2$  acquièrent alors un facteur de phase, respectivement  $A_1 \rightarrow A_1 \exp(i \frac{e}{\hbar} \oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l}) = A_1 \exp(\frac{i\pi HS}{\phi_0})$  et  $A_2 \rightarrow A_2 \exp(-\frac{i\pi HS}{\phi_0})$  où  $\mathbf{A}$  est le potentiel vecteur,  $\frac{h}{2e}$  le quantum de flux et  $S$  la surface de la boucle de rétrodiffusion. Le déphasage induit entre les deux amplitudes  $\Delta = 2\pi\phi/\phi_0$  détruit par conséquent la contribution des interférences quantiques.

en fonction de la probabilité intégrée de retour à l'origine

$$Z(t) = \int_{\Omega} d\mathbf{r} P(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t) = \frac{\Omega}{(4\pi Dt)^{d/2}} \quad (4.6)$$

où  $P(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t)$  est solution de l'équation de diffusion (3.1). Les deux termes exponentiels dans (4.5) introduisent les coupures  $\tau_e < t < \tau_\phi$  définissant le régime de diffusion cohérent. Lorsqu'une des dimensions du système  $a$  est petite devant  $L_\phi$ , l'électron diffuse de nombreuses fois d'un bord à l'autre pendant le temps  $\tau_\phi$ , de sorte que la probabilité de présence est constante en chaque point de la dimension transverse. On obtient alors pour la correction de conductivité<sup>2</sup>  $\delta\sigma_d = \delta\sigma a^{3-d}$  :

$$\begin{aligned} \delta\sigma_{d=1} &= -\frac{e^2}{\pi\hbar}(L_\phi - l_e) \\ \delta\sigma_{d=2} &= -\frac{e^2}{\pi^2\hbar} \ln \frac{L_\phi}{l_e} \\ \delta\sigma_{d=3} &= -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \left( \frac{1}{l_e} - \frac{1}{L_\phi} \right) \end{aligned} \quad (4.7)$$

Ici,  $\delta\sigma_{d=1}$  et  $\delta\sigma_{d=2}$  sont les conductances par carré et par unité de longueur dans les cas quasi-2d et quasi-1d.

La dépendance en température des processus inélastiques limitant  $\tau_\phi$  conduit à une variation de la correction de localisation faible  $\delta\sigma_d(T)$ . Le temps de cohérence de phase suit une loi de puissance :

$$\tau_\phi(T) \propto T^{-p}, \quad (4.8)$$

dont l'exposant dépend de la dimensionnalité effective  $d$  et de la nature des processus inélastiques considérés. Par exemple, le couplage du gaz d'électrons aux phonons correspond à  $p = 3$ , tandis que l'interaction entre électrons donne  $p = \frac{2}{4-d}$  pour  $d \leq 2$  et  $p = 3/2$  pour  $d = 3$  [4, 5]. La dépendance en température de la localisation faible  $\delta\sigma_d(T)$  se déduit ainsi de (4.7) :

$$\begin{aligned} \delta\sigma_{d=1}(T) &\propto -T^{-p/2} \\ \delta\sigma_{d=2}(T) &\propto \ln T \\ \delta\sigma_{d=3}(T) &\propto T^{p/2} \end{aligned} \quad (4.9)$$

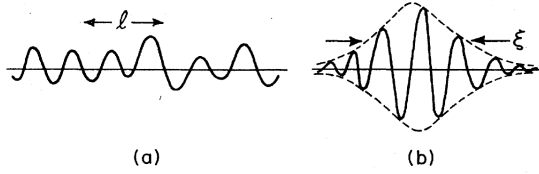
La discussion du chapitre 3 §3.1.1 a mis en évidence le rôle de la dimensionnalité dans le renforcement de la probabilité de retour à l'origine. On retrouve dans les expressions (4.7) l'évolution du temps de récurrence des systèmes diffusifs (cf. éq. (3.5)). À  $d < 3$ , la correction de conductivité diverge lorsque  $\tau_\phi \rightarrow \infty$  vers un régime dans lequel les électrons repassent une infinité de fois par leur point de départ et ne contribuent plus à la conductivité. Les corrections de localisation faible sont cependant issues d'un calcul perturbatif développé en fonction du paramètre  $1/k_F l_e \ll 1$  et ne sont donc valables que pour  $\frac{\delta\sigma}{\sigma} \ll 1$ . Malgré cela, cette divergence liée aux propriétés intrinsèques de la diffusion à  $d < 3$  suggère que le système tend vers un régime isolant à basse température lorsque  $\tau_\phi$  diverge, appelé régime de *localisation forte*.

---

<sup>2</sup>La correction de conductivité peut s'estimer simplement en considérant la probabilité de retour à l'origine comme le rapport entre le volume  $v_F \lambda_F^2 dt$  correspondant à un tube de section  $\lambda_F^2$  et de longueur  $v_F dt$  traversé par un électron et le volume de diffusion exploré  $(Dt)^{d/2} a^{3-d}$  :  $\frac{\delta\sigma}{\sigma} \sim -\int_{\tau_e}^{\tau_\phi} \frac{v_F \lambda_F^2 dt}{(Dt)^{d/2}} \frac{1}{a^{3-d}}$ .

## 4.2 Localisation forte

### 4.2.1 Transition d'Anderson

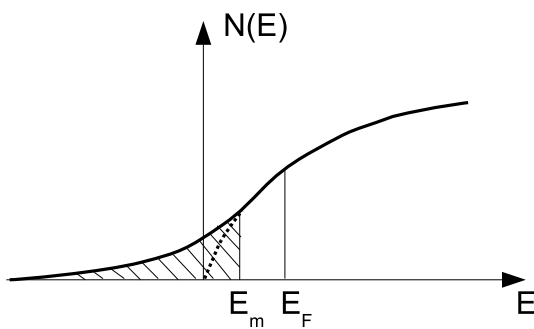


**FIG. 4.2:** Illustrations d'une fonction d'onde étendue avec un libre parcours moyen élastique  $l$  (a) et d'une fonction d'onde localisée sur une longueur de localisation  $\xi_{loc}$  (b). [86]

opposée de fort désordre, la fonction d'onde devient spatialement localisée (fig. 4.2). Son amplitude décroît exponentiellement sur une distance typique  $\xi_{loc}$  appelée longueur de localisation :

$$|\psi^2(\mathbf{r})| \sim \exp\left(-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}{\xi_{loc}}\right), \quad (4.10)$$

où  $\mathbf{r}_0$  est le centre de localisation. Cet effet est une conséquence de la forte dispersion en énergie des états électroniques de sites premiers voisins. En effet, dans la limite de très fort désordre, les orbitales électroniques voisines ont un recouvrement important, mais des énergies en général très différentes en raison des fortes fluctuations du potentiel. La délocalisation des électrons, qui n'apparaît qu'entre orbitales quasiment dégénérées, n'a pas lieu puisque ces dernières sont en général très éloignées spatialement, avec un recouvrement exponentiellement faible. Ainsi dans la limite de fort désordre, la fonction d'onde électronique est exponentiellement localisée sur une distance typique  $\xi_{loc}$  dépendante du désordre.



**FIG. 4.3:** Densité d'états en bord de bande dans un système désordonné. La zone hachurée représente les états localisés et  $E_m$  le bord de mobilité.

mobilité en modifiant le désordre permet de faire transiter continûment le système entre l'état métallique délocalisé et l'état isolant localisé. La région critique de cette transition de

En 1958, P.W. Anderson a montré à partir d'un modèle de liaison forte<sup>3</sup> que les fonctions d'onde électroniques en présence d'un potentiel aléatoire peuvent changer de nature lorsque le désordre induit par ce potentiel est suffisamment important [7]. Dans la limite de faible désordre discutée dans le paragraphe précédent, les fonctions d'ondes, bien que diffusées aléatoirement, peuvent se décrire par des ondes planes délocalisées à travers tout le système. Dans la limite

Dans un régime de désordre intermédiaire, Mott a montré que les états localisés sont situés en bord de bande de conduction et séparés en énergie des états délocalisés [101]. Les états en bord de bande de conduction ont, en effet, une énergie cinétique plus faible que ceux en milieu de bande et sont, par conséquent, plus sensibles au potentiel aléatoire. Les états en milieu de bande ont en revanche plus de chance d'être délocalisés pour un désordre modéré. L'énergie séparant les états localisés des états délocalisés s'appelle le *bord de mobilité* ( $E_m$  sur la figure 4.3). Ainsi, varier le niveau de Fermi en jouant sur la densité d'électrons ou varier le bord de

<sup>3</sup>Voir l'équation (4.40) où  $H_0$  est le Hamiltonien du problème d'Anderson.

phase se décrit avec des lois d'échelle

$$\sigma \sim \left| \frac{E_F - E_m}{E_m} \right|^{(d-2)\nu}, \quad \xi \sim \left| \frac{E_F - E_m}{E_m} \right|^{-\nu} \quad (4.11)$$

où  $\nu$  est l'exposant critique associé à la longueur de corrélation  $\xi$ . Il est important de préciser que cette longueur de corrélation  $\xi$  coïncide avec la longueur de localisation  $\xi_{loc}$  dans le régime localisé, i.e. pour  $E_F < E_m$ , alors que dans le régime métallique,  $\xi$  détermine l'échelle pour laquelle le système a un comportement ohmique, i.e. la conductivité est indépendante de la taille.

Dans les systèmes tridimensionnels sans interaction, la transition métal-isolant induite par le désordre apparaît typiquement lorsque le désordre est tel que le libre parcours moyen élastique  $l_e$  est de l'ordre de la longueur d'onde de Fermi. Ce critère, que l'on peut réécrire

$$k_F l_e \sim 1, \quad (4.12)$$

a été proposé par Ioffe et Regel et permet de délimiter le régime métallique du régime de localisation forte [71]. À basse dimension  $d < 3$ , si l'on extrapole les corrections de localisation faible au-delà de leur limite de validité à  $T \rightarrow 0$  (éq. (4.9)), la divergence<sup>4</sup> de  $\tau_\phi$  induit artificiellement un régime de localisation forte dans lequel les particules diffusives repassent une infinité de fois par leur point de départ (cf. §3.1.1). La nature diffusif du transport conduit par conséquent à  $d < 3$  à un régime isolant à température nulle quelque soit le degré de désordre. Cette extrapolation quelque peu abusive est en réalité un résultat très général qui a été démontré rigoureusement pour  $d = 1$  [102]. Le cas de la dimension 2 reste encore aujourd'hui débattu d'autant que ces considérations ne tiennent compte d'aucune interaction. Pour faire le lien entre localisation faible et localisation forte nous allons présenter la théorie d'échelle de la localisation proposée en 1979 par Abrahams *et al.* [1].

### 4.2.2 Critère de Thouless

Thouless a montré que le paramètre pertinent de la transition d'Anderson est la conductance adimensionnée  $g = \frac{h}{e^2 R_\square}$  [136]. En utilisant la loi d'Ohm pour un système de taille  $L$  en dimension  $d$  :

$$G = \sigma L^{d-2}, \quad (4.13)$$

et la relation d'Einstein de la conductivité ,

$$\sigma = e^2 D \nu, \quad (4.14)$$

où  $\nu = dn/d\mu$  est la densité d'états par unité de volume, la conductance  $G$  peut se réécrire :

$$G = \frac{e^2}{h} \underbrace{(\nu L^d) \frac{hD}{L^2}}_{g(L)} \quad (4.15)$$

La conductance adimensionnée  $g(L)$  s'exprime alors comme le rapport entre deux énergies caractéristiques du système de taille finie :

$$g = \frac{E_T}{\delta} \quad (4.16)$$

---

<sup>4</sup>On suppose dans cette discussion que  $\tau_\phi$  ne sature pas à basse température.

où  $E_T = \hbar/\tau_L = \hbar D/L^2$  est l'énergie de Thouless associée au temps de diffusion  $\tau_L = L^2/D$  d'un bord à l'autre du système et  $\delta = 1/\nu L^d$  l'écart moyen entre niveaux d'énergie.

Plusieurs arguments permettent de démontrer que ce paramètre  $g$  détermine la nature localisée ou délocalisée du système désordonné. On peut, par exemple, reformuler le problème en terme de temps caractéristique. Puisque l'écart moyen entre niveaux  $\delta$  est la plus petite énergie du problème, le temps associé  $\tau_H = \hbar/\delta$ , aussi appelé temps de Heisenberg, représente l'échelle de temps accessible la plus longue. Ainsi, lorsque  $g = \frac{E_T}{\delta} \sim \tau_H/\tau_L > 1$ , l'électron a le temps de diffuser sur tous les états microscopiques du système. Par contre, si le temps de diffusion d'un bord à l'autre de l'échantillon est supérieur à  $\tau_H$ ,  $g \sim \tau_H/\tau_L < 1$ , l'électron ne peut pas diffuser et explorer tout le volume  $L^d$ , il reste localisé. La transition entre régime localisé et régime délocalisé correspond alors à

$$g = \frac{E_T}{\delta} \sim 1 \quad (4.17)$$

Initialement, Thouless a montré que  $g$  caractérise l'effet du changement de taille sur les niveaux d'énergie, c'est-à-dire la sensibilité du système aux conditions aux limites. Si l'on double par exemple la taille d'un système en couplant deux blocs identiques de taille  $L^d$ , l'énergie de transition  $\hbar/\tau$  entre les deux blocs peut s'exprimer à l'aide de la règle d'or de Fermi<sup>5</sup> :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} \overline{t^2} N(E_F) \quad (4.18)$$

où  $\overline{t^2}$  est l'élément de matrice tunnel moyen et  $N(E_F)$  la densité d'états de l'un des blocs [68]. La conductance du système couplé dépend de la densité d'états du second bloc :

$$G = e^2 N(E_F)/\tau = \frac{2\pi e^2}{\hbar} \overline{t^2} N(E_F)^2 \implies g \approx \frac{E_T}{\delta} \quad (4.19)$$

avec  $\delta = 1/N(E_F) = 1/\nu L^d$ . L'énergie de Thouless,  $E_T = 2\pi\overline{t^2}/\delta$ , apparaît alors comme l'énergie de couplage interbloc. Par conséquent, lorsque  $g > 1$ , les niveaux d'énergie du système total correspondent à un mélange des niveaux de chaque sous-système (états étendus), ce qui signifie que les deux blocs sont fortement couplés. Dans le cas contraire, l'énergie de couplage est plus faible que l'écart entre niveaux. Les états d'énergie des deux sous-systèmes ne sont que faiblement perturbés par le couplage et sont exponentiellement localisés dans chaque bloc. *Ainsi, si  $g \rightarrow 0$  lorsque  $L \rightarrow \infty$ , la longueur  $L$  pour laquelle  $g \sim 1$  donne l'ordre de grandeur de la longueur de localisation  $\xi$ .*

### 4.2.3 Théorie d'échelle de la localisation

Thouless a montré que la conductance  $g(bL)$  d'un système de taille  $(bL)^d$  est déterminée par sa conductance  $g(L)$  à l'échelle précédente. À partir de cette hypothèse, Abrahams *et al.* [1, 86] proposèrent en 1979 une théorie d'échelle de la localisation permettant de déterminer la nature métallique ou isolante d'un système désordonné de dimension  $d$ , lorsque sa taille

<sup>5</sup>On suppose ici une faible transmission interblocs. Par ailleurs, la règle d'or de Fermi ne s'applique rigoureusement que pour un continuum d'états finals. Or, le spectre du bloc de taille finie est discret. On peut alors supposer que l'interaction de ce système avec son environnement produit un élargissement supérieur à l'écart moyen entre niveaux [68].



tend vers l'infini. L'objectif de cette théorie est de décrire l'évolution de  $g(L)$  lorsque  $L$  varie, pour  $L > l_e$ . En d'autres termes, la fonction d'échelle

$$\beta(g) = \frac{d \ln g}{d \ln L} \quad (4.20)$$

introduite par Abrahams *et al.* [1, 86] doit être indépendante de  $L$ . La conductance est ici une mesure du changement de désordre effectif lorsque l'échelle du système est modifiée. En prenant la conductance  $g_0 = g(l_e)$  pour une taille de l'ordre du libre parcours moyen  $l_e$  et en suivant les flots de variation de la fonction  $\beta(g)$ , le système peut évoluer vers un des deux régimes asymptotiques suivants :

- $g \gg 1$ . La conductance est décrite par la loi d'Ohm

$$G = \sigma L^{d-2} \quad (4.21)$$

En tenant compte des corrections de localisation faible (éq. 4.7), qui donne un développement perturbatif en  $1/g$ , on obtient :

$$\beta(g) = d - 2 - \frac{a}{g}, \quad g \gg 1 \quad (4.22)$$

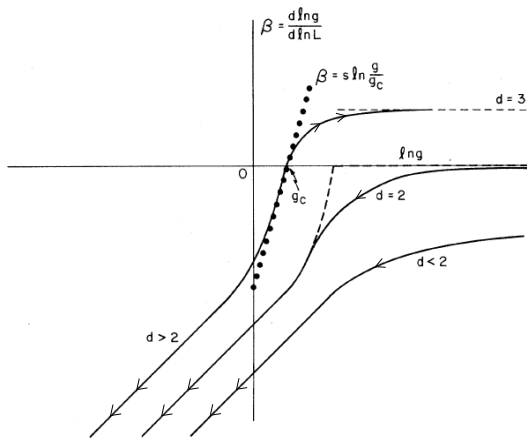
où  $a \sim 1$ .

- $g \ll 1$ . Pour les systèmes localisés, les états proches en énergie sont éloignés dans l'espace de telle façon que leur recouvrement est exponentiellement faible. Pour  $L > \xi_{loc}$  on s'attend à ce que la conductance diminue exponentiellement avec la taille du système :

$$g(L) \propto e^{-L/\xi_{loc}} \quad (4.23)$$

D'où

$$\beta(g) = \ln g + cste, \quad g \ll 1 \quad (4.24)$$



**FIG. 4.4:** Fonction d'échelle  $\beta(g) = \frac{d \ln g}{d \ln L}$ . Le signe de  $\beta(g)$  donne le sens de l'évolution (flèches) de la conductance adimensionnée lorsque la taille du système augmente. [1]

dans la limite  $L \rightarrow \infty$ .

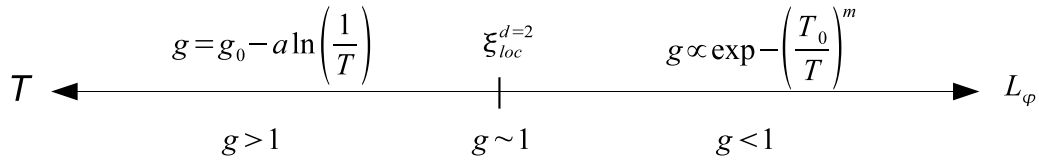
Il est alors possible de tracer l'évolution de  $\beta(g)$  en faisant l'hypothèse de continuité entre ces deux limites (4.22) et (4.24). Cette fonction, tracée sur la figure 4.4, s'interprète de la façon suivante. Si  $\beta > 0$ ,  $g$  augmente lorsque  $L$  augmente, les électrons sont délocalisés et le système est métallique. Lorsque  $\beta < 0$ , le système tend vers un régime de localisation forte. En dimension  $d = 3$ , la courbe croise l'axe  $\beta = 0$  au point  $g_c$ , point fixe instable, par rapport auquel un écart relatif  $\delta g$  mène le système vers un des régimes asymptotiques, métallique ou isolant selon le signe de  $\beta$ . Il s'agit alors de la *transition métal-isolant d'Anderson*. En dimension  $d = 2$  et  $d = 1$ ,  $\beta(g)$  est négative quelque soit  $g$ , ce qui signifie qu'il n'existe pas de véritables états étendus pour les systèmes bi et uni-dimensionnels

#### 4.2.4 Conséquences pour les films minces à température non nulle

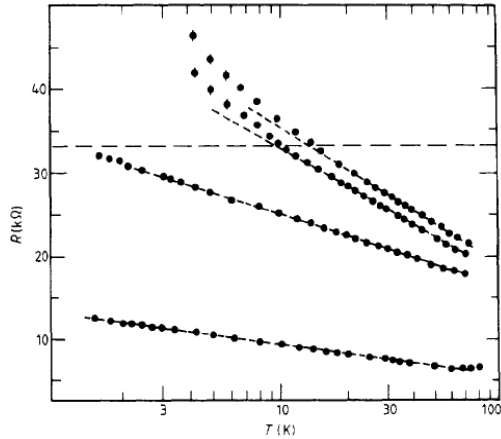
Dans le cas particulier de la dimension  $d = 2$ , la longueur de localisation dépend exponentiellement du désordre. En effet, on peut l'estimer à partir de la correction de localisation faible (éq. 4.7) lorsque  $\frac{\delta\sigma}{\sigma} = 1$ , en notant que  $\sigma_0 = \frac{e^2}{h} k_F l_e$  :

$$\xi_{loc}^{d=2} = l_e \exp\left(\frac{\pi}{2} k_F l_e\right) \quad (4.25)$$

Bien que la longueur de localisation  $\xi_{loc}^{d=2}$  puisse être très grande, elle reste tout de même finie quelque soit le désordre. Ainsi, *en l'absence d'interaction, un système bidimensionnel, même avec un désordre arbitrairement petit, est toujours isolant à température nulle*. Par ailleurs, il est important de noter que cette dépendance exponentielle en fonction de  $k_F l_e$  peut conduire à de fortes fluctuations spatiales de  $\xi_{loc}^{d=2}$  si le désordre est localement inhomogène.



**FIG. 4.5:** Évolution de la conductance adimensionnée avec la température et la longueur de cohérence de phase  $L_\phi \sim T^{-p/2}$ . Dans ces formules,  $a \sim 1$  et  $T_0$  est l'énergie d'activation. La loi d'activation dans le régime de localisation forte,  $g < 1$ , peut être précédée par une divergence en loi de puissance [68].



**FIG. 4.6:** Résistance en fonction de la température pour différents films minces d'oxyde d'indium amorphe. La ligne en pointillés indique la limite entre les régimes de localisation faible (dépendance logarithmique) et localisation forte. D'après [107].

À température non nulle, l'échelle pertinente pour la localisation est la longueur de cohérence de phase. Sachant que  $L_\phi \sim T^{-p/2}$ , un changement de température équivaut à un changement d'échelle. Par conséquent, les flots de variation de la fonction d'échelle  $\beta(g)$  correspondent à un abaissement de la température, i.e. une augmentation de  $L \equiv L_\phi$ . On peut ainsi retrouver l'évolution en température de la conductance d'un film mince en suivant le flot de variation de  $\beta(g)$  sur la figure 4.4. En-dessous d'une certaine température pour laquelle  $L_\phi$  est supérieur à l'épaisseur, le film est quasi-bidimensionnel du point de vue de la localisation. Partant de  $g(T) \gg 1$ , la diminution de la température produit une correction logarithmique négative de la conductance. À la température  $T_\xi$ , telle que

$$L_\phi(T_\xi) \sim \xi_{loc}^{d=2}, \quad (4.26)$$

le régime de localisation forte succède au régime de localisation faible et la conductance diverge exponentiellement (cf. fig. 4.5 et 4.6). Cette température de crossover est de l'ordre de l'énergie de Thouless du volume de localisation,  $T_\xi \sim \frac{\hbar D}{\xi_{loc}^2}$ , lorsque  $\tau_\phi$  est limité par les interactions électron-électron, i.e.  $p = 1$ . À  $T = T_\xi$ , on a

$$g(T_\xi) = \frac{E_T}{\delta} \sim 1 \quad \iff \quad \sigma \sim \frac{e^2}{h}. \quad (4.27)$$

### 4.2.5 Conduction activée thermiquement dans les films minces

Dans le régime localisé, il existe différents régimes de conduction activée par la température [68]. Lorsque la température est telle que  $L_\phi \sim \xi_{loc}$ , i.e.  $T = T_\xi$ , le transport s'effectue par sauts thermiquement activés entre volumes de localisation voisins. Dans les films minces, cette température correspond à  $g = \frac{E_T}{\delta_{loc}} \sim 1$  où  $E_T \sim T_\xi$ , et  $\delta_{loc} = \frac{1}{\nu \xi_{loc}^d}$  est l'écart moyen entre niveaux dans le volume de localisation. Pour  $T < \delta_{loc}$ , la conductivité suit alors une loi d'activation :

$$\sigma \propto \exp\left(-\frac{T_0}{T}\right) \quad (4.28)$$

avec  $T_0 \sim \delta_{loc}$ .

Aux plus basses températures, Mott a montré que le coût énergétique d'un transfert d'électrons à des distances  $L \gg \xi_{loc}$  est parfois plus favorable malgré le recouvrement exponentiellement plus faible des fonctions d'ondes. Les états proches spatialement ont en effet des énergies très différentes et vice versa. La probabilité de trouver un état proche en énergie augmente par conséquent avec la portée du saut, permettant de réduire le transfert d'énergie inélastique (via les phonons principalement). Pour introduire ce mécanisme, supposons que la contribution à la conductivité d'un saut dans un état localisé situé à une distance  $L \gg \xi_{loc}$  soit proportionnelle à l'élément de la matrice de recouvrement entre les deux états au carré :  $e^{-2L/\xi_{loc}}$ . L'écart énergétique entre ces deux niveaux diminue avec  $L$  et peut s'estimer de la manière suivante :  $\delta_L \sim \frac{1}{\nu L^d} \sim \delta_{loc} \left(\frac{\xi_{loc}}{L}\right)^d$ , pour  $L \gg \xi_{loc}$ . La probabilité de saut à une distance  $L$ ,  $w(L)$ , est alors donnée par

$$w(L) \propto \exp\left(-\frac{2L}{\xi_{loc}} - \frac{\delta_L}{T}\right) \quad (4.29)$$

Pour une température donnée, le saut optimal,  $L_M$ , s'obtient en minimisant l'exposant de (4.29) :  $L_M \sim \left(\frac{\xi_{loc}}{\nu T}\right)^{1/(d+1)}$ . Ainsi, à basse température, la conductivité suit une loi dite de sauts à portées variables ou loi de Mott :

$$\sigma \propto \exp\left[-\left(\frac{T_M}{T}\right)^{\frac{1}{d+1}}\right] \quad (4.30)$$

La dimensionnalité est déterminée ici en comparant  $L_M$  aux dimensions du système.

La prise en compte de l'interaction Coulombienne conduit à une loi dite d'Efros-Shklovskii, où l'exposant  $1/(d+1)$  est remplacé par  $1/2$  quelque soit la dimension. Dans les films minces, Larkin et Khmel'nitskii [84] ont montré que cette loi apparaît aux plus basses températures après un régime d'activation simple (éq. 4.28). En ajoutant l'énergie Coulombienne  $e\phi(L)$  au coût énergétique du saut, la probabilité devient  $w(L) \propto \exp\left(-\frac{2L}{\xi_{loc}} - \frac{E_L}{T}\right)$ , où  $E_L = \delta_L + e\phi(L)$ .

Aux larges distances,  $L \gg \xi_{loc}$ ,  $E_L \approx e\phi(L) = e^2/\epsilon L$ , où  $\epsilon$  est la constante diélectrique du film. En minimisant l'exposant de la probabilité  $w(L)$ , on aboutit à la loi d'Efros-Shklovskii :

$$\sigma \sim \exp \left[ - \left( \frac{T_{ES}}{T} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (4.31)$$

avec  $T_{ES} = \frac{4e^2}{\epsilon \xi_{loc}}$ .

### 4.3 Localisation et supraconductivité

Supraconductivité et localisation sont deux phénomènes physiques antinomiques : l'un conduit à une localisation spatiale des fonctions d'ondes tandis que l'autre établit une cohérence de phase macroscopique du système à  $N$  électrons. *Une question majeure de la physique des films minces désordonnés est de comprendre comment la supraconductivité survit dans un régime où les états à un électron sont localisés dans le volume  $\xi_{loc}^d$ .*

#### 4.3.1 Extension du théorème d'Anderson

Dans la limite  $k_F l_e \gg 1$ , Anderson a montré que le désordre a peu d'influence sur la supraconductivité tant que celui-ci ne brise pas l'invariance par renversement du sens du temps [8]. La plupart des grandeurs thermodynamiques telles que la température critique ou le gap supraconducteur ne sont pas ou peu perturbées par la nature diffusive du transport. Néanmoins, notons que dans la limite "sale" définie par un libre parcours moyen élastique  $l_e$  inférieur à la longueur de cohérence de phase supraconductrice  $\xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta_0}$ , où  $\Delta_0$  est le gap supraconducteur à  $T = 0$ , les électrons formant les paires de Cooper diffusent pendant un temps  $\tau_s = \frac{\hbar}{\Delta_0} > \tau_e$ . Ceci se traduit par une renormalisation de la longueur de cohérence supraconductrice effective :

$$\xi_s = \sqrt{D\tau_s} = \sqrt{\frac{\hbar D}{\Delta_0}} \sim \sqrt{\xi_0 l_e}, \quad \text{pour } \xi_0 > l_e. \quad (4.32)$$

La dimensionnalité d'un film mince supraconducteur se détermine par conséquent en comparant cette longueur  $\xi_s$  à l'épaisseur.

Dans la limite de fort désordre, M. Ma et P. Lee ont montré que le théorème d'Anderson peut être étendu dans le régime de localisation forte, juste en-dessous du bord de mobilité [90]. En construisant la théorie de champ moyen BCS sur la base des fonctions d'ondes localisées  $\phi_n(\mathbf{r})$  dans le volume de localisation  $\xi_{loc}^d$ , on aboutit à l'équation du gap :

$$1 = U \int \frac{1}{\sqrt{\epsilon^2 + \Delta_0^2}} N(\epsilon, \mathbf{r}) d\epsilon \quad (4.33)$$

où  $U$  est l'interaction effective entre électrons avec l'approximation habituelle pour la dépendance en fréquence, i.e.  $U(\omega) = -U$  pour  $|\omega| < \omega_D$  et  $U(\omega) = 0$  pour  $|\omega| > \omega_D$ ,  $\omega_D$  étant la fréquence de Debye. Dans le régime de localisation forte, la densité d'états locale

$$N(\epsilon, \mathbf{r}) = \sum \delta(\epsilon - \epsilon_n) \phi_n^2(\mathbf{r}) \quad (4.34)$$

n'est plus une fonction continue. Le spectre d'énergie est discret en raison du nombre fini d'états présents dans le volume de localisation.  $N(\epsilon, \mathbf{r})$  est alors une série aléatoire de fonctions de Dirac. Puisque  $\Delta_0$  fixe l'échelle de variation de l'intégrande, l'équation du gap (4.33) est valide tant que plusieurs états dans la bande d'énergie  $\Delta_0$  sont présents dans le volume de localisation. En considérant l'écart moyen entre niveaux  $\delta_{loc} = 1/(\nu\xi_{loc})^d$ , on obtient le critère de validité du théorème d'Anderson dans le régime de localisation forte :

$$\frac{\Delta_0}{\delta_{loc}} = \nu\xi_{loc}^d \Delta_0 \gg 1 \quad (4.35)$$

En terme de longueur, l'équation (4.35) signifie que la supraconductivité survit tant que la longueur caractéristique  $(\nu\Delta_0)^{-1/d} \sim (\xi_0/k_F^{d-1})^{1/d} k_F^{1/d} \sim (\xi_0 l_e^{d-1})^{1/d}$  associée à la longueur de cohérence supraconductrice<sup>6</sup> est inférieure à la longueur de localisation  $\xi_{loc}$ .

Cette approche théorique conduit à l'interprétation physique suivante [90, 116]. Si l'on divise le système en boîtes de taille  $\xi_{loc}$ , la condition  $\delta_{loc} < \Delta_0$  signifie que les états localisés d'énergie inférieure à  $\Delta_0$  peuvent s'organiser de façon cohérente sous forme d'une fluctuation supraconductrice locale<sup>7</sup>. Un couplage Josephson entre les volumes de localisation adjacents peut alors conduire à une stabilisation de ces fluctuations dans un état fondamental macroscopique. En effet, si l'on considère deux volumes de localisation couplés par un élément de matrice tunnel  $t$ , l'énergie de Thouless associée au taux de transition entre ces deux régions (cf. éq. (4.18)) est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$E_T = \frac{\hbar}{\tau} \approx 2\pi \bar{t}^2 \nu \xi_{loc}^3 \quad (4.37)$$

Avec, pour un isolant d'Anderson,  $g = \frac{E_T}{\delta_{loc}} < 1 \Leftrightarrow |t| < \delta_{loc}$ . L'énergie Josephon associée au couplage tunnel de paires de Cooper est, quant à elle, liée au gap supraconducteur :

$$E_J \approx \pi^2 \bar{t}^2 [\nu \xi_{loc}^3]^2 \Delta_0 \quad (4.38)$$

Ainsi, si la condition (4.35) est vérifiée, on peut avoir

$$E_J > \delta_{loc} > E_T, \quad (4.39)$$

c'est-à-dire *la possibilité d'avoir un couplage Josephson malgré l'absence de couplage tunnel d'électrons individuels*. En dimension  $d = 3$ , ces considérations conduisent à un état supraconducteur dans un isolant d'Anderson pour lequel les fonctions d'ondes sont localisées. Dans la limite extrême où  $\xi_{loc} < (\nu\Delta_0)^{-1/d}$ , le gap supraconducteur  $\Delta(\mathbf{r})$  devient spatialement inhomogène et sa moyenne diminue fortement jusqu'à s'annuler lorsque  $\nu\xi_{loc}^d \omega_D < 1$  [90], où  $\omega_D$  est la fréquence de Debye.

---

<sup>6</sup>Dans le cas de la transition d'Anderson en dimension  $d = 3$ , il a été montré que l'expression de la longueur de cohérence supraconductrice dévie de sa valeur habituelle  $\xi_s \sim \sqrt{\xi_0 l_e}$  lorsque le niveau de Fermi est proche du bord de mobilité [116, 76, 80] :

$$\xi_s \sim \begin{cases} \sqrt{\xi_0 l_e}, & E_F > E_m \\ (\xi_0 l_e^2)^{1/3}, & E_F \sim E_m \end{cases} \quad (4.36)$$

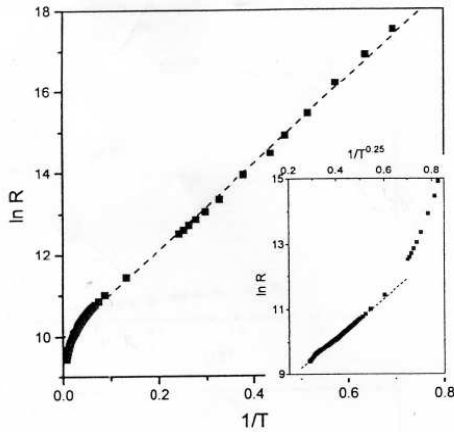
<sup>7</sup>Les fluctuations supraconductrices correspondent ici à des fluctuations spatiales et non thermodynamiques ou quantiques.

Le cas de la dimension  $d = 2$  est plus pathologique puisqu'a priori, il n'existe pas d'état métallique à  $T = 0$ . Si l'on omet les fluctuations thermodynamiques supraconductrices ainsi que l'interaction Coulombienne, le raisonnement précédent garantit la présence d'une phase supraconductrice si la condition (4.35) est vérifiée, c'est-à-dire tant que la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi_s$  est inférieure à la longueur de localisation  $\xi_{loc}$ . Par ailleurs, du fait de la dépendance exponentielle de  $\xi_{loc}$  en fonction de  $k_F l_e$  (éq. (4.25)), cette phase est extrêmement sensible au désordre et la moindre variation de ce dernier peut faire transiter le système dans l'état isolant.

### 4.3.2 Supraconductivité inhomogène

#### Granularité induite par le désordre

Expérimentalement, de nombreux efforts se sont portés sur les systèmes supraconducteurs désordonnés dits "homogènes", tels que les matériaux amorphes  $InO_x$ ,  $MoGe$ ,  $Be...$ , qui se distinguent des systèmes granulaires pour lesquels la physique est dominée par le couplage inter-grains. Or, qualifier un désordre d'homogène est quelque peu abusif puisque la statistique d'un désordre aléatoire est, par définition, poissonnienne, donc fortement inhomogène à petite échelle.



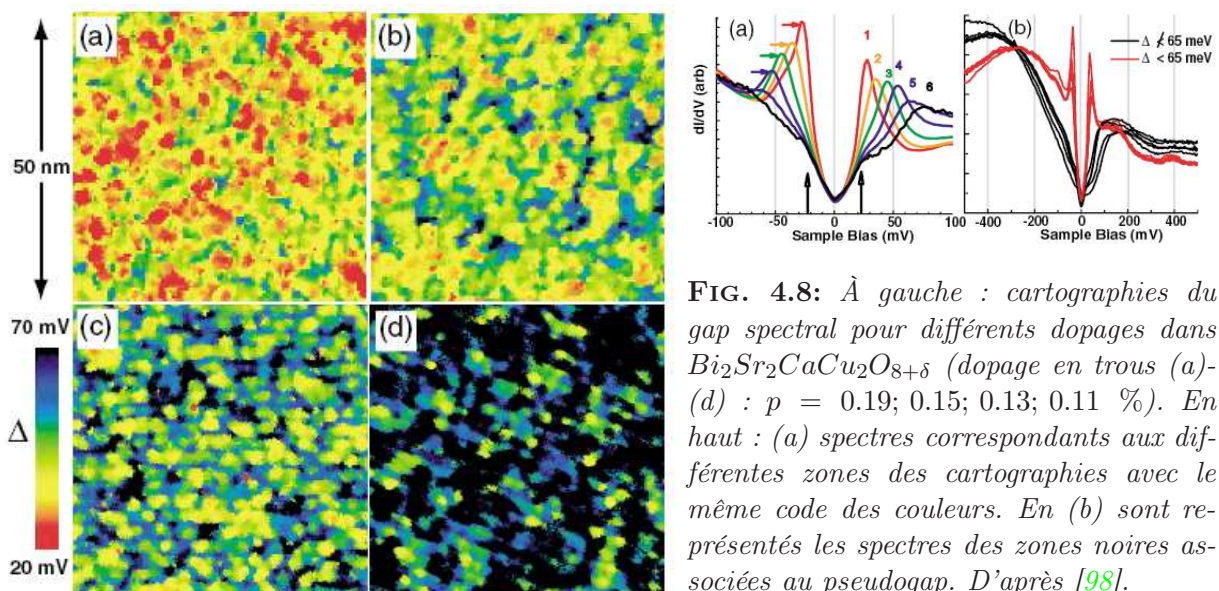
**FIG. 4.7:** Dépendance en température d'un film d' $InO_x$  amorphe de 20 nm d'épaisseur. En-dessous de 4.1 K la résistance suit une simple loi d'activation  $R \propto \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)$ , avec  $T_0 = 15$  K. Dans l'insert, les mêmes données présentent une loi de Mott à  $d = 3$ ,  $R \propto \exp\left(\frac{T_M}{T}\right)^{1/4}$ , au-dessus de 10 K. D'après [81].

Les fluctuations du désordre peuvent s'avérer cruciales pour les transitions de phase et peuvent conduire à la formation de domaines [29, 138, 69]. On peut citer, par exemple, le cas de la transition métal-isolant dans les gaz d'électrons bidimensionnels, pour laquelle de nombreux résultats théoriques et expérimentaux soutiennent une description en terme de transition de percolation [2, 126, 87]. Le désordre, ainsi que les interactions, induisent dans ces systèmes une ségrégation de phase locale entre des zones de faible densité d'électrons, isolantes, et des zones de forte densité, métalliques [2, 126, 87, 67]. Concernant l'état supraconducteur au voisinage de la transition d'Anderson, étant donné que les fluctuations de conductance d'un volume cohérent  $L_\phi^d$  à un autre sont de l'ordre de grandeur de la conductance moyenne, il est naturel de s'attendre à un état supraconducteur lui-aussi inhomogène s'établissant par un mécanisme de percolation. Par continuité, des domaines supraconducteurs non connectés les uns aux autres sont susceptibles de survivre du côté isolant, pour  $E_F \lesssim E_m$ . Un matériau a priori homogène peut ainsi devenir granulaire dans le sens où deux phases distinctes coexistent. En diminuant le désordre d'un tel système, l'état supra-



conducteur macroscopique se construit sur un réseau aléatoire de jonctions Josephson par établissement de la cohérence de phase entre chaque domaine.

Cette idée de *granularité induite par le désordre* a été introduite pour la première fois dans le contexte de la transition supraconducteur-isolant par Kowal et Ovadyahu [81] pour expliquer le comportement anormal de films d'oxide d'indium amorphe. Ces échantillons proches de la transition du côté isolant présentent un régime de sauts à portées variables (cf. §4.2.5), loi de Mott  $R \propto \exp\left(\frac{T_M}{T}\right)^{1/4}$ , suivi à plus basse température, en-dessous de 4 K, d'une simple loi d'activation  $R \propto \exp\left(\frac{T_0}{T}\right)$  (cf. fig. 4.7). Étant donné qu'un isolant d'Anderson présente d'abord un mécanisme de sauts au plus proche voisin à haute température, i.e. une loi d'activation, puis un régime de sauts à portées variables, les auteurs attribuent ce comportement d'activation thermique à l'apparition de domaines supraconducteurs à basse température<sup>8</sup>. Dans un tel système, le transport est régi par le transfert tunnel de quasiparticules entre les domaines supraconducteurs produisant une loi d'activation dominée par le lien le plus faible.



L'existence d'une phase supraconductrice inhomogène a été mise en évidence dans un tout autre contexte par des mesures de spectroscopie tunnel à balayage dans les supraconducteurs à haute température critique (pour une revue, voir [42]). La figure 4.8 présente les cartographies du gap spectral pour quatre dopages différents du cuprate  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ , ainsi que les spectres associés au code des couleurs [98]. Les inhomogénéités à l'échelle nanométrique du gap supraconducteur sont flagrantes dans ces composés, et apparaissent d'autant plus importantes que le dopage en trou est faible. Pour l'échantillon le plus sous-dopé, la cartographie (d) révèle une faible densité de zones supraconductrices caractérisées par la

<sup>8</sup>Une loi d'activation simple peut apparaître dans les semiconducteurs dopés pour des températures plus basses que le régime de sauts à portées variables, lorsqu'un gap de Coulomb s'ouvre dans la densité d'états. Pour  $InO_x$ , la loi d'activation à basse température n'est observée que pour les échantillons proches de la transition supraconducteur-isolant. Pour les échantillons isolants plus éloignés de la transition, le régime de Mott persiste jusqu'aux plus basses températures et peut être suivi par un régime d'Efros-Shklovskii [81]. Le régime d'activation observé figure 4.7 dans des échantillons moins désordonnés que ceux présentant un régime d'Efros-Shklovskii ne peut donc pas être associé à un gap de Coulomb.

présence de pics de cohérence, au milieu d'une phase présentant majoritairement un large pseudogap. L'une des origines possible de ces inhomogénéités serait le désordre intrinsèque dû au dopage en oxygène [42, 99], illustrant ainsi la notion de granularité induite par le désordre [138].

### Simulations numériques de l'état BCS en présence de fort désordre

Revenons au cas des supraconducteurs conventionnels de basse température critique et de symétrie  $s$ , et attardons-nous sur une étude numérique qui capture les effets physiques essentiels du désordre sur la supraconductivité.

L'effet d'un fort désordre sur l'état BCS à  $T = 0$  a été étudié par Ghosal, Randeria et Trivedi [52, 53] en résolvant numériquement les équations de Bogolubov-de Gennes [31] de manière auto-cohérente. Le Hamiltonien étudié  $H = H_0 + H_{int}$ , où

$$\begin{aligned} H_0 &= -t \sum_{\langle ij \rangle, \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) + \sum_{i, \sigma} (V_i - \mu) n_{i\sigma} \\ H_{int} &= -|U| \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}, \end{aligned} \quad (4.40)$$

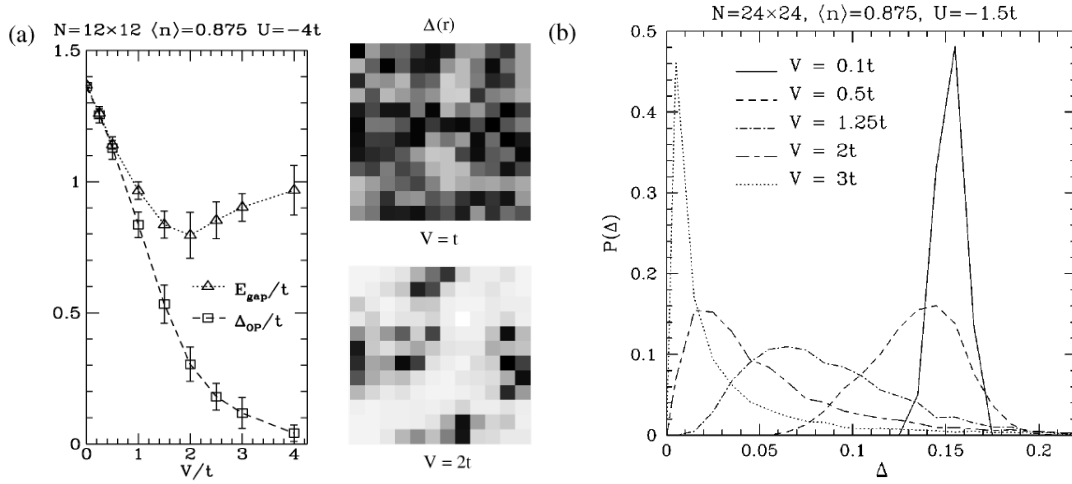
décrit un supraconducteur de symétrie  $s$ , en dimension  $d = 2$ , en présence d'impuretés non magnétiques. Dans (4.40),  $c_{i\sigma}^\dagger$  ( $c_{i\sigma}$ ) est l'opérateur de création (respectivement annihilation) d'une quasiparticule de spin  $\sigma$  au site  $\mathbf{r}_i$  d'un réseau carré,  $t$  est l'énergie de transfert d'un site à l'autre,  $|U|$  est l'interaction attractive à l'origine de l'appariement,  $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$ , et  $\mu$  le potentiel chimique.  $V_i$  est le potentiel d'impureté au site  $\mathbf{r}_i$ , défini comme une variable aléatoire uniformément distribuée sur  $[-V, V]$ . Ainsi,  $V$  contrôle le degré de désordre. Cet Hamiltonien modélise de la façon la plus simple la combinaison de la supraconductivité avec les effets de localisation : lorsque  $V = 0$ ,  $H$  décrit un supraconducteur BCS et pour  $|U| = 0$  il se réduit au problème de la localisation d'Anderson.

La méthode de Bogolubov-de Gennes présente l'avantage de considérer les variations spatiales de l'amplitude locale de condensation des paires de Cooper  $\Delta(\mathbf{r}_i) = -|U| \langle c_{i\downarrow} c_{i\uparrow} \rangle$ . Représentés sur la figure 4.9, les résultats de la résolution numérique de l'Hamiltonien (4.40) dans cette approximation de champ moyen mettent en évidence une phase supraconductrice spatialement inhomogène en présence de désordre [52, 53]. La distribution  $P(\Delta)$  de l'amplitude locale d'appariement  $\Delta(\mathbf{r}_i)$  obtenue est très étendue pour les forts désordres avec un poids important pour  $\Delta(\mathbf{r}_i) \rightarrow 0$ . Dans l'espace réel, les cartographies de  $\Delta(\mathbf{r}_i)$ , reproduites figure 4.9 pour deux configurations données du désordre, font apparaître à fort désordre ( $V = 2t$ ) une ségrégation de phase produisant des îlots supraconducteurs dans une matrice où  $\Delta(\mathbf{r}_i) \approx 0$ .

La nature de cette matrice a été étudiée précisément dans [53] en calculant la densité d'états locale sur un site où  $\Delta(\mathbf{r}_i) \approx 0$ . Le résultat, reproduit figure 4.10 (b), montre un large gap spectral sans pic de cohérence indiquant un état local isolant. Pour comprendre l'origine de ce gap, réécrivons le Hamiltonien sans interaction  $H_0$  sur la base de ses états propres  $|\phi_\alpha\rangle$ , tels que  $H_0|\phi_\alpha\rangle = \epsilon_\alpha|\phi_\alpha\rangle$ , en incluant l'appariement d'électrons dans des états symétriques par renversement du sens du temps  $\alpha, \uparrow$  et  $\bar{\alpha}, \downarrow$  :

$$H' = \sum_{\alpha, \sigma} \zeta_\alpha c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} - |U| \sum_{\alpha, \beta} M_{\alpha, \beta} c_{\alpha\uparrow}^\dagger c_{\bar{\alpha}\downarrow}^\dagger c_{\bar{\beta}\downarrow} c_{\beta\uparrow} \quad (4.41)$$





**FIG. 4.9:** À gauche : gap  $E_{\text{gap}}$  du spectre d'excitations des quasiparticules et paramètre d'ordre  $\Delta_{\text{op}}$  en fonction du désordre  $V$ . Au centre : représentation spatiale de l'amplitude d'appariement  $\Delta(\mathbf{r})$  pour la même configuration du désordre mais pour deux intensités  $V$  différentes. Les parties sombres correspondent aux valeurs les plus grandes de  $\Delta(\mathbf{r})$ , les plus claires correspondent à  $\Delta(\mathbf{r}) \rightarrow 0$ . À droite : distribution de l'amplitude d'appariement local  $\Delta(\mathbf{r})$  pour différentes intensités du désordre. D'après [52, 53].

où l'élément de matrice  $M_{\alpha,\beta}$  est défini par :

$$M_{\alpha,\beta} = \sum_{\mathbf{r}_i} |\phi_{\alpha}(\mathbf{r}_i)|^2 |\phi_{\beta}(\mathbf{r}_i)|^2 \quad (4.42)$$

Ici,  $\zeta_{\alpha} = (\epsilon_{\alpha} - \mu)$  est l'énergie des états propres rapportée au potentiel chimique moyen  $\mu$ . La résolution de (4.41) dans l'approximation de champ moyen conduit à une équation du gap

$$\Delta_{\alpha} = |U| \sum_{\beta} M_{\alpha,\beta} \frac{\Delta_{\beta}}{2E_{\beta}} \quad (4.43)$$

où  $E_{\alpha} = \sqrt{\zeta_{\alpha}^2 + \Delta_{\alpha}^2}$ . (4.43) est similaire à l'équation du gap BCS à la différence près que (4.43) prend en compte tous les éléments de matrice  $M_{\alpha,\beta}$ . Suivons maintenant l'analyse de Ghosal *et al.* [53] et étudions qualitativement les limites faible et fort désordre de ces équations.

Dans la limite de faible désordre, pour un système de taille finie en dimension  $d = 2$  ou pour un système infini tridimensionnel, les états propres  $\phi_{\alpha}(\mathbf{r}_i)$  sont étendus. Dans ce cas  $M_{\alpha,\beta} \approx 1/N$  et l'on retrouve avec (4.43) l'équation BCS avec une solution  $\Delta$  spatialement uniforme.

Dans la limite opposée de fort désordre, les états propres du problème sans interaction sont localisés avec un recouvrement spatial exponentiellement faible (cf. §4.2.1). Les éléments de matrice non diagonaux ne sont pas importants dans l'équation du gap puisque des états éloignés spatialement ont un recouvrement exponentiellement faible. Cette hypothèse, vérifiée numériquement dans [53], permet de réduire la matrice  $M_{\alpha,\beta}$  à ses éléments diagonaux :

$$M_{\alpha,\beta} \approx \delta_{\alpha,\beta} \sum_{\mathbf{r}_i} |\phi_{\alpha}(\mathbf{r}_i)|^4 \quad (4.44)$$

et donc au taux de participation inverse<sup>9</sup>  $\mathcal{P} = \sum_{\mathbf{r}_i} |\phi_\alpha(\mathbf{r}_i)|^4$ . Puisqu'en dimension  $d = 2$   $\mathcal{P} = \xi_{loc}^{-2}$ , la résolution de l'équation du gap (4.43) avec  $M_{\alpha,\beta} \approx \delta_{\alpha,\beta} \xi_{loc}^{-2}(\alpha)$  donne  $\Delta_\alpha = 0$  pour les états  $\alpha$  d'énergie loin du potentiel chimique, et  $E_\alpha \simeq |U|/(2\xi_{loc}^2)$  pour les états de faible  $\zeta_\alpha$ , soit un gap :

$$E_{gap} = \frac{|U|}{2\xi_{loc}^2} \quad (4.46)$$

Cette analyse explique ainsi qualitativement l'augmentation de  $E_{gap}$  aux forts désordres, figure 4.9, en raison de la diminution de  $\xi_{loc}$ . *L'origine de ce gap spectral dans la matrice isolante (cf. fig. 4.10 (b)) est donc intrinsèquement liée à la présence du potentiel attractif, c'est-à-dire à la supraconductivité<sup>10</sup>.* Le raisonnement précédent peut être étendu jusqu'à la limite  $V \rightarrow \infty$ , conduisant à l'appariement de deux électrons de spin opposé sur le même état localisé [86, 53, 39]. Il reste toutefois indispensable que la différence d'énergie des états impliqués dans l'appariement soit inférieure à la fréquence de Debye. En effet, si la condition  $\nu \xi_{loc}^d \omega_D > 1$  n'est pas respectée, l'interaction n'est plus attractive.

L'effet du désordre est par conséquent sans appel : *son augmentation produit un état supraconducteur inhomogène allant jusqu'à une ségrégation de phase avec des îlots supraconducteurs dans une matrice isolante.* L'hypothèse de granularité induite par le désordre se voit, par conséquent, confortée par cette étude théorique.

Il est par ailleurs possible de calculer le paramètre d'ordre supraconducteur  $\Delta_{op}$  à l'aide de la fonction de corrélation

$$\left\langle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{r}} \hat{\Delta}(\mathbf{r}) \hat{\Delta}^\dagger(\mathbf{r} + \mathbf{l}) \right\rangle \xrightarrow{l \rightarrow \infty} \Delta_{op}^2 \quad (4.47)$$

où  $\hat{\Delta}(\mathbf{r}_i) = -|U|c_{i\downarrow}c_{i\uparrow}$ . D'après [53], ce calcul équivaut au calcul de la valeur moyenne de l'amplitude d'appariement  $\Delta_{op} \simeq \int d\Delta \Delta P(\Delta)$ . L'évolution du paramètre d'ordre avec le désordre ainsi que celle du gap spectral  $E_{gap}$  obtenu à partir de la densité d'états moyennée sur le désordre (cf. fig. 4.10), sont représentées figure 4.9. Alors que le paramètre d'ordre décroît continûment lorsque le désordre augmente, le gap spectral dominé par les zones isolantes aux forts désordres, sature. Ce résultat montre que *l'on ne peut plus associer le gap spectral au paramètre d'ordre lorsque le désordre devient trop fort.* Cette association n'est clairement valable que pour les systèmes faiblement désordonnés.

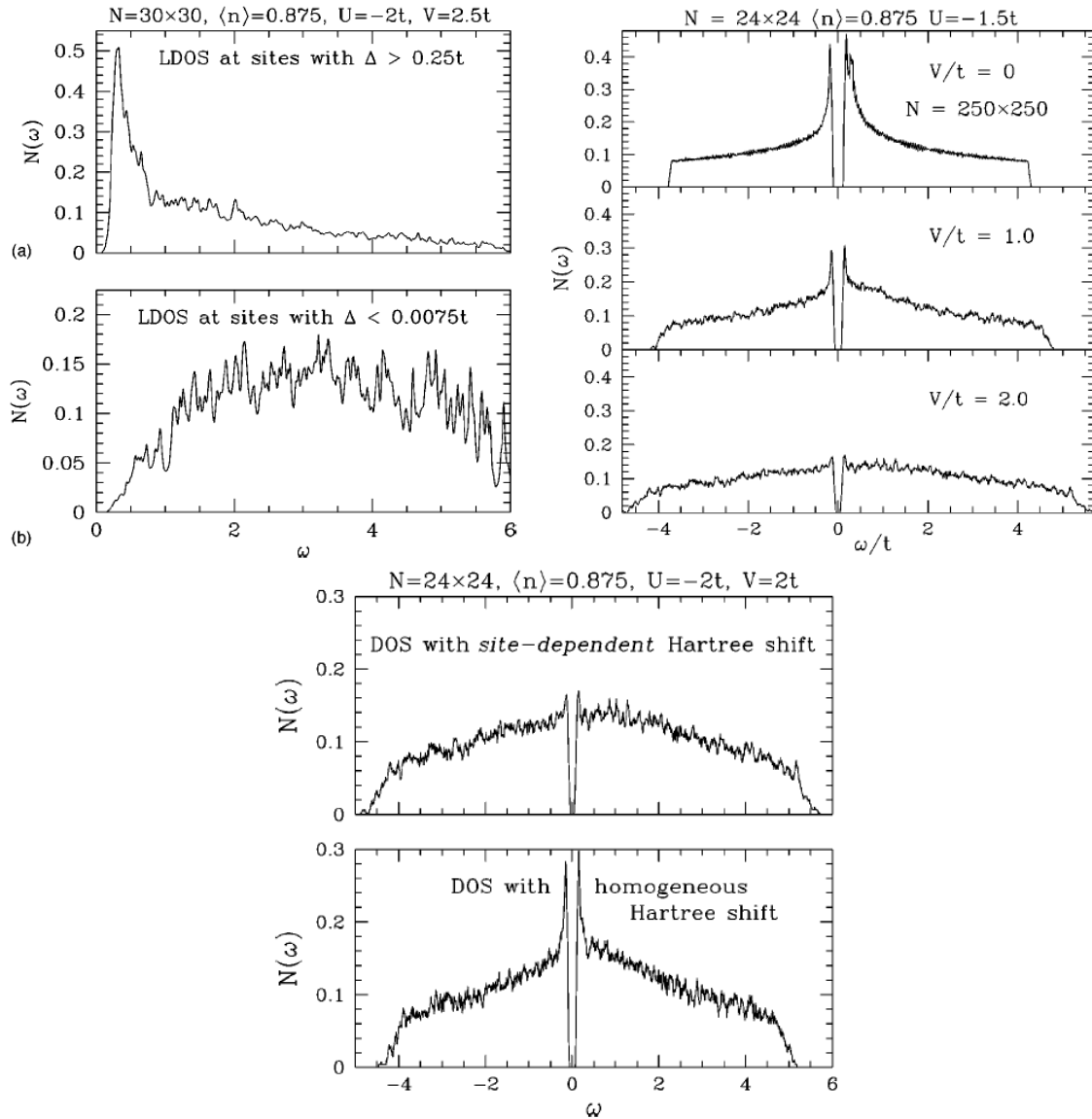
Pour déterminer si ce système inhomogène à fort désordre est encore macroscopiquement supraconducteur, les auteurs de [52, 53] ont calculé la rigidité de phase en fonction du désordre. Le désordre seul, même s'il l'affaiblit drastiquement, est apparu incapable de détruire totalement la rigidité de phase. Un courant superfluide persiste aux forts désordres grâce au couplage Josephson entre les îlots supraconducteurs. Par contre, les fluctuations

<sup>9</sup>Le taux de participation inverse est défini comme le second moment de l'intensité des fonctions d'onde  $|\psi(\mathbf{r})|^2$  :

$$\mathcal{P} = \int d^d \mathbf{r} |\psi(\mathbf{r})|^4 \quad (4.45)$$

$\mathcal{P}^{-1}$  est alors proportionnel au volume dans lequel la fonction d'onde a une amplitude non nulle. Il donne par conséquent une mesure du volume moyen de l'état  $\psi(\mathbf{r})$ . Dans le cas d'ondes planes, i.e. états étendus,  $\mathcal{P}^{-1} = V$ . Pour des fonctions d'onde localisées, le taux de participation inverse n'est plus extensif. Il est alors égale au volume de localisation :  $\mathcal{P}^{-1} = \xi_{loc}^3$ .

<sup>10</sup>Rappelons qu'un isolant d'Anderson sans interaction ( $|U| = 0$ ) n'a pas de gap [53, 86].

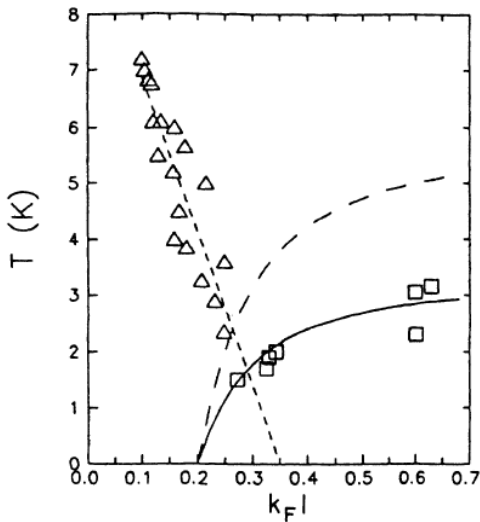


**FIG. 4.10:** À gauche : densités d'états locales (LDOS) pour deux sites  $\mathbf{r}_i$  différents. (a) : LDOS pour un site où l'amplitude d'appariement  $\Delta(\mathbf{r}_i)$  est forte, c'est-à-dire correspondant aux îlots supraconducteurs de la figure 4.9. (b) LDOS pour un site où  $\Delta(\mathbf{r}_i) \approx 0$ . Ce large gap spectral sans pic de cohérence est caractéristique d'un état isolant. Au centre : densités d'états moyennées sur le désordre pour trois intensités  $V$  de désordre. Lorsque le désordre augmente, les pics de cohérence diminuent en raison de l'apparition du gap isolant et par ailleurs le gap reste fini à fort désordre. À droite : la prise en compte dans l'approximation de Bogolubov-de Gennes d'un décalage local en énergie dû à la contribution de Hartree,  $\tilde{\mu}_i = \mu + |U|\langle n_i \rangle / 2$ , produit aussi un affaiblissement des pics de cohérence mais cette fois-ci sur la densité d'états locale supraconductrice. D'après [53].

quantiques qui ne sont pas prises en compte dans ce modèle, sont, quant à elles, susceptibles de briser cette rigidité de phase. Aux forts désordres, les fluctuations quantiques vont nécessairement être importantes pour les îlots supraconducteurs puisque la charge, i.e. le nombre de paire de Cooper, et la phase supraconductrice de ces îlots sont des variables conjuguées. En effet, pour un petit îlot dont l'énergie de charge est non négligeable, les

fluctuations du nombre de paires de Cooper vont diminuer à cause du blocage de Coulomb augmentant ainsi les fluctuations de sa phase supraconductrice. La théorie de Bogolubov-de Gennes ne permettant pas de traiter les fluctuations quantiques, les auteurs de [52, 53] ont utilisé un modèle effectif quantique XY en dimension  $d = 2$  pour décrire la dynamique de la phase supraconductrice. Dans cette modélisation, les fluctuations quantiques de la phase détruisent la rigidité de phase macroscopique pour un certain désordre critique et transforme le supraconducteur en un isolant composé d'îlots supraconducteurs dans une matrice isolante. *Pour les forts désordres, ce système inhomogène subit par conséquent une transition supraconducteur-isolant résultant de la compétition entre l'énergie de charge des îlots et le couplage Josephson.*

### 4.3.3 Paires de Cooper localisées



**FIG. 4.11:** Dépendance de l'énergie d'activation  $T_0$  ( $\triangle$ ) d'échantillons isolants d' $InO_x$  amorphe et de la température critique  $T_c$  ( $\square$ ) d'échantillons supraconducteurs en fonction du désordre ( $kFl$ ). D'après [123].

Le régime d'activation thermique observé dans les échantillons isolants d' $InO_x$  amorphe (cf. fig. 4.7) a été étudié systématiquement pour une série d'échantillons par Shahar et Ovadyahu [123]. L'énergie d'activation  $T_0$  représentée sur la figure 4.11 en fonction du désordre décroît à mesure que le désordre diminue. À proximité de la transition supraconducteur-isolant, l'énergie d'activation  $T_0$  du dernier échantillon isolant est de l'ordre de la température critique du premier échantillon supraconducteur. Un tel régime d'activation a, par ailleurs, été observé dans les films minces de bismuth amorphe, de plomb, d'aluminium [89] ainsi que dans les films de nitrure de titane [59, 14]. Toutes ces données expérimentales confortent le lien entre  $T_0$  et la supraconductivité.

Récemment, Feigel'man *et al.* [39] ont proposé une théorie semi-microscopique justifiant l'apparition d'un large gap, de l'ordre de  $T_0$ , dans le spectre des excitations à un électron. Partant du côté isolant de la transition d'Anderson, leur modèle prend en compte l'effet de parité [97] qui décrit le coût d'énergie associé à l'ajout d'un électron dans un grain supraconducteur, en l'occurrence le volume de localisation  $\xi_{loc}^3$ , lorsque le nombre d'électrons est initialement pair. Ce coût en énergie, défini par

$$\Delta_p = E_{2l+1} - \frac{1}{2}(E_{2l} + E_{2l+2}) \quad (4.48)$$

où  $E_n$  est l'énergie du grain avec  $n$  électrons, ouvre un gap dans la densité d'états à un électron, à l'origine du régime d'activation thermique.

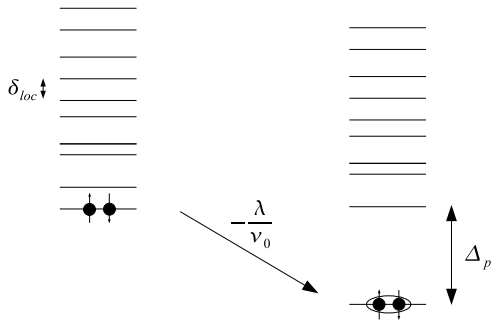
Pour calculer le gap de parité  $\Delta_p$ , le Hamiltonien considéré,

$$H = \sum_{\alpha,\sigma} \zeta_\alpha c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} - \frac{\lambda}{\nu_0} \sum_{\alpha,\beta} M_{\alpha,\beta} c_{\alpha\uparrow}^\dagger c_{\alpha\downarrow}^\dagger c_{\beta\downarrow} c_{\beta\uparrow}, \quad (4.49)$$

(identique à  $H'$  (éq. (4.41) avec  $|U| = \frac{\lambda}{\nu_0}$ ), est construit sur la base des états localisés. L'ingrédient principal de cette théorie réside dans le comportement d'échelle anormale des éléments de matrice diagonaux  $M_{\alpha,\alpha} = \mathcal{P} = \sum_{\mathbf{r}_i} |\phi_{\alpha}(\mathbf{r}_i)|^4$  avec la longueur de localisation. En effet, proche du bord de mobilité, les fonctions d'ondes présentent un caractère fractal<sup>11</sup> qui se traduit par un taux de participation inverse  $\mathcal{P} \propto \xi_{loc}^{-D_2}$ , dont l'exposant fractal  $D_2$  est inférieur à la dimension d'espace [39, 72, 100]. En introduisant la plus petite échelle de la géométrie fractale  $L_0$ , on obtient alors :

$$\bar{M} = \frac{1}{L_0^3} \left( \frac{L_0}{\xi_{loc}} \right)^{D_2} \quad (4.51)$$

où  $\bar{M}$  est la moyenne de la distribution des  $M_{\alpha,\alpha}$ .



**FIG. 4.12:** Ouverture du gap de parité dans le spectre des excitations à un électron, avec le branchement de l'interaction attractive  $-\frac{\lambda}{\nu_0}$ , dans le cas où  $\delta_{loc} > \Delta$ .

Ainsi, dans la limite  $\Delta \ll \delta_{loc} \ll \omega_D$ , le terme d'interaction peut être traité perturbativement en ne prenant en compte que les termes diagonaux  $\alpha = \beta$  dans l'équation (4.49). Dans cette approximation, un électron dans l'état  $\alpha$  interagit seulement avec un électron de spin opposé dans le même état  $\alpha$ . Ajouter un  $(2l+1)^{ième}$  électron ne contribue pas à l'énergie d'interaction,  $\delta E_{2l+1} = \delta E_{2l}$ . Par contre le  $(2l+2)^{ième}$  va dans la même orbitale que le précédent et interagit avec lui :  $\delta E_{2l+2} = \delta E_{2l+1} - \frac{\lambda}{\nu_0} M_{\alpha}$ . Avec (4.48), on obtient :

$$\Delta_p = \frac{\lambda}{2\nu_0} M_{\alpha} \propto \frac{\lambda}{2} E_0 \left( \frac{L_0}{\xi_{loc}} \right)^{D_2} \propto (E_m - E_F)^{\nu D_2} \quad (4.52)$$

où  $\nu$  est l'exposant critique de la longueur de localisation (cf. éq. 4.11) et  $E_0 = 1/\nu_0 L_0^3$ . Les états à un électron sont donc décalés d'une quantité  $\Delta_p$  par rapport au niveau de Fermi. La densité d'états présente un gap sans pic de cohérence de largeur  $2\Delta_p$  :

$$\nu(\epsilon) = \nu_0 \theta(\epsilon - \Delta_p) \quad (4.53)$$

où  $\epsilon$  est l'énergie comptée à partir du niveau de Fermi et  $\theta$  la fonction de Heavyside. Le résultat (4.52) est similaire à l'estimation du gap isolant (4.46) obtenue précédemment à la dimension fractale près. En supposant que le transport dans le régime isolant est dû aux sauts d'électrons dans les volumes de localisation premiers voisins, l'ouverture de ce gap dans la densité d'états produit un régime de conduction par activation thermique, d'énergie caractéristique  $T_0 \approx \Delta_p \propto (E_m - E_F)^{\nu D_2}$ . Soit, puisque  $(\sigma_c - \sigma) \propto (E_m - E_F)$ ,  $T_0 \propto (\sigma_c - \sigma)^{\nu D_2}$

<sup>11</sup>À la transition d'Anderson, les fonctions d'ondes acquièrent une structure multifractale caractérisée par un comportement d'échelle anormale avec la taille du système  $L$  des moments d'ordre  $q$  de l'intensité des fonctions d'ondes  $|\psi^2(\mathbf{r})|$  :

$$\mathcal{P}_q = \int d^d r |\psi^{2q}(\mathbf{r})| \propto L^{-D_q(q-1)} \quad (4.50)$$

avec  $D_q$  différent de la dimension spatiale et dépendant de  $q$  [100, 38]. En dimension  $d = 3$ , pour les états étendus  $D_2 = 3$  et pour les états localisés  $D_2 = 0$ . Par contre, dans la région critique de la transition, la géométrie des fonctions d'ondes devient fractale avec une dimension fractale  $D_2 = 1.30 \pm 0.05$  [39].

où  $\sigma$  est la conductance à haute température et  $\sigma_c$  la conductance critique de la transition d'Anderson, ce qui correspond qualitativement à la décroissance des valeurs expérimentales figure 4.11.

Dans le régime  $\delta_{loc} \ll \Delta$  où l'on attend une cohérence de phase supraconductrice macroscopique, Feigel'man *et al.* prédisent un état supraconducteur fortement inhomogène en raison de la structure fractale des fonctions d'ondes, ainsi qu'un rapport gap spectral sur température critique,  $E_{gap}/T_c$ , anormalement grand. Le gap de parité persiste en effet dans la phase supraconductrice et s'ajoute au gap supraconducteur  $\Delta$  produisant une augmentation du gap spectral :

$$E_{gap} = \Delta + \Delta_p \quad (4.54)$$

Ces comportements correspondent remarquablement aux simulations numériques de Ghosal *et al.* [52, 53] décrites précédemment, à la différence près que la structure fractale des fonctions d'ondes n'apparaît pas dans leurs simulations en raison peut-être de la dimension trop faible de leur réseau.

Finalement, les prédictions de Feigel'man *et al.* [39] peuvent se résumer de la manière suivante. Dans l'état fondamental isolant, *tous les électrons sont appariés dans des états localisés*. Le gap spectral résultant de l'effet de parité induit un régime de conduction thermiquement activée. Lorsque le niveau de Fermi s'approche du bord de mobilité, des corrélations entre paires localisées se développent puis forment un état macroscopiquement supraconducteur. Du fait de la nature fractale des fonctions d'ondes, *cet état est fortement inhomogène spatialement et présente un rapport  $E_{gap}/T_c$  anormalement large*. Les auteurs attendent par ailleurs un régime de pseudogap dans la gamme de températures  $T_c < T \leq E_{gap}$ .

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit les principaux effets du désordre sur les systèmes électroniques en absence d'interaction Coulombienne. Quelque soit l'intensité du désordre, tout système en dimension  $d < 3$  est isolant à température nulle. Ceci constitue un résultat général pour la propagation des ondes dans les milieux diffusifs et peut se comprendre, en première approximation, à l'aide des propriétés de récurrence de l'équation de diffusion.

Bien que les fonctions d'ondes soient en principe localisées à  $T = 0$ , la présence d'une interaction attractive peut, malgré tout, faire transiter le système dans l'état supraconducteur. L'établissement de la cohérence de phase supraconductrice n'est alors possible que si l'écart moyen entre niveau est inférieur au gap supraconducteur, ce qui est équivalent à comparer la longueur de cohérence supraconductrice à la longueur de localisation.

Nous avons discuté, dans ce chapitre, l'effet d'un fort désordre sur cet état supraconducteur, qui se traduit par l'apparition d'inhomogénéités spatiales de l'amplitude du paramètre d'ordre. Dans une telle situation, la phase supraconductrice inhomogène peut se décrire par un réseau Josephson d'îlots supraconducteurs noyés dans une matrice isolante. Cet état isolant est toutefois particulier, car il résulte de l'appariement d'électrons dans les volumes de localisation qui ouvre un gap dans le spectre des excitations à un électron.

De telles prédictions n'ont, à ce jour, jamais été confirmées dans des supraconducteurs conventionnels puisqu'elles nécessitent l'utilisation de sondes locales à très basse température. La spectroscopie tunnel à balayage, qui a notamment apporté des résultats exception-

nels sur la physique des supraconducteurs à haute température critique [42], est évidemment l'outil idéal pour étudier cette limite de fort désordre de l'état BCS de basse dimension. Elle constituera donc l'essentiel du travail de cette thèse.

Dans les films minces, la réduction de dimensionnalité combinée au désordre conduit à un renforcement de l'interaction Coulombienne. Nous allons voir, dans le chapitre suivant, que ce renforcement de la composante répulsive de l'interaction électron-électron a de multiples conséquences sur les propriétés des films minces désordonnés, notamment une suppression de la supraconductivité.

# Chapitre 5

## Interaction électron-électron

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Interaction et désordre</b>	<b>62</b>
5.1.1	Correction à la densité d'états	62
5.1.2	Correction à la conductivité	64
5.1.3	Longueur de localisation en dimension 2 en présence d'interaction	65
<b>5.2</b>	<b>Interaction Coulombienne et supraconductivité</b>	<b>66</b>
5.2.1	Suppression de la température critique	66
5.2.2	Suppression du paramètre d'ordre supraconducteur	67
<b>5.3</b>	<b>Fluctuations mésoscopiques et interaction Coulombienne</b>	<b>68</b>

---

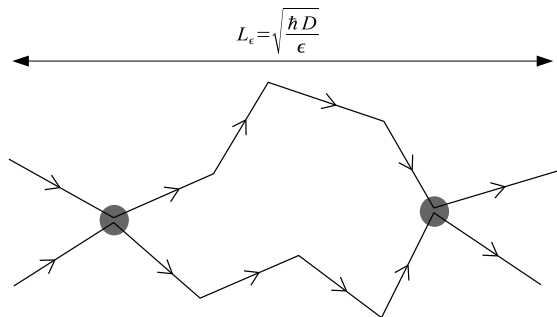


## Introduction

Dans le chapitre précédent, nous n'avons pris en compte ni l'interaction Coulombienne ni les fluctuations thermodynamiques et quantiques du paramètre d'ordre supraconducteur qui peuvent, d'une part réduire drastiquement la température critique  $T_c$  ainsi que le gap supraconducteur  $\Delta$  et, d'autre part, détruire la cohérence de phase macroscopique lorsque celle-ci repose par exemple sur des liens faibles, i.e. des jonctions Josephson. Ces effets de l'interaction Coulombienne et des fluctuations étant très importants en dimension  $d = 2$ , leur rôle dans la transition supraconducteur-isolant des films minces supraconducteurs peut s'avérer crucial.

Dans ce chapitre, nous allons nous concentrer plus particulièrement sur l'effet du désordre et de la dimensionnalité dans le renforcement de l'interaction Coulombienne et ses conséquences sur l'état supraconducteur.

### 5.1 Interaction et désordre



**FIG. 5.1:** Trajectoires de deux particules interagissant deux fois sur la distance de diffusion  $L_\epsilon = \sqrt{\hbar D/\epsilon}$ .

D'après la relation d'incertitude d'Heisenberg, deux états quantiques dont l'énergie diffère de  $\epsilon$  sont cohérents pendant un temps  $\tau_\epsilon = \hbar/\epsilon$  et sont donc susceptibles d'interférer pour les temps inférieurs à  $\tau_\epsilon$ . Dans un système balistique infini, deux électrons subissant une collision inélastique due à l'interaction Coulombienne ne peuvent se rencontrer à nouveau. Par contre, dans les systèmes désordonnés, la probabilité que leur trajectoire s'intersecte plusieurs fois pendant le temps  $\tau_\epsilon$  n'est pas nulle ce qui conduit à une augmentation de l'interaction effective entre

deux électrons. Cet effet est d'autant plus marqué dans les systèmes de basse dimension pour lesquels la probabilité de retour à l'origine est grande. Ainsi, la constante d'interaction  $\lambda$  est modifiée selon  $\lambda_{eff}(\epsilon) = \lambda(1 + \alpha_d(\epsilon))$  où  $\alpha_d(\epsilon)$  est la probabilité que deux particules se rencontrent à nouveau pendant le temps  $\tau_\epsilon$  :

$$\alpha_d(\epsilon) = \frac{1}{\hbar\nu_d\Omega} \int_{\tau_\epsilon}^{\hbar/\epsilon} dt Z(t) \quad (5.1)$$

où  $Z(t)$  est la probabilité intégrée de retour à l'origine (éq. (4.6)).

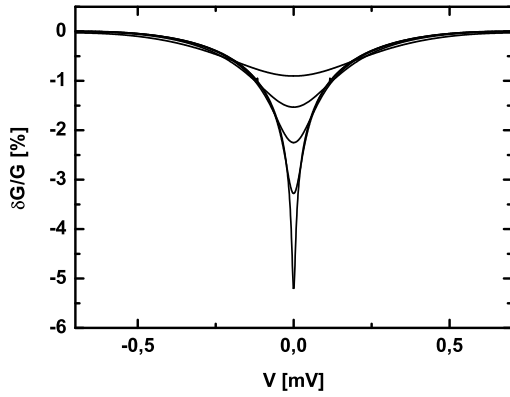
#### 5.1.1 Correction à la densité d'états

Dans un liquide de Fermi sans désordre, l'effet de l'interaction Coulombienne au premier ordre en perturbation (approximation de Hartree-Fock) produit un décalage constant en énergie des états sans interaction. En présence de désordre, les excitations proches du niveau de Fermi sont celles dont l'interaction effective est la plus renforcée, ce qui conduit nécessairement à une redistribution des états d'énergie dépendant explicitement de l'énergie. Si l'on suppose que la correction relative au premier ordre de la densité d'états est

proportionnelle à  $\lambda_{eff}$ , on obtient une correction :

$$\frac{\delta\nu_d}{\nu_d}(\epsilon) = -\delta\lambda \propto \frac{\lambda}{\hbar\nu_d D^{d/2}} \begin{cases} \frac{2}{d-1} \left(\frac{\epsilon}{\hbar}\right)^{\frac{d}{2}-1}, & d = 1, 3 \\ \ln\left(\frac{\epsilon\tau_e}{\hbar}\right), & d = 2 \end{cases} \quad (5.2)$$

faisant apparaître une *singularité au niveau de Fermi*, appelée Zero-Bias Anomaly (ZBA). Cette singularité est d'autant plus prononcée que la dimensionnalité effective, déterminée en comparant la longueur de diffusion des excitations  $L_\epsilon = \sqrt{D\tau_\epsilon} = \sqrt{\hbar D/\epsilon}$  aux dimensions du système, est basse.



**FIG. 5.2:** Simulation de la variation relative de conductance tunnel due à l'interaction électron-électron. Le modèle utilisé est bidimensionnel [12] et les paramètres sont ceux de l'or ( $v_F = 1.4 \cdot 10^6 \text{ m.s}^{-1}$  et  $l_e = 20 \text{ nm}$ ). Les températures sont  $T = 0.02, 0.1, 0.25, 0.5, 1 \text{ K}$ .

Intéressons nous plus précisément au cas de la dimension  $d = 2$ . Un calcul plus quantitatif de la correction à la densité d'états s'obtient dans une théorie perturbative au premier ordre de l'interaction [5, 4]. En considérant les contributions de Hartree et de Fock à la self-énergie ainsi que le caractère dynamique de l'écrantage dans les systèmes diffusifs<sup>1</sup>, on obtient une correction de la densité d'états s'exprimant sous forme d'un produit de deux logarithmes de l'énergie :

$$\delta\nu_2(\bar{\epsilon}) = -\frac{1}{8\pi^2\hbar D} \ln\left(\frac{\bar{\epsilon}}{D^2\kappa_2^4\hbar\tau_e}\right) \ln\left(\frac{\bar{\epsilon}\tau_e}{\hbar}\right) \quad (5.4)$$

où  $\bar{\epsilon} = \max\{\epsilon, T\}$  et  $\kappa_2 = 2\pi e^2\nu_2$  est l'inverse de la longueur d'écrantage. Pour un film quasi-bidimensionnel d'épaisseur  $a$ ,  $\kappa_2 = \frac{1}{2}\kappa_3^2 a$  avec  $\kappa_3 = \sqrt{4\pi e^2\nu_3}$  la longueur d'écrantage

<sup>1</sup>Dans les systèmes diffusifs, l'écrantage n'est pas instantané mais dynamique. La réorganisation des charges est décrite par la fonction diélectrique  $\epsilon(\mathbf{q}, \omega)$  reliée à la fonction de réponse densité-densité  $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$  par la relation  $\epsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 + U_0(\mathbf{q})\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$ . Dans l'approximation de diffusion, on montre que  $\chi_0 = \nu_d \frac{Dq^2}{-i\omega + Dq^2}$ . L'interaction effective  $U(\mathbf{q}, \omega) = \frac{U_0(\mathbf{q})}{\epsilon(\mathbf{q}, \omega)}$  devient alors dépendante de la fréquence. Ainsi, en dimension  $d = 2$ ,  $U_0(q) = \frac{2\pi e^2}{q}$ , et dans la limite  $q < l_e^{-1}$  et  $q < \kappa_2$ , on obtient :

$$U(\mathbf{q}, \omega) = \frac{2\pi e^2}{q + \kappa_2 \frac{Dq^2}{-i\omega + Dq^2}} \rightarrow \frac{1}{\nu_2} \frac{-i\omega + Dq^2}{Dq^2} \quad (5.3)$$

Pour les faibles transferts d'énergie et pour  $l_e^{-1} > q > \sqrt{\frac{\omega}{\hbar D}}$ , le potentiel est à courte portée :  $U(\mathbf{q}, \omega) \simeq 1/\nu_2$ . La contribution dominante de l'interaction vient de la région :  $\sqrt{\frac{\omega}{\hbar D}} > q > \frac{\omega}{D\kappa_2}$ . Ainsi, en raison de la nature dynamique de l'écrantage qui se traduit par une dépendance en fréquence (5.3), la singularité de l'interaction de Coulomb aux grandes longueurs d'onde, i.e. aux petits  $q$ , n'est plus instantanément écrantée comme dans un métal sans désordre (approximation de Thomas-Fermi).

en dimension  $d = 3$ . Ainsi, la variation relative de conductance d'une jonction tunnel<sup>2</sup> s'obtient en convoluant l'équation (5.3) avec la dérivée de la fonction de Fermi-Dirac :

$$\frac{\delta G(V)}{G_0} = \frac{1}{4T} \int d\epsilon \frac{\delta \nu_d(\epsilon, T)}{\nu_d} \left[ \frac{1}{\cosh^2 \frac{\epsilon - eV}{2T}} + \frac{1}{\cosh^2 \frac{\epsilon + eV}{2T}} \right] \quad (5.5)$$

La figure 5.2 présente une simulation de  $\delta G(V)/G_0$  dans le cas bidimensionnel. Dans le cas plus réaliste d'un film mince d'épaisseur  $a$ , la situation est plus délicate car le système va subir un crossover dimensionnel 2d-3d pour les  $\epsilon$  grands lorsque  $L_\epsilon \sim a$ .

Il est important de souligner que cette théorie perturbative se limite aux faibles corrections  $\delta \nu / \nu \ll 1$ , ce qui correspond dans les systèmes de basse dimension à :

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} \ll \xi_{loc} \quad (5.6)$$

Une expression non perturbative de la forme  $\nu(\epsilon) \approx \nu_2 \exp \frac{\delta \nu}{\nu_2}$  a toutefois été obtenue dans les références [88, 75, 12].

Une autre remarque mérite discussion. La simulation de la figure 5.2 montre que le ZBA ne vérifie pas la règle de somme

$$\int \delta \nu(\epsilon) d\epsilon = 0 \quad (5.7)$$

dans la fenêtre d'énergie considérée. Or, dans un système à N-corps, l'ajout d'interaction ne viole pas la conservation des états<sup>3</sup> mais peut toutefois transférer une partie de la densité spectrale à très haute énergie [51]. Ainsi, pour vérifier expérimentalement la règle de somme (5.7) en présence de ZBA, il est important de mesurer la densité spectrale à suffisamment haute énergie.

### 5.1.2 Correction à la conductivité

D'après la relation d'Einstein,  $\sigma = e^2 D \nu$ , la conductivité est proportionnelle à la densité d'états au niveau de Fermi. La prise en compte de l'interaction entre électrons conduit par conséquent à une réduction de la conductivité :

$$\frac{\delta \sigma(T)}{\sigma_0} = \int d\epsilon \left( -\frac{\partial f}{\partial \epsilon} \right) \frac{\delta \nu(\epsilon)}{\nu_0} \quad (5.8)$$

Le calcul complet de la correction de conductivité prend en compte le spin de l'électron. L'amplitude de l'interaction est décomposée sur la base des états à deux particules avec spin (électron-trou pour le canal du diffuson) : l'état singulet ( $j = 0$ ),  $\lambda^{(j=0)}$ , et l'état triplet ( $j = 1; m = -1, 0, 1$ ),  $\lambda^{(j=1)}$ . La correction de conductivité est alors donnée par [5] :

$$\delta \sigma_d(T) = \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} \left( \frac{2}{d} + \frac{3}{4} \lambda^{(j=1)} \right) \left( \frac{k_B T}{\hbar D} \right)^{(d/2-1)} \begin{cases} -4.91, & d = 1 \\ \ln \left( \frac{k_B T \tau_\epsilon}{\hbar} \right), & d = 2 \\ 0.915, & d = 3 \end{cases} \quad (5.9)$$

<sup>2</sup>Une autre description de la conductance tunnel consiste à la relier à l'impédance de l'environnement du système à étudier. On fait alors apparaître la probabilité qu'un électron qui traverse la barrière cède de l'énergie à son environnement [70]. Cette formulation en terme de tunneling inélastique, appelé blocage de Coulomb dynamique, est équivalente à la théorie microscopique.

<sup>3</sup>D'après le théorème de Luttinger, le volume de la surface de Fermi n'est pas modifié par l'ajout d'interactions.

avec

$$\lambda^{(j=1)} = \begin{cases} \frac{32}{d(d-2)} \frac{1+\frac{1}{4}dF-(1+\frac{1}{2}F)^{d-2}}{F}, & d = 1, 3 \\ 4 \left[ 1 - 2 \frac{(1-\frac{1}{2}F) \ln(1-\frac{1}{2}F)}{F} \right], & d = 2 \end{cases} \quad (5.10)$$

où  $F = \frac{2}{x^2} \ln(1+x^2)$  et  $x = \frac{2k_F}{\kappa_d}$  dans les films minces et les fils. En fonction de la valeur de  $F$ , donc de l'écrantage,  $0 < F < 2$ , la correction de conductivité est soit positive soit négative.

En dimension  $d = 2$ , l'équation (5.9) donne la même dépendance logarithmique en température que la correction de localisation faible (éq. (4.9)). Bien que ces deux corrections soient reliées à la probabilité intégrée de retour à l'origine, les mécanismes physiques les induisant sont différents. *La localisation faible produit une renormalisation de la mobilité, i.e. du coefficient de diffusion, alors que l'interaction entre électrons affecte la densité d'états au niveau de Fermi.* Pour les distinguer, un champ magnétique permet de détruire les interférences dans les trajectoires fermées de rétrodiffusion et supprime ainsi la contribution de localisation faible. Par ailleurs, la correction de la densité d'états peut se mesurer via la résistance de Hall.

### 5.1.3 Longueur de localisation en dimension 2 en présence d'interaction

Il est possible d'extraire une estimation de la longueur de localisation (cf. §4.2.4) tenant compte cette fois-ci des effets d'interaction en plus de la localisation faible [84]. Nous pouvons réécrire les corrections de localisation faible (éq. 4.7) et d'interaction (éq. 5.9) de la conductance adimensionnée  $g = \sigma h/e^2$  sous la forme :

$$g(T) = g_0 - \frac{1}{\pi} \left[ \ln \frac{L_\phi}{l_e} + (1+\mathcal{F}) \ln \frac{L_T}{l_e} \right] \quad (5.11)$$

où  $L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$  et  $\tau_\phi \sim T^{-p}$ . Pour simplifier, nous avons introduit le préfacteur  $\mathcal{F} = \frac{3}{2}\lambda^{j=1}$  décrivant la force de l'interaction Coulombienne (cf. éq. (5.9)). Le régime de localisation forte est alors atteint lorsque  $g \sim 1$ , c'est-à-dire lorsque  $L_\phi$  et  $L_T$  sont de l'ordre de grandeur de la longueur de localisation<sup>4</sup>, d'où

$$\xi_{loc}^{d=2} \sim l_e \exp \left( \frac{\pi}{2+\mathcal{F}} g_0 \right) \quad (5.12)$$

Puisque les deux corrections quantiques conduisent à une dépendance logarithmique en température, nous retrouvons une expression similaire à (4.25) avec la prise en compte des effets d'interaction par l'intermédiaire du préfacteur  $\mathcal{F}$ .

Nous pouvons aussi en déduire la température de crossover entre le régime de correction quantique et le régime de localisation forte, lorsque  $g \sim 1$ . Elle correspond à l'énergie de

---

<sup>4</sup>Pour qu'une description en terme de liquide de Fermi soit valable, il est indispensable que la condition  $T\tau_\phi \gg 1$  soit respectée [5], ce qui équivaut à la condition  $L_\phi \gg L_T$ . Or, dans cette analyse proposée par Larkin et Khmel'nitskii [84], le régime intermédiaire tel que  $L_\phi > \xi_{loc} > L_T$  n'est pas explicité. Nous supposons par conséquent que, proche du seuil de localisation,  $L_\phi \gtrsim L_T$ .

Thouless du volume de localisation, c'est-à-dire lorsque la longueur de diffusion thermique atteint la longueur de localisation  $L_T = \xi_{loc}$ , soit :

$$T_\xi = \frac{\hbar D}{\xi_{loc}^2} \sim \frac{\hbar}{\tau_e} \exp\left(-\frac{2\pi}{2+\mathcal{F}} g_0\right). \quad (5.13)$$

## 5.2 Interaction Coulombienne et supraconductivité

Nous décrivons, dans cette section, l'effet du renforcement de l'interaction Coulombienne sur l'état supraconducteur d'un film mince. Nous allons voir que ce renforcement conduit à une suppression simultanée de la température critique et du gap supraconducteur.

### 5.2.1 Suppression de la température critique

L'interaction répulsive entre électrons, renforcée par l'effet combiné de l'interaction Coulombienne et du désordre, entre nécessairement en compétition avec l'interaction attractive à l'origine de la supraconductivité. Ainsi, lorsque la résistance  $R_\square$  d'un film mince augmente, l'affaiblissement de la composante attractive de l'interaction se traduit par une réduction de la température critique  $T_c$ . Maekawa et Fukuyama [92, 91] ont montré avec un calcul perturbatif que  $T_c$  diminue de façon linéaire avec  $R_\square$ . Leur calcul, limité aux faibles variations de  $|\delta T_c| \ll T_{c0}$ , où  $T_{c0}$  est la température critique du matériau massif, a été étendu jusqu'à  $T_c = 0$  par Finkel'stein [40, 41] en appliquant les équations du groupe de renormalisation au gaz d'électrons en présence de désordre. L'expression obtenue de  $T_c(R_\square)$  donne l'évolution complète de la *renormalisation de la température critique de champ moyen due au renforcement par le désordre de l'interaction Coulombienne* :

$$\frac{T_c}{T_{c0}} = e^\gamma \left( \frac{1/\gamma - \sqrt{t/2} + t/4}{1/\gamma + \sqrt{t/2} + t/4} \right)^{1/\sqrt{2t}} \quad (5.14)$$

avec  $t = \frac{R_\square}{\pi R_Q}$  et  $\gamma = \ln\left(\frac{1}{T_{c0}\tau_e}\right)$ . Cette expression remarquable ne dépend que d'un paramètre ajustable : le temps de diffusion élastique  $\tau_e$ . Ainsi, pour une série d'échantillons d'épaisseurs différentes mais de structures microscopiques similaires, i.e.  $\tau_e$  constant, la conductance critique  $g_{cF}$  pour laquelle  $T_c = 0$  est uniquement déterminée par le produit  $T_{c0}\tau_e$  :

$$g_{cF} = \frac{1}{2\pi} \left( \ln \frac{1}{T_{c0}\tau_e} \right)^2 \quad (5.15)$$

où  $g_{cF}$  est en unité  $e^2/h$ . La figure 5.3 montre que l'équation (5.14) décrit parfaitement la suppression de la supraconductivité dans les films minces de  $Mo_{79}Ge_{21}$  amorphe.

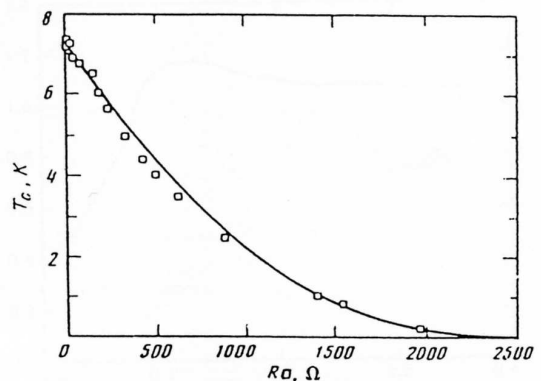
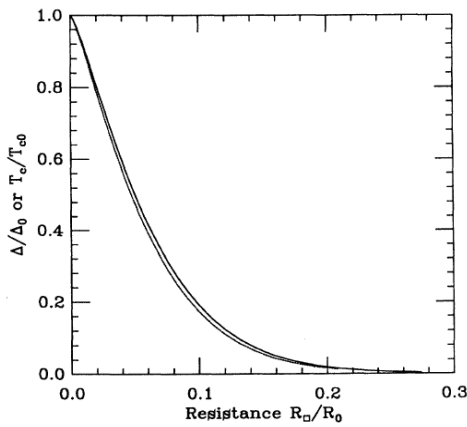


FIG. 5.3: Suppression de la température critique dans les films amorphes de  $Mo_{79}Ge_{21}$  [56, 57]. La ligne continue est un ajustement de l'équation (5.14). D'après [41].

Toutefois, dans cette théorie développée au premier ordre en  $t$ , les corrections quantiques de la conductivité (éq. (5.9)) sont supposées faibles de telle sorte que la renormalisation de  $t$  soit négligeable, i.e.  $\frac{\delta\sigma}{\sigma} \ll 1$ . Pour les échantillons dont la conductance critique est proche du seuil de localisation forte,  $g_c \sim 1$ , l'équation (5.14) n'est plus valable.

Bien qu'il soit tentant d'associer la réduction de la température critique  $T_c$  avec l'anomalie de densité d'états au niveau de Fermi discutée dans la section précédente, il est important de souligner que *cette suppression Coulombienne de la supraconductivité dans les films minces résulte de l'affaiblissement de l'interaction attractive effective, en raison du renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre* [41].

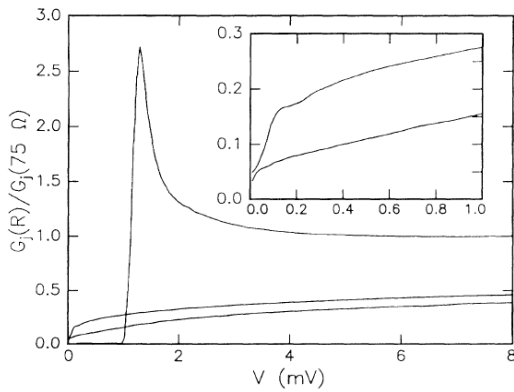
## 5.2.2 Suppression du paramètre d'ordre supraconducteur



**FIG. 5.4:** Evolution de  $T_c/T_{c0}$  et  $\Delta/\Delta_0$  en fonction de  $R_\square$ .  $T_{c0}$  et  $\Delta_0$  sont les valeurs sans interaction. D'après [131].

D'un point de vue théorique, le calcul de l'évolution du gap supraconducteur  $\Delta$  à température nulle en fonction du désordre est un problème complexe. La difficulté vient du fait que les fluctuations de densité spatiales et temporelles du gaz d'électrons, dues à l'écrantage dynamique de l'interaction Coulombienne, sont intimement couplées au paramètre d'ordre supraconducteur. En effet, d'après la relation Josephson reliant la phase du paramètre d'ordre au potentiel scalaire, ces fluctuations de densité d'électrons qui correspondent à des fluctuations locales du potentiel électrique, induisent des fluctuations locales de la phase du paramètre d'ordre.

L'évolution de  $\Delta(R_\square)$  a été calculée perturbativement par Smith *et al.* [131] en prenant en compte l'interaction Coulombienne renforcée par le désordre ainsi que les fluctuations du paramètre d'ordre supraconducteur. Les auteurs ont obtenu une évolution de  $\Delta(R_\square)$  quasiment identique à celle de  $T_c(R_\square)$  calculée par Finkel'stein, c'est-à-dire un rapport  $\frac{\Delta}{T_c}$  constant quelque soit le désordre. Ainsi, comme le montre la figure 5.4, *température critique et gap supraconducteur s'annulent pour le même désordre critique*.



**FIG. 5.5:** Conductance différentielle de jonctions planaires, mesurée sur trois films de bismuth amorphes. Pour les courbes de bas en haut, la résistance à 7 K des films est  $8 \text{ k}\Omega/\square$ ,  $5.8 \text{ k}\Omega/\square$  et  $75 \Omega/\square$  et les températures critiques sont  $0.19 \text{ K}$ ,  $0.7 \text{ K}$  et  $6.4 \text{ K}$ . L'insert permet de distinguer les faibles pics de cohérence supraconducteurs à basse énergie pour les deux films résistifs. D'après [140].

Expérimentalement, il existe très peu d'études de spectroscopie tunnel du gap supraconducteur dans les films minces désordonnés [140, 34, 139, 65]. La figure 5.5 présente une



mesure de densité d'états de jonctions planaires dans des films de bismuth amorphe condensés à basse température [140]. Proche du désordre critique lorsque  $\delta T_c \sim T_{c0}$ , les auteurs attribuent la lente décroissance de la DOS aux effets d'interaction Coulombienne renforcée par le désordre (cf. §5.1). La bosse visible à basse énergie est, quant à elle, la signature du pic de cohérence supraconducteur permettant d'extraire une estimation du gap supraconducteur. Dans ces échantillons homogènes, le rapport  $\frac{\Delta}{T_c}(R_{\square})$  est apparu constant ce qui conduit les auteurs à la conclusion que  $\Delta$  s'annule en même temps que  $T_c$  au désordre critique, en accord avec les calculs perturbatifs de Smith *et al.* [131]. Il est important de noter que les jonctions planaires macroscopiques réalisées dans cette étude ne permettent pas d'accéder à d'éventuelles fluctuations spatiales des propriétés électroniques (cf. §4.3.2).

### 5.3 Fluctuations mésoscopiques, interaction et supraconductivité

L'apparition d'une phase supraconductrice inhomogène discutée dans le chapitre précédent §4.3.2, a été démontrée par Skvortsov et Feigel'man [130] dans le cas des films supraconducteurs désordonnés. Partant du traitement de l'interaction Coulombienne de Finkel'stein (cf. §5.2.1), ces derniers ont calculé l'effet des fluctuations mésoscopiques du désordre sur l'état supraconducteur en dimension  $d = 2$ . Nous nous proposons de décrire, ici, les résultats principaux de leur théorie.

À cause du renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre, l'interaction effective entre électrons,  $\lambda$ , acquiert une contribution négative proportionnelle à la probabilité de retour à l'origine  $\sim g^{-1} \ln(1/\epsilon\tau_e)$  (cf. éq. 5.1). Proche de la conductance critique  $g_{cF}$  où  $\lambda$  est fortement réduite, les fluctuations mésoscopiques de la conductance génèrent alors des fluctuations locales de  $\lambda$ . Le problème des fluctuations de la constante de couplage a déjà été étudié par Ioffe et Larkin [73] dans un modèle phénoménologique tridimensionnel conduisant à une phase supraconductrice inhomogène et une transition supraconductrice percolative. Ce modèle est ici étendu au cas bidimensionnel en prenant en compte l'interaction Coulombienne.

Les fluctuations de  $\lambda$  se traduisent par des fluctuations locales de la température critique  $\delta T_c/T_c = \delta\lambda/\lambda^2$  d'autant plus fortes que  $g$  s'approche de  $g_{cF}$ , c'est-à-dire lorsque  $\lambda$  est faible. La transition supraconductrice est alors élargie en raison de la formation d'îlots supraconducteurs percolant à la température critique. L'élargissement de la transition  $\delta_d = \delta T_c/T_c$  a été calculé :

$$\delta_d = \frac{a_d}{g(g - g_{cF})} \quad (5.16)$$

avec  $a_d \approx 0.4$  [130]. Cette équation prédit que l'élargissement induit par le désordre domine celui provoqué par les fluctuations thermodynamiques supraconductrices (cf. §3.1.2 et partie III) lorsque  $g - g_{cF} \lesssim 1$  :

$$\delta_d > Gi \quad (5.17)$$

où le paramètre de Ginzburg-Levanyuk est défini dans le cas d'un film mince par  $Gi = \pi/8g$  [9]. Dans cette situation, la transition supraconductrice macroscopique s'établit par la formation dans la phase normale d'îlots supraconducteurs de taille caractéristique  $L_T =$

$\sqrt{\hbar D/2\pi T_c}$ . Avec la diminution de la température, la densité de ces îlots et leur couplage par effet de proximité augmentent jusqu'au seuil de percolation. À suffisamment basse température, l'état supraconducteur est approximativement uniforme avec de faibles variations spatiales de l'amplitude du paramètre d'ordre  $\Delta$ .

*Par contre, proche de la conductance critique  $g_{cF}$ , lorsque  $g - g_{cF} \lesssim 1/g_{cF}$ , les fluctuations de la "température de transition locale" deviennent grandes en échelle absolue,  $\delta T_c \sim T_c$ , et de fortes inhomogénéités spatiales du paramètre d'ordre supraconducteur sont attendues même aux plus basses températures,  $T \ll T_c$ .*

Cette étude théorique de Skvortsov et Feigel'man [130] rejoint par conséquent les conclusions de la section §4.3.2 en y ajoutant l'effet de l'interaction Coulombienne. Proche du désordre critique, l'affaiblissement de la constante de couplage  $\lambda$  par l'interaction Coulombienne ainsi que les fluctuations mésoscopiques du désordre produisent un état supraconducteur fortement inhomogène construit sur un réseau aléatoire de jonctions Josephson. Sous forme d'îlots faiblement connectés les uns aux autres, l'état supraconducteur va être particulièrement sensible aux fluctuations thermiques mais aussi quantiques de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur. Ainsi à  $T = 0$ , le système est susceptible de subir une transition de phase quantique supraconducteur-isolant à  $g = g_{cF}$ , résultant de la compétition entre l'énergie de charge des îlots et l'énergie de couplage Josephson. La transition est alors régie par les fluctuations quantiques de la phase du paramètre d'ordre des îlots qui détruisent la rigidité de phase macroscopique (cf. §4.3.2) [130, 52, 53].

## Conclusion

Nous avons présenté, dans ce chapitre, les effets du renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre sur les propriétés de transport, sur la densité d'états et sur la supraconductivité dans les films minces désordonnés. Bien sûr, toutes ces corrections ne sont valables que dans un régime perturbatif, lorsque l'écart à la valeur non perturbée est faible. Elles n'ont aucunement la prétention de décrire le rôle de l'interaction Coulombienne à l'approche de la transition métal-isolant, qui peut s'avérer crucial. Cette problématique de la transition métal-isolant en présence d'interaction est un problème, non résolu, extrêmement difficile. La présence d'une instabilité supraconductrice à basse température ajoute alors un degré de complexité supplémentaire.

Nous retiendrons de ce chapitre deux résultats cruciaux pour la transition supraconducteur-isolant dans les films minces. D'une part le renforcement de l'interaction Coulombienne produit une réduction de la température critique, et d'autre part, l'ajout des fluctuations mésoscopiques du désordre génère une phase supraconductrice inhomogène. Cette phase inhomogène rejoint par conséquent les conclusions du chapitre précédent : proche du désordre critique, l'état supraconducteur s'établit sur un réseau de jonctions Josephson formé par des îlots supraconducteurs.





# Chapitre 6

## Localisation et supraconductivité dans $TiN$

### Sommaire

---

<b>6.1</b>	<b>Transport et corrections quantiques</b>	<b>73</b>
<b>6.2</b>	<b>Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur</b>	<b>75</b>
6.2.1	Gap supraconducteur	75
6.2.2	Inhomogénéités spatiales	76
6.2.3	Suppression coulombienne de $T_c$ et fluctuations mésoscopiques	78
<b>6.3</b>	<b>Localisation et supraconductivité</b>	<b>81</b>
<b>6.4</b>	<b>Paires de Cooper localisées</b>	<b>83</b>
6.4.1	Loi d'activation	83
6.4.2	Nuances sur l'interprétation des lois d'activation	83
6.4.3	Gap isolant dans la DOS	84
<b>6.5</b>	<b>Diagramme de phase</b>	<b>86</b>

---

---

## Introduction

Ayant introduit, dans les chapitres précédents, les principales notions théoriques utiles pour décrire le comportement de nos échantillons, nous pouvons désormais présenter les résultats principaux de transport et de spectroscopie tunnel des échantillons de  $TiN$ . Nous ne considérerons toutefois ni la contribution des fluctuations thermodynamiques supraconductrices, ni le comportement sous champ magnétique, qui feront l'objet de chapitres spécifiques. Les matériaux de  $TiN$  et d' $InO_x$  amorphe étudiés dans cette thèse présentent tous deux une transition directe supraconducteur-isolant proche du seuil de localisation forte, ainsi que des comportements en champ magnétique similaires (cf. chapitre 11). Cette transition est qualifiée de directe, i.e. sans état intermédiaire, par opposition à d'autres matériaux tels que le bismuth condensé à froid [62, 89], l'alliage molybdène-germanium amorphe  $a-Mo_xGe_{1-x}$  [147, 96], l'alliage molybdène-silicium amorphe  $a-Mo_xSi_{1-x}$  [106], l'alliage de niobium-silicium amorphe  $a-Nb_xSi_{1-x}$  [94] et le tantale [114] pour lesquels, d'une part la supraconductivité disparaît pour de faibles valeurs de résistance,  $R_{\square}^c \ll R_Q = h/e^2$ , et d'autre part une phase "métallique"<sup>1</sup> persiste dans une large gamme de désordre entre l'état supraconducteur et l'état isolant.

La première section de ce chapitre concerne l'étude de trois échantillons supraconducteurs de  $TiN$  de désordre différent. Dans ces échantillons, le transport dès 300 K est analysé à l'aide des théories perturbatives de localisation faible et d'interaction électron-électron. La spectroscopie tunnel, qui sera présentée dans un deuxième temps, met en évidence les inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur. Nous discuterons, par ailleurs, l'observation de gap spectral sans pic de cohérence pouvant s'interpréter comme la signature de paires de Cooper localisées.

Dans cette étude, les résistances par carré sont obtenues par une mesure alternative quatre fils avec une polarisation en courant de l'ordre du nano-Ampère et une fréquence de quelques Hertz (cf. annexe A). Courant et tension aux bornes des échantillons sont mesurés simultanément à l'aide de deux détections synchrones. Les mesures de spectroscopie tunnel, quant à elles, sont systématiquement précédées au cours du même refroidissement par une mesure de transport de façon à pouvoir corrélérer précisément température critique et densité d'états. Les mesures de transport de 300 K à  $T_c$  ont été obtenues dans un second temps à l'aide d'un réfrigérateur à Hélium 3.

---

<sup>1</sup>Cette phase est dite métallique car elle ne présente pas de divergence exponentielle de la résistance mais seulement un régime de corrections quantiques de la conductivité aux températures accessibles expérimentalement.

## 6.1 Transport et corrections quantiques

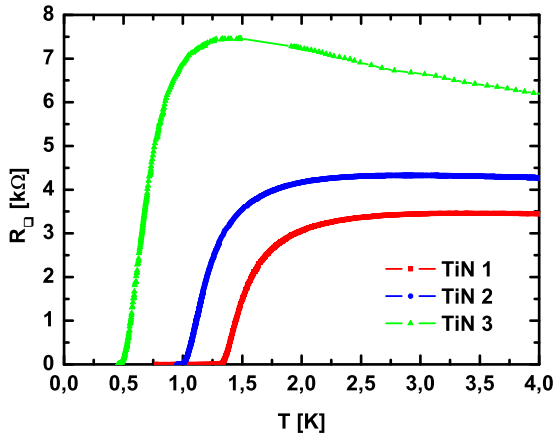


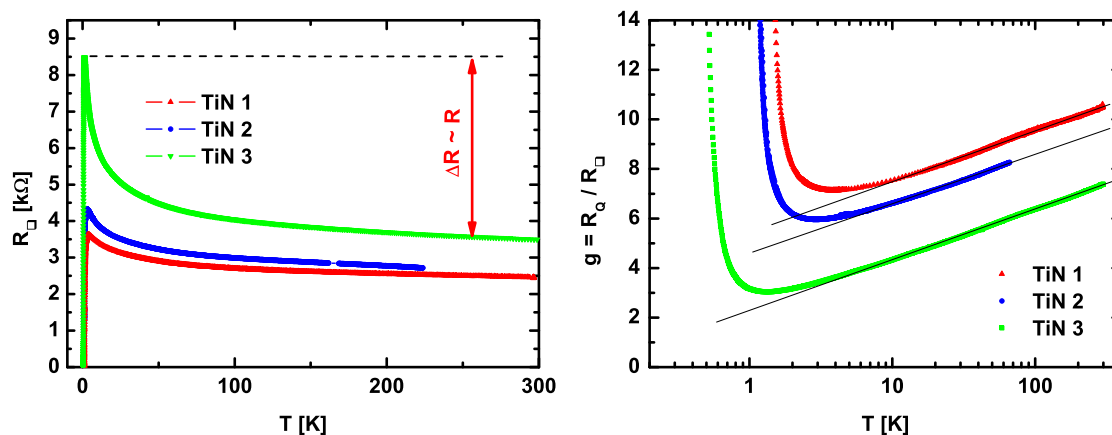
FIG. 6.1: Transition supraconductrice des trois échantillons de TiN étudiés.

La figure 6.1 ci-contre présente la transition supraconductrice des trois échantillons supraconducteurs de  $TiN$  que nous avons étudiés en transport et en spectroscopie tunnel. L'augmentation du désordre, i.e. de la résistance par carré, lorsque l'épaisseur est diminuée, conduit à un affaiblissement de la température critique. Ce système est bien le siège d'une TSI induite par le désordre, ou plus précisément dans notre cas par l'épaisseur. Sachant que la température critique du  $TiN$  massif est de  $4.7 K$  [59], l'échantillon  $TiN 3$  est très proche du désordre critique avec une réduction relative de plus de 90% de la  $T_c$ . Les valeurs de résistance ainsi que les températures critiques sont récapitulées dans le tableau 6.1. Il est important de noter que ces résistances ne donnent pas accès à une mesure quantitative du désordre, c'est-à-dire à la conductance de Drude proportionnelle à  $k_F l_e$ . Par ailleurs, comme nous le verrons dans le chapitre 8, la température critique d'un film mince supraconducteur n'est pas chose facile à définir et les définitions, souvent données comme un pourcentage arbitraire de la transition résistive, varient beaucoup dans la littérature. Nous avons choisi le pied de la transition résistive lorsque  $R_{\square} \approx 0 \Omega$  comme critère de détermination de  $T_c$ . Ce critère prendra tout son sens dans l'étude de la transition thermodynamique supraconductrice abordée chapitre 8.

Échantillon	$R_{\square}^{300K}$ [kΩ]	$R_{\square}^{max}$ [kΩ]	$T_c$ [K]
$TiN 1$	2.44	3.46	1.3
$TiN 2$	2.70	4.33	1.0
$TiN 3$	3.47	7.45	0.45

TAB. 6.1: Résistances à  $T = 300 K$ ,  $R_{\square}^{300K}$ , résistances maximales atteintes avant la transition,  $R_{\square}^{max}$ , et température critique  $T_c$  définie au pied de la transition lorsque  $R_{\square} \approx 0 \Omega$  pour les trois échantillons de la figure 6.1.

Afin de comprendre les mécanismes régissant le transport dans ces échantillons, nous avons mesuré la résistance de chacun d'eux, de la température ambiante jusqu'à la transition supraconductrice. Présentée figure 6.2, l'évolution en température de la résistance montre, dès  $300 K$ , un comportement non métallique pour les trois échantillons : la résistance croît lorsque la température diminue. La représentation en échelle semi-logarithmique, figure 6.2, de la conductance adimensionnée  $g = \frac{h}{e^2 R_{\square}}$  met en évidence une divergence logarithmique de la conductance qui est caractéristique d'un régime de transport diffusif bidimensionnel. Une telle divergence logarithmique signifie que, dès  $300 K$ , les corrections quantiques de localisation faible et d'interaction sont dominantes. L'épaisseur des films minces est par conséquent inférieure à la longueur de cohérence de phase  $L_{\phi}(T)$  et à la longueur thermique  $L_T$ . Ce comportement a déjà été observé dans les travaux de Hadacek *et al.* [58, 59] sur les films non stoechiométriques de  $TiN_x$  obtenus par pulvérisation cathodique réactive.



**FIG. 6.2:** À gauche : dépendance en température de la résistance de 300 K à  $T_c$ . À droite : dépendance en température de la conductance adimensionnée  $g = \frac{R_Q}{R_Q} = \frac{h}{e^2 R_Q}$  pour les mêmes données. L'échelle semi-logarithmique met en évidence pour les trois échantillons une divergence logarithmique de la conductance dès 300 K.

En dimension  $d = 2$ , les effets de localisation faible et d'interaction conduisent à une correction totale de la forme :

$$\delta\sigma = -\frac{A}{\pi R_Q} \ln \frac{\hbar}{T\tau_e} \quad (6.1)$$

où le préfacteur  $A = (\alpha p + B)$  prend en compte la contribution de localisation faible avec  $\alpha p$  (cf. éq. (4.7)), en supposant  $1/\tau_\phi \sim T^p$ , et celle des interactions électron-électron à travers  $B$  (cf. éq. (5.9)) [5]. D'après les équations (5.9) et (5.10), on a  $-0.16 < B < 1$  en fonction de l'écrantage de l'interaction Coulombienne, i.e. de la densité d'électrons. Par ailleurs, en absence de diffusion spin-orbite<sup>2</sup>,  $\alpha = 1$ . L'ajustement du préfacteur  $A$  à partir des données de la figure 6.2 donne la même valeur,  $A \approx 2.8$ , pour les trois films. L'écrantage de l'interaction Coulombienne est par conséquent identique pour les trois échantillons. Cette valeur de  $A$  semble raisonnable si l'on considère un temps de diffusion inélastique  $\tau_\phi$  limité par les phonons, soit  $p = 3$  (cf. §4.1). L'exposant  $p = 2$ , attribué aux phonons bidimensionnels, a aussi été observé dans la littérature avec des films minces métalliques d'aluminium [5]. Il est cependant difficile d'extraire une information quantitative de ce préfacteur d'autant qu'il dépend de la source des échantillons : dans l'étude de Hadacek *et al.* [58, 59],  $A$  a été trouvé égale à 3.46. Notons par ailleurs qu'il n'est pas possible de déterminer indépendamment la conductance résiduelle de Drude  $\sigma_0$  et le temps de diffusion élastique  $\tau_e$ .

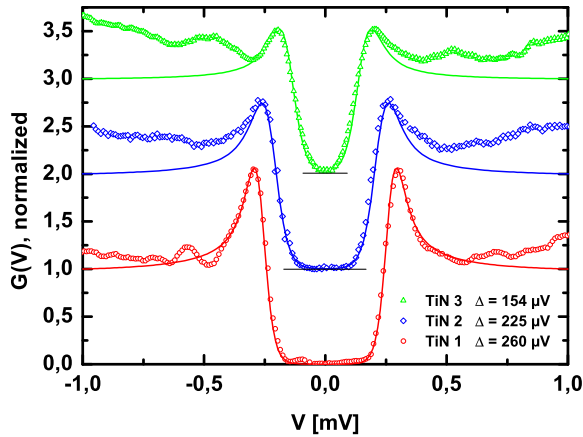
Les corrections discutées précédemment ne sont, en théorie, valides que dans le régime perturbatif lorsque  $\delta\sigma \ll \sigma_0$ . Or, la correction de l'ordre de 100 % de la conductance de l'échantillon *TiN 3* indique la proximité du seuil de localisation forte. Cette tendance vers un état isolant localisé à  $T = 0$  est malgré tout court-circuitée par l'apparition de la supraconductivité conduisant à un état fondamental macroscopiquement supraconducteur.

<sup>2</sup>A priori, la diffusion spin-orbite est faible dans les films de *TiN* qui sont composés d'atomes légers.

## 6.2 Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur

La spectroscopie tunnel sur les échantillons de  $TiN$  s'est avérée très délicate en raison de la qualité médiocre de la surface. Contrairement à une étude précédente de films épais de  $TiN$  n'ayant pas subi de traitement de surface [37], nos échantillons, rendus ultra-fins par gravure plasma, n'ont pas fourni des conditions tunnel satisfaisantes pour l'imagerie STM à basse température. L'étape de gravure a, en effet, sérieusement dégradé la surface. Par ailleurs, l'oxydation naturelle de la surface du  $TiN$  est elle aussi néfaste pour l'imagerie. Au vu des images de très mauvaise qualité obtenues à basse température, il est fortement probable que la pointe du STM ait été en contact avec la surface conduisant à une jonction pointe-oxyde de surface- $TiN$ . Quelques images et notamment des corrélations spatiales de spectroscopie ont été obtenues sur  $TiN 1$  et  $TiN 2$ , indiquant que le contact, s'il était avéré, était faible et n'empêchait pas le déplacement à petites échelles de la pointe pour ces échantillons. Bien que la jonction tunnel ne soit pas idéale, la spectroscopie est parfaitement exploitable. Concernant l'échantillon  $TiN 3$ , le plus désordonné, les conditions tunnel étaient particulièrement difficiles avec la pointe en pression sur la surface. Nous suspectons une oxydation importante de la surface due au délai, peut-être trop long, entre la fabrication de l'échantillon et la mesure.

### 6.2.1 Gap supraconducteur



**FIG. 6.3:** Conductances différentielles locales typiques de chaque échantillon mesurées à  $50\text{ mK}$  avec une excitation  $V_{ac} = 10\ \mu\text{V}$  et une résistance tunnel de  $R_t = 2\ \text{M}\Omega$ . Les courbes en trait continu sont issues de l'ajustement de la DOS BCS (éq. (2.6)) dont les paramètres sont donnés dans le tableau 6.2. Le paramètre phénoménologique de Dynes (cf. §2.1.3) n'a pas été utile dans cet ajustement. Les spectres sont normalisés de façon à ce que les courbes BCS soient égales à 1 à  $V = 1\ \text{mV}$ , puis décalés verticalement d'une unité.

Dans la phase supraconductrice, la spectroscopie tunnel effectuée à  $50\ \text{mK}$  a révélé pour chaque échantillon un gap spectral au niveau de Fermi sur toute la surface explorée, soit environ  $3 \times 3\ \mu\text{m}^2$ . Sur la figure 6.3 sont reproduits les spectres bruts les plus fréquemment mesurés. Il s'agit de mesures de conductances différentielles locales non moyennées. Pour les trois échantillons, la densité d'états est nulle au niveau de Fermi indiquant l'absence de quasiparticules dans la phase supraconductrice. Les pics aux bords du gap sont caractéristiques d'une DOS supraconductrice et un ajustement de la DOS BCS (éq. (2.6)) permet d'extraire le gap supraconducteur  $\Delta$ . Les valeurs des gaps  $\Delta$ , ainsi que les températures effectives introduites dans l'ajustement, sont rapportées dans le tableau 6.2.

La forme de ces spectres n'est toutefois pas parfaitement reproduite par la théorie BCS, notamment aux énergies supérieures au gap. La hauteur des pics de cohérence est en effet

Échantillon	$T_c$ [K]	$\Delta$ [ $\mu\text{eV}$ ]	$\Delta/T_c$	$T_{\text{eff}}$ [K]
<i>TiN</i> 1	1.3	260	2.3	0.25
<i>TiN</i> 2	1.0	225	2.6	0.32
<i>TiN</i> 3	0.45	154	4	0.35

**TAB. 6.2:** Température critique  $T_c$ , gap supraconducteur  $\Delta$ , rapport gap spectral sur température critique  $\Delta/T_c$  et température effective  $T_{\text{eff}}$  introduite dans l’ajustement BCS, pour les trois échantillons de la figure 6.1.

anormalement petite et ne peut être reproduite par la DOS BCS qu’en introduisant une température effective artificiellement élevée (tab. 6.2). L’ajustement ne permet pas alors de reproduire la DOS à  $eV > \Delta$  mais donne toutefois une estimation précise de  $\Delta$ . Les pics de cohérence sont, par ailleurs, d’autant plus petits que le désordre est grand. Ce comportement n’est pas sans rappeler les simulations numériques de Ghosal *et al.* [53] (§4.3.2) qui prédisent un affaiblissement des pics de cohérence avec l’augmentation du désordre (cf. fig. 4.10).

Dans le chapitre 4, §4.3.2, nous avons vu que le gap spectral ne peut plus être associé au paramètre d’ordre de la transition supraconductrice lorsque le désordre devient important. Cette prédiction est ici vérifiée puisque le rapport gap spectral sur température critique  $\Delta/T_c$  pour les trois spectres en question est anormalement grand. *Alors que le nitrure de titane massif est un supraconducteur conventionnel en limite de couplage faible, i.e.  $\Delta/T_c \approx 1,8$  [37], nous obtenons, dans ces échantillons proches de la TSI, une augmentation de ce rapport avec le désordre*<sup>3</sup> (cf. tab. 6.2). Une telle évolution concorde avec la simulation numérique du gap spectral figure 4.9. Dans cette discussion la définition de  $T_c$  est cruciale. Nous pouvons préciser à ce point que notre choix est en partie basé sur l’hypothétique présence d’une transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless dans les films minces supraconducteurs (cf. §8.4). La  $T_c$  définit alors l’apparition d’une densité superfluide et donc d’un supercourant, c’est-à-dire lorsque  $R_{\square} \approx 0$ .

## 6.2.2 Inhomogénéités spatiales

Mesuré à différentes positions, le gap supraconducteur dans ces échantillons est apparu spatialement inhomogène. Les figures 6.4 et 6.5 présentent deux mesures de spectroscopie tunnel<sup>4</sup> effectuées sur *TiN* 1 et *TiN* 2 mettant en évidence les fluctuations spatiales de l’amplitude  $\Delta$  du gap spectral. Nous discuterons plus précisément à la fin de cette section et dans §6.4 la forme des spectres qui n’est pas systématiquement de type BCS.

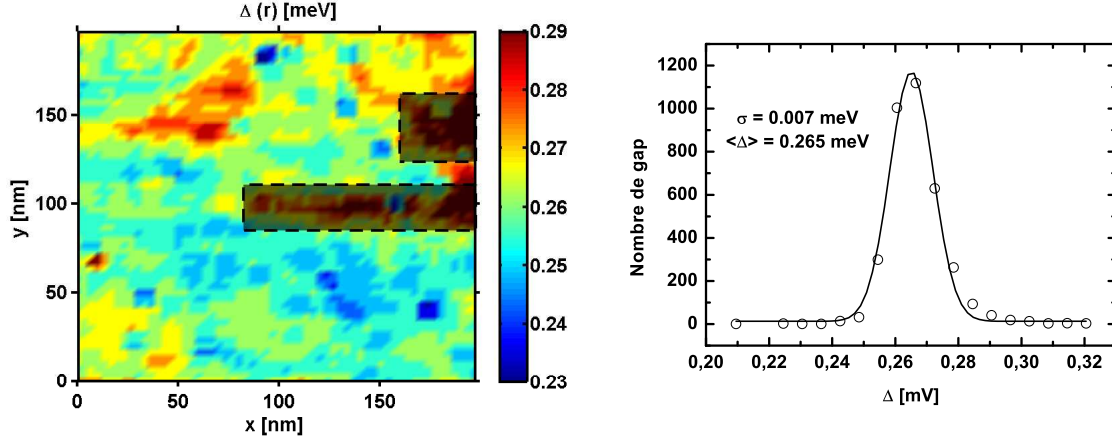
La figure 6.4, issue d’une CITS obtenue sur l’échantillon *TiN* 1, est une cartographie de la distribution spatiale du gap spectral. Il s’agit précisément de la valeur de tension de polarisation pour laquelle la conductance différentielle normalisée  $G(V)$  à l’intérieur du gap atteint 0.5. Cette quantité est légèrement inférieure et proportionnelle au gap supraconducteur, à une constante additive près. La statistique de ce gap, figure 6.4, est correctement

<sup>3</sup>Les valeurs obtenues avec les gaps de la fig 6.3 sont proches des valeurs moyennes présentées figure 6.6 et §6.2.2. L’utilisation de ces dernières n’aurait pas ou peu changé le rapport  $\Delta/T_c$ .

<sup>4</sup>Ces deux exemples ont été obtenus avec deux électroniques de STM différentes (cf. §1.3.1). L’échantillon *TiN* 2 a été étudié avec l’électronique TOPSystem n’autorisant que 256 acquisitions de spectres sur une ligne. L’échantillon *TiN* 1, quant à lui, a été mesuré en second avec l’électronique Matrix permettant de faire des CITS sans limitation du nombre de spectres.



décrite par une distribution gaussienne d'écart-type  $\sigma = 0.014 \text{ meV}$ . La moyenne de cette distribution a été décalée afin de la faire correspondre au gap supraconducteur moyen de la CITS (cf. fig. 6.6). Nous avons pris soin également de décaler, de la même manière, les valeurs de la cartographie. La répartition spatiale du gap spectral fait apparaître des domaines de l'ordre de 50 à 100 nm.



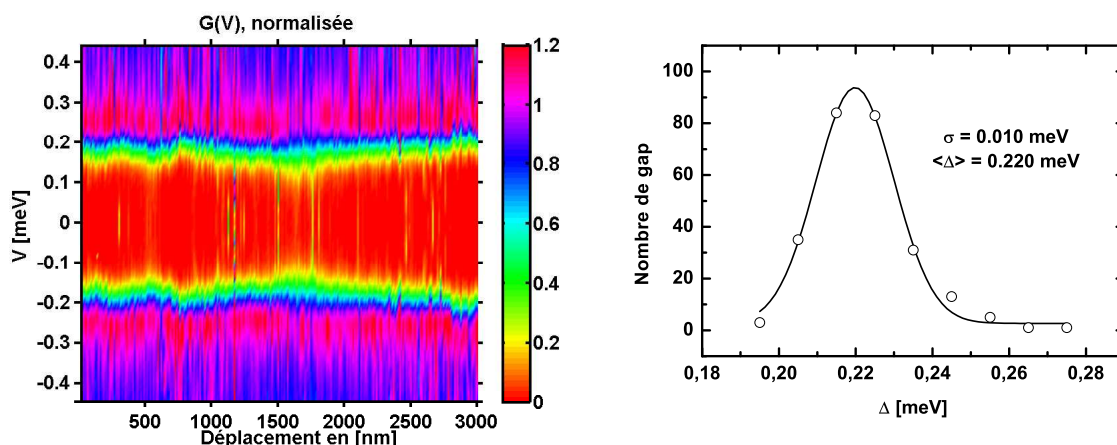
**FIG. 6.4:** À Gauche : cartographie du gap spectral de *TiN* 1 obtenue à partir d'une CITS de 3600 spectres mesurés à 50 mK sur une surface de  $200 \times 200 \text{ nm}^2$ . Le pas de la matrice de spectres est de 3.3 nm. Les spectres sont moyennés aux plus proches voisins en convoluant la matrice de spectre à chaque énergie par une matrice  $3 \times 3$  remplie de 1. Le gap spectral est obtenu en déterminant la valeur de la tension pour laquelle la conductance différentielle normalisée, à l'intérieur du gap, est égale à 0.5. Les valeurs ainsi obtenues sont ensuite décalées afin que leur moyenne corresponde à la valeur du gap supraconducteur moyen. Les deux rectangles assombris cachent des zones de spectres bruités en raison d'une mauvaise qualité de jonction. À droite : distribution du gap spectral ajustée par une gaussienne d'écart-type  $\sigma = 0.014 \text{ meV}$ .

De telles fluctuations ont aussi été mesurées sur *TiN* 2. La figure 6.5 est une vue bidimensionnelle de l'évolution de la densité d'états mesurée périodiquement tous les 11,7 nm sur une ligne de  $3 \mu\text{m}$  de long. Les fluctuations spatiales de  $\Delta$  sont flagrantes et leur statistique<sup>5</sup> présente un écart-type de l'ordre de  $0.020 \text{ meV}$ . L'échelle spatiale de variation, avec la résolution considérée, est ici aussi de l'ordre de la centaine de nanomètres.

Les mauvaises conditions tunnel sur l'échantillon *TiN* 3 n'ont pas permis d'obtenir une cartographie spatiale du gap spectral. Néanmoins, l'ajustement BCS de nombreux spectres, similaires à celui de la figure 6.3 et mesurés à différentes positions sur la surface, a permis d'extraire une dispersion importante des valeurs du gap. En ne considérant que quelques dizaines de spectres possédant des pics de cohérence (cette distinction sera précisée au §6.4), nous obtenons les valeurs extrêmes suivantes des gaps supraconducteurs ajustés :  $\Delta^{max} = 215 \mu\text{eV}$  et  $\Delta^{min} = 125 \mu\text{eV}$ . Bien que la quantité de données exploitées soit beaucoup plus faible pour cet échantillon, la dispersion n'en est pas moins importante. Nous avons par conséquent une estimation minorée de la dispersion du gap dans *TiN* 3 confirmant la présence de fortes fluctuations spatiales du gap supraconducteur.

<sup>5</sup>La statistique a été obtenue de la même manière que celle de la figure 6.4 en étudiant la largeur à mi-hauteur du gap spectral.





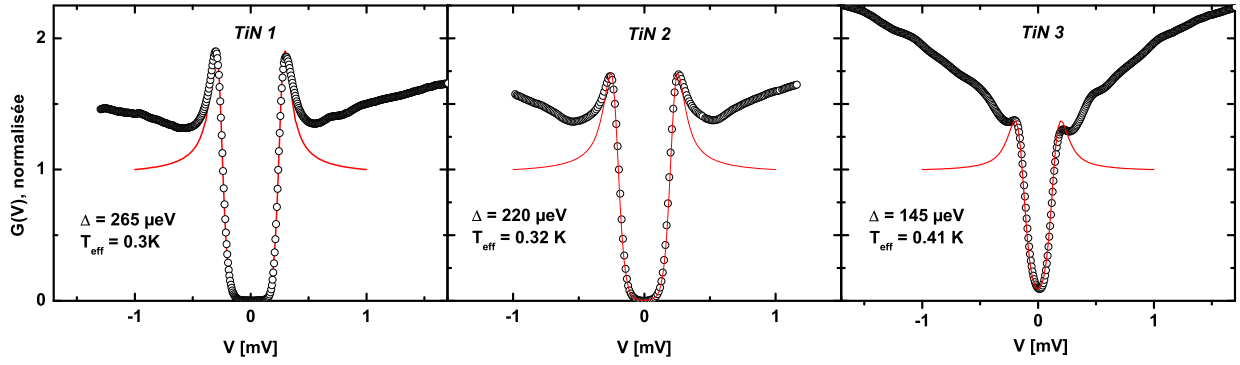
**FIG. 6.5:** À Gauche : vue bidimensionnelle de 256 spectres normalisés mesurés périodiquement tous les 11,7 nm sur une ligne de 3  $\mu\text{m}$  de long, à 50 mK. À droite : distribution du gap spectral obtenu en déterminant la valeur de la tension pour laquelle la conductance différentielle normalisée, à l'intérieur du gap, est égale à 0.5. Les valeurs ainsi obtenues sont ensuite décalées afin que leur moyenne corresponde à la valeur du gap supraconducteur moyen. À droite : l'ajustement par une gaussienne donne un écart-type de  $\sigma = 0.020 \text{ meV}$ .

### 6.2.3 Suppression coulombienne de $T_c$ et fluctuations mésoscopiques

Nous avons vu au chapitre 5 l'effet conjugué du désordre et de l'interaction Coulombienne sur la densité d'états, la conductivité et la température critique. Dans ces échantillons ultra-fins de  $TiN$ , la divergence logarithmique de la conductance (cf. fig. 6.2) ainsi que la réduction de la  $T_c$  sont des signatures du renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre. On peut s'attendre par conséquent à une anomalie de densité d'états (ZBA) au niveau de Fermi, présentée §5.1.1, à l'origine de la divergence de la conductance. C'est effectivement ce que nous observons en moyennant de nombreux spectres pour chaque échantillon, figure 6.6. La DOS au-dessus du gap, souvent accidentée sur les spectres individuels (cf. fig. 6.3), acquiert alors une forte dépendance en énergie semblable à celle du ZBA (cf. fig. 5.2). Cette anomalie apparaît d'autant plus forte que le désordre est important. En échelle semi-logarithmique, dans l'insert de la figure 6.6, elle apparaît linéaire. Il est cependant difficile de conclure à une éventuelle dépendance logarithmique de la DOS de type ZBA (éq. (5.4)) avec une variation de la tension de polarisation de moins d'une décade. Attribuer le comportement de la DOS à  $eV > \Delta$  au ZBA a, par ailleurs, déjà été invoqué par Valles *et al.* [140] pour expliquer les mesures tunnel sur les films de bismuth amorphe (cf. fig. 5.5). À notre connaissance, il n'existe pas dans la littérature d'étude théorique de la conjonction d'un ZBA et d'un gap supraconducteur dans le spectre des excitations.

Comme nous le verrons §6.4, les spectres possédant des pics de cohérence marqués ne représentent pas la totalité des mesures. Si l'on ne considère que les spectres tels que ceux de la figure 6.3, ajustables avec la théorie BCS, nous pouvons tracer sur la figure 6.7 les évolutions en fonction du désordre de la température critique (en bleu), du gap supraconducteur moyen (en rouge) et de sa dispersion (en blanc). En choisissant comme mesure du désordre la résistance maximale<sup>6</sup> avant la transition,  $R_{\square}^{max}$  (cf. tab. 6.1), nous obtenons une

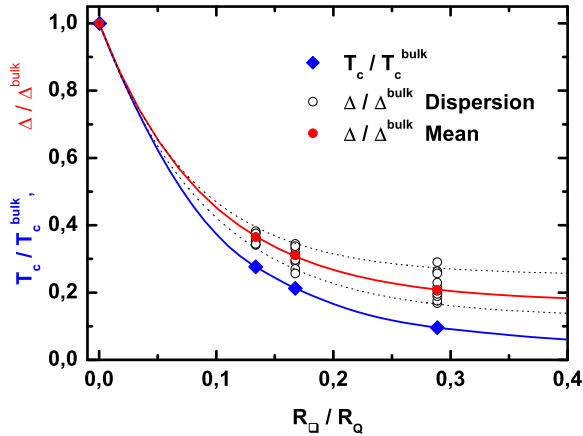
<sup>6</sup>Le choix est ici arbitraire, étant donné que la résistance résiduelle de Drude n'est pas connue dans ces



**FIG. 6.6:** Conductances différentielles moyennées. Les moyennes sont obtenues à partir : des spectres de la CITS figure 6.6 pour TiN 1, des 256 spectres de la figure 6.5 pour TiN 2 et des spectres choisis parmi ceux qui présentent une forte dépendance en tension au-dessus du gap pour TiN 3. Les courbes rouges sont des ajustements de la DOS BCS. Inserts : mêmes données en échelle semi-logarithmique.

décroissance de  $T_c$  non linéaire avec  $R_{\square}^{max}$ , similaire à la suppression coulombienne de  $T_c$  prédite par Finkel'stein (cf. §5.2.1). Cependant, étant donné les valeurs élevées de  $R_{\square}^{max}$ , l'expression (5.14) de  $T_c(R_{\square})$ , valable uniquement pour  $g_{cF} \gg 1$ , ne peut s'appliquer ici.

Par ailleurs, le gap supraconducteur moyen décroît moins vite que  $T_c$ . Cette observation est en contradiction avec les résultats expérimentaux de Valles *et al.* [140] obtenus sur des films de bismuth amorphe (cf. fig. 5.5) mais aussi avec le modèle perturbatif de Smith *et al.* [131] présenté §5.2.2. Le rapport  $\Delta/T_c$  augmente avec le désordre, ce qui se traduit sur cette figure par une séparation des courbes bleue et rouge. La dispersion des gaps  $a$ , d'autre part, une évolution tout aussi remarquable : elle augmente de façon significative avec le désordre à l'approche de la conductance critique.



**FIG. 6.7:** Évolution de la température critique (en bleu), du gap supraconducteur moyen (en rouge) et de la dispersion des valeurs de gap (en blanc), en fonction de la résistance  $R_{\square}^{max}$  (tab. 6.1) en unité  $h/e^2$ . Les valeurs du gap sont issues uniquement de l'ajustement BCS de spectres possédant des pics de cohérence. Ces quantités sont renormalisées par leur valeur dans le TiN massif, soit  $T_c^{bulk} = 4.7$  K et  $\Delta^{bulk} = 730$   $\mu$ eV [37]. Les courbes continues et pointillées sont des guides indiquant la tendance de la température critique, du gap, et de sa dispersion spatiale.

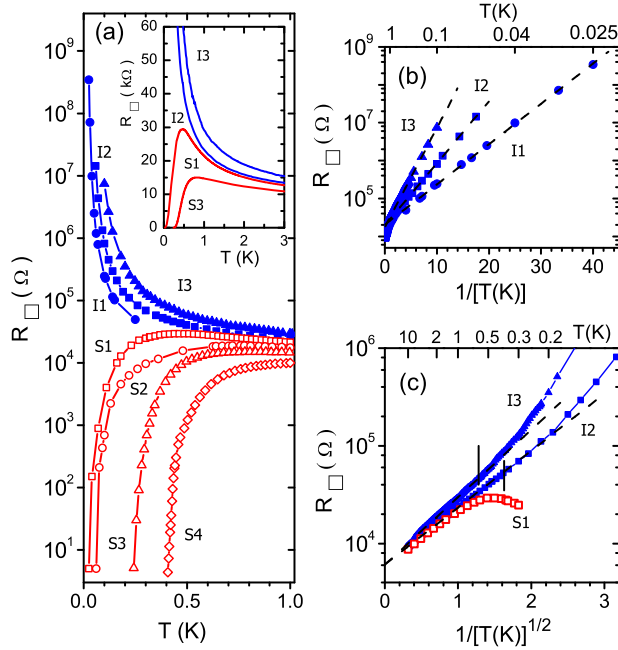
La figure 6.7 est à mettre en parallèle avec les travaux théoriques récents de Skvortsov et Feigel'man [130] décrits dans la section §5.3. L'affaiblissement de la constante de cou-

échantillons. Nous verrons dans la section suivante que  $R_{\square}^{max}$  est toutefois une quantité importante du point de vue de la localisation. C'est en effet la conductance totale tenant compte des corrections quantiques,  $g = g_0 + \delta g$ , qui détermine le seuil de localisation forte. Elle ne donne pas, cependant, une mesure du désordre, accessible uniquement par la conductance de Drude  $g_0 \propto k_F^2 l_e t$ , où  $t$  est l'épaisseur du film.

plage attractive entre électrons  $\lambda$ , dû aux effets conjugués du désordre et de l'interaction Coulombienne, produit une forte réduction de la température critique. La prise en compte des fluctuations mésoscopiques du désordre conduit alors à une phase supraconductrice inhomogène avec des fluctuations spatiales du paramètre d'ordre,  $\frac{\delta\Delta}{\Delta} = \frac{\delta\lambda}{\lambda^2}$ , d'autant plus importantes que  $T_c$  est réduite, i.e. à l'approche de la conductance critique  $g_c$ . *Notre figure illustre remarquablement cette description théorique avec une suppression coulombienne de  $T_c$  et l'apparition d'inhomogénéités du gap supraconducteur qui augmentent à l'approche de la conductance critique.* Ce comportement est par ailleurs similaire aux simulations numériques de Ghosal, Randeria et Trivedi [52, 53] (cf. §4.3.2).

Nous pouvons aussi déduire, à partir de cette figure, des informations capitales sur l'état isolant de la TSI. En effet, en extrapolant la courbe bleue ainsi que les courbes de dispersion du gap au-delà de la conductance critique,  $g < g_c$ , nous arrivons à *un état isolant pour lequel le gap supraconducteur survit localement avec de fortes fluctuations spatiales.* La conductance critique  $g_c$  sépare alors deux états fondamentaux différents, tous deux composés d'îlots supraconducteurs. L'état supraconducteur apparaît alors par couplage Josephson entre ces îlots, établissant une cohérence de phase macroscopique. Nous pouvons ainsi raisonnablement conclure que, dans  $TiN$ , la TSI s'opère par une suppression de la rigidité de phase entre ces îlots, conformément aux simulations numériques de Ghosal *et al.* discutées §4.3.2 ainsi qu'aux prédictions théoriques de Skvortsov et Feigel'man présentées §5.3. Le rôle des fluctuations de la phase supraconductrice locale dans un tel mécanisme s'avère, par conséquent, crucial.

### 6.3 Localisation et supraconductivité



**FIG. 6.8:** Dépendance en température de la résistance par carré d'échantillons proches du seuil de localisation. (a)  $\ln R_{\square}$  versus  $T$ . Insert : mêmes données en échelle linéaire. (b)  $\ln R_{\square}$  versus  $1/T$  pour les trois échantillons isolants I1, I2 et I3. (c)  $\ln R_{\square}$  versus  $1/T^{1/2}$ . Les barres verticales correspondent aux températures d'activation obtenues en (b). D'après [14].

la température est de l'ordre de l'énergie de Thouless  $T_{\xi}$  du volume de localisation, soit ,  $g = \frac{T_{\xi}}{\delta_{loc}} \sim 1$  (cf. §4.2.4 et §5.1.3). De façon équivalente,  $g \sim 1$  lorsque la longueur thermique est de l'ordre de la longueur de localisation, soit :

$$L_T \sim \xi_{loc} \iff T \sim T_{\xi} = \frac{\hbar D}{\xi_{loc}^2} \quad (6.2)$$

D'après la figure 6.8 (a), l'échantillon S1 atteint  $30 \text{ k}\Omega$ , i.e.  $g \sim 1$ , vers  $T_{\xi} \sim 0.5 \text{ K}$ . Par ailleurs, nous avons constaté que les valeurs de gap de nos échantillons sont équivalentes à une température légèrement supérieure à celle du maximum de la courbe résistive<sup>8</sup>. On peut ainsi en déduire que, pour l'échantillon S1, la valeur moyenne du gap supraconducteur  $\Delta(g_c)$  est aussi de l'ordre de  $0.5 \text{ K}$ . Cette valeur élevée de  $\Delta(g_c)$ , alors que  $T_c \sim 0$ , n'est pas aberrante étant donné que le rapport  $\Delta/T_c$  augmente fortement à l'approche de la conductance critique (cf. §6.2). Par conséquent, la température  $T_{\xi}$  pour laquelle  $R_{\square} \sim 30 \text{ k}\Omega$  est du même ordre de grandeur que  $\Delta(g_c)$ .

<sup>7</sup>Les échantillons de Baturina *et al.* proviennent de la même source que les nôtres (cf. §3.2.1).

<sup>8</sup>En effet, d'après le tableau 6.2, on obtient, respectivement pour  $TiN_{1,2,3}$ ,  $\Delta/k_B = 3.0, 2.6, 1.7 \text{ K}$ . Ces températures sont légèrement supérieures à la température du maximum des courbes résistives de la figure 6.1.

La figure 6.8 présente une série d'échantillons de  $TiN$ , identiques aux nôtres<sup>7</sup>, au voisinage direct de la transition mesurée récemment par Baturina *et al.* [14]. Bien que leur résistance à  $1 \text{ K}$  soit presque identique, les deux échantillons S1 et I1 ont pourtant un comportement diamétralement opposé à température nulle : l'un est supraconducteur et l'autre isolant. Une infime variation du désordre fait transiter le système d'un état fondamental à l'autre. Par ailleurs, l'insert de la figure 6.8 (a) nous amène à une remarque importante. L'échantillon S1 supraconducteur à la limite de la TSI, atteint  $30 \text{ k}\Omega$  avant de transiter, soit  $g \sim 1$ . Il y a donc une coïncidence entre la TSI et le seuil de localisation forte séparant le régime de corrections logarithmiques de la conductivité, du régime de conduction activée (cf. fig. 4.6 et §4.2.4).

Cette remarque permet d'extraire quelques ordres de grandeur des énergies caractéristiques du problème. En prenant les notations du paragraphe §4.2.4, la conductance atteint le quantum de conductance lorsque

Nous arrivons ainsi à la conclusion, qu'à la TSI, les énergies caractéristiques du système sont toutes du même ordre de grandeur<sup>9</sup> :

$$T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta(g_c) \quad (6.3)$$

Ce résultat rejoint l'extension du théorème d'Anderson proposé par Ma et Lee (cf. §4.3.1 éq. (4.35)), donnant une estimation du gap supraconducteur critique :

$$\Delta(g_c) \sim \delta_{loc} = \frac{1}{\nu \xi_{loc}^d} \quad (6.4)$$

La supraconductivité dans ces films minces de TiN est donc limitée par la localisation avec une conductance critique  $g_c$  donnée par la relation (6.4). Nous retrouvons, également, les conditions sur les longueurs et énergies caractéristiques, nécessaires à l'établissement de l'état supraconducteur, discutées dans le chapitre 4 §4.3. L'état fondamental du système à température nulle est donné par le rapport entre la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi_s$ , de l'ordre de  $(\nu\Delta)^{-1/d} \sim (\xi_0/k_F^{d-1})^{1/d} \stackrel{d=2}{\sim} \sqrt{\xi_0 T_e}$ , et la longueur de localisation  $\xi_{loc}$ . Autrement dit, tant que la température du seuil de localisation forte est inférieure au gap supraconducteur,  $T_\xi < \Delta$ , l'état fondamental à  $T = 0$  est supraconducteur. Dans le cas contraire,  $T_\xi > \Delta$ , le système est un isolant composé d'îlots supraconducteurs déconnectés. Soit, en résumé :

$$\begin{aligned} \xi_s < \xi_{loc} &\Leftrightarrow \Delta > T_\xi && \text{Supraconducteur} \\ \xi_s > \xi_{loc} &\Leftrightarrow \Delta < T_\xi && \text{Isolant} \end{aligned} \quad (6.5)$$

D'après la section §4.3.1, on peut aussi analyser cette situation en terme de couplage Josephson entre grains supraconducteurs. Si l'on compare les énergies caractéristiques pour les échantillons  $S1$  et  $I1$ , nous obtenons avec  $g \sim 1$  et  $\Delta(g_c) \sim \delta_{loc}$  une énergie de couplage Josephson du même ordre de grandeur que l'écart moyen entre niveaux, i.e.  $E_J \sim g\Delta(g_c) \Rightarrow E_J \sim \delta_{loc}$  (cf. §4.3.1). Soit, pour  $S1$ ,  $E_J \gtrsim \delta_{loc}$ , et pour  $I1$ ,  $E_J \lesssim \delta_{loc}$ .

Dans (6.5), le seul paramètre ajustable est le désordre qui modifie à la fois la longueur de localisation (éq. 5.12) et le gap supraconducteur  $\Delta(g)$ . D'après la théorie de Finkel'stein, la valeur de la conductance critique de la TSI,  $g_{cF} = \frac{1}{2\pi} \left( \ln \frac{1}{T_c \tau_e} \right)^2$ , n'est a priori pas liée à la longueur de localisation. Pour de nombreux matériaux, la conductance critique reste en effet grande devant le quantum de conductance,  $g_c \gg 1$ , et l'évolution de  $T_c(g)$  est bien décrite

---

<sup>9</sup>En supposant que  $\Delta(g_c) \sim 0.5 K$ , il est possible d'extraire quelques ordres de grandeur. Concernant les énergies caractéristiques, nous avons :

$$T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta(g_c) \sim 44 \mu eV.$$

En considérant l'estimation de Baturina [13] du coefficient de diffusion  $D \simeq 0.3 \text{ cm}^2/s$  qui est en bon accord avec nos mesures de champ critique (cf. tab. 11.1 chapitre 11), les longueurs caractéristiques à la TSI sont de l'ordre de  $\sqrt{\frac{\hbar D}{\Delta(g_c)}}$ , soit

$$L_T(T_\xi) \sim \xi_{loc} \sim \xi_s \sim 21 \text{ nm}.$$

par l'équation de Finkel'stein (5.14). Le cas de  $TiN$  est par conséquent remarquable puisque la suppression coulombienne de la supraconductivité coïncide avec le seuil de localisation forte, c'est-à-dire  $T_c \sim 0$  lorsque  $g_c \sim 1$  et  $T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta(g_c)$ . Il n'existe pas, à notre connaissance, d'étude théorique permettant d'expliquer cette coïncidence.

## 6.4 Paires de Cooper localisées

### 6.4.1 Loi d'activation

D'après les figures 6.8 (b) et (c), les échantillons isolants présentent un régime de sauts à portées variables de type Efros-Shklovskii,  $R_\square = R_1 \exp(T_1/T)^{1/2}$ , suivi à plus basse température d'une loi d'activation simple  $R_\square = R_0 \exp(T_0/T)$  lorsque  $T < T_0$ . Baturina *et al.* [14] font le rapprochement entre cette succession de régimes de conduction activée, et celle observée dans les films d' $InO_x$  [81, 123]. Dans  $InO_x$ , le régime d'activation simple est précédé par un régime de sauts à portées variables de type Mott (cf. fig. 4.7). Cette succession de régimes suggère l'ouverture d'un gap dans la DOS à basse température, d'origine supraconductrice.

D'un point de vue théorique, nous avons vu, dans la section 4.3.2, que l'ajout d'une interaction attractive dans un système localisé produit un appariement des électrons qui ouvre un gap dans le spectre des excitations à un électron. Selon Feigel'man *et al.* [39], ce gap, dit gap de parité, dépend de la nature fractale des fonctions d'onde proches du seuil de localisation. Comme pour  $InO_x$ , le lien entre  $T_0$  et la supraconductivité est supporté par les valeurs très faibles des énergies d'activation :  $T_0 = 0.25 K$  (I1),  $T_0 = 0.38 K$  (I2), et  $T_0 = 0.61 K$  (I3), comparables à notre estimation du gap de  $S1$ .

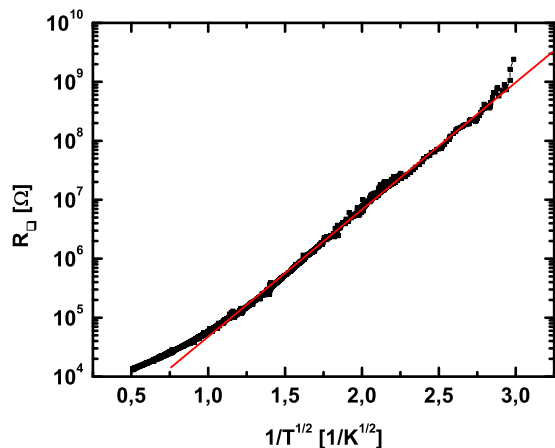
### 6.4.2 Nuances sur l'interprétation des lois d'activation

Étant donné la faible variation de résistance de moins d'une décade, sur la figure 6.8 (c), le comportement de type Efros-Shklovskii précédant le régime d'activation simple, pour  $T > T_0$ , peut toutefois être remis en question<sup>10</sup>. Il en va de même pour le comportement de type Mott observé figure 4.7 dans  $InO_x$  où la variation de résistance est tout aussi réduite. Par ailleurs, Larkin et Khmel'nitskii [84] ont montré que le régime d'Efros-Shklovskii apparaît seulement aux plus basses températures (cf. §4.2.5), lorsque la longueur des sauts à portées variables est telle que l'interaction Coulombienne n'est plus écrantée. La température d'apparition de ce régime est, malgré tout, d'autant plus élevée que le désordre est important.

---

<sup>10</sup>Par ailleurs, il a été montré dans les hétérojonctions  $n$ -GaAs que si la gamme de résistance explorée n'est pas suffisamment grande (inférieure à trois ordres de grandeur), une dépendance en température correctement choisie du préfacteur de l'exponentielle ne permet plus de discriminer la loi de Mott de celle d'Efros-Shklovskii [141, 87].





**FIG. 6.9:**  $R_{\square}$  versus  $1/T^{1/2}$  en échelle semi-logarithmique pour un échantillon isolant de  $TiN$ . La résistance a été mesurée en configuration deux fils (cf. annexe A) à travers 19 carrés, avec une excitation  $V_{ac} = 30 \mu eV$  et une fréquence de 1.65 Hz.

l'ordre de l'écart moyen entre niveaux du volume de localisation  $\delta_{loc}$  [68, 84] (cf. §4.2.5).

Cette clarification ne remet toutefois pas en cause l'analyse précédente qui associe cette loi d'activation à une réminiscence de l'état supraconducteur du côté isolant de la TSI, puisqu'en effet, à la TSI, nous avons vu que  $\delta_{loc} \sim \Delta(g_c)$ . De plus, cette interprétation est confortée par les conclusions de la section 6.2.3 traitant des inhomogénéités spatiales, renforcées par le désordre, du gap supraconducteur. Baturina *et al.* [14] ont, par ailleurs, obtenu un comportement non monotone de la magnétorésistance dans les échantillons isolants, similaire à celui des échantillons supraconducteurs : la magnétorésistance augmente aux faibles champs puis diminue aux forts champs (cf. chapitre 11). Cette observation conforte aussi la présence de corrélations supraconductrices dans les échantillons isolants.

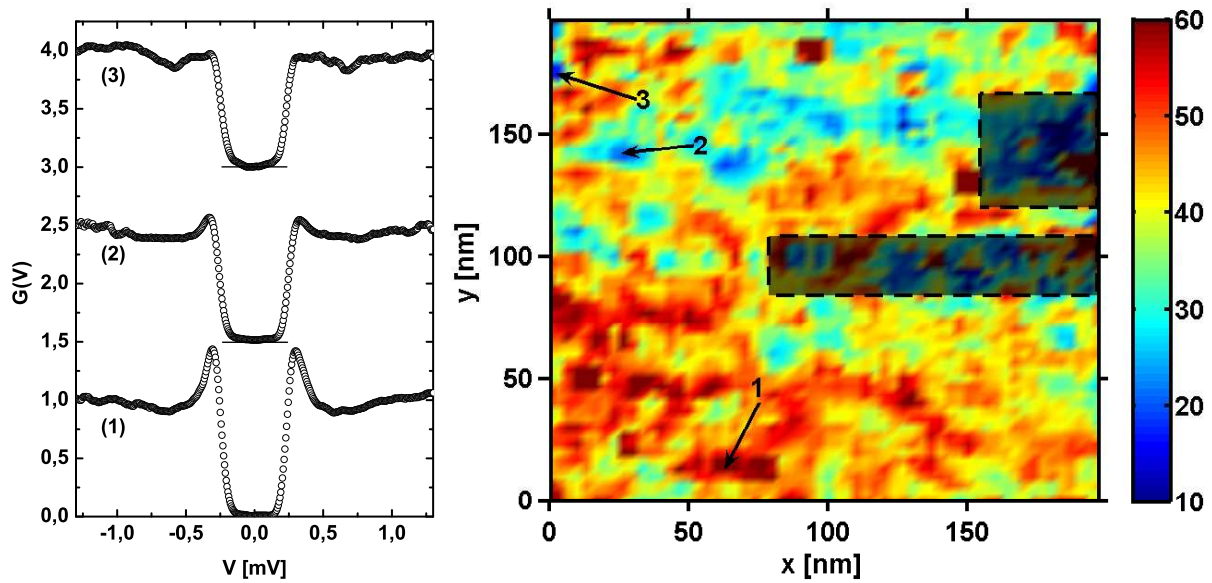
### 6.4.3 Gap isolant dans la DOS

D'après les travaux théoriques de Ghosal *et al.* et de Feigel'man *et al.* (cf. 4.3.2), les inhomogénéités induites par les fluctuations mésoscopiques du désordre se traduisent par une phase supraconductrice granulaire dans une matrice isolante. Le spectre des excitations à un électron de cette matrice isolante présente un gap directement lié à la présence de l'interaction attractive entre électrons (éqs. (4.46) et (4.52)). La forme de ce gap se distingue du gap supraconducteur par l'absence de pic de cohérence.

Pour les trois échantillons, nous avons obtenu une quantité non négligeable de spectres présentant de très faibles pics de cohérence. Ces pics étaient même parfois complètement absents, laissant place à un gap rectangulaire dans la DOS fortement similaire au gap isolant attendu théoriquement. Nous pouvons illustrer ces résultats avec les données de la CITS de l'échantillon  $TiN$  1 (cf. fig. 6.4). La figure 6.10 présente une cartographie en échelle de couleur de la hauteur relative du pic de cohérence. Pour chaque spectre, la hauteur du pic de cohérence ainsi que le minimum de la DOS au-dessus du gap ( $eV > \Delta$ ) sont détectés et leur écart relatif est donné en pourcentage. Cette cartographie montre que la hauteur du pic de cohérence n'est pas spatialement homogène et peut être affaiblie sur des zones de

Or, nous avons mesuré un échantillon de  $TiN$  isolant, similaire à ceux de Baturina *et al.*, pour lequel nous avons mis en évidence un régime d'Efros-Shklovskii démarrant à 0.77 K, sur quatre décades de résistance (cf. fig. 6.9). Étant donné que la résistance de cet échantillon est d'environ 58 kΩ à 1 K, il n'est pas possible, en principe, d'obtenir un régime d'Efros-Shklovskii apparaissant à plus haute température dans un échantillon moins désordonné. Le soi-disant régime d'Efros-Shklovskii observé à haute température figure 6.8 (c) peut donc raisonnablement être réfuté.

Dans ce cas, l'observation d'une loi d'activation simple dans un film désordonné n'a alors rien de surprenant. Elle peut s'interpréter par un régime de sauts entre volumes de localisation voisins où l'énergie d'activation,  $T_0$ , est de



**FIG. 6.10:** À droite : cartographie de la hauteur relative du pic de cohérence pour la CITS de  $TiN$  1 figure 6.4. Après une moyenne aux plus proches voisins (cf. légende fig. 6.4), la cartographie est obtenue en calculant la variation relative entre la conductance différentielle au pic de cohérence  $G(eV=\Delta)$  et le minimum de conductance différentielle au-dessus du gap  $\min\{G(eV>\Delta)\}$ . Le résultat est donné en pourcentage. Les deux rectangles assombris cachent des zones de spectres bruités non exploitables. À gauche : spectres non moyennés correspondant aux trois flèches numérotées sur la cartographie.

plusieurs dizaines de nanomètres de large. Ces zones ne semblent, cependant, pas corrélées avec les fluctuations spatiales des valeurs du gap de la figure 6.4. Trois spectres représentatifs sont aussi présentés figure 6.10. Le spectre (3) donne un exemple limite où les pics sont totalement absents<sup>11</sup>. Concernant  $TiN$  2, nous avons obtenu de nombreux spectres présentant des pics de cohérence plus affaiblis que la moyenne, similaires au spectre (2) figure 6.10. Cependant, nous n'avons pas observé de spectre rectangulaire sans pic, peut-être en raison du nombre trop faible de spectres mesurés. La même remarque s'applique à  $TiN$  3.

La similitude entre ces gaps rectangulaires et les prédictions théoriques de Feigel'man *et al.* (éq. (4.52)) et de Ghosal *et al.* (cf. fig. 4.10) est remarquable. Selon ces études, l'absence de pic de cohérence est une signature spectroscopique de paires de Cooper localisées dans un volume de localisation. En effet, si l'on considère le régime isolant tel que  $\delta_{loc} > \Delta$ , chaque volume de localisation est équivalent à un grain supraconducteur isolé. Tant que  $\delta_{loc} < \omega_D$  où  $\omega_D$  est la fréquence de Debye, les corrélations supraconductrices persistent dans le volume de localisation et produisent un gap de parité  $\Delta_p$  dans le spectre des excitations à un électron. *Un état lié de deux électrons de spins opposés, alors équivalent à une paire de Cooper localisée, se forme, abaissant l'énergie de l'état localisé* (cf. §4.3.3). Feigel'man *et al.* ont montré que dans le cas de la transition d'Anderson, ce gap de parité est lié à la

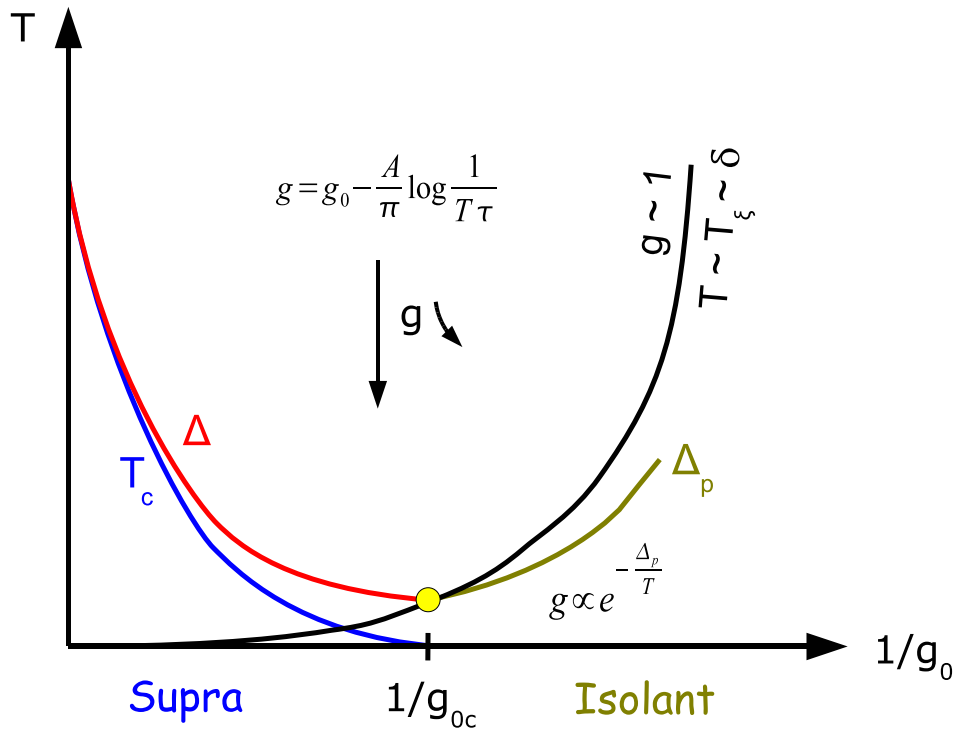
<sup>11</sup>La pertinence des spectres rectangulaires nous est apparue après la série de mesures sur  $TiN$ , lors de l'étude de l'oxyde d'indium amorphe. En effet, ces spectres étant peu nombreux, nous les avons classés comme non exploitables, c'est-à-dire liés à un artefact de mesure ou une mauvaise jonction tunnel. Ce n'est qu'après avoir mesuré une quantité importante de tels spectres dans un échantillon d' $InO_x$  que nous avons reconsidéré les mesures de  $TiN$ .



nature fractale des fonctions d'onde [39]. Du côté isolant, il augmente avec le rapport  $\delta/\Delta$  de la même manière que dans le cas d'un grain supraconducteur isolé [97, 146]. Du côté supraconducteur, le gap spectral est la somme du gap collectif supraconducteur et du gap de parité :  $E_{gap} = \Delta + \Delta_p$  (cf. §4.3.3).

En résumé, les inhomogénéités que nous avons mesurées, croissant à l'approche de la TSI, rendent plus que probable l'hypothèse d'un système isolant dans lequel les corrélations supraconductrices seraient encore présentes. D'autre part, l'existence de gaps sans pic de cohérence, dont on peut raisonnablement extrapoler la présence du côté isolant de la TSI, permet d'expliquer la loi d'activation observée à  $T < T_0 \sim E_{gap}$ .

## 6.5 Diagramme de phase



**FIG. 6.11:** Diagramme de phase illustrant la TSI dans  $TiN$ . Les énergies et les températures sont en ordonnée et le désordre, i.e. la résistance de Drude  $1/g_0$ , en abscisse.  $g_{0c}$  est le désordre critique de la TSI. La courbe bleue donne l'évolution de la température critique et la rouge l'évolution du gap supraconducteur moyen qui se poursuit dans la limite  $\delta_{loc} > \Delta$  par un gap de parité. Dans ce diagramme, l'évolution de la conductance totale,  $g = g_0 + \delta g$ , se lit verticalement. De haut en bas la conductance décroît de façon logarithmique jusqu'à atteindre  $g \sim 1$  à la température  $T \sim T_\xi$ , c'est-à-dire le seuil de localisation représenté par la courbe noire. Si  $g_0 > g_{0c}$ ,  $\Delta > T_\xi$  et le système est supraconducteur à  $T = 0$ . Dans le cas contraire, la résistance diverge selon une loi d'activation pour  $T < \Delta_p$ . Le point jaune indique la TSI où  $T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta$ .

Nous proposons figure 6.11 un diagramme de phase résumant la plupart des résultats discutés jusqu'ici. Les axes de ce diagramme représentent la température en ordonnée et la résistance de Drude adimensionnée,  $1/g_0$ , en abscisse. Cette dernière caractérise le désordre

statique du film :  $g_0 \propto k_F l_e k_{Ft}$ . Dans ce diagramme, l'évolution en température de la conductance totale tenant compte des corrections quantiques,  $g = g_0 + \delta g$ , se lit verticalement. Ainsi, pour un désordre statique donné  $1/g_0$ , la conductance diverge logarithmiquement dans le régime de localisation faible jusqu'au seuil de localisation forte, courbe noire, correspondant à  $g \sim 1$  et  $T \sim T_\xi \sim \delta$  (cf. éq. (5.13)). Puis, à basse température, d'après les conditions (6.5), le système transite soit dans l'état supraconducteur lorsque  $\Delta(1/g_0) > T_\xi$ , soit dans l'état isolant lorsque  $\Delta(1/g_0) < T_\xi$ . Dans ce diagramme, la TSI apparaît pour un désordre critique, i.e. une résistance de Drude  $1/g_{c0}$ , pour lequel la température du seuil de localisation forte  $T_\xi$  devient de l'ordre du gap supraconducteur  $\Delta$ . Le point jaune indique ce point critique où  $T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta(1/g_{c0})$  et, nécessairement,  $g \sim 1$ . Du côté isolant, le gap supraconducteur évolue en un gap de parité, augmentant avec le rapport  $\frac{\delta_{loc}}{\Delta} > 1$ . La conductance suit alors une loi d'activation,  $g \propto \exp\left(-\frac{T_0}{T}\right)$ , où  $T_0 \sim \Delta_p$ .

Dans *TiN*, le point critique jaune où  $T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta$  correspond à une température d'environ  $0.5 K$ . Ce scénario de TSI, régi principalement par les effets de localisation, pourrait s'appliquer aux matériaux<sup>12</sup> présentant une conductance critique élevée  $g_c \gg 1$ . En effet, si l'on suppose que la température du point critique jaune est plus basse que les températures accessibles expérimentalement, on obtient artificiellement une conductance critique  $g_c$  élevée, séparant les échantillons supraconducteurs des échantillons non-supraconducteurs. Ces derniers, n'atteignant pas le seuil de localisation forte, présenteraient simplement un régime de localisation faible. Bien que ce scénario de localisation décrive les comportements généralement observés, il ne peut évidemment être testé dans de tels échantillons, puisque, par hypothèse, la température de leur point critique jaune hypothétique, où  $T_\xi \sim \delta_{loc} \sim \Delta(1/g_{c0})$ , n'est pas accessible expérimentalement.

## Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les résultats principaux de transport et de spectroscopie tunnel à basse température obtenus dans les échantillons de *TiN*. Nous n'avons considéré ici ni l'effet du champ magnétique sur le transport, ni l'évolution en température de la densité d'états qui feront l'objet de chapitres spécifiques.

La divergence logarithmique de la conductivité, attribuée aux corrections de localisation faible et d'interaction, a révélé le caractère bidimensionnel de ces échantillons, ainsi que la proximité du seuil de localisation forte. Dans la phase supraconductrice, la densité d'états mesurée par spectroscopie tunnel a pu être décomposée en deux contributions. À basse énergie, le gap, ainsi que les pics de cohérence, correspondent à la théorie BCS pour une supraconductivité de symétrie *s*. La hauteur de ces pics est cependant anormalement faible et diminue lorsque le désordre augmente. Au vu des simulations numériques de Ghosal *et al.*, ce comportement serait une conséquence directe du désordre sur l'état supraconducteur. La seconde contribution est associée à la dépendance en énergie au-dessus du gap. Nous avons attribué cette contribution à l'anomalie de densité d'états (ZBA) à l'origine de la correction d'interaction de la conductivité. L'effet de l'interaction Coulombienne renforcée par le désordre se retrouve aussi dans la suppression de la température critique que l'on

---

<sup>12</sup>Rappelons les exemples cités en introduction : le bismuth condensé à froid [62, 89], l'alliage molybdène-germanium amorphe  $a-Mo_xGe_{1-x}$  [96], l'alliage molybdène-silicium amorphe  $a-Mo_xSi_{1-x}$  [106], l'alliage de niobium-silicium amorphe  $a-Nb_xSi_{1-x}$  [94] et le tantale [114].

peut qualitativement décrire avec la théorie de Finkel'stein [41].

Avec cette étude de spectroscopie tunnel, l'inhomogénéité spatiale du gap supraconducteur produite par les fluctuations mésoscopiques du désordre a été mise en évidence pour la première fois dans des films minces désordonnés. Ces résultats présentent une avancée importante dans la compréhension de la TSI. En effet, la plupart des descriptions théoriques de cette transition sont contruites sur des modèles "homogènes", notamment les modèles de fluctuation de phase [83] (cf. chapitre 10). L'effet de granularité induite par le désordre bouleverse par conséquent la vision communément admise d'un paramètre d'ordre supraconducteur uniforme. Les fluctuations mésoscopiques du désordre dans les films minces ont toutefois été considérées récemment par une étude théorique de Skvortsov et Feigel'man [130]. Cette étude, qui prédit l'apparition de fortes fluctuations locales du gap supraconducteur à l'approche de la TSI, est ici confirmée expérimentalement (cf. figure 6.7).

Ces fluctuations sont, par ailleurs, associées à un rapport gap spectral moyen sur température critique anormalement élevé, dont la valeur augmente avec le désordre. L'extrapolation de ces résultats au-delà de la conductance critique de la TSI conduit nécessairement à la présence de corrélations supraconductrices dans la phase isolante. Rappelons que ces conclusions contredisent la seule étude de spectroscopie tunnel sur les films minces désordonnés, dans laquelle Valles *et al.* [140] observent une suppression simultanée de la température critique et du paramètre d'ordre supraconducteur à la TSI. L'utilisation de jonctions lithographiées ne leur a pas permis d'étudier localement l'état supraconducteur de leurs films de bismuth amorphe.

Au vu des résultats récents de Baturina *et al.* et de notre étude de spectroscopie tunnel, nous avons pu décrire la TSI dans ces échantillons de  $TiN$ , avec les théories combinant localisation et supraconductivité. Nous proposons un diagramme de phase dans lequel la TSI apparaît au seuil de localisation forte, lorsque les énergies caractéristiques du problème, à savoir le gap supraconducteur, l'écart moyen entre niveaux et l'énergie de Thouless du volume de localisation, sont toutes du même ordre de grandeur.

# Chapitre 7

## Supraconductivité granulaire dans $InO_x$ amorphe

### Sommaire

---

<b>7.1</b>	<b>Transport</b>	<b>90</b>
<b>7.2</b>	<b>Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur</b>	<b>91</b>
<b>7.3</b>	<b>Paires de Cooper localisées</b>	<b>92</b>
7.3.1	Absence de pic de cohérence	92
7.3.2	Évolution en température de la DOS	92
7.3.3	Pseudogap	95

---

## Introduction

À la différence des films de  $TiN$ , les échantillons d'oxyde d'indium présentés dans le chapitre 3 §3.2.2 sont parfaitement amorphes. Il n'est donc, a priori, pas possible d'imputer un éventuel comportement granulaire à un effet de structure cristallographique. Le comportement anormal de la magnétorésistance des films supraconducteurs [48, 118], ainsi que les lois d'activation simple des isolants proches de la TSI [81, 123], sont pourtant interprétés dans la littérature comme une signature d'une phase supraconductrice inhomogène.

Dans cette section nous présentons les résultats de spectroscopie tunnel obtenus sur un échantillon d' $InO_x$  mettant en évidence une très forte dispersion des gaps supraconducteurs ainsi que la présence de gaps isolants, i.e. sans pics de cohérence, signatures de paires de Cooper localisées. Ce matériau nous permet, par conséquent, de confirmer les effets de localisation et de granularité induite par le désordre, déjà observés dans les échantillons de  $TiN$ .

Comme pour  $TiN$ , une mesure de transport quatre fils a été effectuée dans le STM afin de pouvoir corréler précisément température critique et spectroscopie tunnel. Par ailleurs, pour toutes les mesures de spectroscopie tunnel, la pointe était en contact avec la surface formant, avec l'oxyde natif isolant, une jonction de quelques mégaOhms pour les courants tunnel considérés.

## 7.1 Transport

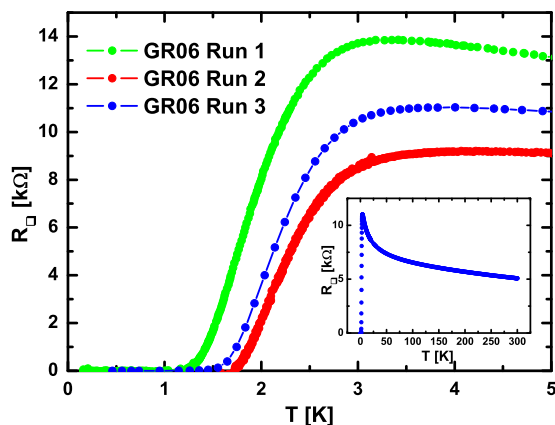


FIG. 7.1: *Transitions supraconductrices d'un échantillon d' $InO_x$  de 15 nm d'épaisseur. L'échantillon a subi trois refroidissements dont deux d'entre eux, 1 et 2, ont été précédés par un chauffage sous vide d'une heure à 50 °C dans le STM pour dégazer la surface. En insert : dépendance en température de la résistance dès 300 K (refroidissement 3).*

La figure 7.1 présente les transitions supraconductrices mesurées lors de trois refroidissements différents. L'évolution de la température critique et de la résistance par carré met en évidence la nature vitreuse du matériau. Un tel vieillissement<sup>1</sup> permet notamment de diminuer la résistivité par recuit sous vide à basse température ( $< 100$  °C) et de modifier le désordre d'un échantillon [49, 118]. Étant donné la diminution de la température critique avec l'augmentation du désordre, nous sommes bien ici en présence d'une TSI induite par le désordre.

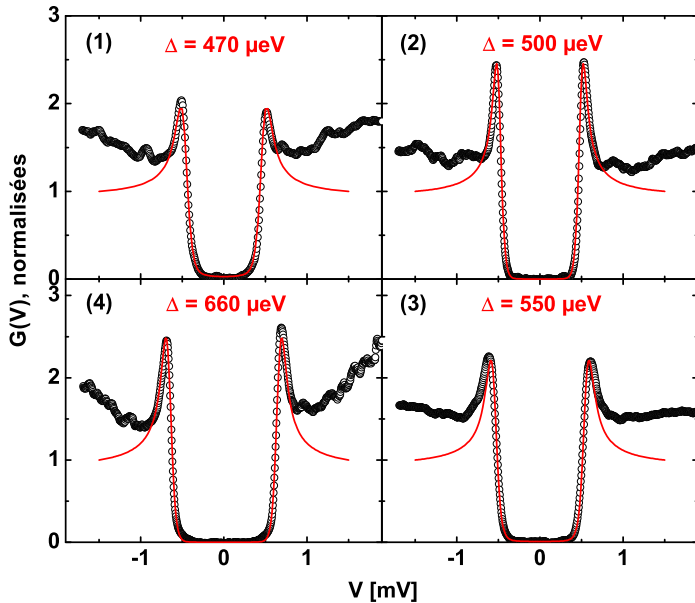
Contrairement aux échantillons de  $TiN$ , nous n'avons pas trouvé de loi susceptible de décrire l'évolution de la conductance de 300 K à  $T_c$ . Nous pouvons toutefois signaler que la

<sup>1</sup>La diminution de la résistivité par recuit sous vide résulte d'une augmentation de la mobilité due à la réduction du désordre statique et non d'une modification du nombre de porteurs [118].

conductance décroît de façon linéaire de  $300\text{ K}$  à  $130\text{ K}$ . Si l'on attribue ce comportement à la localisation faible en dimension  $d = 3$ ,  $\delta\sigma(T) \propto T^{p/2}$ , on obtient  $p = 2$ , soit  $\tau_\phi \propto T^{-2}$ . Cet exposant, déjà observé dans la littérature [5], ne correspond cependant pas aux valeurs attendues lorsque la cohérence de phase est limitée par les interactions électron-électron ou le couplage électron-phonon (cf. §4.1). Avec une épaisseur  $t = 15\text{ nm}$ , l'échantillon n'est certainement pas dans un régime diffusif bidimensionnel dès  $300\text{ K}$ , mais subit probablement un crossover dimensionnel  $3D \rightarrow 2D$  à une certaine température. Même s'il est difficile d'extraire un comportement bien déterminé, nous pouvons retenir de cette mesure la forte divergence de la résistance vers un état isolant. Cette divergence vers le seuil de localisation forte est cependant court-circuitée par la supraconductivité (cf. insert figure 7.1).

## 7.2 Inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur

La spectroscopie tunnel effectuée lors du refroidissement 2 (cf. fig. 7.1) a confirmé les supputations de phase supraconductrice inhomogène, basées jusqu'à présent sur des mesures de transport [81, 48, 118]. Sur toute la surface de l'échantillon, nous avons obtenu un gap dans la DOS. La figure 7.2 présente quatre exemples de spectres bruts mesurés à des positions différentes et possédant des pics de cohérence marqués. Ceci constitue à notre connaissance la première mesure de spectroscopie tunnel dans l'oxyde d'indium amorphe supraconducteur.



**FIG. 7.2:** Conductances différentielles locales mesurées à des positions différentes de la surface du film d' $\text{InO}_x$  lors du refroidissement (2) ( $T_c \simeq 1.7\text{ K}$ ). Conditions expérimentales : température de  $50\text{ mK}$  et résistance tunnel de  $3.4\text{ M}\Omega$ . Les spectres sont ajustés avec la DOS BCS (en rouge). La température effective ainsi que le paramètre de Dynes (cf. §2.1.3) utilisés dans l'ajustement sont respectivement pour les spectres (1) à (4) :  $T_{eff} = 0.35; 0.30; 0.35; 0.30\text{ K}$  et  $\Gamma = 0.03; 0.001; 0.01; 0.005$ .

L'ajustement des spectres avec une DOS BCS de symétrie  $s$  (cf. éq. 2.6) reproduit correctement le gap ainsi que les pics de cohérence. Cependant, comme pour  $TiN$ , la DOS au-dessus du gap, i.e.  $eV > \Delta$ , n'est pas plate suggérant une contribution de type ZBA (cf. §5.1.1). Avec une trentaine d'ajustements réalisés à partir de spectres mesurés à différentes positions, nous obtenons une très forte dispersion spatiale du gap local :  $450 < \Delta < 660\ \mu\text{eV}$ . Ces valeurs conduisent à des rapports gap spectral sur température critique particulièrement élevés :

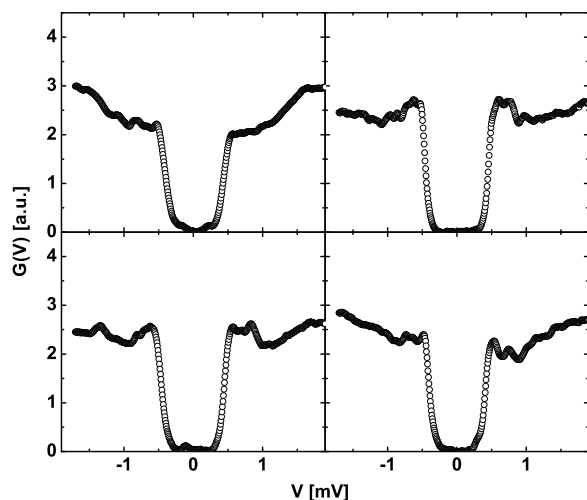
$$3 \leq \frac{\Delta}{T_c} \leq 4.5 \quad (7.1)$$

du même ordre de grandeur que les rapports obtenus pour  $TiN$  (cf. tab. 6.2). D'après Bergmann [20], les matériaux amorphes ont, pour la plupart, un couplage électron-phonon fort avec un rapport<sup>2</sup>  $\Delta/T_c$  de l'ordre de 2.25, beaucoup plus faible que nos mesures. Il paraît donc raisonnable d'attribuer ces valeurs élevées à la proximité de la transition supraconducteur-isolant.

*Ainsi, malgré un désordre présumé "homogène", l'état supraconducteur de l'oxyde d'indium amorphe est fortement inhomogène.* La notion de granularité induite par le désordre est ici clairement illustrée. Dans cette image de supraconductivité granulaire, la largeur de la transition résistive peut alors s'interpréter en terme de percolation entre domaines supraconducteurs nucléant aux différentes températures locales.

## 7.3 Paires de Cooper localisées

### 7.3.1 Absence de pic de cohérence



**FIG. 7.3:** Conductances différentielles locales mesurées à des positions différentes de la surface du film d' $InO_x$  lors du refroidissement (2) ( $T_c \simeq 1.7 K$ ). Conditions expérimentales : température de 50 mK et résistance tunnel de 3.4 M $\Omega$ .

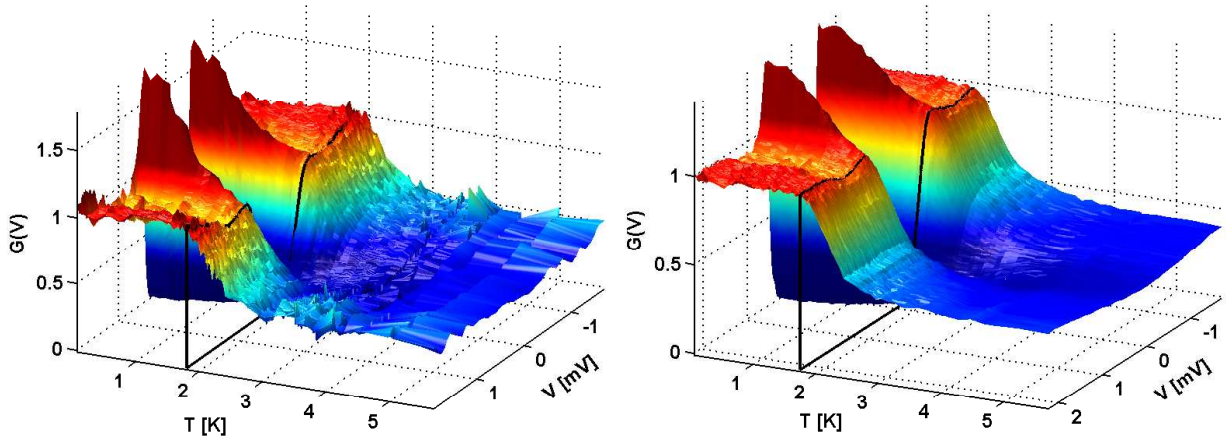
La spectroscopie tunnel a aussi révélé une quantité importante de spectres sans pics de cohérence similaires au spectre (3) de  $TiN$  figure 6.10. Quatre exemples représentatifs sont présentés sur la figure 7.3. Les résultats équivalents obtenus sur  $TiN$  sont par conséquent confirmés. La forme rectangulaire de ces spectres rappelle, là aussi, la prédiction de Feigel'man *et al.* (cf. §4.3.3) ainsi que les simulations numériques de Ghosal *et al.* (cf. fig. 4.10). On peut raisonnablement supposer que la proportion de ces gaps rectangulaires, signature spectrale de paires de Cooper localisées, augmente avec le désordre. Le régime d'activation simple des isolants proches de la TSI semble donc bien lié à l'ouverture d'un gap dans la DOS résultant de l'appariement d'électrons dans les volumes de localisation.

### 7.3.2 Évolution en température de la DOS

Ces gaps de forme rectangulaire apparaissent de façon remarquable dans l'évolution en température de la DOS. Sur la figure 7.4 sont représentées deux mesures de la conductance différentielle en fonction de la température. Elles ont été obtenues à deux positions différentes pour des valeurs du gap supraconducteur à 50 mK de 500  $\mu eV$  à gauche contre 560  $\mu eV$  à droite. L'évolution en température de droite et quelques courbes courant-tension correspondantes sont par ailleurs reproduites figure 7.5.

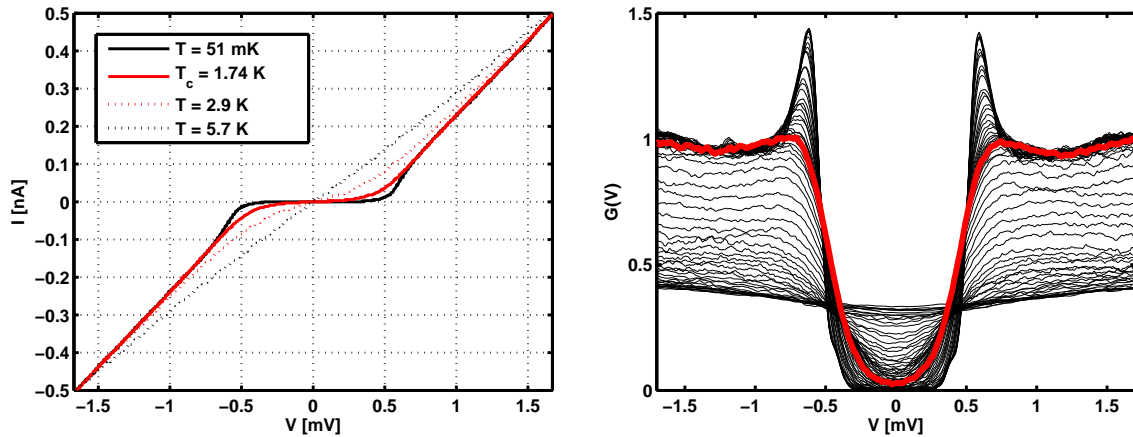
<sup>2</sup>Citons quelques exemples de rapport  $\Delta/T_c$  extraits de [20].  $a - Bi$  : 2.3,  $a - Ga$  : 2.3,  $Sn_{0.9}Cu_{0.1}$  : 2.23,  $Pb_{0.9}Cu_{0.1}$  : 2.4,  $Pb_{0.75}Bi_{0.25}$  : 2.5,  $In_{0.8}Sb_{0.2}$  : 2.2.



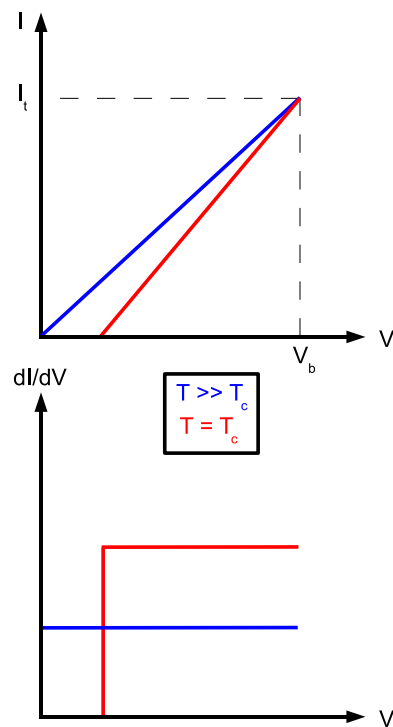


**FIG. 7.4:** Évolutions en température de la conductance différentielle mesurées à deux positions différentes et pour deux valeurs de gap supraconducteur différentes. Les spectres sont normalisés par la valeur à haute tension de la conductance différentielle mesurée à la plus basse température. À gauche :  $\Delta = 500 \mu\text{eV}$ . À droite :  $\Delta = 560 \mu\text{eV}$ . Les spectres en noir correspondent à  $T = T_c$ .

L'augmentation de la température produit sur ces deux gaps supraconducteurs un effet surprenant. Dans un premier temps, les pics de cohérence diminuent et disparaissent à  $T = T_c$  comme dans un supraconducteur conventionnel, mais, cependant, le gap ne se referme pas. Puis, exactement à  $T > T_c$ , sur l'échelle d'un kelvin et quelque soit la valeur du gap supraconducteur, le niveau moyen de la conductance différentielle, qui présente alors un gap de forme rectangulaire, s'affaisse brutalement. Les spectres mesurés à  $T = T_c$  surlignés en noir figure 7.4 et en rouge figure 7.5 mettent en évidence la *simultanéité* entre la *disparition des pics de cohérence*, l'*apparition de cette chute de conductance* et la *température critique macroscopique du film mince*.



**FIG. 7.5:** À droite : Évolution en température de la conductance différentielle de la figure 7.4 de droite. Le spectre rouge correspond au spectre noir de la figure 7.4, i.e.  $T = T_c$ . À gauche : courbes  $I(V)$  mesurées.



**FIG. 7.6:** Schéma de principe d'une mesure de caractéristique courant-tension et conductance différentielle d'une DOS présentant un gap rectangulaire.

des états. De façon générale, lorsque qu'une DOS ne conservant pas les états apparaît dans une évolution en température de la conductance tunnel, on peut s'attendre à une variation du niveau moyen de la conductance, et, par conséquent, à un problème de normalisation des spectres. La spectroscopie tunnel effectuée avec un STM modifie donc artificiellement la densité d'états en ajustant, entre chaque spectre, la transparence de la barrière tunnel<sup>3</sup>, afin de conserver un courant tunnel initial  $I_t$  constant, somme de tous les états dans la gamme d'énergie considérée  $[0, V_b]$ .

Il est important de noter qu'aux températures inférieures à  $T_c$ , la conductance tunnel au-dessus du gap reste constante. On peut constater par ailleurs, au vu de l'évolution en température des spectres figure 7.5, que les états à l'intérieur du gap, à  $eV < \Delta$ , sont transférés dans les pics de cohérence lorsque la température diminue en-dessous de  $T_c$ . Ces observations signifient que *l'évolution en température de la DOS dans la phase supracon-*

Cet affaissement de la conductance différentielle est en réalité une conséquence directe de la mesure de spectroscopie tunnel effectuée avec un STM. Pour simplifier, nous avons schématisé sur la figure 7.6 les courbes courant-tension que l'on attendrait pour une évolution entre une DOS plate métallique à haute température (courbe bleue) et une DOS présentant un gap rectangulaire (courbe rouge). Le point clef réside dans le fait que de telles courbes mesurées avec un STM sont obtenues avec une polarisation  $V_b$  et un courant tunnel  $I_t$  initiaux constants. Ce point  $I(V_b) = I_t$ , où les courbes se croisent, est le point de fonctionnement du STM. Ainsi, par construction, la pente de la caractéristique courant-tension du gap rectangulaire est supérieure à celle de la caractéristique ohmique. La conductance différentielle mesure alors directement ce changement de pente lié à l'apparition du gap (cf. fig. 7.6). Cette "anomalie" dans l'évolution en température de la conductance différentielle observée figure 7.4 résulte, par conséquent, de la polarisation à courant constant du STM (cf. courbes  $I(V)$  mesurées fig. 7.5) et surtout de la présence d'un gap de forme rectangulaire dans la DOS.

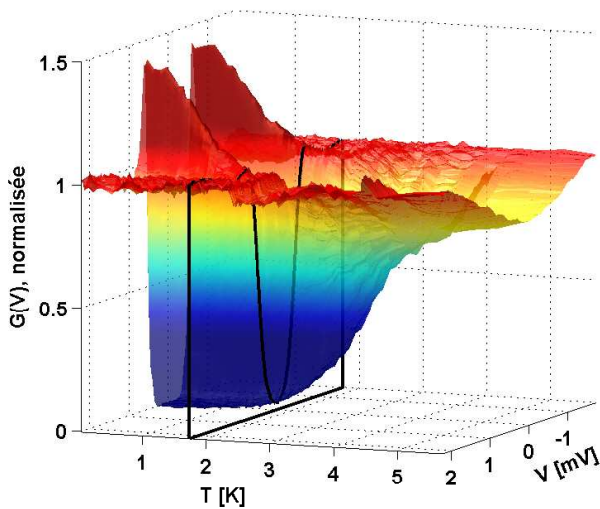
Par ailleurs, *cette forme rectangulaire dans la gamme d'énergies mesurée ne respecte pas la loi de conservation*

<sup>3</sup>Comme le courant tunnel initial est proportionnel à la somme des états dans la gamme d'énergies considérée, pour une distance pointe-échantillon constante, ce courant tunnel doit diminuer lors de l'ouverture du gap rectangulaire, en raison de l'absence d'état dans le gap. L'acquisition des spectres avec le STM est telle qu'entre chaque spectre, la régulation est réactivée. Par conséquent, si le courant tunnel diminue lors d'un changement de température, la régulation de l'électronique du STM réduit la distance pointe-échantillon de manière à conserver le même point de fonctionnement (cf.  $I(V_b) = I_t$  sur la figure 7.6). Ce comportement a effectivement été observé lors des mesures. Pour les spectres de la figure 7.4, obtenus en chauffant progressivement l'échantillon, la pointe a reculé significativement, de l'ordre de  $3\text{ nm}$ , dans la gamme de température  $T_c < T < 3\text{ K}$ . Ce déplacement est traduit en nanomètres à partir de la tension appliquée au tube piézoélectrique, mais comme la pointe est en pression sur la surface, le déplacement réel est certainement inférieur.

ductrice, *i.e.* exactement à  $T \leq T_c$ , conserve cette fois-ci le nombre d'états dans la fenêtre d'énergie considérée. Rappelons que la loi de conservation des états est respectée dans le cas BCS : les états à l'intérieur du gap supraconducteur sont tous transférés dans les pics de cohérence.

### 7.3.3 Pseudogap

#### Evolution en température de la DOS



**FIG. 7.7:** Évolution en température de la conductance différentielle de la figure 7.4 de droite. Chaque spectre a été normalisé à sa valeur à haute tension. Le spectre en noir correspond à  $T = T_c$ .

Les caractéristiques  $I(V)$  auraient alors été parallèles sur le schéma de la figure 7.6. Ceci n'est valable que si la DOS reste constante en énergie et en température au-dessus du gap. Au vu des spectres, cette hypothèse semble raisonnable. La normalisation de chaque spectre permet par conséquent de retrouver l'évolution en température de la DOS à partir de ces mesures de conductance différentielle. Le résultat de cette normalisation, présenté figure 7.7, fait apparaître un pseudogap dans la DOS persistant jusqu'aux plus hautes températures mesurées, soit  $T = 5.7K$ .

Feigel'man *et al.* [39] s'attendent à un régime de pseudogap dans la gamme de température  $T_c < T < E_{gap}$ , où  $E_{gap}$  est la somme du gap supraconducteur  $\Delta$  et du gap de parité  $\Delta_p$  (cf. §4.3.3 éq. 4.54). Dans notre cas, si l'on associe  $E_{gap}$  au gap mesuré, on obtient  $E_{gap} \simeq 560 \mu eV$  soit environ  $6.5 K$ . D'après la figure 7.7, la gamme de température du pseudogap correspond raisonnablement à la prédiction précédente. De plus, à la plus haute température mesurée ( $\sim 5.7 K$ ), nous avons constaté que l'anomalie de la DOS est moins marquée pour la mesure de la figure 7.4 possédant le plus faible gap (figure de gauche). L'extension en température du pseudogap apparaît, par conséquent, bien proportionnelle à

<sup>4</sup>Les courbes de conductance étant relativement plates au-dessus du gap, il est raisonnable de supposer qu'elles ne dépendent pas non plus beaucoup de la température dans cette gamme d'énergie.

la valeur du gap  $E_{gap}$  mesurée à basse température. Cette observation confirme le lien entre  $E_{gap}$  et le pseudogap prédit par la théorie de Feigel'man *et al.*

Nous avons vu, par ailleurs, que certaines zones ne possèdent pas de pics de cohérence, même aux plus basses températures. Bien que nous n'ayons pas mesuré l'évolution en température de la DOS de telles zones isolantes, nous pouvons toutefois raisonnablement supposer qu'elle sont similaires à celles de la figure 7.4 mais cependant sans apparition de pics de cohérence à  $T < T_c$ .

## Discussion

De ces mesures en température, nous pouvons retenir plusieurs observations importantes. D'une part, la densité spectrale de forme rectangulaire à  $T = T_c$  nous apporte une observation supplémentaire, et par conséquent une confirmation, de l'existence du gap isolant résultant de l'appariement d'électrons dans un volume de localisation. D'autre part, l'anomalie de la conductance différentielle met en évidence la coïncidence remarquable entre l'établissement de l'état supraconducteur macroscopique à  $T_c$  et l'apparition des pics de cohérence mesurés localement. Nous observons plus précisément l'établissement d'un gap rectangulaire avec disparition d'états jusqu'à  $T_c$ , suivi, dans la phase supraconductrice, par l'apparition de pics de cohérence conservant cette fois-ci le nombre total d'états. Ces pics apparaissent, par ailleurs, exactement à la même température, i.e.  $T_c$ , quelque soit la valeur locale du gap spectral  $E_{gap}$ .

Au vu de ces observations, il semble raisonnable d'associer l'apparition des pics à  $T_c$  à l'établissement d'une cohérence de phase entre volumes de localisation voisins. Dans un modèle de grains supraconducteurs couplés, l'introduction d'inhomogénéités conduit à un réseau désordonné de jonctions Josephson pour lequel la cohérence de phase s'établit par un mécanisme de percolation. Ainsi, une énergie de couplage Josephson  $E_J(r) \sim g(r)\Delta(r)$  fluctuant spatialement en raison des inhomogénéités de  $\Delta$  et de  $g$ , se traduirait par une température critique locale, fluctuant elle-aussi spatialement. Or, l'établissement de cette cohérence semble plutôt uniforme dans notre échantillon puisqu'elle apparaît exactement à  $T = T_c$  pour les deux évolutions en température de la figure 7.4, malgré deux valeurs de gap et deux positions de mesure différentes. Cette observation contredit, par conséquent, l'image d'un réseau de grains couplés.

Si l'on considère, par contre, la nature fractale des fonctions d'onde, le recouvrement de ces dernières dans l'espace réel peut être très important. En d'autres termes, le nombre de coordinations aux plus proches voisins,  $Z$ , est beaucoup plus grand avec des fonctions d'ondes fractales,  $Z \gg 1$ , qu'avec un réseau de grains couplés où  $Z \sim 3 - 4$ . Avec ces considérations, l'établissement de la cohérence de phase est nécessairement macroscopique, indépendante des fluctuations mésoscopiques locales contrairement à un réseau de grains. Cette région de pseudogap peut par conséquent s'interpréter comme la condensation de paires d'électrons corrélés dans des fonctions d'onde fractales. Dans un tel scénario, l'établissement de la cohérence de phase macroscopique à  $T_c$  est un phénomène collectif correspondant à l'apparition de corrélations non-diagonales de type BCS entre ces paires d'électrons localisées<sup>5</sup>.

---

<sup>5</sup>Cette interprétation nous a été donnée par M. V. Feigel'man.

## Conclusion

Cette étude de spectroscopie tunnel d'un échantillon d' $InO_x$  amorphe confirme l'apparition d'une phase supraconductrice inhomogène en présence d'un fort désordre. Comme nous le verrons dans le chapitre 11, la mise en évidence de cette supraconductivité "granulaire" dans ce matériau amorphe est capitale pour la compréhension du comportement sous champ magnétique, notamment du pic isolant de la magnétorésistance.

Contrairement à  $TiN$ , nous ne pouvons pas affirmer que l'échantillon est bidimensionnel du point de vue du transport et de la supraconductivité. Nos mesures ne nous permettent pas de savoir si la longueur de cohérence supraconductrice est inférieure à l'épaisseur de 15 nm. Il en va de même pour la longueur de localisation.

Malgré cela, dans cet échantillon fortement désordonné, nous avons pu confirmer toutes les prédictions de l'étude théorique de Feigel'man *et al.* [39] basée sur la nature fractale des fonctions d'onde à la transition d'Anderson, à savoir :

1. de fortes inhomogénéités spatiales du gap supraconducteur avec la présence de gaps rectangulaires isolants,
2. un rapport gap spectral sur température critique anormalement élevé,
3. un régime de pseudogap dans la gamme de température  $T_c < T < E_{gap}$ .

Les gaps de forme rectangulaire présents à basse température  $T \ll T_c$ , ont, par ailleurs, été observés dans l'évolution en température de la DOS. Ils se forment dans le régime de pseudogap pour une gamme de température  $T_c < T < E_{gap}$ . Selon Feigel'man<sup>6</sup>, ce pseudogap résulte de la condensation de paires de Cooper incohérentes. La cohérence de phase macroscopique s'établit alors à  $T = T_c$ , avec, pour signature spectrale, la croissance des pics de cohérence. Dans les zones de fort désordre, des paires de Cooper peuvent toutefois rester localisées lorsque  $T \ll T_c$ , comme en témoignent les gaps sans pics de cohérence que nous avons mesurés à basse température.

Il serait intéressant de compléter cette étude par une cartographie du gap supraconducteur afin de chercher une éventuelle signature de la nature fractale des fonctions d'onde. Ceci nécessiterait le développement d'un STM en dilution couplé à un bâti de dépôt sous ultra-vide, de façon à conserver une surface d'échantillon propre, non oxydée. De tels projets sont actuellement en cours de développement à l'étranger.

---

<sup>6</sup>Cette description nous a été précisée par M. Feigel'man.



Troisième partie

Fluctuations supraconductrices





# Chapitre 8

## Fluctuations supraconductrices thermodynamiques

### Sommaire

---

<b>8.1</b>	<b>Fluctuations supraconductrices</b>	<b>102</b>
8.1.1	Fonctionnelle de Ginzburg-Landau	102
8.1.2	Régime gaussien et paramètre de Ginzburg-Levanyuk	105
<b>8.2</b>	<b>Pseudogap de fluctuations</b>	<b>106</b>
8.2.1	Renormalisation de la densité d'états	107
8.2.2	Renormalisation de la conductance tunnel différentielle	107
<b>8.3</b>	<b>Paraconductivité</b>	<b>108</b>
8.3.1	Contribution d'Aslamasov-Larkin	109
8.3.2	Contribution de la densité d'états	109
8.3.3	Contribution de Maki-Thompson	109
<b>8.4</b>	<b>Fluctuations de phase dans les systèmes bidimensionnels</b>	<b>110</b>
8.4.1	Quasi-ordre à longue distance	110
8.4.2	Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless	112
8.4.3	Conséquences sur les films minces supraconducteurs	114
<b>8.5</b>	<b>Renormalisation de la température critique</b>	<b>114</b>

---

## Introduction

La transition supraconductrice est une transition de phase du second ordre, par conséquent sujette aux fluctuations thermodynamiques. Dans la phase métallique, phase désordonnée haute température, les fluctuations thermodynamiques du paramètre d'ordre supraconducteur se traduisent par la formation de paires de Cooper hors d'équilibre, de temps de vie caractéristique :

$$\tau_{GL} = \frac{\pi \hbar}{8k_B(T - T_c)}. \quad (8.1)$$

Bien que ce temps de vie soit fini, une densité non nulle de paires, dépendant de l'écart à la température critique  $T_c$ , est toujours présente dans la phase métallique. Dans le cas bidimensionnel par exemple, cette densité décroît extrêmement lentement ( $\sim \ln \frac{T_c}{T - T_c}$ ) et persiste loin de  $T_c$ . La présence de ces paires de Cooper fluctuantes a de multiples conséquences pour la phase normale dont les plus directes sont la diminution de la densité d'états à un électron au niveau de Fermi et l'augmentation de la conductivité à l'approche de  $T_c$ .

Dans ce chapitre, nous présenterons une description des fluctuations supraconductrices à l'aide de la théorie de Ginzburg-Landau, puis nous aborderons les effets des fluctuations supraconductrices sur la densité d'états, ainsi que sur les propriétés de transport, dans les films minces désordonnés. Les corrections que nous présenterons sont associées aux fluctuations d'amplitude du paramètre d'ordre. Ces dernières sont principalement dominantes dans la région de fluctuations gaussiennes, c'est-à-dire hors de la région critique de la transition. Nous verrons cependant que pour les films minces, l'établissement de l'état supraconducteur est dominé, proche de  $T_c$ , par les fluctuations de phase. La cohérence de phase s'établit alors par une transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless.

## 8.1 Fluctuations supraconductrices

Nous allons introduire dans cette section la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau qui permet de décrire de façon intuitive les fluctuations supraconductrices. Dans le cadre de l'approximation gaussienne, nous calculerons ensuite les fonctions de corrélation du paramètre d'ordre fluctuant, puis nous donnerons les limites de validité des théories perturbatives des fluctuations supraconductrices. Dans cette section, on prendra  $k_B = 1$ .

### 8.1.1 Fonctionnelle de Ginzburg-Landau

La théorie de Landau des transitions de phase permet de décrire les transitions thermodynamiques générées par une brisure spontanée de symétrie. Cette brisure spontanée est liée à des effets coopératifs : les fluctuations thermodynamiques. Dans le cas de la transition supraconductrice, l'établissement d'une phase quantique macroscopique brise l'invariance de jauge. Bien que le paramètre d'ordre supraconducteur soit en moyenne nul dans la phase haute température,  $\langle \Psi(\mathbf{r}) \rangle = 0$ , des configurations hors d'équilibre, pour lesquelles le paramètre d'ordre serait localement non nul, sont toutefois possibles. Ce régime de fluctuations au-dessus de la température critique se décrit à l'aide de la fonctionnelle de Ginzburg-Landau  $\mathcal{F}$ , définie par  $\Psi(\mathbf{r}) \rightarrow \mathcal{F}[\Psi(\mathbf{r})]$ , qui donne le coût d'énergie libre des fluctuations supraconductrices. Le calcul de la fonction de partition s'obtient alors en sommant sur toutes les

configurations possibles du paramètre d'ordre, selon l'intégrale fonctionnelle suivante :

$$Z = \int \mathcal{D}^2\Psi(\mathbf{r}) e^{-\beta\mathcal{F}[\Psi(\mathbf{r})]} \quad (8.2)$$

où  $\beta = 1/T$  et  $\mathcal{D}^2\Psi = \mathcal{D}\Psi\mathcal{D}\Psi^*$ . Pour calculer l'énergie libre à l'équilibre thermodynamique,  $\mathbb{F} = -\frac{1}{\beta} \ln Z$ , on utilise l'approximation de Landau qui consiste à déterminer le paramètre d'ordre  $\Psi_0(\mathbf{r})$  qui minimise la fonctionnelle,  $\frac{\delta\mathcal{F}}{\delta\Psi(\mathbf{r})}\big|_{\Psi_0(\mathbf{r})} = 0$ , et donne le poids le plus important dans le calcul de la fonction de partition. Ainsi,

$$Z \simeq e^{-\beta\mathcal{F}[\Psi_0(\mathbf{r})]} \quad \Longrightarrow \quad \mathbb{F} \simeq \mathcal{F}[\Psi_0(\mathbf{r})]. \quad (8.3)$$

La fonctionnelle de Ginzburg-Landau s'obtient par un développement de  $\mathcal{F}[\Psi(\mathbf{r})]$  en puissance du paramètre d'ordre, respectant les propriétés de symétrie de la phase haute température, i.e. l'invariance de jauge :

$$\mathcal{F}[\Psi(\mathbf{r})] = F_N + \int dV \left\{ a|\Psi(\mathbf{r})|^2 + \frac{b}{2}|\Psi(\mathbf{r})|^4 + \frac{1}{4m} \left| \left( \frac{\hbar}{i}\nabla - \frac{2e}{c}\mathbf{A}(\mathbf{r}) \right) \Psi(\mathbf{r}) \right|^2 + \frac{\mathbf{H}^2}{8\pi} \right\} \quad (8.4)$$

avec

$$a = \alpha T_c \epsilon; \quad \xi^2 = \frac{\hbar^2}{4m\alpha T_c}; \quad \xi(T) = \frac{\xi}{\sqrt{\epsilon}}. \quad (8.5)$$

$\xi$  est la longueur de cohérence supraconductrice,  $\mathbf{A}$  le potentiel vecteur,  $\mathbf{H}$  le champ magnétique, et  $\epsilon$  la température réduite définie par :

$$\epsilon = \ln \left( \frac{T}{T_c} \right) \approx \frac{T - T_c}{T_c} \quad (8.6)$$

Les constantes  $\alpha$  et  $b$  peuvent s'exprimer en fonction des paramètres microscopiques du métal<sup>1</sup>. Dans cette fonctionnelle, le terme en gradient décrit le coût énergétique des fluctuations spatiales du paramètre d'ordre.

Il est possible d'extraire, à partir de cette fonctionnelle de Ginzburg-Landau, une image simple de ces fluctuations supraconductrices. Pour ce faire, nous allons calculer, dans les deux paragraphes suivants, les fonctions de corrélation spatiale et temporelle du paramètre d'ordre supraconducteur dans le régime de fluctuations.

### Fonction de corrélation spatiale du paramètre d'ordre

Considérons la fonction de corrélation spatiale du paramètre d'ordre dans la phase normale :  $G(\mathbf{r}) = \langle \Psi^*(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{0}) \rangle$ . Pour calculer cette fonction, nous effectuons l'approximation gaussienne qui consiste à s'affranchir du terme en  $|\Psi(\mathbf{r})|^4$  dans la fonctionnelle (8.4). Ceci revient à négliger les corrélations entre fluctuations.

<sup>1</sup>En dimension  $d$ , pour un métal de densité d'états  $\nu$  et de niveau de Fermi  $E_F$ , on a, d'après la théorie microscopique de la supraconductivité [82] :

$$\alpha = \frac{2d\pi^2}{7\zeta(3)} \frac{T_c}{E_F} \quad \text{et} \quad \frac{\alpha^2}{b} = \frac{8\pi^2}{7\zeta(3)} \nu \quad (8.7)$$

où  $\zeta(x)$  est la fonction zeta de Riemann,  $\zeta(3) = 1.202$ .

Avec la transformée de Fourier du paramètre d'ordre,  $\Psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}} \Psi_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$ , la fonctionnelle (8.4) se réécrit :

$$\mathcal{F}[\Psi_{\mathbf{k}}] = \sum_{\mathbf{k}} \alpha T_c (\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}^2) |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \quad (8.8)$$

On peut alors calculer la fonction de corrélation dans l'espace des  $\mathbf{k}$  :

$$G(\mathbf{k}) = \langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle = \frac{\prod_{\mathbf{k}'} \int d^2 \Psi_{\mathbf{k}'} |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 e^{-\beta \alpha T_c (\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}'^2) |\Psi_{\mathbf{k}'}|^2}}{\prod_{\mathbf{k}'} \int d^2 \Psi_{\mathbf{k}'} e^{-\beta \alpha T_c (\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}'^2) |\Psi_{\mathbf{k}'}|^2}} \quad (8.9)$$

soit :

$$G(\mathbf{k}) = \frac{T}{\alpha T_c (\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}^2)} \quad (8.10)$$

Cette équation correspond au théorème de fluctuation-dissipation avec pour fonction de réponse  $\chi(\mathbf{k}) = (\alpha T_c (\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}^2))^{-1}$ . Après transformée de Fourier inverse de cette lorentzienne, on obtient une fonction de corrélation dans l'espace réel qui décroît exponentiellement sur une longueur de corrélation  $\xi(T)$  :

$$G(\mathbf{r}) = \langle \Psi^*(\mathbf{r}) \Psi(\mathbf{0}) \rangle \propto \frac{e^{-r/\xi(T)}}{4\pi r} \quad (8.11)$$

Cette décroissance exponentielle, qui traduit l'absence d'ordre à longue distance, est caractéristique de la phase désordonnée haute température. Elle nous amène à une image simple où *les fluctuations supraconductrices sont équivalentes à des domaines évanescents dans la phase normale, de taille caractéristique  $\xi(T) = \xi/\sqrt{\epsilon}$ .*

### Fonction de corrélation temporelle du paramètre d'ordre

Il est possible également de calculer la fonction de corrélation temporelle  $G(\mathbf{k}, t) = \langle \Psi_{\mathbf{k}}^*(t) \Psi_{\mathbf{k}}(0) \rangle$  du mode  $\Psi_{\mathbf{k}}$ . Pour cela, il est nécessaire d'introduire l'équation de Ginzburg-Landau dépendante du temps qui décrit la dynamique du paramètre d'ordre. En effet, pour des configurations hors d'équilibre, le paramètre d'ordre  $\Psi$  devient dépendant du temps. Pour décrire le phénomène de relaxation, on suppose que la dérivée temporelle  $\partial\Psi/\partial t$  est proportionnelle à la variation d'énergie libre  $\delta\mathcal{F}/\delta\Psi^*$ , qui est égale à zéro à l'équilibre. On introduit par ailleurs une force aléatoire de Langevin,  $\zeta(\mathbf{r}, t)$ , décrivant les fluctuations thermodynamiques du paramètre d'ordre. Ce modèle est alors équivalent à un modèle de champ scalaire couplé à un bain thermique, dont les fluctuations produisent une source de bruit blanc [25].

En absence de champ électrique<sup>2</sup>, l'équation de Ginzburg-Landau dépendante du temps<sup>3</sup> s'écrit [82] :

$$-\gamma_{GL} \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \frac{\delta\mathcal{F}}{\delta\Psi^*} + \zeta(\mathbf{r}, t) \quad (8.12)$$

où  $\gamma_{GL} = \alpha T_c \epsilon \tau_{GL} = \alpha\pi/8$ . La force de Langevin,  $\zeta(\mathbf{r}, t)$ , est ici une variable aléatoire, corrélée selon une loi de bruit blanc :

$$\langle \zeta^*(\mathbf{r}, t) \zeta(\mathbf{r}', t') \rangle = 2T\gamma_{GL} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t') \quad (8.13)$$

---

<sup>2</sup>En présence de champ électrique, l'invariance de jauge impose de remplacer  $\frac{\partial}{\partial t}$  par  $\frac{\partial}{\partial t} + \frac{2ie}{\hbar} \varphi$ , où  $\varphi$  est le potentiel scalaire du champ électrique.

<sup>3</sup>Cette équation peut être démontrée rigoureusement à partir de la théorie microscopique [82].

La transformée de Fourier de l'équation (8.12) donne :

$$\begin{cases} \Psi(\mathbf{k}, \omega) = L(\mathbf{k}, \omega)\zeta(\mathbf{k}, \omega) \\ L^{-1}(\mathbf{k}, \omega) = -i\gamma_{GL}\omega + \alpha T_c(\epsilon + \xi^2\mathbf{k}^2) \end{cases} \quad (8.14)$$

On peut extraire de la fonction de Green  $L(\mathbf{k}, \omega)$  la relation de dispersion des fluctuations supraconductrices :  $\epsilon(\mathbf{k}) = \alpha T_c(\epsilon + \xi^2\mathbf{k}^2)$ .

En tenant compte de (8.13), la fonction de corrélation dans l'espace de Fourier devient :

$$\begin{aligned} \langle \Psi^*(\mathbf{k}, \omega)\Psi(\mathbf{k}', \omega') \rangle &= \langle \zeta^*(\mathbf{k}, \omega)L^*L\zeta(\mathbf{k}', \omega') \rangle \\ &= 2T\gamma_{GL}|L(\mathbf{k}, \omega)|^2 \end{aligned} \quad (8.15)$$

La dépendance temporelle du mode de fluctuation  $\Psi_{\mathbf{k}}$  se déduit alors par transformée de Fourier inverse :

$$G(\mathbf{k}, t) = 2T\gamma_{GL} \int \frac{d\omega}{2\pi} |L(\mathbf{k}, \omega)|^2 e^{i\omega t} \quad (8.16)$$

En introduisant le temps de vie du mode  $\mathbf{k}$ ,  $\tau_{\mathbf{k}}$ , la fonction de Green  $L$  se réécrit  $L^{-1}(\mathbf{k}, \omega) = \gamma_{GL}(-i\omega + \frac{1}{\tau_{\mathbf{k}}})$ , avec

$$\tau_{\mathbf{k}} = \frac{\tau_{GL}}{1 + \xi^2(T)\mathbf{k}^2} \quad (8.17)$$

Finalement, la fonction de corrélation (8.16) devient :

$$G(\mathbf{k}, t) \propto \langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle e^{-t/\tau_{\mathbf{k}}} \quad (8.18)$$

Par conséquent, dans ce modèle, les modes de fluctuations supraconductrices relaxent dans le temps de façon exponentielle avec un temps de vie,  $\tau_{\mathbf{k}}$ , d'autant plus court que leur énergie  $\epsilon(\mathbf{k}) = \alpha T_c(\epsilon + \xi^2\mathbf{k}^2)$  est élevée. *Au vu de ces calculs de fonctions de corrélation, les fluctuations supraconductrices sont finalement assimilables à des domaines supraconducteurs de taille  $\xi(T)$  et de temps de vie caractéristique  $\tau_{GL}$ , nucléant dans la phase métallique.*

## 8.1.2 Régime gaussien et paramètre de Ginzburg-Levanyuk

### Paramètre de Ginzburg-Levanyuk

Le poids des fluctuations supraconductrices dans les propriétés thermodynamiques et de transport dépend de la taille de la région critique de la transition qui est déterminée par le paramètre de Ginzburg-Levanyuk [82] :

$$Gi_{(d)} \sim \left( \frac{1}{\nu T_c \xi^d} \right)^{\frac{2}{4-d}} \quad (8.19)$$

Dans les supraconducteurs conventionnels tridimensionnels, la région critique est inaccessible expérimentalement car elle se situe dans une gamme de température extrêmement petite :  $\delta T_c/T_c \sim Gi_{(3)} \sim (T_c/E_F)^4 \sim (a/\xi)^4 \sim 10^{-12} - 10^{-14}$ , où  $a$  est la distance interatomique. Par contre, lorsque la dimensionnalité est abaissée ou lorsque la longueur de cohérence supraconductrice est réduite, à cause du désordre par exemple, le poids des fluctuations est fortement renforcé. Dans le cas de films minces désordonnés, cette région critique peut

atteindre  $\delta T_c/T_c \sim Gi_{(2)} \sim 10^{-1} - 10^{-2}$ . De même, lorsqu'un supraconducteur s'approche du seuil de localisation, i.e.  $\Delta \sim \delta$  et  $\xi_s \sim \xi_{loc}$ , le paramètre de Ginzburg-Levanyuk, qui mesure le rapport entre l'écart moyen entre niveaux dans le volume  $\xi_s^d$  et la  $T_c$ , peut devenir de l'ordre de 1. Nos films de *TiN* étant quasi-bidimensionnels et proche du seuil de localisation forte, il est fort probable que leurs propriétés thermodynamiques et de transport soient dominées par les fluctuations supraconductrices, dans une grande gamme de température au-dessus de  $T_c$ .

L'estimation de  $Gi$  donnée ci-dessus peut être précisée pour les films minces désordonnés.  $Gi$  est dans ce cas directement proportionnel à la résistance du film [82] :

$$Gi \approx \frac{e^2}{23\hbar} R_{\square} \quad (8.20)$$

*Ainsi, augmentation du désordre ou réduction de l'épaisseur ont pour conséquence le même renforcement du régime de fluctuations.*

### Régime gaussien

L'approximation gaussienne que nous avons utilisée dans le calcul des fonctions de corrélation, restreint sérieusement le domaine de température réduite  $\epsilon$ . En effet, pour s'affranchir du terme en  $|\Psi(\mathbf{r})|^4$  dans la fonctionnelle de Ginzburg-Landau (8.4), il faut se placer hors de la région critique, délimitée par  $Gi$  (cf. éq. (8.19)), pour laquelle les corrélations entre fluctuations ne sont plus négligeables. Par ailleurs, loin de la transition,  $\xi(T) = \xi/\sqrt{\epsilon}$  diminue et les fluctuations de petites longueurs d'ondes ne peuvent plus être décrites par le terme en gradient dans (8.4). Pour éviter la divergence de ce terme, il faut s'assurer que la température réduite reste très inférieure à l'unité.

En somme, le régime gaussien se borne à :

$$Gi \ll \epsilon \ll 1 \quad (8.21)$$

Cette condition restrictive donne la limite de validité de la plupart des corrections perturbatives obtenues avec les méthodes diagrammatiques de la théorie des fluctuations supraconductrices [82].

## 8.2 Pseudogap de fluctuations

Dans les films minces désordonnés, la réduction de la dimensionnalité ainsi que la faible longueur de cohérence supraconductrice vont générer un vaste régime en température dominé par les fluctuations supraconductrices. Nous pouvons estimer, avec la théorie de Ginzburg-Landau, la concentration de paires de Cooper  $N_{p.c.}$  dans le régime gaussien, en dimension  $d = 2$  [142] :

$$\begin{aligned} N_{p.c.} = \langle |\Psi_{fl}|^2 \rangle &= \int \frac{d^2\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \Big|_{r \rightarrow 0} \\ &= \frac{T}{\alpha T_c} \int \frac{d^2\mathbf{k}}{(2\pi)^2} \frac{1}{\epsilon + \xi^2 \mathbf{k}^2} \propto N_e^{(2)} \frac{T_c}{E_F} \ln \frac{1}{\epsilon} \end{aligned} \quad (8.22)$$



où  $N_e^{(2)} = \frac{m}{2\pi} E_F$  est la densité d'électrons en dimension  $d = 2$  et  $\langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle$  est donné par (8.10). Ce résultat montre que la concentration de fluctuations supraconductrices dans les films minces diminue très lentement avec une dépendance en température remarquable en double logarithme :  $\propto \ln \ln \frac{T}{T_c}$ .

### 8.2.1 Renormalisation de la densité d'états

La présence de ces paires de Cooper dans la phase normale a pour conséquence directe la diminution de la densité d'états à un électron au niveau de Fermi. Les électrons impliqués dans l'appariement ne peuvent plus, en effet, participer au transfert de charges sous forme d'excitations à un électron. Les états électroniques au niveau de Fermi sont, par conséquent, redistribués à plus haute énergie, produisant un pseudogap de fluctuations dans la DOS. La correction de la DOS due aux fluctuations supraconductrices ne peut pas être calculée avec la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau. Elle nécessite les méthodes diagrammatiques conduisant à un calcul perturbatif limité au régime gaussien [82].

La correction de la DOS se traduit par une anomalie de densité d'états au niveau de Fermi dépendant de la dimensionnalité et de la nature diffusive ( $l_e \ll \xi_0 = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta}$ ) ou balistique ( $l_e \gg \xi_0$ ) du supraconducteur. L'évolution de cette correction au niveau de Fermi varie comme une loi de puissance de la température réduite :

$$\left. \frac{\delta \nu_{(d)}(0, \epsilon)}{\nu_{(d)}} \right|_{diff} \sim - \begin{cases} \sqrt{Gi} \epsilon^{-3/2}, & d = 3 \\ Gi \epsilon^{-2}, & d = 2 \end{cases} \quad (8.23)$$

$$\left. \frac{\delta \nu_{(d)}(0, \epsilon)}{\nu_{(d)}} \right|_{bal} \sim - \begin{cases} \sqrt{Gi} \epsilon^{-1/2}, & d = 3 \\ Gi \epsilon^{-1}, & d = 2 \end{cases} \quad (8.24)$$

Dans le cas diffusif, la dépendance totale en énergie de ces corrections, donnée dans la référence [82], varie sur une échelle de l'ordre de  $E_0 \sim \tau_{GL}^{-1} \sim T - T_c$ . La DOS ne rejoint alors sa valeur normale qu'à plus haute énergie :  $E \gg E_0$ .

### 8.2.2 Renormalisation de la conductance tunnel différentielle

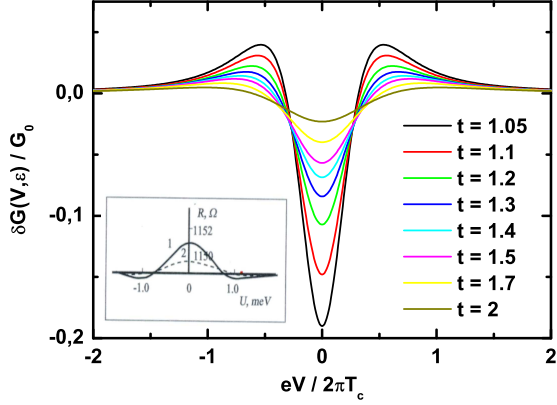
La mesure directe par spectroscopie tunnel de ces singularités n'est toutefois pas possible. Dans une telle mesure, la convolution de la densité d'états ci-dessus avec l'élargissement thermique de la fonction de Fermi (cf. éq. (2.7)), de largeur  $\sim T_c$ , conduit à une modification importante de la dépendance en température. La proportionnalité entre conductance tunnel différentielle et densité d'états :

$$\frac{\delta G(V)}{G_0} = \frac{\delta \nu(eV)}{\nu} \quad (8.25)$$

n'est en effet valable que si l'échelle d'énergie sur laquelle varie  $\delta \nu(eV)$  est très supérieure à la température de mesure. Or, la correction de la DOS varie fortement dès  $eV = E_0 \sim T - T_c \ll T$ , et, par conséquent, la convolution avec le facteur de Fermi ne se réduit plus à (8.25), mais doit être calculée complètement. Le résultat, obtenu par Varlamov et Dorin [143] pour le cas bidimensionnel, donne la correction à la conductance différentielle suivante [82, 142] :

$$\frac{\delta G}{G_0}(V, \epsilon) = \frac{G_i}{7\zeta(3)} \left( \ln \frac{1}{\epsilon} \right) \Re e \psi'' \left( \frac{1}{2} - \frac{ieV}{2\pi T} \right) \quad (8.26)$$

où  $\psi(x)$  est la fonction digamma et  $\zeta(3) = 1.202$ . Cette correction perturbative est toutefois limitée au régime gaussien,  $Gi \ll \epsilon \ll 1$ , ce qui impose, par conséquent,  $\frac{\delta G}{G_0}|_{max} \sim Gi \ln(1/Gi) \ll 1$  comme condition de validité du traitement perturbatif.



**FIG. 8.1:** Simulation de la variation relative de conductance tunnel différentielle, équation (8.26). Ici,  $t = T/T_c$ . En insert : résistance tunnel différentielle en fonction de la tension, mesurée avec une jonction Al-I-Sn juste au-dessus de la transition. D'après [18].

$\int_0^\infty \delta G(V) dV = 0$ .

L'insert de la figure figure 8.1 reproduit la seule mesure de spectroscopie tunnel d'une jonction N(S)-I-N obtenue avec un supraconducteur conventionnel [18]. La formule (8.26) a aussi été confrontée au régime de pseudogap des supraconducteurs à haute température critique [28].

### 8.3 Paraconductivité

Considérons l'excès de conductivité lié à l'accélération des paires de Cooper au-dessus de  $T_c$ . Par analogie avec la formule de Drude, la contribution additionnelle de ces fluctuations de l'amplitude du paramètre d'ordre supraconducteur peut s'évaluer avec :

$$\delta\sigma_{fl} = \frac{(2e)^2}{2m} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle \tau_{\mathbf{k}}}{2}, \quad (8.27)$$

en supposant que les processus élastiques sont inefficaces jusqu'à ce que la fluctuation relaxe. Dans cette analogie,  $\langle |\Psi_{\mathbf{k}}|^2 \rangle$  relaxe deux fois plus vite que  $\Psi_{\mathbf{k}}$ . La densité et le temps de vie des modes de fluctuations supraconductrices sont donnés par (8.10) et (8.17). En remplaçant la somme par une intégrale dans (8.27), on obtient, à une constante près<sup>4</sup>, la dépendance exacte en température de la contribution directe à la conductivité des fluctuations supraconductrices, soit

$$\delta\sigma_{fl} \sim \epsilon^{-(4-d)/d}. \quad (8.28)$$

<sup>4</sup>Dans le cas d'un film quasi-bidimensionnel, le remplacement de la somme par  $\frac{1}{t} \int \frac{d^2\mathbf{k}}{(2\pi)^2}$  dans (8.27), où  $t$  est l'épaisseur du film, donne le résultat exact (8.29) à un facteur 1/2 près.

### 8.3.1 Contribution d'Aslamasov-Larkin

La théorie microscopique des fluctuations supraconductrices conduit à trois corrections à la conductivité. Présentons ces corrections pour le cas bidimensionnel<sup>5</sup>. La première est la contribution d'Aslamasov-Larkin [9, 10], appelée aussi paraconductivité<sup>6</sup> :

$$\delta\sigma_{AL}^{d=2} = \frac{e^2}{16\hbar} \frac{1}{\epsilon} \quad (8.29)$$

où  $\sigma$  représente ici la conductivité par carré. Cette contribution, identique pour le cas diffusif et balistique, est remarquable car elle ne fait intervenir aucune propriété microscopique du métal. Elle ne dépend que de constantes universelles. La formule (8.29) est le résultat d'un calcul perturbatif. Elle n'est donc valable que pour  $\delta\sigma_{AL} \ll \sigma_0$ . La divergence à  $T \rightarrow T_c$  n'est par conséquent pas physique.

### 8.3.2 Contribution de la densité d'états

La seconde contribution est due à la renormalisation de la densité d'états au niveau de Fermi discutée précédemment. En effet, la participation d'électrons à la formation de paires de Cooper fluctuantes, diminue le nombre effectif d'électrons participant au transport de quasiparticules. Il en résulte une diminution de la conductivité de la forme  $\delta\sigma_{DOS} = -\frac{2N_{p.c.}e^2\tau_e}{m}$ , soit, d'après (8.22),  $\delta\sigma_{DOS} \propto -\frac{e^2}{h} \ln\left(\frac{1}{\epsilon}\right)$ . En limite diffusive bidimensionnelle, la théorie microscopique aboutit à :

$$\delta\sigma_{DOS}^{d=2} = -\frac{e^2}{4\hbar} \kappa \ln\left(\frac{1}{\epsilon}\right) \quad (8.30)$$

avec  $\kappa \approx 0.691$ .

### 8.3.3 Contribution de Maki-Thompson

La troisième contribution est de nature purement quantique et ne peut pas être déduite de la théorie de Ginzburg-Landau. Elle résulte de la collision cohérente sur les mêmes impuretés, d'électrons formant une paire. De façon similaire aux corrections de localisation faible et d'interaction, cette correction est proportionnelle à la probabilité de retour à l'origine (cf. éq. (4.6)). En effet, deux électrons de spins opposés et de moment opposés ont une probabilité  $\int_{t_{min}}^{t_{max}} dt Z(t)$ , où  $t_{min} \approx D/\xi^2(T)$  et  $t_{max} = \tau_\phi$ , de parcourir une boucle de rétrodiffusion et d'interagir entre eux. Ici, contrairement à l'équation (5.2), l'interaction est attractive et diverge à la transition :  $\lambda_{eff} \approx 1/\epsilon$  [82]. D'où,  $\delta\sigma \sim \lambda_{eff} \int_{D/\xi^2(T)}^{\tau_\phi} dt Z(t) \sim \frac{e^2}{h\epsilon} \ln\left(\frac{D\tau_\phi}{\xi^2(T)}\right)$ . Cette correction liée à la nature diffusive du mouvement des électrons a été calculée de façon rigoureuse par Maki et Thompson et se décompose en deux termes, dits contributions régulière et anormale [82] :

$$\delta\sigma_{MT(reg)}^{d=2} = -\frac{e^2}{4\hbar} \bar{\kappa} \ln\left(\frac{1}{\epsilon}\right), \quad \delta\sigma_{MT(an)}^{d=2} = \frac{e^2}{8\hbar} \frac{1}{\epsilon - \gamma_\phi} \ln\left(\frac{\epsilon}{\gamma_\phi}\right) \quad (8.31)$$

<sup>5</sup>Pour les autres dimensions, voir [82, 142]

<sup>6</sup>Ce terme a plusieurs origines possibles. La première est l'analogie avec le paramagnétisme. La paraconductivité signifie alors l'excès de conductivité. La seconde est une traduction erronée du terme russe "paroprovodimost" qui signifie conductivité de paire [82].

avec  $\gamma_\phi = \frac{\pi\hbar}{8T\tau_\phi}$  et  $\bar{\kappa} = 0.345$ . On peut remarquer que  $\delta\sigma_{MT(reg)}^{d=2}$  donne une contribution similaire à  $\delta\sigma_{DOS}^{d=2}$ . Par ailleurs, lorsque le temps de cohérence de phase est petit, notamment dans les matériaux fortement désordonnés, la contribution anormale est négligeable devant celle d'Aslamasov-Larkin (8.29).

Finalement, la contribution totale des fluctuations supraconductrices à la conductivité dans le régime gaussien pour un film mince désordonné est donnée par :

$$\delta\sigma_{tot}^{d=2} = \frac{e^2}{16\hbar} \left[ \frac{1}{\epsilon} - 4(\kappa + \bar{\kappa}) \ln \frac{1}{\epsilon} + \frac{2}{\epsilon - \gamma_\phi} \ln \left( \frac{\epsilon}{\gamma_\phi} \right) \right]. \quad (8.32)$$

## 8.4 Fluctuations de phase dans les systèmes bidimensionnels<sup>7</sup>

Le cas de la dimension  $d = 2$  est particulier pour la transition supraconductrice. Avec son paramètre d'ordre à deux composantes,  $\Psi = |\Psi|e^{i\varphi}$ , l'état supraconducteur en dimension  $d = 2$  entre dans la classe d'universalité de la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT). Nous allons voir, dans cette section, qu'il n'existe pas d'ordre à longue distance dans cette dimension mais un quasi-ordre à longue distance, caractérisé par une décroissance en loi de puissance des fonctions de corrélation. Nous analyserons ensuite le rôle crucial des défauts topologiques de la phase, i.e. les vortex, dans l'établissement de ce quasi-ordre à longue distance. Ces défauts, liés sous forme de paires de vortex de vorticités opposés, sont en effet susceptibles de se dissocier à la température  $T_{BKT}$ , brisant ainsi le quasi-ordre à longue distance.  $T_{BKT}$  représente alors la température critique de la transition de BKT.

### 8.4.1 Quasi-ordre à longue distance

Considérons une phase supraconductrice en dimension  $d = 2$  et étudions l'effet des fluctuations thermodynamiques en calculant la fonction de corrélation spatiale du paramètre d'ordre,  $\Psi = |\Psi|e^{i\varphi}$ . Pour tenir compte des fluctuations de phase de ce dernier, réécrivons le terme en gradient de la fonctionnelle de Ginzburg-Landau (8.4) :

$$\frac{1}{2m^*} \left[ \hbar^2 (\nabla |\Psi|)^2 + \left( \hbar \nabla \varphi - \frac{e^*}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}) \right)^2 |\Psi|^2 \right] \quad (8.33)$$

où  $m^* = 2m$  et  $e^* = 2e$ . Le premier terme décrit le coût énergétique des variations lentes de la densité superfluide  $n_s = |\Psi|^2$ . Le second correspond à l'énergie cinétique  $E_{cin} = \frac{1}{2} n_s m^* \mathbf{v}_s^2$ , où la vitesse superfluide est définie par :

$$\mathbf{v}_s = \frac{1}{m^*} \left( \hbar \nabla \varphi - \frac{e^*}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}) \right) \quad (8.34)$$

Si l'on s'affranchit du potentiel vecteur, l'énergie libre décrivant les fluctuations de phase se réduit alors à un modèle XY, composé du terme élastique :

$$\mathcal{F}_{el}[\varphi(\mathbf{r})] = \int d^2\mathbf{r} \frac{1}{2} \rho_s \mathbf{v}_s^2 = \int d^2\mathbf{r} \frac{1}{2} \rho_s \left( \frac{\hbar}{m^*} \nabla \varphi \right)^2 \quad (8.35)$$

<sup>7</sup>Cette section s'inspire de [66, 104, 25].

où  $\rho_s = m^*|\Psi|^2$  est la rigidité de phase supraconductrice. Cette fonctionnelle permet ainsi de traiter les déformations élastiques de grande longueur d'onde de la phase du paramètre d'ordre.

Nous pouvons calculer maintenant la fonction de corrélation spatiale du paramètre d'ordre :

$$G(\mathbf{r}) = \langle \Psi^*(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{0}) \rangle = |\Psi|^2 \langle e^{i(\varphi(\mathbf{0})-\varphi(\mathbf{r}))} \rangle \quad (8.36)$$

Cette fonction se calcul à l'aide de la transformée de Fourier de  $\Psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\Omega} \sum_{\mathbf{q}} \Psi_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$  :

$$G(\mathbf{r}) = |\Psi|^2 \exp \left( - \frac{m^{*2}T}{2\hbar^2\rho_s} \cdot g(r) \right) \quad (8.37)$$

avec

$$g(r) = \frac{1}{\Omega} \sum_{\mathbf{q}} \frac{|1 - e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}|^2}{\mathbf{q}^2} \quad (8.38)$$

$$= \frac{1}{\pi} \Re e \int_0^\Lambda \frac{dq}{q} \int_0^{2\pi} \frac{d\theta}{2\pi} (1 - e^{iqr \cos \theta}) \quad (8.39)$$

$$= \frac{1}{\pi} \Re e \int_0^\Lambda dq \frac{1 - J_0(qr)}{q} \quad (8.40)$$

$J_0$  est la fonction de Bessel de première espèce. Le comportement à longue distance de  $g(r)$  donne :

$$g(r) \xrightarrow{\Lambda r \gg 1} \frac{1}{\pi} \ln \Lambda r + cstes \quad (8.41)$$

Nous avons introduit ici une coupure  $\Lambda$  pour les vecteurs d'onde, qui correspond ici à la plus petite échelle de variation du paramètre d'ordre supraconducteur, soit  $\Lambda = 1/\xi$ . Ainsi, à grande distance, la fonction de corrélation du paramètre d'ordre (8.36) n'est pas constante, mais décroît en loi de puissance :

$$\begin{cases} G(\mathbf{r}) = |\Psi|^2 \left(\frac{r}{\xi}\right)^{-\eta(T)} \sim \frac{1}{r^\eta} \\ \eta(T) = \frac{T}{2\pi\rho_s} \left(\frac{m^*}{\hbar}\right)^2 \end{cases} \quad (8.42)$$

Cette décroissance algébrique correspond à ce que l'on obtiendrait pour un point critique d'une transition de phase. Mais ici, ce comportement n'est pas obtenu pour un point critique isolé, mais dans toute la phase supraconductrice<sup>8</sup>. Ce type d'ordre, qui ne correspond pas à un ordre à grande distance, tel que  $G(r \rightarrow \infty) = cste$ , ni à un ordre à courte distance, puisque la décroissance n'est pas exponentielle (cf. éq. (8.11)), a été appelé quasi-ordre à longue distance. Il résulte de la présence des modes de fluctuations de grande longueur d'onde, c'est-à-dire d'excitations de basse énergie, dont le coût énergétique

$$\mathcal{F}_{el}[\varphi_{\mathbf{k}}] = \frac{1}{2}\rho_s \left(\frac{\hbar}{m^*}\right)^2 \frac{1}{\Omega} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{k}^2 \varphi_{\mathbf{k}}^2$$

<sup>8</sup>On peut dire qu'il s'agit d'une "phase de points critiques".

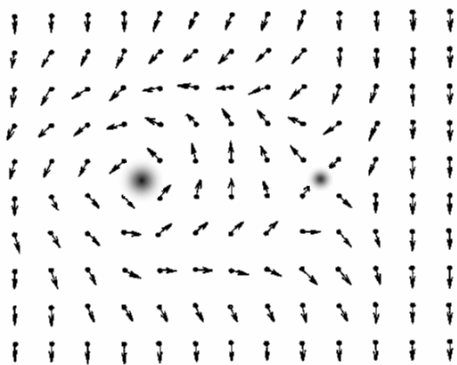
tend vers zéro lorsque  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{0}$ . Ces modes, dits modes de Goldstone, sont inhérents à la symétrie continue XY et correspondent à des modulations de grande longueur d'onde de la phase du paramètre d'ordre (ondes de spin).

Cet ordre est cependant très fragile et nous allons voir dans la section suivante que la présence d'un autre type d'excitation, en l'occurrence des vortex activés thermiquement, sont susceptibles de le détruire.

### 8.4.2 Transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless

Dans les systèmes bidimensionnels de symétrie continue, Berezinskii [19], Kosterlitz et Thouless [79] ont montré qu'il existe toujours une quantité non nulle de paires de vortex-antivortex liés, générées par les fluctuations thermiques. Ces paires sont alors susceptibles de se dissocier lorsque la température est supérieure à la température de transition  $T_{BKT}$ , créant ainsi un plasma<sup>9</sup> de vortex et d'antivortex, qui brise le quasi-ordre à longue distance. C'est la transition de BKT. Pour un supraconducteur quasi-bidimensionnel, la présence d'une densité non nulle de vortex et d'antivortex libres à  $T > T_{BKT}$ , a pour conséquence de transformer l'état supraconducteur en un état résistif. En effet, lorsqu'un courant traverse le système, la force de Lorentz déplace ces vortex et antivortex libres perpendiculairement au courant et dans des directions opposées, transférant du flux magnétique. Les variations de flux se traduisent alors par l'apparition d'un champ électrique et donc d'un état résistif.

Nous nous proposons de décrire, dans cette section, les mécanismes essentiels de la transition BKT. Nous allons tout d'abord montrer que les paires de vortex-antivortex sont nécessairement présentes à température non nulle, puis nous présenterons un argument heuristique qui décrit cette transition.



**FIG. 8.2:** Illustration d'une paire de vortex-antivortex de vorticité  $k_1 = 1$ , à gauche, et  $k_2 = -1$ , à droite. Les flèches représentent l'orientation de la phase du paramètre d'ordre.

Considérons deux vortex distants de  $r$  et dont les vorticités,  $k_1$  et  $k_2$ , sont définies par la contrainte topologique :

$$\oint_{\Gamma} \nabla \varphi \cdot d\mathbf{l} = 2k\pi, \quad k \in \mathbb{Z} \quad (8.43)$$

où  $\Gamma$  est un contour de rayon  $R$  entourant un vortex. À partir de (8.35), il est possible de déterminer le coût énergétique de cette paire de vortex<sup>10</sup> [66, 25] :

$$E_{el} = \pi \rho_s \left( \frac{\hbar}{m^*} \right)^2 \left[ (k_1 + k_2)^2 \ln \frac{R}{\xi} + 2k_1 k_2 \ln \frac{\xi}{r} \right], \quad (8.44)$$

où  $\xi$  est le rayon du coeur de vortex. Nous voyons ainsi que pour une paire de vortex-antivortex de vorticités opposées  $k_1 = -k_2$ , le premier terme de  $E_{el}$  ne diverge pas dans la limite thermodynamique  $R \rightarrow \infty$ ,

<sup>9</sup>Les charges de ce "plasma" sont ici les vorticités des vortex.

<sup>10</sup> $E_{el}$  s'obtient en déterminant les fonctions  $\varphi(\mathbf{r})$  qui minimisent la fonctionnelle  $\mathcal{F}_{el}$  et respectent la contrainte topologique (8.43). Ces fonctions sont alors solution de l'équation de Laplace  $\delta \mathcal{F}_{el} / \delta \varphi = 0 \Rightarrow \nabla^2 \varphi = 0$ . Une solution évidente est  $\varphi(\mathbf{r}) = k\theta + \theta_0$  où  $\theta$  est l'angle en coordonnées polaires. On obtient après intégration de (8.35) :  $E_{el} = \pi k^2 \rho_s \left( \frac{\hbar}{m^*} \right)^2 \ln \frac{R}{\xi}$ .



et le second donne une contribution attractive<sup>11</sup>. Des paires de vortex-antivortex liés et activés par la température sont, par conséquent, naturellement présentes en dimension  $d = 2$ , avec une probabilité  $\exp(-E_{el}/T)$ . Nous avons reproduit sur la figure 8.2, un schéma d'une paire de vortex-antivortex, de vorticité  $k_1 = -k_2 = 1$ . Nous pouvons voir que la circulation de la phase sur un contour entourant cette paire est bien nulle  $\oint \nabla\varphi \cdot d\mathbf{l} = 2\pi(k_1 + k_2) = 0$ .

La densité de paires de vortex-antivortex dans la phase ordonnée, qui est proportionnelle à  $\exp(-E_{el}/T)$ , est une fonction croissante de la température. Au-delà d'une certaine température  $T_{BKT}$ , ces paires vont se dissocier et former un plasma de vortex, supprimant ainsi la rigidité de phase. Nous pouvons présenter un argument heuristique proposé par Kosterlitz et Thouless [79] qui décrit cette transition et donne de façon remarquable la température critique exacte.

Considérons pour cela un seul vortex de vorticité  $k = 1$  et calculons son énergie libre  $F$ . Nous devons pour cela ajouter à l'énergie de ce vortex,  $E_{el} = \pi\rho_s\left(\frac{\hbar}{m^*}\right)^2 \ln \frac{R}{\xi}$ , l'entropie  $S = \ln \frac{R^2}{\xi^2}$  correspondant aux configurations de position du vortex de surface  $\pi\xi^2$  sur la surface accessible  $\pi R^2$ , soit

$$F = E_{el} - TS = \left[ \pi\rho_s\left(\frac{\hbar}{m^*}\right)^2 - 2T \right] \ln \frac{R}{\xi} \quad (8.45)$$

Nous pouvons déduire de cette expression une température critique :

$$T_{BKT} = \frac{\pi}{2}\rho_s\left(\frac{\hbar}{m^*}\right)^2 \quad (8.46)$$

en-dessous de laquelle la présence de vortex ne minimise pas l'énergie libre. Il ne peut donc pas exister de vortex isolé excité thermiquement tant que  $T < T_{BKT}$ . Par contre, pour  $T > T_{BKT}$ , l'énergie libre d'excitation de vortex est au contraire négative. Cela veut dire qu'il y a spontanément création d'un grand nombre de vortex, qui vont nécessairement détruire l'ordre algébrique qui existe en l'absence de vortex libre.

Cette discussion à un seul vortex est trop simpliste pour rendre compte complètement de la physique de cette transition, mais elle met en lumière le mécanisme qui est à la base de la transition de BKT. La description rigoureuse de ce mécanisme coopératif consiste à calculer la renormalisation de la rigidité superfluide  $\rho_s$  résultant de la présence d'une quantité importante de vortex. En effet, si l'interaction "nue" entre deux vortex isolés, de vorticité  $k_1$  et  $k_2$  situés en  $\mathbf{r}_1$  et  $\mathbf{r}_2$ , est bien donnée par  $\rho_s k_1 k_2 \ln \left| \frac{\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2}{\xi} \right|$ , cette interaction est modifiée par la présence des autres vortex. Ces derniers vont contribuer à réduire la rigidité  $\rho_s$  et conduire à une interaction effective plus faible entre les deux vortex. Ceci équivaut à un effet d'écran résultant de la réponse collective du gaz de vortex. On conçoit alors que l'augmentation de la densité de paires de vortex-antivortex avec la température aboutit à une suppression de la rigidité à la température  $T_{BKT}$  et par conséquent à une dissociation des vortex et des antivortex. Cette suppression se fait par ailleurs de façon discontinue avec un saut à 0 de la rigidité  $\rho_s$  à la transition [105], synonyme de disparition du quasi-ordre à longue distance et de l'état supraconducteur. La valeur de  $\rho_s$  à la transition ( $T = T_{BKT}^-$ )

<sup>11</sup> Avec ce potentiel, la force exercée par le vortex 1 sur le vortex 2 est en effet attractive :  $F_{21} = -\nabla E_{el} = 2\pi k_1 k_2 \frac{\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1}{|\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1|^2} < 0$  si  $k_1 k_2 < 0$ .



est universelle et donnée par (8.46) :

$$\rho_s = \frac{2T_{BKT}}{\pi} \left( \frac{m^*}{\hbar} \right)^2 \quad (8.47)$$

### 8.4.3 Conséquences sur les films minces supraconducteurs

Initialement, la transition BKT n'était pas attendue dans les supraconducteurs en raison de la portée limitée de l'interaction logarithmique entre vortex. Cette dernière est en effet logarithmique uniquement pour les distances inférieures à la longueur de pénétration de London,  $r \ll \lambda$ . Or, dans les films minces d'épaisseur  $t < \lambda$ , Pearl [109, 104] a montré que le confinement des courants d'écrantage dans le plan se traduit par une renormalisation de la longueur de pénétration :

$$\lambda_{eff} = \lambda^2/t \quad (8.48)$$

Ainsi, pour des épaisseurs de quelques nanomètres, la longueur de pénétration effective  $\lambda_{eff}$  limitant le comportement logarithmique de l'interaction, peut atteindre le centimètre. À partir de cet argument, Beasley, Mooij et Orlando [16] ont suggéré la possibilité d'une transition BKT dans les films minces supraconducteurs, avec une température critique ne dépendant plus alors que de la densité d'électrons superfluides  $n_s^{2d}$  (cf. éq. (8.46)). Cette température critique peut, par ailleurs, se réécrire en fonction de  $\lambda_{eff}$ , puisque  $n_s^{2d} = n_s t = \frac{mc^2 t}{8\pi e^2 \lambda^2}$  :

$$T_{BKT} = \frac{\phi_0^2}{32\pi^2} \frac{1}{\lambda_{eff}} \quad (8.49)$$

où  $\phi_0 = hc/2e$  est le quantum de flux.

L'une des signatures remarquables de la transition de BKT dans les films minces apparaît dans le régime de transport non-linéaire. Le courant traversant le film supraconducteur exerce une force perpendiculaire (force de Lorentz) qui tend à séparer le vortex et l'antivortex dans deux directions opposées. Ainsi, en théorie, aussi faible soit le courant, il existe toujours une proportion de vortex libres issus de cette dissociation. Cet effet se traduit par une dépendance de la tension en loi de puissance du courant à l'approche de la transition [60, 74] :

$$V \sim I^{a(T)} \quad (8.50)$$

Cet exposant est relié à la densité superfluide selon  $a(T) = 1 + b n_s(T)$ , où  $b$  est une constante, et subit par conséquent une discontinuité à la transition passant de  $a(T_{BKT}^-) = 3$  à  $a(T_{BKT}^+) = 1$ . Une telle discontinuité ne peut cependant s'observer en théorie que dans la limite de courant nul. Pour les courants trop importants, la discontinuité disparaît et l'exposant  $a(T)$  décroît continuellement de 3 à 1 pour  $T > T_{BKT}$  [74].

## 8.5 Renormalisation de la température critique

La participation d'électrons dans la formation de paires de Cooper hors d'équilibre est un processus inélastique qui limite le temps de cohérence de phase. Ceci signifie que les fluctuations agissent comme une source de décohérence au même titre que les phonons ou les impuretés magnétiques [142]. Dans le régime de fluctuation, la réduction du temps de

cohérence a pour conséquence une réduction de la température critique par rapport à la valeur de champ moyen  $T_{c0}$ . Il est possible d'estimer la renormalisation de la température critique en prenant en compte le terme en  $|\Psi|^4$  dans la fonctionnelle de Ginzburg-Landau. Pour ce faire, on effectue l'approximation de Hartree qui consiste à remplacer ce terme dans (8.4) par  $\langle |\Psi_{fl}|^2 \rangle |\Psi(\mathbf{r})|^2$ . La température réduite est alors diminuée de :

$$\epsilon^* = \epsilon + \frac{b}{2\alpha T_c} \langle |\Psi_{fl}|^2 \rangle \quad (8.51)$$

Avec les valeurs microscopiques de  $\alpha$  et  $b$  (cf. note de bas de page 1) ainsi que l'estimation (8.22) de  $\langle |\Psi_{fl}|^2 \rangle$ , la renormalisation de la température critique générée par les fluctuations d'amplitude devient :

$$\frac{T_c - T_{c0}}{T_{c0}} \sim -2Gi \ln \frac{1}{Gi} \quad (8.52)$$

Il est important de noter que (8.52) donne une correction au premier ordre de la température critique, valable uniquement dans un régime où les fluctuations supraconductrices sont relativement faibles, i.e.  $Gi \ll 1$ . En effet, toutes les corrections discutées dans ce chapitre sont issues de la théorie perturbative des fluctuations supraconductrices [82]. Ainsi, par exemple, les corrections de paraconductivité (cf. §8.3) font intervenir la température critique  $T_c$  renormalisée au premier ordre par les fluctuations<sup>12</sup> et non la température de champ moyen  $T_{c0}$ . Cet exemple est somme toute important car ces corrections, notamment la correction d'Aslamasov-Larkin, sont souvent utilisées à tort dans la littérature pour extraire  $T_{c0}$ , qui est une quantité purement théorique.

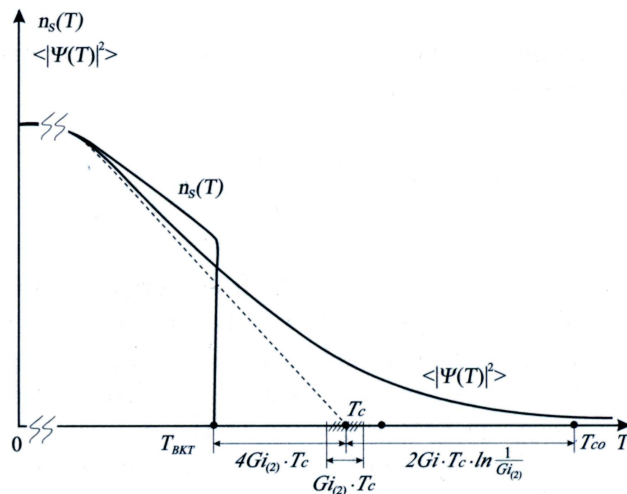
La température critique  $T_{BKT}$  étant proportionnelle à  $\rho_s = m^*n_s$ , la rigidité superfluide caractérise par conséquent la sensibilité aux fluctuations de phase. Un système de faible densité d'électrons superfluides sera donc sujet à de fortes fluctuations de phase, réduisant significativement la température critique d'établissement de la cohérence de phase par rapport à la température critique  $T_c$  renormalisée par les fluctuations d'amplitude<sup>13</sup>. Dans le cadre de la transition BKT, la prolifération de vortex et d'antivortex libres à la température  $T_{BKT}$  supprime la densité superfluide à une température inférieure à  $T_c$ . Il s'en suit la renormalisation suivante de la température critique du film mince supraconducteur [82] :

$$\frac{T_{BKT} - T_c}{T_c} \sim -4Gi \quad (8.53)$$

Pour résumer, nous pouvons illustrer l'évolution de la densité superfluide, de l'amplitude de fluctuation et les différentes températures critiques du problème avec la figure 8.3, extraite de [82]. La température de champ moyen  $T_{c0}$  est ici purement formelle et ne correspond à aucune mesure physique. Sur cette figure, nous retrouvons la renormalisation de la température critique, (8.52), générée par les fluctuations d'amplitude ainsi que le saut de la densité superfluide à  $T_{BKT}$  produit par les fluctuations de phase du paramètre d'ordre.

<sup>12</sup>Cette remarque nous a été confirmée par A. Varlamov.

<sup>13</sup>C'est notamment avec ces arguments qu'Emery et Kivelson [35] proposèrent un scénario décrivant la phase de pseudogap des supraconducteurs à haute température critique comme une phase de paires de Cooper préformées sans ordre de phase. La densité superfluide étant particulièrement faible dans ces supraconducteurs, la température d'établissement de la cohérence de phase, associée à la température critique, est alors supposée très inférieure à la température de formation des paires de Cooper. Ces dernières apparaîtraient à haute température avec la formation du pseudogap.



**FIG. 8.3:** Dépendance en température de la densité superfluide  $n_s(T)$  et de l'amplitude de fluctuation du paramètre d'ordre  $\langle |\Psi(T)|^2 \rangle$  proche de la transition supraconductrice. La ligne en pointillés correspond à la théorie BCS partant de la température critique  $T_c$  renormalisée par les fluctuations et non de la température critique de champ moyen  $T_{c0}$ . L'état supraconducteur n'apparaît que lorsque la densité superfluide est non nulle, soit à  $T_{BKT}$ . D'après [82].

## Conclusion

Les fluctuations supraconductrices dans les systèmes désordonnés de basse dimension produisent de nombreux effets remarquables sur la plupart des propriétés physiques. La première conséquence de la présence de paires de Cooper hors d'équilibre dans la phase normale est la formation d'un pseudogap de fluctuation dans la DOS dont l'évolution en température est particulièrement lente ( $\sim \ln \frac{1}{T/T_c}$ ). Ces fluctuations supraconductrices produisent, par ailleurs, une signature indiscutable en transport : l'augmentation de la conductivité à l'approche de  $T_c$  et l'élargissement de la transition. Toutes les corrections sont cependant obtenues avec une théorie perturbative développée en fonction du paramètre  $Gi \ll 1$ . À l'approche de la transition supraconducteur isolant, cette condition n'est plus vérifiée et les termes d'ordres supérieurs ne peuvent plus être négligés. Nous allons voir, dans le chapitre suivant, que la plupart des corrections discutées ici se retrouvent dans les échantillons de  $TiN$ , mais cependant dans un régime non perturbatif.

Dans ce chapitre, nous avons par ailleurs détaillé la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless qui décrit l'effet des fluctuations thermodynamiques de la phase du paramètre d'ordre. Cette transition apparaît à une température  $T_{BKT}$  inférieure à  $T_c$ , laissant ainsi une plage de températures où l'amplitude du paramètre d'ordre est non nulle, mais sans ordre de phase. C'est à partir de cette remarque que M. P. A. Fischer [43] proposa un modèle de transition de phase quantique à température nulle dans les films minces, que nous aborderons dans le chapitre 10. En effet, la réduction de  $T_{BKT}$ , i.e. de la densité superfluide, par le désordre conduit à la situation extrême où  $T_{BKT} = 0$  alors que  $T_c \neq 0$ , et par conséquent à une phase non supraconductrice composée de paires de Cooper sans cohérence de phase.

# Chapitre 9

## Fluctuations supraconductrices dans $TiN$

### Sommaire

---

<b>9.1</b>	<b>Fluctuations supraconductrices dans <math>TiN</math></b>	<b>118</b>
9.1.1	Paraconductivité	118
9.1.2	Transition de Beresinskii-Kosterlitz-Thouless	120
<b>9.2</b>	<b>Pseudogap de fluctuations dans les films de <math>TiN</math></b>	<b>121</b>
9.2.1	Anomalie de la densité d'états au-dessus de $T_c$	122
9.2.2	Pseudogap de fluctuations supraconductrices	123

---

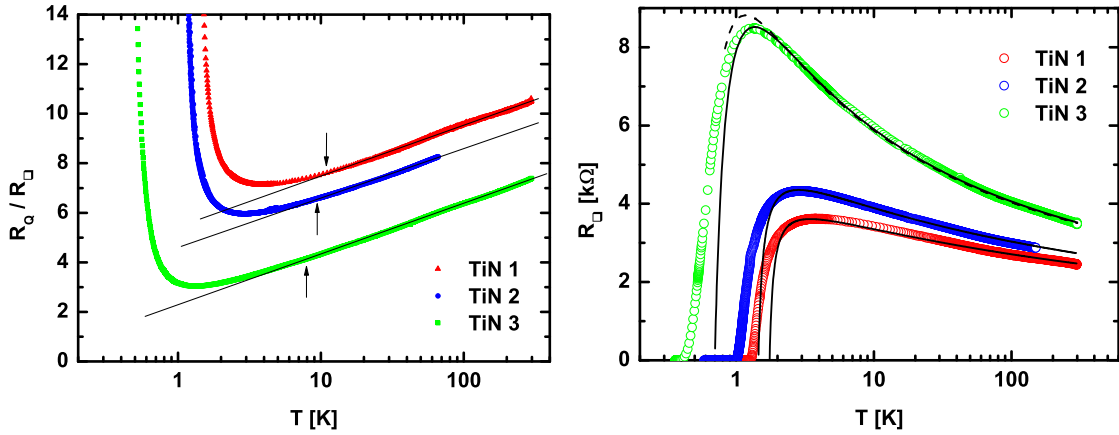
## Introduction

Ce chapitre est consacré aux effets des fluctuations supraconductrices (FS) sur les propriétés de transport et sur la densité d'états dans les films minces de *TiN*. Nous allons étudier, dans un premier temps, la contribution des FS à la conductivité à l'approche de la température critique. Puis, nous présenterons l'anomalie de conductance tunnel différentielle que nous avons mesurée pour chaque échantillon, dans un vaste régime de température au-dessus de  $T_c$ .

## 9.1 Fluctuations supraconductrices dans *TiN*

### 9.1.1 Paraconductivité

Reproduite sur la figure 9.1, l'évolution de la conductance adimensionnée, déjà présentée au chapitre 6, met en évidence de façon remarquable la contribution des FS au transport. En effet, grâce à la divergence logarithmique résultant des corrections de localisation et d'interaction, l'excès de conductivité dû aux FS se traduit, dans cette représentation semi-logarithmique, par un écart au comportement linéaire. Cet écart commence à des températures de l'ordre de  $8T_c$  pour *TiN* 1, et de  $17T_c$  pour *TiN* 3, indiquée sur la figure 9.1 par les flèches noires, puis divergent à  $T_c$ . Ainsi, nous obtenons dans cette représentation une signature claire de la présence de FS particulièrement loin de la transition, bien au-delà du régime de fluctuations gaussiennes limité à  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c} \ll 1$ .



**FIG. 9.1:** À gauche : dépendance en température de 300 K à  $T_c$  de la conductance adimensionnée  $g = \frac{R_Q}{R_\square} = \frac{h}{e^2 R_\square}$ . La divergence logarithmique de la conductance mise en évidence par l'échelle semi-logarithmique permet d'estimer la température d'apparition (flèches noires) de la contribution des fluctuations supraconductrices en transport, soit environ 10 K pour *TiN* 1, de 9 K pour *TiN* 2, et de 8 K pour *TiN* 3. À droite : dépendance en température de la résistance pour les mêmes données. Les courbes noires correspondent aux ajustements avec les corrections d'interaction et de paraconductivité (Aslamasov-Larkin). La température critique  $T_c^{AL}$  utilisée dans l'expression d'Aslamasov-Lakin, est : 1.8 K pour *TiN* 1, de 1.45 K pour *TiN* 2, et de 0.7 K pour *TiN* 3. La courbe pointillée pour *TiN* 3 correspond à  $T_c^{AL} = 0.6$  K.

Nous avons tenté de reproduire la transition supraconductrice avec la correction à la

conductivité d'Aslamasov-Larkin (cf. éq. (8.29)),  $\delta\sigma_{AL}$ , combinées aux corrections de localisation et d'interaction,  $\delta\sigma_{LF}$  :

$$\sigma(T) = \sigma_0 + \delta\sigma_{AL} + \delta\sigma_{LF} = \sigma_0 + \frac{e^2}{h} \frac{1}{16} \frac{1}{\epsilon} - \frac{e^2}{h} \frac{A}{\pi} \ln \frac{\hbar}{T\tau_e} \quad (9.1)$$

avec  $A = 2.8$  (cf. §6.1). Dans cet ajustement, la température critique intervenant dans  $\delta\sigma_{AL}$ , que nous noterons  $T_c^{AL}$  pour la distinguer de la véritable température critique  $T_c$ , est déterminée manuellement tandis que  $\tau_e$  est obtenu par régression non-linéaire. La conductivité de Drude,  $\sigma_0$ , qui ne peut pas être déterminée précisément à partir de ces mesures, est supposée égale à la valeur de la conductivité à 300 K (cf. tab. 6.1). L'équation (9.1) permet alors de reproduire la divergence logarithmique ainsi que le début du régime de fluctuation (cf. fig. 9.1). Pour les trois échantillons, nous avons obtenu la même valeur de  $\tau_e$ , soit environ  $2 \cdot 10^{-14}$  s. Ceci confirme la reproductibilité des propriétés structurales, i.e. du libre parcours moyen, d'un échantillon à l'autre, malgré la réduction de l'épaisseur par gravure plasma (cf. §3.2.1). Cette valeur de  $\tau_e$  n'est malheureusement pas exploitable quantitativement puisque les variables  $\sigma_0$  et  $\tau_e$  ne sont pas indépendantes dans (9.1).

Concernant le régime de paraconductivité, la correction d'Aslamasov-Larkin ne permet pas de reproduire entièrement la transition, et s'écarte des courbes expérimentales lorsque  $\frac{\delta\sigma_{AL}}{\sigma_0} \gtrsim 10\%$ . Nous n'avons pris en compte ni la correction due à la DOS (8.30), ni les corrections de Maki-Thompson (8.31), puisque la première produit une diminution de la conductivité, ce qui n'apparaît pas figure 9.1, et la seconde est négligeable dans les matériaux fortement désordonnés [82].

L'élargissement anormal de la transition peut, par contre, s'expliquer à la lumière des résultats du chapitre 6. En effet, l'inhomogénéité spatiale du gap supraconducteur que nous avons mesurée se traduit à la transition par des fluctuations spatiales de la température critique locale. L'état supraconducteur s'établit alors par un mécanisme de percolation, produisant un élargissement de la transition supraconductrice qui s'ajoute à la contribution des fluctuations supraconductrices. Cet élargissement  $\delta_d = \delta T_c / T_c$  (cf. éq. 5.16) résultant des fluctuations mésoscopiques du désordre, a été prédit par Skvortsov et Feigel'man [130] (cf. §5.3). Proche de la conductance critique de la TSI,  $\delta_d$  peut être de l'ordre ou supérieur à celui des fluctuations supraconductrices, i.e.  $\delta_d \gtrsim Gi$ . Il est cependant difficile d'estimer  $\delta_d$  à partir de (5.16), étant donné que cette formule n'est valable que pour  $g_{cF} \gg 1$ . Comme pour nos échantillons les corrections de localisation faible et d'interaction ne sont plus perturbatives (cf. §6.1), i.e.  $g_{cF} \sim 1$ , il n'est plus possible d'utiliser quantitativement les résultats de ces théories. *Les transitions particulièrement larges de la figure 9.1 apparaissent, par conséquent, comme une signature indirecte en transport des inhomogénéités du gap supraconducteur que nous avons présentées dans le chapitre 6.*

Nous avons, par ailleurs, calculé la température critique de champ moyen  $T_{c0}$  à partir des formules (8.52) et (8.53), soit :

$$T_{BKT} = T_{c0} \left(1 - 2Gi \ln \frac{1}{Gi}\right) (1 - 4Gi). \quad (9.2)$$

En déterminant  $Gi$  à partir de la résistance à 300 K (cf. éq. (8.20)) et en assimilant la température critique  $T_c$  à  $T_{BKT}$ , nous obtenons une température critique  $T_{c0}$  similaire à  $T_c^{AL}$  pour chaque film (cf. tab. 9.1). Ce résultat est surprenant car, d'une part il ne tient pas compte de l'élargissement résultant des fluctuations mésoscopiques, et d'autre part la

Échantillon	$T_c$ [K]	$T_c^{AL}$ [K]	$Gi^{(1)}$	$T_{c0}^{(1)}$ [K]	$Gi^{(2)}$	$T_{c0}^{(2)}$ [K]
<i>TiN</i> 1	1.3	1.8	0.026	1.78	0.038	2.01
<i>TiN</i> 2	1.0	1.45	0.029	1.42	0.046	1.71
<i>TiN</i> 3	0.45	0.7	0.037	0.70	0.079	1.10

**TAB. 9.1:** Température critique  $T_c$  définie au pied de la transition lorsque  $R_{\square} \approx 0 \Omega$  ; température  $T_c^{AL}$  issue de l’ajustement de la correction d’Aslamasov-Larkin ;  $Gi^{(1)}$  : paramètre de Ginzburg-Levanuyk déterminé à partir de la résistance à 300 K ,  $Gi^{(2)}$  : à partir de la résistance maximale (cf. tab. 6.1) ; température  $T_{c0}^{(1)}$  (respectivement  $T_{c0}^{(2)}$ ) calculée à partir de (9.2) avec  $T_{BKT} = T_c$  et  $Gi^{(1)}$  (respectivement  $Gi^{(2)}$ ), pour les trois échantillons de *TiN*.

température critique  $T_c^{AL}$  issue de ces ajustements correspond, en principe, à la température critique renormalisée au premier ordre par les FS, c’est-à-dire  $T_c$  sur le schéma de la figure 8.3 et non  $T_{c0}$ . De telles contradictions peuvent s’expliquer par une mauvaise estimation de  $Gi$ . En effet, la définition de  $Gi$  donnée en (8.20) n’est pas forcément justifiée dans un régime où les corrections de localisation et d’interaction sont fortes. La correction d’interaction se traduit par une diminution de la densité d’états au niveau de Fermi,  $\nu$  (cf. §5.1.1), qui doit nécessairement se répercuter sur les FS, puisque  $Gi_{(d)} \sim (\nu T_c \xi^d)^{-\frac{2}{4-d}}$ . Nous pouvons alors tenir compte de cette réduction de la densité d’états en considérant la valeur maximale de la résistance (cf. tab. 6.1) dans le calcul de  $Gi$ . Nous obtenons cette fois-ci des valeurs de  $T_{c0}$  plus élevées (cf. tab. 9.1).

Nous retiendrons de cette analyse qu’il est délicat d’extraire une estimation précise du paramètre de Ginzburg-Levanuyk et des températures critiques dans ce régime où les corrections de localisation et d’interaction ainsi que les fluctuations mésoscopiques sont fortes.

### 9.1.2 Transition de Beresinskii-Kosterlitz-Thouless

Les films minces supraconducteurs sont en principe le siège d’une transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (cf. §8.4). Cette transition a pour signature une dépendance de la tension en loi de puissance du courant,  $V \sim I^{a(T)}$ , dont l’exposant est une fonction affine de la densité superfluide  $a(T) = 1 + b n_s(T)$ , où  $b$  est une constante (cf. éq. (8.50)). La mesure de cet exposant permet ainsi d’accéder à la discontinuité de  $n_s$  à la transition, qui se traduit par la discontinuité  $a(T_{BKT}^-) = 3$  et  $a(T_{BKT}^+) = 1$ . Cette loi de puissance est en réalité très rarement observée expérimentalement<sup>1</sup>. Elle est, en effet, souvent précédée par un régime ohmique aux faibles courants, associé à la présence de vortex libres. Des études numériques ont montré que ce régime est une conséquence de la taille finie des échantillons [129, 26]. Par ailleurs, Pierson et Valls [112] ont étudié, avec les méthodes du groupe de renormalisation, l’effet de la portée finie de l’interaction logarithmique entre vortex qui est limitée à  $\lambda_{eff}$  (cf. éq. 8.48). Ils en déduirent une relation non triviale de la caractéristique courant-tension, de la forme :

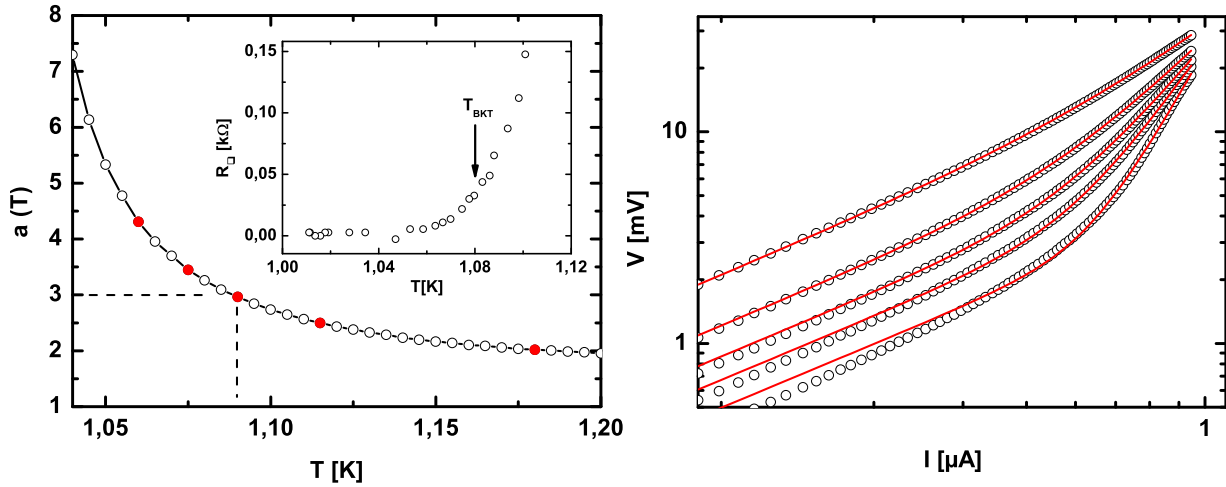
$$V = I \sqrt{c_1 + c_2 I^{2(a(T)-1)}} \quad (9.3)$$

où  $c_1$  et  $c_2$  sont des constantes. On retrouve avec cette formule le comportement linéaire à bas courant et la loi de puissance pour les forts courants. Ces effets de taille finie ont pour conséquence de transformer la discontinuité de  $a(T)$  à  $T_{BKT}$  en une évolution continue et de

<sup>1</sup>Pour un exemple de discontinuité de l’exposant, voir par exemple [50]



modifier la valeur du saut de la densité superfluide. L'exposant  $a$  n'est alors plus exactement égale à 3 à la transition.



**FIG. 9.2:** À gauche : évolution en température de l'exposant  $a(T)$  autour de la transition supraconductrice pour l'échantillon  $TiN$  2. En insert : pied de la transition résistive. La flèche indique la température  $T_{BKT}$  correspondant à  $a(T_{BKT}) = 3$ . À droite : courbes  $I(V)$  ajustées avec l'expression (9.3) et correspondant aux points  $a(T)$  rouges. La courbe aux plus basses tensions correspond au point rouge le plus froid.

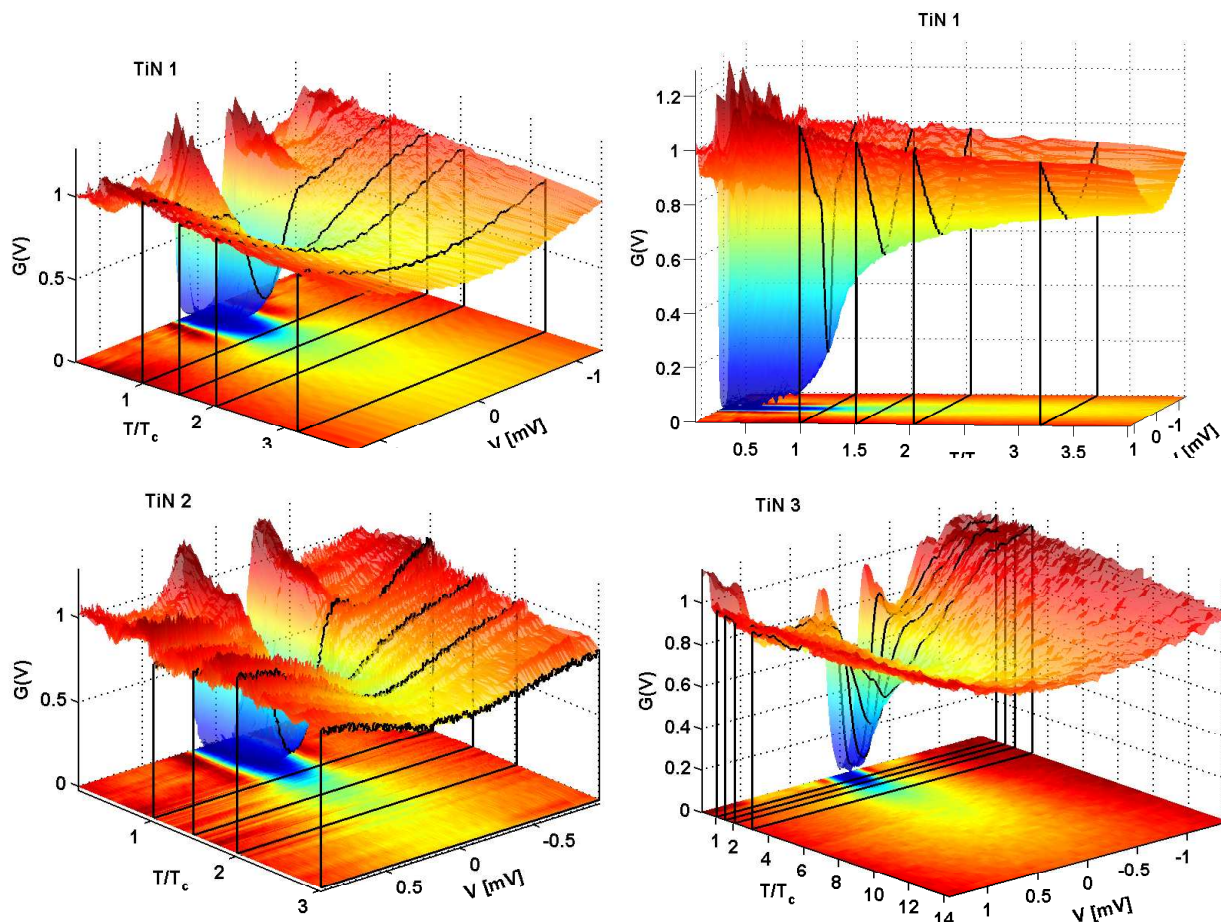
Pour vérifier la présence d'une transition de BKT, nous avons mesuré les caractéristiques  $V(I)$  de l'échantillon  $TiN$  2. Les courbes obtenues présentent un régime linéaire à bas courant suivi d'un régime non linéaire (cf. fig. 9.2). En ajustant par régression non linéaire les paramètres  $c_1$ ,  $c_2$  et  $a(T)$  de l'équation (9.3) nous avons pu reproduire ces courbes pour des températures situées autour de la transition. L'évolution de l'exposant  $a(T)$  ne présente pas de discontinuité, ce qui n'est pas étonnant étant donné le fort régime linéaire caractéristique des effets de taille finie. La température critique  $T_{BKT}$  définie pour  $a(T_{BKT}) = 3$  est alors de 1.08 K. Cette température correspond au pied de la transition résistive, lorsque  $R_{\square} \approx 0 \Omega$ , justifiant ainsi notre choix de la température critique de la transition supraconductrice. Nous avons, par ailleurs, obtenu<sup>2</sup> la même correspondance entre  $T_{BKT}$  et le pied de la transition résistive pour  $TiN$  3.

Nous déduisons ainsi de ces mesures de transport non-linéaire une température critique raisonnable mais il faut garder à l'esprit que, sans discontinuité de l'exposant  $a(T)$ , i.e. de la densité superfluide, il n'est pas possible de confirmer la présence d'une transition de type BKT dans nos échantillons de  $TiN$ . L'existence de cette transition dans les films minces supraconducteurs reste à l'heure actuelle encore débattue, et même contestée [78].

## 9.2 Pseudogap de fluctuations dans les films de $TiN$

Étudions maintenant l'évolution en température de la conductance tunnel différentielle dans ce régime de fluctuations supraconductrices.

<sup>2</sup>La mesure a cependant été effectuée lors d'un refroidissement différent et antérieur à celui des mesures de STM. L'échantillon présentait alors une température critique de  $T_{BKT} = 0.56 K$ . Entre les deux refroidissements, l'échantillon a vieilli.

9.2.1 Anomalie de la densité d'états au-dessus de  $T_c$ 


**FIG. 9.3:** Évolution en température de la conductance tunnel différentielle de l'échantillon *TiN 1* sous deux angles de vue différents, en haut, et des échantillons *TiN 2*, en bas à gauche, et *TiN 3*, en bas à droite. Leur gap supraconducteur extrait du spectre à basse température est respectivement de  $270 \mu\text{eV}$ ,  $220 \mu\text{eV}$  et  $175 \mu\text{eV}$ .

Les évolutions en température de la conductance tunnel différentielle, mesurées pour chaque échantillon, sont présentées sur la figure 9.3. Elles révèlent la présence d'un vaste régime de pseudogap au-dessus de la température critique. Ce pseudogap évolue particulièrement lentement avec la température comme le montre la vue de profil de l'échantillon *TiN 1*. Nous avons ajouté sur ces figures tridimensionnelles, les spectres, surlignés en noir, correspondant aux températures  $T/T_c = 1, 1.5, 2, \text{ et } 3$ , afin de pouvoir comparer la profondeur du pseudogap d'un échantillon à l'autre. Ainsi, pour un rapport  $T/T_c$  donné, le pseudogap apparaît d'autant plus marqué que le désordre est important. Pour *TiN 3*, sa valeur au niveau de Fermi à  $T = T_c$  est en effet presque nulle, ce qui n'est pas le cas pour *TiN 1*. Ceci s'accompagne d'une gamme de température, rapportée à  $T_c$ , particulièrement grande, jusqu'à  $14T_c$  pour l'échantillon *TiN 3*.

## 9.2.2 Pseudogap de fluctuations supraconductrices

Pour analyser quantitativement cette anomalie de densité d'états, nous avons à notre disposition deux phénomènes physiques antinomiques que nous avons déjà caractérisés en transport, à savoir l'anomalie de la DOS résultant du renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre (cf. §5.1.1), dite ZBA, et le pseudogap généré par les fluctuations supraconductrices (cf. §8.2). Chacune de ces contributions se traduit par une signature forte en transport. L'interaction Coulombienne produit une réduction logarithmique de la conductivité alors qu'au contraire les FS apportent un excès de conductivité à l'approche de  $T_c$ .

### Évolution en $\ln \frac{1}{\epsilon}$ au niveau de Fermi

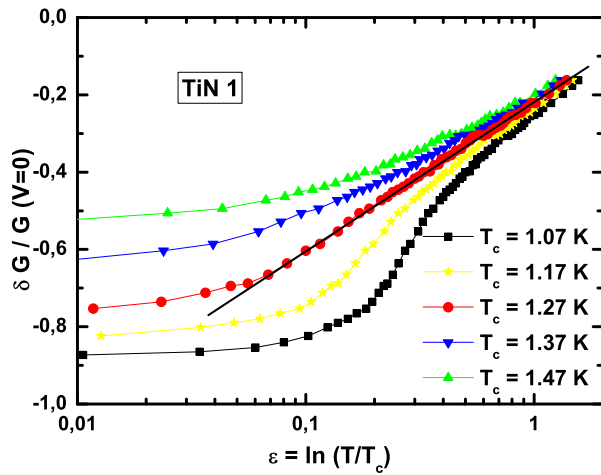


FIG. 9.4: Variation relative de la conductance tunnel différentielle au niveau de Fermi de TiN 1 en fonction de la température réduite  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c}$ .

Étant donné la proximité immédiate de la transition supraconductrice, nous avons analysé ces mesures dans le cadre de la théorie des FS présentée dans la section §8.2. Les corrections de la densité d'états dues aux FS se distinguent par une dépendance remarquable en  $\ln 1/\epsilon$  de la conductance tunnel différentielle au niveau de Fermi (cf. éq. 8.26). Cette dépendance peut se vérifier en étudiant la variation relative de conductance tunnel différentielle au niveau de Fermi en fonction de la température réduite  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c}$ . Une évolution linéaire dans une représentation semi-logarithmique permet alors de mettre en évidence la dépendance en  $\ln 1/\epsilon$ . Nous avons donc tracé sur la figure 9.4, l'évolution de

$$\frac{\delta G}{G}(V=0) = \frac{G(\epsilon, V=0) - G_0}{G_0} \quad (9.4)$$

pour TiN 1 en fonction de  $\epsilon$  pour différentes températures critiques.  $G_0 = G(\epsilon \gg 1, V=0)$  est ici une extrapolation de la conductance différentielle à haute température, que nous avons estimée avec la valeur moyenne de la dernière courbe de conductance différentielle mesurée à la plus haute température<sup>3</sup>. Dans cette représentation, le seul paramètre ajustable est la température critique  $T_c$  qui modifie l'axe des abscisses à travers  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c}$ . Nous voyons sur la figure 9.4 que l'ajustement de ce paramètre fait apparaître un comportement linéaire de  $\delta G/G$  pour la valeur  $T_c = 1.27 K$ , correspondant quasiment à la température critique de 1.3 K mesurée en transport (cf. tab. 9.1). Nous obtenons ainsi une évolution en  $\ln 1/\epsilon$  sur une gamme de température réduite  $\epsilon$  particulièrement grande. Cette évolution remarquable de la mesure locale  $\delta G/G$  donne par conséquent une détermination précise, meilleure que 50 mK, de la température critique macroscopique de la transition supraconductrice.

<sup>3</sup>La détermination précise de  $G_0$  n'est pas nécessaire pour l'étude de la loi en  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c}$ . Nous avons en effet vérifié qu'une modification de la valeur de  $G_0$  ne modifie pas la dépendance en température de la variation relative de conductance différentielle (9.4).

Cet ajustement de la variation relative de conductance différentielle au niveau de Fermi a été reproduit pour les deux autres échantillons, conduisant, là aussi, à une correspondance entre la température critique ajustée et la température critique de la transition supraconductrice. Présenté sur la figure 9.5, le résultat de ces ajustements met en évidence d'une part le comportement en  $\ln 1/\epsilon$  pour chaque échantillon, et d'autre part l'augmentation de la pente avec le désordre. D'après (8.26), cette pente est en effet proportionnelle à  $Gi$ , qui est lui-même proportionnel à la résistance du film (cf. éq. (8.20)). Nous avons par conséquent dans nos mesures deux signatures spécifiques de l'expression (8.26) du pseudogap de FS, soit<sup>4</sup> :

$$\frac{\delta G}{G}(V=0) = \frac{\Re \psi''(\frac{1}{2})}{7\zeta(3)} Gi \ln \frac{1}{\epsilon} \quad (9.5)$$

Cette relation est d'autant plus remarquable qu'elle fait intervenir la température critique macroscopique dans une mesure microscopique locale d'un système inhomogène à basse température.

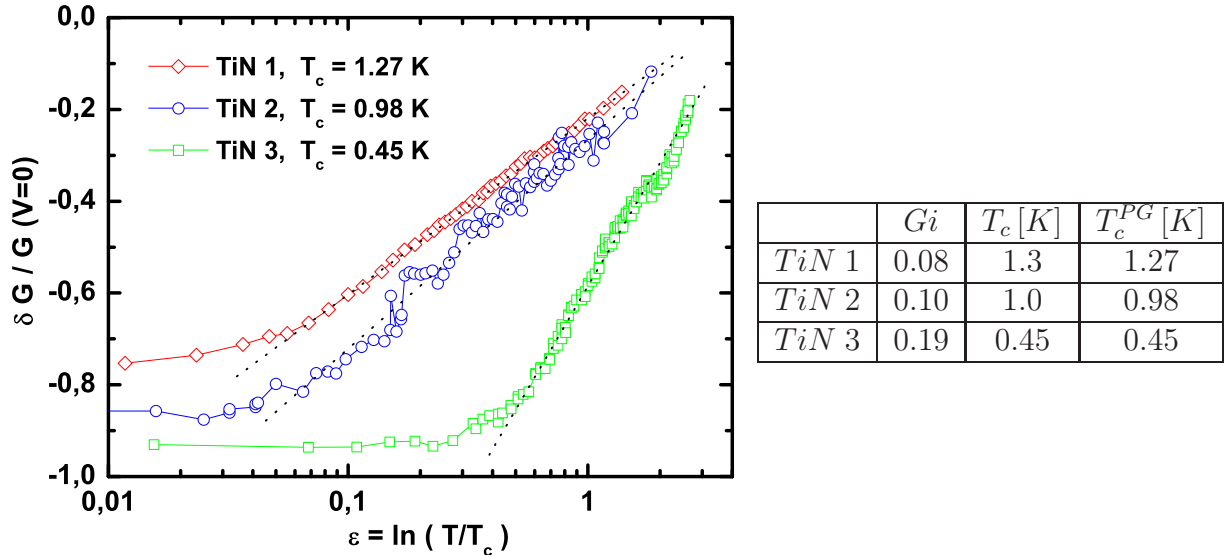


FIG. 9.5: Figure : variation relative de la conductance tunnel différentielle au niveau de Fermi pour les trois échantillons, en fonction de la température réduite  $\epsilon = \ln \frac{T}{T_c}$ . Tableau : paramètre de Ginzburg-Levanyuk,  $Gi$ , extrait de la pente des droites de la figure, d'après l'équation (8.26).  $T_c$  : température critique mesurée en transport.  $T_c^{PG}$  : température critique obtenue par ajustement de la variation relative au niveau de Fermi du pseudogap.

## Discussion

Ces observations qui confirment la correction (8.26) de Varlamov et Dorin de la conductance tunnel différentielle, amènent toutefois quelques commentaires. En effet, comme pour la correction à la conductivité d'Aslamasov-Larkin discutée précédemment, la correction (8.26) est issue d'un calcul perturbatif au premier ordre en  $Gi$ , faisant intervenir par conséquent la température critique  $T_c$  renormalisée au premier ordre selon (8.52). Or, nous venons de voir que la dépendance spécifique en  $\ln 1/\epsilon$  n'est obtenue qu'avec la température critique

<sup>4</sup>Notons que  $\Re \psi''(\frac{1}{2}) \approx -16.83$  et  $\zeta(3) \approx 1.202$ .

réelle mesurée par transport, qui tient compte de la renormalisation complète à tous les ordres et de l'élargissement dû aux fluctuations mésoscopiques du désordre. Ceci suggère par conséquent que nos échantillons sont dans un régime de FS non perturbatif et que le calcul de Varlamov *et. al.* limité au premier ordre n'est pas suffisant pour décrire ces mesures. Malgré tout, le fait que la dépendance en  $\ln 1/\epsilon$  soit conservée dans un tel régime signifie que les corrections d'ordre supérieur ne produisent qu'une renormalisation de la température critique,  $\epsilon \rightarrow \epsilon^*$ , et ne modifie pas la dépendance en  $\ln 1/\epsilon^*$  de la DOS<sup>5</sup>.

D'après l'équation (9.5), il est possible d'extraire le paramètre de Ginzburg-Levanyuk,  $G_i$ , à partir de la pente des droites de la figure 9.5. Les valeurs obtenues, données dans le tableau de la figure, sont beaucoup plus élevées que celles calculées à partir de la résistance des films (cf. tab. 9.1). Ceci montre que le préfacteur de (8.26) doit aussi être corrigé ou que l'expression de  $G_i$  (8.20) n'est plus valable pour nos échantillons soumis à de fortes corrections de localisation et d'interaction.

Un autre point important mérite discussion. En effet, au vu des figures 9.3 et 9.5, *ce pseudogap de fluctuations s'étend bien au-delà du régime gaussien, i.e.  $\epsilon \gtrsim 1$* . Ceci n'est finalement pas étonnant puisque nous avons déjà mis en évidence, en transport, l'apparition de la paraconductivité particulièrement loin de  $T_c$ . Pour *TiN 3* par exemple, nous avons vu que la paraconductivité apparaît à environ  $17T_c$ , soit  $\epsilon \approx 3.6$ . Cette valeur correspond approximativement à la température réduite de disparition du pseudogap, que l'on peut estimer en extrapolant à  $\delta G/G = 0$  la droite de la figure 9.5. La dépendance en  $\ln 1/\epsilon^*$  dans toute cette gamme de température réduite peut, par ailleurs, se comprendre par analogie avec la correction de la conductivité due à la DOS (cf. §8.3.2). En effet, cette dernière qui évolue elle aussi en  $\ln 1/\epsilon$  (cf. éq. 8.30), a été calculée au-delà du régime gaussien par Altshuler, Varlamov et Reizer [6, 82]. Leurs calculs ont alors aboutit à la même dépendance en  $\ln 1/\epsilon$  pour  $\epsilon > 1$ . Nous pouvons par conséquent raisonnablement supposer que la correction de la conductance tunnel différentielle conserve elle-aussi sa dépendance en  $\ln 1/\epsilon^*$  lorsque  $\epsilon^*$  dépasse le régime gaussien. C'est avec cet argument notamment que Varlamov *et. al.* [28, 142] ont interprété, avec la théorie perturbative des FS, le pseudogap des supraconducteurs à haute température critique, qui s'étend, lui aussi, bien au-delà du régime gaussien.

## Interaction Coulombienne versus fluctuations supraconductrices

La contribution de l'interaction Coulombienne renforcée par le désordre produit elle aussi une anomalie de la DOS, le ZBA, qui se traduit en transport par la réduction logarithmique de la conductivité. Ce ZBA évolue au niveau de Fermi comme le logarithme de la température (cf. éq. (5.4)) et ne peut pas, par conséquent, expliquer la dépendance en  $\ln 1/\epsilon$  du pseudogap de *TiN*.

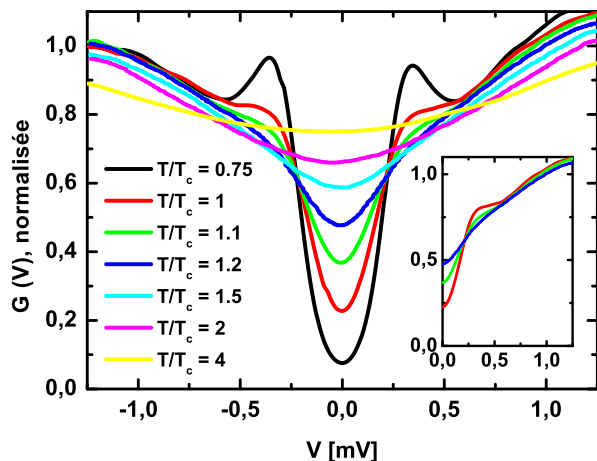
Toutefois, la correction (8.26) due aux FS ne permet pas non plus d'expliquer toute la dépendance en énergie de la conductance différentielle. Cette dernière n'est absolument pas constante à haute énergie (cf. fig. 9.3) contrairement à la correction des FS (cf. fig. 8.1). Sur la figure 9.3 nous avons reproduit quelques spectres de l'évolution en température de *TiN 1*. L'augmentation de  $G(V)$  avec  $V$  rappelle clairement le ZBA que nous avons déjà mis en évidence dans le chapitre 6 §6.2.3, à partir des spectres mesurés à basse température (cf. fig. 6.6).

---

<sup>5</sup>Cette interprétation nous a été suggérée par A. Varlamov.



Par ailleurs, la correction due aux FS fait apparaître deux maxima qui sont la réminiscence des pics de cohérence supraconducteurs. Sur la figure 9.3, ces deux pics sont seulement visibles proche de  $T_c$  puis disparaissent à plus haute température.



**FIG. 9.6:** Spectres extraits de l'évolution en température de TiN 1, figure 9.3. En insert : agrandissement des courbes à  $T/T_c = 1, 1.1,$  et  $1.2$  mettant en évidence la disparition des pics de cohérence.

En théorie, les contributions de l'interaction Coulombienne et des FS s'ajoutent dans le régime perturbatif où les corrections sont petites [142]. Mais, d'une part, nous ne pouvons pas justifier ici la dépendance en  $\ln 1/\epsilon^*$  simplement en sommant ces deux contributions<sup>6</sup>, d'autre part, nous sommes dans un régime non perturbatif où ces deux contributions ne sont plus indépendantes. Il semble toutefois raisonnable d'attribuer la partie à haute énergie ( $eV > \Delta$ ) de la conductance différentielle au ZBA, ce qui expliquerait d'une part la disparition rapide des pics de la contribution des FS et d'autre part la diminution du niveau moyen sur les courbes hautes températures (cf. courbe à  $T/T_c = 4$ , fig. 9.6). En effet, rappelons que le ZBA mesuré dans une petite gamme d'énergie ne conserve par le nombre d'états total. Comme pour l'apparition du gap rectangulaire dans  $InO_x$  (cf. §7.3.2), ceci se traduit par une diminution du niveau moyen de la conductance différentielle. La partie à basse énergie, proche du niveau de Fermi serait, quant à elle, dominée par les fluctuations supraconductrices.

### Lien avec la Transition Supraconducteur-Isolant

Que pouvons-nous déduire de ces mesures effectuées au-dessus de  $T_c$  concernant la TSI? Sur la figure 9.5, l'évolution en  $\ln 1/\epsilon$  de  $\delta G/G$  est précédée par un palier proche de  $T_c$ . Ce palier correspond à la région critique de la transition supraconductrice délimitée par  $\epsilon < Gi$ . On peut remarquer que sa taille est en bon accord avec les valeurs de  $Gi$  extraites de la pente de la droite à  $\epsilon > Gi$  (cf. tab. fig. 9.5). Ces valeurs de  $Gi$  sont finalement plus pertinentes que les estimations du tableau 9.1 obtenues à partir de la formule (8.20). Par ailleurs, la valeur du palier, qui correspond à la profondeur du pseudogap, s'approche de  $-1$  lorsque le désordre augmente. Avec ces observations, nous pouvons déduire qu'à l'approche de la TSI, lorsque  $T_c \sim 0$ , l'extrapolation de ce palier au désordre critique conduit à un régime critique (en température) avec un gap dans la densité d'états, sans quasiparticule au niveau de Fermi, i.e.  $\delta G/G = -1$ . Ceci rejoint les conclusions du chapitre 6 où nous avons déduit la présence d'un gap dans la densité d'états par extrapolation au désordre critique des mesures de spectroscopie effectuées à basse température ( $T \ll T_c$ ).

<sup>6</sup>Nous avons toutefois tenté d'ajuster les courbes haute température avec le ZBA [12] ce qui permet ensuite de calculer toute l'évolution à plus basse température. Cela n'a pas permis de reproduire la conductance différentielle mesurée à plus basse température, notamment au niveau de Fermi. De la même façon, si l'on retranche cette contribution du ZBA aux courbes de conductance différentielle, la dépendance en  $\ln 1/\epsilon$  disparaît.

## Conclusion

En conclusion, ces mesures montrent que dans les systèmes quasi-bidimensionnels fortement désordonnés, les fluctuations supraconductrices sont présentes particulièrement loin de la transition et modifient profondément la conductivité et la densité d'états. La présence, loin de la transition, de fluctuations supraconductrices a, par ailleurs, été récemment observée par Pourret *et. al.* [113] à partir de mesures d'effet Nernst dans des films minces supraconducteurs de  $Nb_xSi_{1-x}$ .

L'évolution remarquable en  $\ln 1/\epsilon$  de la conductance tunnel différentielle au-dessus de  $T_c$  constitue la première observation de la correction de la densité d'états résultant des fluctuations supraconductrices. La description de ce régime de pseudogap doit cependant prendre en compte la contribution de l'interaction Coulombienne qui se mélange ici de façon non triviale à la contribution des fluctuations supraconductrices. Malheureusement, il n'existe pas, à ce jour, de théorie non-perturbative capable de décrire simultanément les fluctuations supraconductrices et l'interaction Coulombienne.

Concernant le pseudogap d' $InO_x$ , chapitre 7, l'évolution de la conductance tunnel différentielle au niveau de Fermi ne suit pas la loi en  $\ln 1/\epsilon$ . Les fluctuations supraconductrices sont malgré tout nécessairement présentes dans ce régime, étant donné la résistance élevée de cet échantillon. Cependant, selon Feigel'man, la nature fractale des fonctions d'onde dans les échantillons proches de la transition métal-isolant dépasse le cadre de la théorie standard des fluctuations supraconductrices et nécessite un traitement spécifique.





# Chapitre 10

## Transition de phase quantique

### Sommaire

---

<b>10.1 Théorie quantique de M. Fisher</b> . . . . .	<b>131</b>
10.1.1 Introduction : les transitions de phase quantiques . . . . .	131
10.1.2 Modèle de fluctuations de phase . . . . .	132
10.1.3 Discussion . . . . .	134
<b>10.2 Fluctuations supraconductrices au-dessus de <math>H_{c2}(0)</math></b> . . . . .	<b>135</b>

---

---

## Introduction

Nous avons jusqu'à présent discuté la suppression de la supraconductivité dans les films minces à la lumière des théories de localisation, d'interaction et de fluctuations supraconductrices. Nous avons vu que ces théories rendent compte de la plupart des comportements de nos échantillons de  $TiN$  et d' $InO_x$ , à savoir la disparition de la supraconductivité au seuil de localisation forte, les inhomogénéités supraconductrices induites par le désordre, la localisation de paires d'électrons corrélés dans les zones isolantes et le régime de fluctuations supraconductrices.

Dans ce chapitre, nous allons présenter cette fois-ci un modèle de *transition de phase quantique régie par les fluctuations de phase du paramètre d'ordre*. Proposé par Fisher en 1990 [43], ce modèle est souvent opposé dans la littérature à celui de Finkel'stein [40, 41] (cf. §5.2.1). Ces deux approches de la TSI, communément appelés "*modèle bosonique*" et "*modèle fermionique*", sont en effet différentes puisque la première fait intervenir des degrés de liberté bosoniques, i.e. la phase du paramètre d'ordre, tandis que la seconde ne tient compte que du renforcement de l'interaction Coulombienne résultant de la nature diffusive des excitations fermioniques [83].

Contrairement à la théorie de Finkel'stein, le modèle bosonique de Fisher prédit des comportements universels à la Transition Supraconducteur-Isolant, en particulier une résistance critique universelle égale au quantum de résistance d'une paire de Cooper  $h/4e^2 = 6.45 k\Omega$ . Depuis cette proposition théorique, la plupart des travaux expérimentaux sur les films minces supraconducteurs se sont orientés vers la recherche de ce quantum de conductance mais surtout vers l'étude des lois d'échelles. Ces dernières, appliquées en particulier à la magnétorésistance, constituent les seules preuves expérimentales de cette transition de phase quantique. Nous discuterons alors, dans ce chapitre, les hypothèses fortes de la théorie de Fisher au regard de nos résultats présentés dans la partie II, et nous verrons que l'opposition manichéenne à la théorie de Finkel'stein n'est plus nécessairement justifiée.

Ce chapitre nous permet, par ailleurs, d'introduire la Transition Supraconducteur-Isolant induite par l'application d'un champ magnétique perpendiculaire, qui sera l'objet du chapitre expérimental suivant. La magnétorésistance des échantillons proches du désordre critique présente en effet un pic extrêmement résistif, isolant à température nulle. La description de ce régime était, jusqu'à peu, uniquement donnée par le modèle de Fisher qui prédit une transition d'un état verre de vortex à un condensat de bose de vortex, appelé isolant de bose. Nous présenterons un résultat théorique récent de Galitski et Larkin [46] qui s'inscrit dans le cadre des fluctuations supraconductrices. Ces auteurs ont en effet obtenu la correction à la conductivité d'un film mince supraconducteur au dessus de  $H_{c2}(0)$  et à  $T \ll T_c$ , à l'aide de la théorie microscopique des fluctuations supraconductrices. Nous verrons, dans le chapitre suivant, que cette théorie perturbative décrit une partie des comportements en champ magnétique de nos films supraconducteurs.

## 10.1 Théorie quantique de M. Fisher

Après avoir introduit brièvement les transitions de phase quantiques, nous présentons ici le modèle de fluctuation de phase de Fisher [43], appelé "Dirty bosons model" dans la littérature, qui sera ensuite discuté au regard de nos résultats obtenus précédemment dans *TiN*.

### 10.1.1 Introduction : les transitions de phase quantiques

Une transition de phase quantique apparaît lorsqu'un paramètre de l'Hamiltonien décrivant le système varie continûment, entraînant un changement d'état fondamental. La transition entre les deux états fondamentaux, est alors régie par les fluctuations quantiques des degrés de libertés du système, et non plus par les fluctuations thermodynamiques [132].

Comme pour les transitions thermodynamiques classiques, la région critique est caractérisée par des lois d'échelles dont les exposants critiques définissent la classe d'universalité de la transition. La longueur de corrélation des fluctuations quantiques diverge en effet à la transition selon :

$$\xi \sim \delta^{-\nu} \quad (10.1)$$

où  $\nu$  est l'exposant critique habituel des transitions de phase, et  $\delta = \frac{|K-K_c|}{K_c}$  mesure la distance à la transition lorsque celle-ci est dirigée par le paramètre  $K$  de l'Hamiltonien.  $K_c$  est alors la valeur critique à la transition. La dynamique du système est régie par un temps caractéristique de corrélation, noté  $\xi_\tau$ , qui diverge lui aussi en loi de puissance, selon :

$$\xi_\tau \sim \omega_c^{-1} \sim \xi^z \quad (10.2)$$

où  $z$  est l'exposant critique dynamique.  $\omega_c$  donne ici la fréquence de coupure des fluctuations.

Les transitions de phase quantiques sont définies strictement à température nulle. Elles sont toutefois en étroite relation avec les transitions classiques thermodynamiques. En effet, l'expression de la fonction de partition d'un système quantique en dimension  $d$  peut se réexprimer, en principe, comme la fonction de partition d'un système classique équivalent<sup>1</sup> de dimension  $d + 1$  [132]. La dimension supplémentaire du système classique correspond à la dimension temporelle du système quantique. Cette dimension est infinie à température nulle ce qui signifie que la dynamique du système est purement quantique. Par contre, à température non nulle, le temps de cohérence quantique devient borné par le temps caractéristique  $\hbar/T$ , limitant par conséquent la divergence de  $\xi_\tau$ . Cette coupure générée par la température peut se réinterpréter en terme de longueur de cohérence de phase à partir de (10.2), soit  $L_\phi \sim 1/T^{1/z}$ , qui fixe l'échelle spatiale des fluctuations quantiques à température non-nulle. Nous retrouvons ici la notion de longueur de cohérence de phase que nous avons déjà introduite dans la partie traitant de la théorie de la localisation. Ainsi, la température, nécessairement non nulle dans une mesure expérimentale, peut conduire à un crossover entre un régime dominé par les fluctuations quantiques, lorsque  $\hbar\omega_c > T$ , à un régime de

---

<sup>1</sup>Prenons le cas par exemple d'un réseau  $1d$  de jonctions Josephson dont les paramètres sont l'énergie de charge  $E_c$  et l'énergie de couplage Josephson  $E_J$ . La fonction de partition quantique peut alors se réécrire sous la forme d'un modèle XY classique en dimension 2 où la température est remplacée par le rapport  $T \rightarrow \sqrt{E_c/E_J}$ . La transition supraconducteur isolant intervenant dans ce réseau à température nulle est par conséquent régie par un mécanisme BKT de dissociation de paires de vortex-antivortex identique au système classique de dimension  $d + 1$  [132].

fluctuations thermodynamiques classiques pour  $\hbar\omega_c < T$ . La gamme de température où la transition reste dominée par les fluctuations quantiques est, par ailleurs, d'autant plus petite que l'on s'approche du point critique quantique, i.e.  $\omega_c \rightarrow 0$  lorsque  $\delta \rightarrow 0$  [132, 51]. Un tel point quantique critique n'est donc pas, en principe, accessible expérimentalement.

## 10.1.2 Modèle de fluctuations de phase

### Modèle de Fisher

En 1990, Fisher [43] proposa un modèle de transition de phase quantique décrivant la transition supraconducteur-isolant en dimension  $d = 2$ . *L'hypothèse principale de ce modèle est que les propriétés universelles à la TSI sont uniquement déterminées par les fluctuations de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur et que l'amplitude de ce dernier reste finie dans la région critique.* Cette hypothèse est basée sur l'existence de la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (cf. §8.4) dans les films minces, qui permet de définir deux échelles d'énergie : la température critique  $T_{BKT}$  de dissociation des paires de vortex-antivortex, et la température critique  $T_c$  au-delà de laquelle le système est dominé par les fluctuations d'amplitude. Nous avons par conséquent une fenêtre de température  $T_{BKT} < T < T_c$  dont la taille est de l'ordre de  $\frac{\delta T_c}{T_c} = -4Gi$  (cf. §8.5), où l'amplitude du paramètre d'ordre reste finie, bien que le quasi-ordre à longue distance soit détruit par la prolifération de vortex et d'antivortex libres. Étant donné que  $T_c$  diminue avec le désordre, en raison notamment du renforcement de l'interaction Coulombienne, cette gamme de température dominée par les fluctuations de phase augmente avec la résistance du film. *Il existe par conséquent un désordre critique, noté ici  $\Delta_c$ , pour lequel  $T_{BKT} = 0$  alors que  $T_c \neq 0$ . Au-delà de  $\Delta_c$ , le système n'est plus supraconducteur à température nulle bien que les quasiparticules soient toujours condensées en paires de Cooper.*

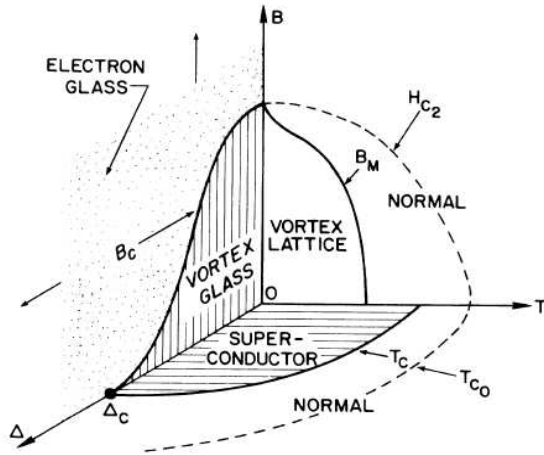


FIG. 10.1: Diagramme de phase pour un film supraconducteur désordonné dans l'espace (champ magnétique  $B$ , désordre  $\Delta$ , température  $T$ ). D'après [43].

deux représentations implique une relation, dite de dualité, entre la résistivité du système de paire de Cooper,  $\rho^{pc}$ , et la conductivité du système de vortex,  $\sigma^v$  :

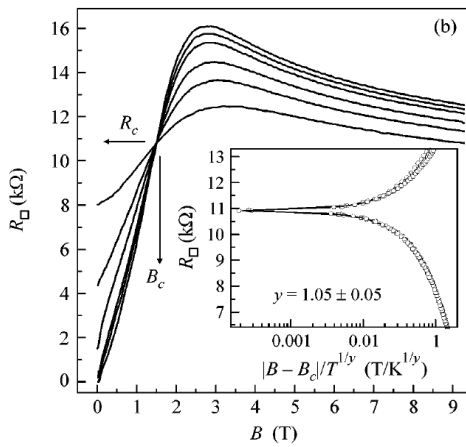
$$\rho^{pc} = \sigma^v \quad (10.3)$$

Il est possible, en effet, de définir une conductivité du système de vortex puisque le déplacement de l'un d'eux produit une variation de la phase  $\phi$  du paramètre d'ordre de  $2\pi$  et donc une tension  $V = (\hbar/2e)\dot{\phi}$ .

L'état supraconducteur à  $T = 0$  et  $\Delta < \Delta_c$  se traduit alors, dans ce modèle, par la condensation de Bose des paires de Cooper. Les paires de vortex-antivortex sont ici piégées par le désordre et l'interaction répulsive, d'où  $\rho^{pc} = \sigma^v = 0$ . Au-delà du désordre critique, à  $\Delta > \Delta_c$ , la nature de la phase se déduit de la représentation duale : les vortex et antivortex dépaillés forment à leur tour un condensat de Bose. Les paires de Cooper sont, quant à elles, localisées et forment un verre d'électrons. Il s'agit donc d'un état isolant avec  $\sigma^{pc} = \rho^v = 0$ . Le modèle de Fisher décrit par conséquent une transition de phase quantique continue entre un état supraconducteur (condensat de paires de Cooper + vortex localisés) et un état isolant (paires de Cooper localisées + condensat de vortex) à  $T = 0$  en fonction du désordre. Cette transition implique nécessairement la présence d'un état intermédiaire résistif à la transition, à  $\Delta = \Delta_c$  où à la fois les paires de Cooper et les vortex diffusent.

En présence d'un champ magnétique perpendiculaire (plan (B0T) figure 10.1), l'état supraconducteur mixte peut se décrire par le même modèle de bosons en présence d'un potentiel aléatoire. Le traitement analogue conduit là-aussi à une transition de phase quantique, pour un champ critique  $B_c$ , entre l'état supraconducteur avec un verre de vortex, et un état isolant résultant de la condensation de Bose des vortex.

### Universalité et loi d'échelle de la résistance



**FIG. 10.2:** Magnétorésistance d'un échantillon de TiN similaire aux nôtres à différentes températures : 0.35, 0.38, 0.42, 0.51, 0.61, et 0.76 K. Insert : loi d'échelle (10.4) obtenue avec  $y = z\nu = 1.05 \pm 0.05$ . D'après [13].

Cooper correspond exactement un vortex dans la représentation duale. À la transition, le flux de paire de Cooper,  $\dot{n}_{pc}$ , traversant le système est alors égale au flux de vortex  $\dot{n}_v$ . La

À la transition, i.e.  $\Delta_c$  ou  $B_c$ , la résistance est supposée présenter un comportement universel et obéir à la loi d'échelle, appelée "finite-size scaling"<sup>2</sup> [43, 132] :

$$R = R_c f\left(\delta \cdot T^{-\frac{1}{z\nu}}\right) \quad (10.4)$$

où  $R_c$  est la résistance critique à la transition ( $\delta = 0$ ) et  $f$  est une fonction d'échelle universelle qui a pour seule contrainte  $f(0) = 1$ .  $\delta$  est l'écart au point critique :  $\frac{|\Delta - \Delta_c|}{\delta_c}$  ou  $\frac{|B - B_c|}{B_c}$ . Expérimentalement, cette relation a surtout été testée pour la transition induite sous champ magnétique car il est difficile de faire varier continûment l'épaisseur d'un film mince ou son désordre. Elle permet notamment d'extraire les exposants critiques de la transition (cf. fig. 10.2).

À l'issue de son article, Fisher a suggéré que si l'interaction entre les paires de Cooper est logarithmique et non plus en  $1/r$ , alors la transition devient auto-duale. Cette propriété signifie qu'à une paire de

<sup>2</sup>La "taille finie" se rapporte ici à la coupure dans l'espace des fréquences introduite par la température (cf. §10.1.1).

résistance critique à la transition se déduit par conséquent du courant de paires de Cooper  $I = 2e\dot{n}_{pc}$  et de la tension générée par les vortex  $V = (\hbar/2e)\dot{\phi} = (h/2e)\dot{n}_v$ , soit :

$$R_c = \frac{V}{I} = \frac{h}{(2e)^2} \quad (10.5)$$

Ces prédictions théoriques ont donné lieu à deux décennies de travaux expérimentaux faisant ressortir une multitude de résultats différents. Rares<sup>3</sup> sont les matériaux qui présentent en effet une résistance critique égale à  $h/4e^2$  à la transition, que ce soit pour la TSI en épaisseur ou la TSI en champ magnétique. Une interaction logarithmique répulsive entre paires de Cooper dans les films désordonnés est en effet délicate à justifier théoriquement [24]. Rappelons que dans nos échantillons de *TiN*, le dernier échantillon supraconducteur transite à  $\sim 30 \text{ k}\Omega \sim h/e^2$  (cf. §6.3).

Les exposants critiques présentent eux aussi une forte disparité selon les matériaux<sup>4</sup>, allant par exemple de 0.7 à 1.3 pour l'exposant  $\nu$ . Il apparaît par conséquent difficile d'extraire un caractère universel de cette transition, i.e. indépendante de la nature des matériaux.

### 10.1.3 Discussion

L'hypothèse principale de cette théorie réside dans l'existence de la transition de BKT dans les films minces supraconducteurs. Cette dernière ouvre en effet une gamme de température dans laquelle le paramètre d'ordre est dominé par les fluctuations de sa phase, qui brise le quasi-ordre à longue distance, alors que son amplitude, bien définie, produit un gap dans le spectre des excitations à un électron. Cette hypothèse cruciale est difficilement vérifiable ormis par des mesures de transport non-linéaire à la transition BKT, qui restent toutefois peu concluantes (cf. 9.1.2), ou par des mesures spectroscopiques du gap dans la densité d'états, qui mesurent l'amplitude du paramètre d'ordre. Or, les mesures de spectroscopie tunnel de Valles *et al.* [140] (cf. fig. 5.5) sur des films minces de bismuth amorphe, semblent indiquer que l'amplitude du paramètre d'ordre s'annule à la TSI simultanément avec la suppression de la température critique.

Au vu de ces remarques, nos résultats de spectroscopie tunnel sur *TiN* présentés dans le chapitre 6, apportent une confirmation indiscutable de la présence d'un gap dans la densité d'états à la TSI. Nous avons montré en effet que le rapport gap spectral sur température critique augmente avec le désordre (cf. fig. 6.7). Ceci signifie par conséquent que le gap supraconducteur, qui donne une mesure de l'énergie de condensation d'une paire de Cooper, devient supérieur à la température critique définie par l'établissement de la cohérence de phase. Nous retrouvons ainsi les deux échelles d'énergie indispensables au modèle de fluctuations de phase de Fisher.

Par ailleurs, le caractère inhomogène de la supraconductivité dans les films fortement désordonnés conduit, proche du désordre critique, à un réseau désordonné de jonctions Josephson. Un tel réseau est alors nécessairement sujet aux fluctuations de phase induites par

<sup>3</sup>La recherche de la constante fondamentale  $h/4e^2$  a motivé beaucoup d'études de matériaux différents, notamment à la suite des travaux du groupe de Goldman [62] sur la TSI en épaisseur du bismuth amorphe qui est l'une des rares expériences donnant le quantum de résistance à la transition.

<sup>4</sup>Pour une étude détaillée des lois d'échelles obtenues dans les différents matériaux étudiés jusqu'à ce jour, nous renvoyons le lecteur à la thèse de C. A. Marrache-Kikuchi [94].

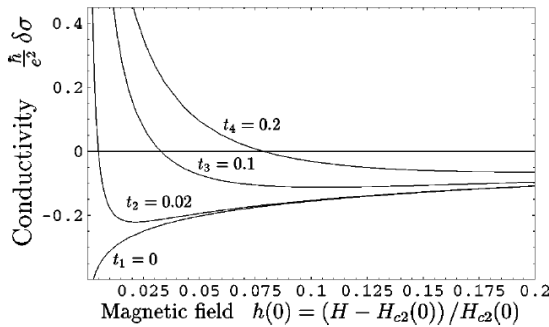


la compétition entre énergie de charge et énergie de couplage Josephson. Une description en terme de bosons sur un réseau désordonné devient alors tout à fait pertinente. Ce raisonnement qui réconcilie l'approche "fermionique" de la théorie de Finkel'stein avec le modèle de fluctuations de phase de Fisher, a notamment été proposé par Skvortsov et Feigel'man [130]. Dans leur modèle (cf. 5.3), les fluctuations mésoscopiques du désordre jouent un rôle crucial à l'approche du désordre critique : elles produisent une phase inhomogène composée d'îlots supraconducteurs sujets aux fluctuations quantiques et thermiques de la phase du paramètre d'ordre.

## 10.2 Fluctuations supraconductrices au-dessus de $H_{c2}(0)$

Nous présentons ici un résultat théorique récent obtenu par Galitski et Larkin [46] concernant la contribution à la conductivité des fluctuations supraconductrices au-dessus de  $H_{c2}(T)$  pour  $T \ll T_c$ . Il nous sera alors utile pour analyser le comportement de la magnétorésistance des échantillons de  $TiN$ .

### Correction à la conductivité de Galitski-Larkin



**FIG. 10.3:** Comportement de (10.6) en fonction du champ magnétique pour différentes températures. D'après [46].

Nous retournons ici dans la théorie des fluctuations supraconductrices de l'amplitude du paramètre d'ordre, mais cette fois-ci, nous allons considérer les fluctuations quantiques à  $T \ll T_c$ , lorsque le système a transité dans l'état normal par l'application d'un champ magnétique perpendiculaire. Ce problème n'a été traité théoriquement que très récemment par Galitski et Larkin [46]. Ils ont calculé, avec un traitement perturbatif, la correction totale à la conductivité tenant compte de toutes les contributions des fluctuations supraconductrices (Aslamasov-Larkin, Maki-Thompson et DOS). En limite sale,

l'expression analytique de cette correction est :

$$\delta\sigma_{GL} = \frac{2e^2}{3\pi^2\hbar} \left[ -\ln \frac{r}{h} - \frac{3}{2r} + \psi(r) + 4[r\psi'(r) - 1] \right] \quad (10.6)$$

où  $\psi$  est la fonction digamma,  $h = \frac{H - H_{c2}(T)}{H_{c2}(0)}$ ,  $r = \frac{1}{2\gamma} \frac{h}{t}$ ,  $t = \frac{T}{T_c}$  et  $\gamma = 1.781$  est la constante d'Euler.

Les dépendances en champ magnétique ainsi qu'en température de (10.6) ont la propriété remarquable d'être non-monotones. Comme le montre la figure 10.3, la correction en champ produit un minimum de conductivité qui peut se traduire par un comportement isolant lorsque  $t$  tend vers zero (cf. pic de magnétorésistance fig. 10.2). Par ailleurs, à basse température, dans la limite où  $t \ll h$ , l'expression (10.6) se réduit à :

$$\delta\sigma_{GL} = -\frac{2e^2}{3\pi^2\hbar} \ln \frac{1}{h} \quad (10.7)$$

Signalons que des résultats analogues (correction négative à la conductivité) existent dans le cas de systèmes granulaires [17].

## Conclusion

Après deux décennies d'étude, la physique régissant la TSI induite par le champ reste, encore à ce jour, un problème non résolu. L'unique signature d'une éventuelle transition de phase quantique continue dans les films minces apparaît dans la loi d'échelle (10.4). Cette dernière révèle cependant une disparité des exposants critiques avec les matériaux étudiés, qui est incompatible avec le caractère supposé universel de cette transition.

Par ailleurs, l'hypothèse essentielle du modèle de fluctuations de phase que nous avons présenté dans ce chapitre, i.e. la persistance du gap dans la DOS à la transition, n'a jamais pu être vérifiée. Les résultats de spectroscopie tunnel de Valles *et al.* [140] obtenus avec des jonctions lithographiées ont, au contraire, suggéré que le gap supraconducteur et la température critique s'annulaient ensemble au désordre critique, infirmant ainsi cette hypothèse.

Nous avons ici discuté les conséquences de nos résultats de spectroscopie tunnel sur cette approche de fluctuation de phase. Contrairement aux conclusions de Valles *et al.*, dans *TiN* et dans *InOx*, l'état supraconducteur est fortement inhomogène et le gap, supraconducteur ou non, persiste jusqu'au désordre critique et a priori au-delà. Ces observations conduisent à une phase binaire composée d'îlots supraconducteurs dans une matrice isolant possédant, elle aussi, un gap (de parité) dans la densité d'états. Dans une telle configuration, les fluctuations quantiques et thermiques de la phase supraconductrice des îlots deviennent alors tout à fait pertinentes. Un mécanisme de TSI régi par la suppression de la rigidité de phase apparaît ainsi envisageable.

Ce chapitre se termine par la présentation des résultats récents de Galitski et Larkin concernant l'effet sur la conductivité des fluctuations supraconductrices au-dessus de  $H_{c2}$ . Leur correction, qui n'est valable qu'à basse température, i.e.  $T \ll T_c$ , considère les fluctuations quantiques du paramètre d'ordre. Elle permet, comme nous allons le voir dans le chapitre suivant, de décrire correctement le pic de magnétorésistance des films de *TiN* peu résistifs, qui entrent, en effet, dans le cadre de cette théorie perturbative.

# Chapitre 11

## Transition Supraconducteur-Isolant induite par le champ

### Sommaire

---

<b>11.1 Echantillon peu résistif de <math>TiN</math></b> . . . . .	<b>138</b>
11.1.1 Magnétorésistance . . . . .	138
11.1.2 Correction quantique de Galitski-Larkin . . . . .	139
11.1.3 Transport non-linéaire . . . . .	140
<b>11.2 Échantillon de <math>TiN</math> proche du désordre critique</b> . . . . .	<b>141</b>
11.2.1 Magnétorésistance géante . . . . .	141
11.2.2 Transport non-linéaire . . . . .	143
<b>11.3 TSI induite par le champ dans <math>InO_x</math></b> . . . . .	<b>144</b>
11.3.1 Magnétorésistance géante . . . . .	144
11.3.2 Sur la dualité "paires de Cooper-vortex" . . . . .	144
11.3.3 Loi d'échelle . . . . .	146

---

## Introduction

Ce chapitre est consacré au comportement en transport de nos échantillons sous champ magnétique perpendiculaire. Nous présenterons, dans un premier temps, le comportement des échantillons de  $TiN$  que nous analyserons dans le cadre de la théorie des fluctuations quantiques supraconductrices de Galitski-Larkin. Concernant l'échantillon  $TiN$  3, son vieillissement l'a conduit à une température critique inférieure à  $200\text{ mK}$ . Nous verrons qu'aussi proche du désordre critique, les effets perturbatifs observés dans  $TiN$  1 et  $TiN$  2 deviennent spectaculaires avec, notamment, une véritable transition dans l'état isolant induite par l'application du champ magnétique. Nous présenterons enfin les mesures de magnétorésistance, tout aussi spectaculaires, obtenues avec l'échantillon d' $InO_x$ .

Les mesures sont, pour la plupart, en configuration 4 fils et ont été obtenues avec un réfrigérateur à dilution, inséré dans une bobine supraconductrice produisant un champ magnétique jusqu'à 16 Tesla.

### 11.1 Echantillon peu résistif de $TiN$

Intéressons-nous, tout d'abord, au comportement des échantillons de  $TiN$  peu résistifs.  $TiN$  1 et  $TiN$  2 ont tous les deux le même comportement en champ magnétique, c'est pourquoi nous ne présenterons ici qu'un des échantillons, en l'occurrence  $TiN$  2.

#### 11.1.1 Magnétorésistance

La figure 11.1 présente les courbes de magnétorésistance de l'échantillon  $TiN$  2, mesurées à différentes températures. Ces courbes ont la propriété remarquable de toutes se croiser en un point. Ce point est associé au champ critique  $H_c$  de la TSI induite par le champ (cf. fig. 10.1). Il sépare en effet la phase supraconductrice de la phase isolante, puisqu'en-dessous de  $H_c$ , la résistance décroît avec la température vers l'état supraconducteur, alors qu'au dessus de  $H_c$ , la résistance augmente lorsque la température diminue.

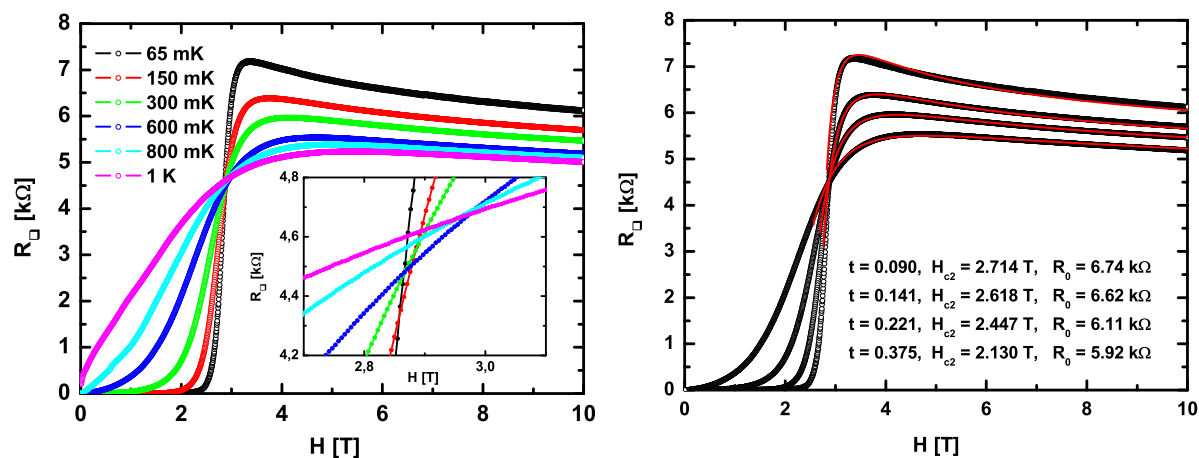


FIG. 11.1: À gauche : magnétorésistance à différentes températures de l'échantillon  $TiN$  2. Insert : agrandissement de la zone de croisement. À droite : mêmes données ajustées avec la correction de Galitski-Larkin (10.6).

Le point de croisement est en principe la signature de l'état métallique présent juste à la transition. Pour le champ appliqué  $H = H_c$ , la résistance est alors indépendante de la température. Une telle situation a été observée dans de nombreux matériaux, par exemple dans  $Nb_xSi_{1-x}$  [11, 94]. Le cas de  $TiN$  est cependant moins clair. Comme le montre l'insert de la figure 11.1, l'agrandissement de cette zone de croisement révèle qu'il n'existe pas de point de croisement unique. Ces courbes étant toutes mesurées avec la même vitesse de montée en champ magnétique, il ne peut s'agir ici d'un problème de mesure. La thermométrie est elle-aussi hors de cause, puisqu'en principe, un point de croisement correspond à une résistance indépendante de la température, et donc de l'étalonnage du thermomètre. L'absence de véritable point de croisement exclut par conséquent toute procédure de scaling de ces données selon la loi d'échelle (10.4).

### 11.1.2 Correction quantique de Galitski-Larkin

Ces échantillons de  $TiN$  étant dans un régime quasi-bidimensionnel fortement sujet aux fluctuations supraconductrices, il est naturel de s'attendre à un régime de fluctuations quantiques au-dessus de  $H_{c2}(0)$ , à  $T \ll T_c$  (cf. §10.2). Nous avons effectivement réussi à reproduire de façon très satisfaisante ces courbes de magnétorésistance avec la correction de Galitski-Larkin (10.6). Cet ajustement, présenté sur la figure 11.1 de droite, reproduit remarquablement la zone de croisements ainsi que le comportement non-monotone de la magnétorésistance. Nous avons optimisé ici, par régression non-linéaire, les paramètres suivants : la résistance sans fluctuation, notée  $R_0$ , la température réduite,  $t = T/T_c$ , et le champ critique  $H_{c2}(T)$ . Les températures extraites ne correspondent cependant aux températures mesurées qu'à basse température. Ceci n'est pas étonnant puisque cette théorie n'est valable que dans la limite  $t \ll 1$  [46]. Notons par ailleurs que  $R_0$  augmente lorsque la température diminue. Une telle augmentation peut être attribuée à la contribution de l'interaction Coulombienne renforcée par le désordre<sup>1</sup> (cf. éq. (5.9)).

La définition du champ critique supérieur  $H_{c2}$  n'est toutefois pas évidente dans un supraconducteur inhomogène. Spivak et Zhou [134] ainsi que Galitski et Larkin [45] ont en effet montré que les fluctuations mésoscopiques du désordre conduisent à une phase inhomogène sous champ magnétique où le champ détruit d'abord les zones supraconductrices les plus faibles. Le système se décrit alors par un réseau désordonné de jonctions Josephon connectant des îlots supraconducteurs, pour lequel  $H_{c2}$  peut augmenter anormalement aux plus basses températures. Ce scénario doit nécessairement être pris en compte dans  $TiN$ .

Malgré tout, il est raisonnable de supposer qu'aux champs suffisamment forts, le système entre dans un régime de fluctuations supraconductrices correctement décrit par la théorie de Galitski-Larkin (cf. §10.2). Au vu de nos ajustements, nous pouvons conclure que la magnétorésistance décroissante aux champs forts résulte de la présence de fluctuations quantiques supraconductrices, persistant jusqu'à des champs très supérieurs à  $H_{c2}$ <sup>2</sup>. Nous avons, par ailleurs, obtenu les mêmes résultats avec l'échantillon  $TiN$  1.

---

<sup>1</sup>Pour une correction à la conductivité en  $\delta\sigma = -\frac{A}{\pi R_Q} \ln \frac{1}{T\tau_e}$ , le préfacteur  $A$  est difficile à déterminer en raison de la faible variation de  $R_0$ . Il est malgré tout plus petit que celui de la divergence de la résistance en température en champ nul (cf. §6.1), puisque la correction de localisation faible est ici annihilée par le champ magnétique intense (cf. §4.1).

<sup>2</sup>La courbe la plus froide de la figure 11.1 a en effet été mesurée et ajustée jusqu'à 16 Tesla.

## 11.1.3 Transport non-linéaire

Le régime de transport non-linéaire s'est avéré très intéressant dans ces échantillons. La résistance différentielle  $R_{\square} = dV/dI$  a, en effet, un comportement non-linéaire fortement marqué. Son évolution pour différents champs magnétiques est présentée sur la figure 11.2. Nous voyons que le comportement non-linéaire s'inverse pour un champ proche du champ  $H_c$  définissant la zone de croisements (cf. fig. 11.1). L'augmentation de la résistance différentielle ( $d^2V/d^2I > 0$ ) avec  $I_{dc}$  pour  $H < H_c$  correspond à la phase supraconductrice, tandis que la diminution de la résistance différentielle ( $d^2V/d^2I < 0$ ) avec  $I_{dc}$  pour  $H > H_c$  correspond à un comportement isolant.

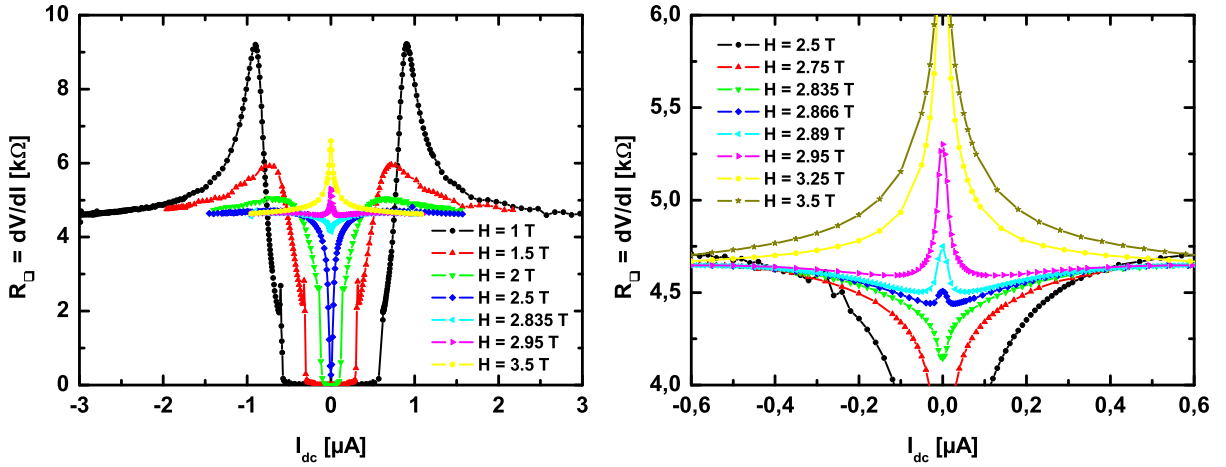


FIG. 11.2: À gauche : résistance différentielle  $R_{\square} = dV/dI$  de l'échantillon TiN 2, mesurée en configuration 4 fils (cf. Annexe A), en fonction du courant continu de polarisation, pour différents champs magnétiques. À droite : agrandissement des mêmes données.

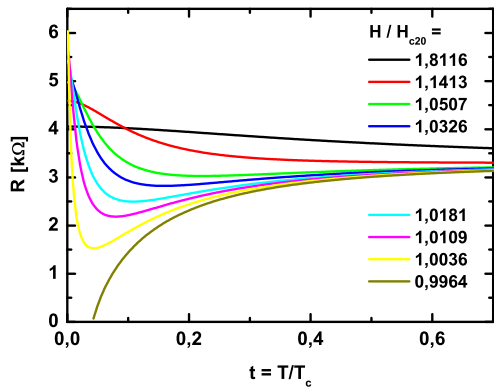


FIG. 11.3: Comportement de (10.6) en fonction de  $t = T/T_c$  pour différents champs magnétiques :  $R = (\sigma_0 + \delta\sigma_{GL})^{-1}$  avec  $\sigma_0^{-1} = 4 \text{ k}\Omega$ .

l'évolution en température<sup>3</sup> de  $H_{c2}(T)$ . Cette dernière présente un comportement non-monotone analogue à celui de la résistance différentielle mesurée. En supposant que la polarisation en

<sup>3</sup> $H_{c2}(T)$  s'obtient en minimisant la fonction  $\ln \frac{T}{T_c} + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{\Omega_H}{8\pi T}\right) - \psi\left(\frac{1}{2}\right) = 0$ , où  $\Omega_H = 4eDH$  [31].

courant continu équivaut à un chauffage du gaz d'électrons, le comportement non-monotone au-dessus de  $H_c$  pourrait alors s'expliquer en terme de fluctuations quantiques supraconductrices. Par ailleurs, l'ajout dans cette simulation de la correction logarithmique à la conductivité de l'interaction Coulombienne ne modifierait pas le comportement non-monotone et accentuerait la divergence à  $T/T_c \rightarrow 0$ . Le traitement théorique d'un tel régime non-linéaire en présence de fluctuations supraconductrices n'a malheureusement jamais été étudié à ce jour.

## 11.2 Échantillon de $TiN$ proche du désordre critique

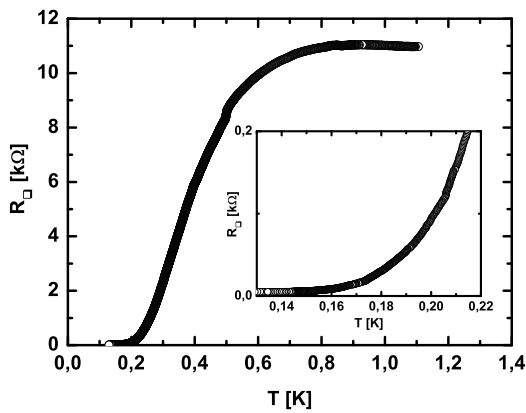


FIG. 11.4: Transition supraconductrice de l'échantillon  $TiN$  3 après vieillissement.

L'échantillon  $TiN$  3 a été mesuré en transport sous champ magnétique un an après les mesures de spectroscopie tunnel. Durant ce laps de temps, l'échantillon a vieilli, devenant plus désordonné qu'à l'origine. La nouvelle transition supraconductrice est présentée figure 11.4. La résistance atteint  $11 k\Omega$  avant la transition et la température critique se situe entre  $150$  et  $200 mK$ . Avec une telle réduction de la température critique, nous disposons d'un échantillon particulièrement proche du désordre critique de la TSI.

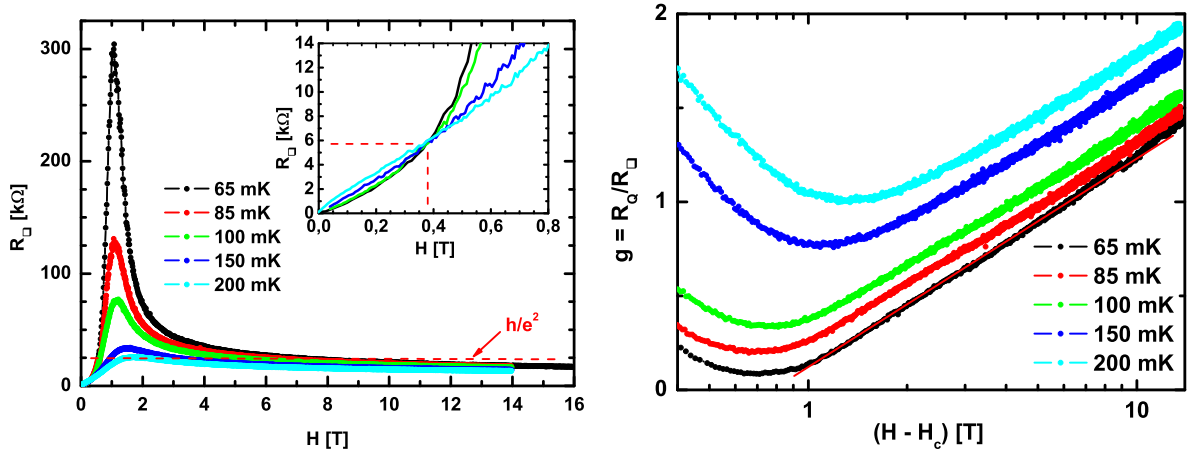
### 11.2.1 Magnétorésistance géante

Comme pour les échantillons peu résistifs  $TiN$  1 et  $TiN$  2, la magnétorésistance, figure 11.5, est non-monotone. Cependant, le pic de magnétorésistance dépasse, cette fois-ci, largement le quantum de résistance  $h/e^2$ , et atteint jusqu'à  $300 k\Omega$  pour la plus basse température mesurée. Cet échantillon est par conséquent suffisamment proche du désordre critique pour nous permettre de mesurer une transition induite par le champ magnétique, entre un état supraconducteur et un état clairement isolant avec  $R_{\square} \gg h/e^2$ .

La zone de croisements à bas champs, observée dans  $TiN$  2, se retrouve aussi dans cet échantillon (cf. insert fig. 11.5)). Bien que la magnétorésistance diverge (de façon exponentielle pour la courbe la plus froide), cette zone apparaît à une résistance  $R_c \approx 5.77 k\Omega$  du même ordre de grandeur que celle des échantillons peu résistifs (cf. tab. 11.1).

Concernant les champs forts, la décroissance du pic de magnétorésistance correspond à une augmentation logarithmique de la conductivité. Tracée sur la figure 11.5 en fonction de  $(H - H_c)$ , où  $H_c$  est le champ magnétique au point de croisement (cf. tab. 11.1), la conductivité adimensionnée suit une loi en  $\delta\sigma = A \ln(H - H_c)$ , avec  $A = 0.487$  pour la courbe la plus froide. Une telle dépendance correspond de façon remarquable à la correction de Galitski-Larkin (10.7) dans la limite  $t \ll h$ , pour laquelle le préfacteur théorique est égal à  $4/3\pi = 0.424$ .





**FIG. 11.5:** À gauche : magnétorésistance de l'échantillon *TiN 3*, mesurée en configuration 2 fils (cf. annexe A), à différentes températures. Insert : agrandissement de la zone de croisement. À droite : conductance adimensionnée (en unité  $e^2/h$ ) des mêmes données, tracée en échelle semi-logarithmique en fonction de  $(H - H_c)$ .

Comment expliquer cette similitude avec une théorie perturbative qui ne s'applique qu'aux faibles corrections dans des échantillons peu résistifs ? Nous avons vu précédemment que le comportement non monotone de la magnétorésistance dans *TiN 2* (cf. fig. 11.1) suit la correction de Galitski-Larkin résultant des fluctuations quantiques supraconductrices. Ici, la similitude avec le comportement des échantillons peu résistifs suggèrent que cette magnétorésistance géante correspond à l'extrapolation aux forts désordres de ce régime de fluctuations supraconductrices<sup>4</sup>. Nous ne pouvons, cependant, pas expliquer pourquoi la dépendance en  $\ln(H - H_c)$  de la conductivité est conservée dans ce régime non perturbatif.

Échantillon	$T_c$ [K]	$H_c$ [T]	$R_c$ [kΩ]
<i>TiN 1</i>	1.3	3.25	3.63
<i>TiN 2</i>	1.0	2.86	4.33
<i>TiN 3</i>	0.15-0.20	0.38	5.77

**TAB. 11.1:**  $T_c$  : température critique définie au pied de la transition ;  $H_c$ , champ critique, et  $R_c$ , résistance critique, définis par le croisement des deux courbes de magnétorésistance les plus froides.

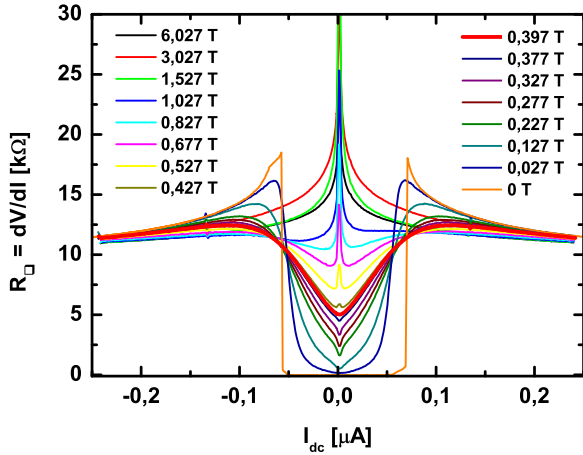
Ayant attribué la décroissance du pic de magnétorésistance à un régime de fluctuations supraconductrices, revenons sur la partie bas champs de ce pic, en particulier la zone de croisements. Aux faibles champs, il est raisonnable de supposer que le paramètre d'ordre supraconducteur est non-nul, tout au moins localement, dans des îlots supraconducteurs résultant des fluctuations mésoscopiques du désordre. Une telle configuration, i.e. un réseau désordonné de jonctions Josephson, entre alors dans le cadre du modèle de Fisher de transition de phase quantique, dominé par les fluctuations de phase (cf. §10.1.2). Ce n'est donc peut-être pas un hasard si les valeurs de la résistance  $R_c$ , obtenues pour les trois échan-

<sup>4</sup>Notons que dans un échantillon de *TiN* tout aussi proche du désordre critique, Baturina *et al.* [15] ont obtenu une décroissance exponentielle de la magnétorésistance que nous n'avons pas réussi à reproduire avec nos données.

tillons et présentées dans le tableau 11.1, tendent de façon remarquable vers le quantum de résistance  $h/4e^2 = 6.45 \text{ k}\Omega$  à l'approche du désordre critique.

Dans une telle situation, l'état isolant correspond à la limite où aucune cohérence de phase n'existe entre les îlots supraconducteurs. Nous reviendrons sur cette état isolant dans l'étude de l'échantillon d' $InO_x$ .

## 11.2.2 Transport non-linéaire



**FIG. 11.6:** Résistance différentielle  $R_{\square} = dV/dI$  de l'échantillon  $TiN\ 2$ , mesurée en configuration 4 fils, en fonction du courant continu de polarisation, pour différents champs magnétiques.

tension en configuration 2 fils. Dans une telle transposition, la conductance différentielle  $dI/dV$  ressemblerait qualitativement à la résistance différentielle  $dV/dI$ , avec un gap de conductance nulle dans la phase isolante ( $H > H_c$ ), défini par une tension critique  $V_c$  (équivalent au courant critique supraconducteur), et un pic de conductance du côté supraconducteur ( $H < H_c$ ). Cette interprétation suggère alors une relation de dualité entre la phase supraconductrice et la phase isolante (cf. §10.1.2), où  $V_c$  serait, pour le condensat de vortex, l'analogue du courant critique du condensat de paires de Cooper. Signalons qu'une tension de seuil  $V_c$  a été observée, en configuration 2 fils, dans la phase isolante induite par le champ dans des échantillons supraconducteurs d' $InO_x$  [117], ainsi que dans des échantillons isolants de  $TiN$  [14].

Comme pour  $TiN\ 2$ , nous avons observé un régime de transport non-linéaire non-monotone pour les champs magnétiques compris entre  $H_c$  et le champ au pic de magnétorésistance. Cette fois-ci, l'effet est beaucoup plus marqué et apparaît précisément à  $H = H_c$ . La courbe rouge de la figure 11.6, correspondant à  $H = H_c$ , délimite la transition entre l'état supraconducteur et l'état isolant. Le changement du signe de  $d^2V/d^2I$  pour  $I_{dc} \rightarrow 0$  coïncide remarquablement avec le croisement des courbes de magnétorésistance les plus froides (cf. insert fig. 11.5)).

Nous pouvons remarquer, par ailleurs, que le pic de résistance différentielle  $dV/dI(I = 0)$  peut aussi se visualiser par un gap dans la courbe de conductance différentielle  $dI/dV(V)$  qui correspondrait à une mesure polarisée en

## 11.3 Transition Supraconducteur-Isolant induite par le champ dans $InO_x$

Nous allons présenter dans cette section le comportement sous champ magnétique de l'échantillon d' $InO_x$  qui présente, rappelons-le, une température critique de  $1.7 K$ . Cet échantillon, qui se distingue des échantillons de  $TiN$  par l'absence de comportement bi-dimensionnel, développe malgré tout, lui-aussi, une magnétorésistance géante induite par le champ magnétique.

### 11.3.1 Magnétorésistance géante

L'application d'un champ magnétique perpendiculaire produit, comme pour  $TiN$ , la transition de l'état supraconducteur vers un état isolant, suivi à plus fort champ d'un état résistif. Sur la figure 11.7 est représenté le pic de magnétorésistance d' $InO_x$ . Ce pic est ici beaucoup plus large que celui de  $TiN$  3 et atteint son maximum de quelques mégaOhms vers  $8.5 T$ . L'augmentation de la conductivité au-delà du pic ne suit pas une loi en  $\ln(H - H_c)$ , caractéristique des systèmes diffusifs bidimensionnels (cf. §10.2). Il n'est donc plus possible d'interpréter la décroissance du pic par les fluctuations quantiques supraconductrices en dimension  $d = 2$ . Par ailleurs, le régime non linéaire présente lui-aussi une inversion de tendance exactement au point de croisement. Cependant, nous n'avons pas observé de comportement non-monotone aussi fort que celui de  $TiN$ , à peine 5% d'effet, et ce, dans une toute petite gamme de champ au-dessus de  $H_c$ . De telles magnétorésistances géantes ont déjà été obtenues dans  $InO_x$  par d'autres groupes [48, 118, 117, 135].

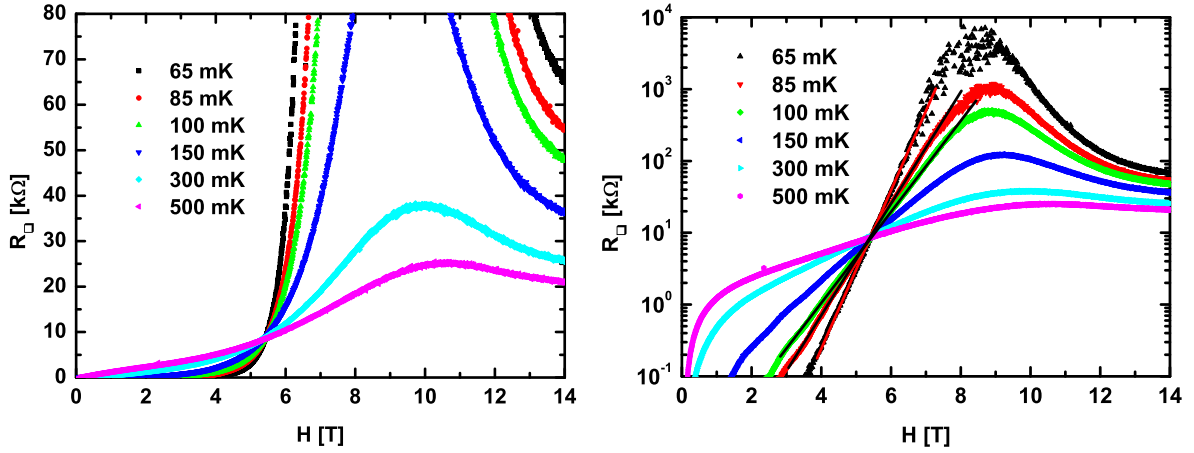


FIG. 11.7: Magnétorésistance de l'échantillon d' $InO_x$ , à différentes températures, en échelle linéaire à gauche, et en échelle semi-logarithmique à droite. La mesure est effectuée en configuration 4 fils polarisée en tension (cf. Annexe A).

### 11.3.2 Sur la dualité "paires de Cooper-vortex"

Nous avons observé un comportement inattendu dans  $InO_x$  concernant le point de croisement qui est bien défini pour les trois courbes les plus froides. La représentation semi-

logarithmique de la figure 11.7 révèle en effet une divergence exponentielle<sup>5</sup> de la résistance autour de ce point de croisement. Ce dernier est alors clairement mis en évidence par l'intersection des trois droites. La divergence exponentielle peut s'écrire :

$$R = R_c \exp\left(\frac{H - H_c}{\alpha(T)}\right), \quad (11.1)$$

où  $(H_c, R_c) = (5.4 T, 8.3 k\Omega)$  sont les coordonnées du point de croisement, et  $\alpha(T)$  une fonction de la température. Sous cette forme, la dépendance en champ magnétique de la résistance n'est pas anodine. Elle implique, en effet, une relation de symétrie remarquable entre la résistance dans la phase supraconductrice ( $H < H_c$ ) et la conductivité dans la phase isolante ( $H > H_c$ ) :

$$\frac{R}{R_c}(H < H_c) = \frac{G}{G_c}(H > H_c) \quad (11.2)$$

*Dans le cadre du modèle bosonique, une telle relation peut s'interpréter comme une signature directe de la dualité entre paires de Cooper et vortex.*

De nombreux travaux ont, en effet, mis en évidence des relations similaires à (11.2) et (11.1), concernant la transition de phase quantique continue entre certains plateaux de l'effet Hall quantique entier et de l'effet Hall quantique fractionnaire dans les gaz d'électrons bidimensionnels [125, 124, 122, 128, 132]. Cette transition entre les états de Hall et les états isolants, induite par la variation du facteur de remplissage  $\nu_B$  des niveaux de Landau, présente de nombreuses similitudes théoriques avec la TSI induite par le champ. Il s'agit dans les deux cas de systèmes électroniques bidimensionnels sous champ magnétique perpendiculaire. L'effet Hall quantique peut se décrire en terme de bosons composites qui seraient l'association d'un électron avec un quantum de flux magnétique [77]. Dans cette description, de façon similaire au modèle de Fisher, les bosons composites superconduisent dans l'état conducteur (e.g. résistivité longitudinale nulle sur le plateau de Hall de remplissage  $\nu_B = 1$ ) et les vortex sont localisés par le désordre, alors que l'état isolant correspond à la délocalisation des vortex et la localisation des bosons. Nous retrouvons ici, comme pour la TSI, une relation de dualité entre le rôle des bosons et celui des vortex. Shimshoni *et al.* [128] ont montré que cette dualité se reflète dans les propriétés de transport par une symétrie de réflexion entre la phase supraconductrice et la phase isolante :  $\rho_{xx}(\Delta\nu_B) = 1/\rho_{xx}(-\Delta\nu_B)$ , où  $\Delta\nu_B = \nu_B - \nu_B^c$  et  $\nu_B^c$  est le facteur de remplissage critique à la transition. Cette symétrie de réflexion apparaît clairement dans notre échantillon avec la relation (11.2). *Notre mesure constitue la première observation d'une signature de la dualité paires de Cooper-vortex dans la TSI induite par le champ magnétique, confirmant ainsi le modèle de transition de phase quantique proposé par Fisher.*

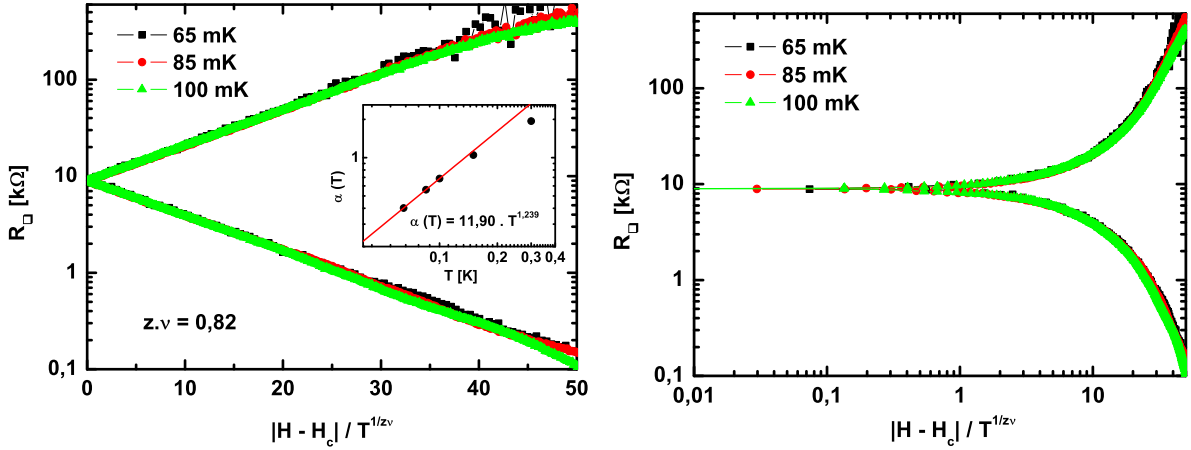
La divergence exponentielle de la résistance a aussi été observée pour *TiN* 3, mais seulement pour la courbe la plus froide. Ce comportement n'apparaissant qu'aux plus basses températures, i.e.  $T \ll T_c$ , il est difficile de le mettre en évidence avec une température critique aussi faible que 200 mK. Notons, par ailleurs, que les échantillons peu résistifs de *TiN* ne présentent pas de divergence exponentielle de la résistance en fonction du champ magnétique.

---

<sup>5</sup>Notons toutefois qu'avec des échantillons similaires, le groupe de D. Shahar a obtenu une dépendance en loi de puissance de la résistance autour du point de croisements [119]. Ces résultats contradictoires sont difficiles à expliquer.

### 11.3.3 Loi d'échelle

Dans l'équation (11.1), si  $\alpha(T)$  suit une loi de puissance, la loi (10.4) de "finite-size scaling",  $R = R_c f(\delta T^{-\frac{1}{z\nu}})$ , est nécessairement vérifiée. La fonction  $f$  est alors une simple exponentielle. L'évolution de  $\alpha(T)$ , extraite des pentes de la figure 11.7 de droite, peut effectivement se décrire par une loi de puissance pour les trois températures les plus froides ( $T \leq 100 \text{ mK}$ ). Nous avons reporté cette évolution sur l'insert de la figure 11.8 de gauche ainsi qu'un ajustement en loi de puissance donnant  $\alpha(T) \approx 11.90 T^{1.239}$ , soit  $z\nu = 0.81 \pm 0.01$ . De cette estimation du produit des exposants critiques, nous pouvons retracer, sur cette même figure, les trois courbes de magnétorésistance les plus froides en fonction de la variable d'échelle  $X = |H - H_c|/T^{1/z\nu}$ . Les courbes se superposent alors comme prévu selon deux branches, la branche supraconductrice qui diverge vers  $R \rightarrow 0$  et la branche isolante qui diverge vers  $R \rightarrow \infty$ . Ces deux branches sont parfaitement symétriques par rapport à la valeur de la résistance critique au point de croisement. La représentation logarithmique montre, par ailleurs, que ce scaling est vérifié pour une grande gamme de résistances et d'écart au point critique  $X$ . Les deux représentations de la figure 11.8 mettent, par conséquent, en évidence, de façon claire, la symétrie de réflexion résultant de la dualité paires de Cooper-vortex.



**FIG. 11.8:** Renormalisation des courbes de magnétorésistance en fonction du paramètre  $X = |H - H_c|/T^{1/z\nu}$ . Les exposants critiques  $z\nu$  sont extraits de l'évolution en température du paramètre  $\alpha(T)$  de l'équation (11.1), présentée dans l'insert. À gauche : représentation semi-logarithmique mettant en évidence la dépendance exponentielle autour du point de croisements. À droite : représentation logarithmique.

Notons, par ailleurs, que la résistance critique au point de croisement est proche du quantum de résistance  $h/4e^2$ . La valeur de  $R_c = 8.3 \text{ k}\Omega$  que nous présentons est ici une estimation car le nombre de carrés est délicat à déterminer précisément avec la croix de Hall que nous avons utilisée (cf. fig. 3.2).

Le produit d'exposants  $z\nu \approx 0.8$  est difficile à interpréter, d'autant que la plupart des études sur ce matériau ont donné des exposants  $z \approx 1$  et  $\nu \approx 1.3$  [63, 47]. Rappelons qu'une valeur de  $\nu$  égale à  $4/3$  est attendue pour une transition de percolation classique [127]. Étant donné la nature fortement inhomogène de la supraconductivité en champ nul, nous aurions

pu prédire un tel exposant de percolation pour notre échantillon. Cependant, comme nous l’a montré la dépendance en température de la conductance tunnel différentielle, l’établissement de l’état supraconducteur ne résulte pas d’un processus de percolation, puisque la cohérence de phase apparaît à la même température quelque soit la valeur du gap supraconducteur et la position (cf. §7.3). La raison profonde en serait la nature fractale des fonctions d’ondes à la transition d’Anderson. Ces dernières ne peuvent plus, en effet, se décrire par des volumes de localisation couplés à un petit nombre de voisins. Elles possèdent, du fait de leur nature fractale, un grand nombre de coordinations qui les rend difficilement compatibles avec un mécanisme de percolation (cf. §7.3.3). L’évolution en champ magnétique de ce régime fractal reste à étudier théoriquement. Une telle étude permettrait peut-être de justifier la différence entre notre estimation des exposants critiques et les résultats donnant  $z\nu \approx 1.3$ . Notons, par ailleurs, que notre valeur de  $z\nu$  est proche des valeurs obtenues dans les films de bismuth amorphe [93] et récemment dans les films de niobium-silicium [11, 94], qui étaient de l’ordre de 0.7.

## Conclusion

Nous avons eu la chance, dans cette thèse, de disposer des deux seuls matériaux connus à ce jour,  $TiN$  et  $InO_x$  amorphe, qui présentent, pour les échantillons proches du désordre critique, une magnétorésistance géante. Dans chacun d’eux, nous avons mis en évidence, en champ nul, l’inhomogénéité de la phase supraconductrice résultant des fluctuations mésoscopiques du désordre. Cette inhomogénéité se traduit par une phase binaire composée de zones supraconductrices et de zones isolantes. Rappelons que les zones isolantes résultent de l’appariement d’électrons dans un volume de localisation, là où le désordre est plus prononcé.

Le lien entre les inhomogénéités et la réponse disproportionnée de la résistance à l’application d’un champ magnétique peut s’expliquer dans un cadre général. Dans un article récent, Dagotto [29] met en lumière l’importance cruciale du désordre dans les systèmes d’électrons fortement corrélés. Lorsque ceux-ci sont situés à la frontière entre deux états fondamentaux, des effets aussi impressionnants que la magnétorésistance géante de nos films, peuvent se manifester. Citons, par exemple, le cas de la magnétorésistance colossale dans les manganites, qui s’observe pour des dopages intermédiaires entre la phase métallique ferromagnétique et la phase isolante antiferromagnétique [30]. Le cas de l’effet de proximité géant, observé dans certains supraconducteurs à haut- $T_c$ , est tout aussi remarquable [23]. Lorsque la barrière d’une jonction Josephson est formée avec un cuprate non-supraconducteur, dont le dopage le situe entre l’isolant de Mott antiferromagnétique et la phase supraconductrice, un supercourant peut circuler pour des épaisseurs de barrière anormalement grandes. D’après Dagotto [29], ces deux exemples sont caractéristiques de la formation d’une phase binaire inhomogène, composée, à petite échelle, de domaines de chacune des deux phases en compétition. L’origine de cette phase binaire est la nature inhomogène du désordre qui génère inévitablement des zones plus ou moins désordonnées favorables à l’une ou l’autre des deux phases.

Le cas de nos films minces, à la limite entre l’état supraconducteur et l’état isolant, s’inscrit parfaitement dans cette problématique. La magnétorésistance géante induite par le champ dans  $TiN$  et  $InO_x$  peut, en effet, s’interpréter comme une conséquence de la coexistence de la phase supraconductrice et de la phase isolante. Proche du désordre critique,



l'état supraconducteur à champ nul s'établit par un réseau de jonctions Josephson reliant les îlots supraconducteurs. Ces liens faibles, qui court-circuitent la matrice isolante, sont alors détruits par l'application d'un champ magnétique, laissant place, à température nulle, à un isolant de nature bosonique.

D'un point de vue plus microscopique, l'une des questions majeures posée par cette magnétorésistance géante est de savoir si le gap dans la densité d'états reste fini ou non. S'il se ferme, la magnétorésistance géante doit nécessairement faire intervenir un second canal de transport d'excitations fermioniques [32]. Dans le cas contraire, seules les excitations bosoniques sont à prendre en compte, et une description en terme d'îlots supraconducteurs dans une matrice isolante conduit nécessairement à une transition dominée par les fluctuations de phase. Malheureusement, il n'existe pas, à ce jour, de modèle microscopique ou d'étude numérique de l'état supraconducteur BCS proche du désordre critique et en présence de champ magnétique. Seule la théorie effective de bosons en interaction dans un potentiel désordonné, proposée par Fisher, nous donne une description de ce régime en champ magnétique.

Expérimentalement, une cartographie STM de la densité d'états dans ces systèmes apparaît comme l'une des perspectives les plus prometteuses pour explorer cette transition supraconducteur-isolant induite par le champ magnétique. Une telle mesure nécessite, cependant, une instrumentation complexe alliant un système de dépôt sous ultra-vide couplé à un STM en dilution et en présence de champ magnétique intense. Signalons que des projets de ce type sont en cours de développement dans d'autres groupes, et qu'ils apporteront sans doute, à l'avenir, des réponses sur la nature de cet état isolant, ainsi que sur la nature de la phase résistive apparaissant au point de croisements des courbes de magnétorésistance.



# Conclusion générale

Nous avons présenté, dans ce manuscrit, une étude de spectroscopie tunnel à balayage alliée à des mesures de transport, sur des films minces supraconducteurs proches de la Transition Supraconducteur-Isolant.

Une partie non négligeable du travail effectué durant cette thèse, soit environ une année sur trois, a toutefois été orientée dans d'autres directions. La spectroscopie avec un STM en dilution est une technique expérimentale très complexe, mais malgré tout très courtisée, notamment pour l'étude et la caractérisation des nouveaux matériaux supraconducteurs. Nous avons, en effet, étudié le diamant dopé au bore qui présente de nombreuses signatures d'une supraconductivité conventionnelle de symétrie  $s$ . La qualité de surface de ce matériau nous a permis d'observer le réseau de vortex d'Abrikosov et d'obtenir la spectroscopie du coeur d'un vortex à  $50\text{ mK}$ . Cette dernière a révélé, notamment, la présence d'états de coeur inattendus pour un tel supraconducteur en limite sale [115]. Nous nous sommes aussi frottés à la physique des fermions lourds en tentant de mesurer le gap supraconducteur du composé  $URhGe$ . L'état de surface de l'échantillon et sa température critique ( $T_c \approx 300\text{ mK}$ ) à la limite de résolution du STM n'a pas conduit au succès escompté. Dans un tout autre contexte, nous avons mesuré l'effet de proximité à travers plusieurs plans de graphène, lorsque ceux-ci sont déposés sur un substrat supraconducteur, en l'occurrence du niobium. Ce type d'échantillon est très prometteur car il offre une surface particulièrement propre et, de surcroît, supraconductrice.

Mais le sujet dominant de ce travail de thèse a été incontestablement la Transition Supraconducteur-Isolant dans les films minces désordonnés. Cette transition concentre une quantité de problématiques physiques aussi riches les unes que les autres. Rappelons en effet qu'elle s'inscrit dans la problématique de la transition d'Anderson, à laquelle il faut ajouter, d'une part le rôle de l'interaction Coulombienne, et d'autre part l'instabilité supraconductrice. Le STM en dilution nous a alors permis d'explorer localement le spectre des excitations électroniques de basse énergie dans des films minces supraconducteurs proches du désordre critique de la TSI. Ce spectre apporte des informations capitales sur la physique des phases observées. Par exemple, la présence d'un gap ou au contraire une densité d'états non nulle au niveau de Fermi conditionne la nature des excitations mises en jeu. En l'occurrence, un gap dans la densité d'états signifie qu'il n'y a pas d'excitations fermioniques et que la physique à la TSI peut se décrire par un modèle effectif de bosons en interaction.

Nous avons eu la chance, dans cette thèse de pouvoir étudier les deux seuls matériaux connus,  $TiN$  et  $InO_x$  amorphe, qui présentent une transition proche du seuil de localisation, ainsi qu'une magnétorésistance géante à basse température. Notre étude de spectroscopie tunnel à balayage est une première sur les films minces proches de la TSI. Même si ce type d'étude nécessite, dans l'idéal, un système de dépôt sous ultra-vide couplé au STM, nous avons pu obtenir, malgré des surfaces oxydées, des conditions tunnel satisfaisantes, donnant

lieu à des résultats de spectroscopie tout à fait exploitables.

Concernant l'instrumentation, plusieurs progrès notables ont été réalisés au cours de cette thèse. Nous avons d'une part définitivement réglé un problème de bouchage de la dilution qui limitait les refroidissements à cinq jours, et d'autre part développé un système de contrôle crucial, évitant le crash de la pointe lors du refroidissement. En plus de la maintenance du microscope (fabrication des moteurs piézoélectriques, câblage ...), nous avons développé des filtres hautes fréquences, qui associés à un nouveau convertisseur courant-tension en cours de développement, devrait, en principe, améliorer la résolution énergétique du STM.

## Résultats

Avec cette étude de spectroscopie tunnel, l'inhomogénéité spatiale du gap supraconducteur, produite par les fluctuations mésoscopiques du désordre, a été mise en évidence dans des films minces de  $TiN$  proches du désordre critique de la TSI. Ces fluctuations spatiales sont la conséquence de la réduction Coulombienne de la température critique, qui conduit, au gré des fluctuations du désordre, à des fluctuations spatiales du gap supraconducteur. L'étude systématique de trois échantillons de  $TiN$  nous a permis d'obtenir l'évolution de ces fluctuations avec l'augmentation de la résistance, i.e. du désordre. Nos résultats confirment les travaux théoriques récents de Skvortsov et Feigel'man [130], prédisant une augmentation des inhomogénéités supraconductrices à l'approche de la conductance critique. Par ailleurs, l'augmentation, avec le désordre, du rapport gap spectral sur température critique, traduit le fait que le gap ne peut plus être directement associé au paramètre d'ordre supraconducteur, lorsque le désordre est important. L'extrapolation de ce rapport au désordre critique conduit, par ailleurs, à un résultat capital pour la TSI : l'amplitude du gap ne s'annule pas à la transition. Elle persiste même du côté isolant, comme en témoigne les lois d'activation simples de la résistance. Ainsi, l'hypothèse essentielle du modèle de fluctuation de phase est ici vérifiée. La phase isolante est vraisemblablement d'origine supraconductrice, formée d'îlots supraconducteurs sans cohérence de phase macroscopique.

À partir des mesures de notre collaboratrice T. Baturina, nous avons analysé la TSI induite par le désordre dans les échantillons de  $TiN$  avec les théories de localisation. Ces théories conduisent à un critère simple gouvernant la TSI : l'état fondamental est supraconducteur si la longueur de cohérence supraconductrice est inférieure à la longueur de localisation. Dans  $TiN$ , nous sommes en effet arrivés à la conclusion, qu'à la transition supraconductrice de l'échantillon le plus proche du désordre critique, les trois échelles d'énergie caractéristiques du problème, à savoir le gap supraconducteur, l'énergie de Thouless du volume de localisation et l'écart moyen entre niveaux, sont toutes du même ordre de grandeur. Ceci résulte du fait que l'échantillon de  $T_c \sim 0$ , atteint le quantum de résistance  $h/e^2$  avant de transiter. Nous en avons alors déduit un diagramme de phase décrivant la TSI dans  $TiN$  à l'aide de ces arguments d'échelles entre les énergies du problème.

Au dessus de la température critique, le régime de fluctuations supraconductrices s'est révélé dans la densité d'états (DOS) par un pseudogap qui persiste particulièrement loin de la transition. Ce pseudogap, dont la profondeur augmente avec le désordre, suit une loi remarquable en  $\ln \ln \frac{T}{T_c}$  au niveau de Fermi. Bien que le renforcement de l'interaction Coulombienne par le désordre puisse, lui-aussi, créer une anomalie de la DOS, seule la théorie des fluctuations supraconductrices peut justifier une telle évolution en température. Par conséquent, nous avons ici, de même qu'en transport, une preuve que les fluctuations

supraconductrices peuvent modifier significativement les propriétés de la phase normale remarquablement loin de la transition. Le rôle de l'interaction Coulombienne dans ce régime reste cependant à éclaircir.

Concernant  $InO_x$ , les inhomogénéités du gap supraconducteur, que nous avons mesurées, sont d'autant plus pertinentes que ce matériau est considéré comme parfaitement amorphe. Nous avons cependant été confronté à une spectroscopie inattendue. Dans la phase supraconductrice, en plus des gaps supraconducteurs, une quantité importante de gaps de forme rectangulaire, sans pics de cohérence, a été mesurée. Cette forme rectangulaire apparaît, en outre, de façon remarquable dans l'évolution en température de la conductance tunnel différentielle au-dessus de  $T_c$ . Dans la littérature, il n'existe qu'un seul article théorique, proposé par Feigel'man *et al.* [39], qui prédit de tels spectres. Ces gaps seraient alors la signature spectrale de paires d'électrons localisées. Dans cette approche, le rôle de la nature fractale des fonctions d'ondes à la transition d'Anderson est crucial et peut se traduire, dans nos mesures, par l'apparition de la cohérence de phase locale et macroscopique à une température unique, indépendante des fluctuations du paramètre d'ordre.

Nous avons eu la chance de mesurer une magnétorésistance géante dans des échantillons suffisamment proche du désordre critique. Depuis ses premières observations dans les années 2000, ce comportement sans commune mesure est une énigme pour les théoriciens de la supraconductivité. La question clef est en effet de savoir quelle est la nature de la phase isolante, bosonique ou fermionique. La forte inhomogénéité de la phase supraconductrice apporte alors un éclairage nouveau. La magnétorésistance géante peut s'interpréter comme la conséquence de la formation d'une phase binaire composée d'îlots supraconducteurs dans une matrice isolante. L'état supraconducteur à bas champ est alors construit sur un réseau désordonné de jonctions Josephson. Le champ magnétique détruit ces liens faibles laissant place à la phase isolante. De tels phénomènes anormalement forts apparaissent, de façon générale, dans des échantillons situés à la limite d'une transition entre deux états en compétition, et pour lesquels le désordre génère une phase inhomogène composée de chacun des deux états.

Concernant le comportement autour du point de croisement, nous entrons là dans une physique avec peu de description théorique. Nous avons toutefois observé une signature de la théorie de Fisher, appelé aussi "dirty bosons model" : la dualité charge/flux ou paire de Cooper/vortex. Cette dualité a été le sujet de nombreux débats dans le cadre de la transition métal-isolant apparaissant entre certains plateaux de l'effet Hall quantique entier et fractionnaire. Nous avons ici, avec  $InO_x$ , une preuve expérimentale remarquable de cette dualité. Nous n'avons eu, malheureusement, qu'un seul film supraconducteur dans notre lot d'échantillons. De tels résultats méritent en effet une confirmation dans un autre échantillon et peut-être des mesures à plus basses températures.

## Questions ouvertes et perspectives

Ces résultats apportent aussi leur lot de questions :

- Pourquoi pour  $TiN$  les théories perturbatives marchent-elles au-delà de leur domaine de validité? Cette question est valable pour toutes les propriétés de transport mais aussi pour le pseudogap de fluctuations dans les échantillons de  $TiN$ .
- Est-ce que notre analyse de TSI à champ nul régie par la localisation peut s'appliquer

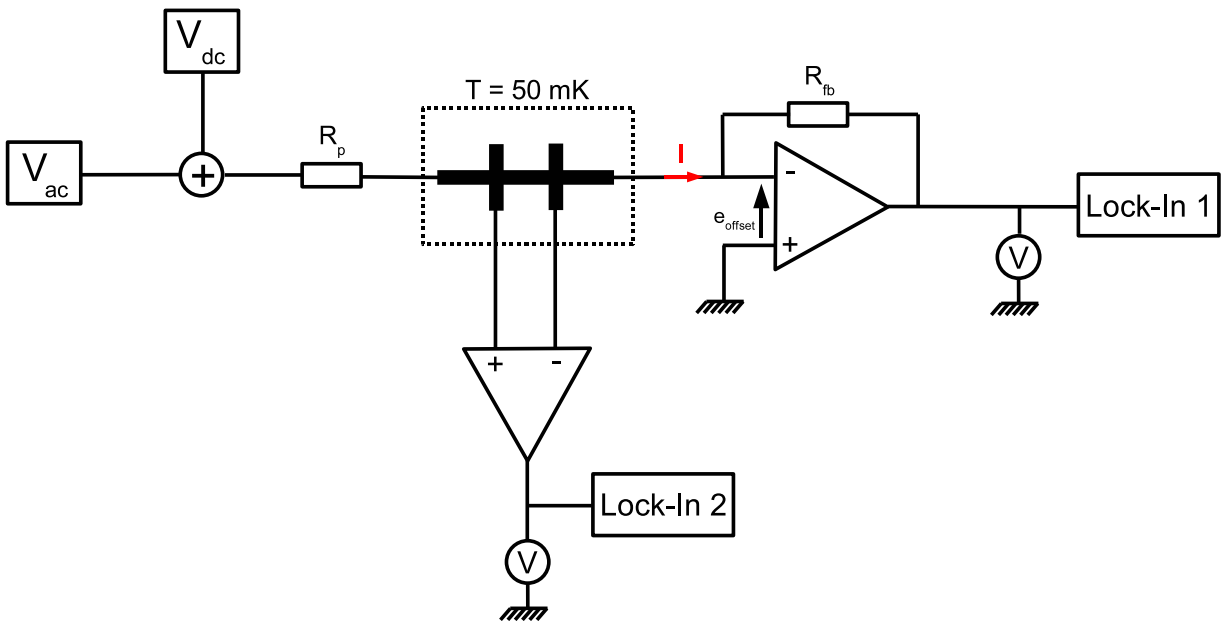
- aux autres matériaux qui présentent une conductance critique (apparente) élevée ?
- Le cas d' $InO_x$  semble particulier puisque nous n'avons retrouvé aucune signature d'un régime diffusif bidimensionnel. Le système est peut être tridimensionnel du point de vue de la localisation. Une description tenant compte de la nature fractale des fonctions d'ondes, pourrait être pertinente et justifierait les gaps rectangulaires. Mais alors pourquoi retrouve-t-on un point de croisement dans les courbes de magnéto-résistance, caractéristique des films minces quasi-bidimensionnels ?

Ces deux premières questions appellent des réponses théoriques. Par contre, le cas d' $InO_x$  pose le problème de la nature fractale des fonctions d'onde. Une question délicate est de savoir qu'elle est la gamme de désordre autour de la région critique de la transition d'Anderson où les fonctions sont effectivement fractales. Il est évident que la seule façon de mettre en évidence cette fractalité est de mesurer la cartographie complète de la densité d'états dans la phase supraconductrice. Une telle étude nécessite cependant une surface chimiquement inerte pour être mesurée avec notre STM. L'espoir viendra peut-être avec les films minces de diamant dopé bore qui présentent une transition de Mott-Anderson, mais surtout une surface indestructible et relativement inerte. Par ailleurs, l'évolution de la densité d'états sous champ magnétique et notamment le comportement du réseau de vortex offre, là-aussi, un domaine d'exploration entièrement vierge.

Une autre problématique, concerne la transition de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless. À ce jour, les preuves de son existence dans les films minces sont toutes indirectes, et, pour la plupart, peu convaincantes. Si des paires, thermiquement activées, de vortex-antivortex liés sont présentes dans la phase supraconductrice, et si celles-ci sont ancrées par le désordre, il est alors en principe possible de les observer par spectroscopie à balayage. Une telle observation rendrait difficilement contestable cette description de la transition supraconductrice dans les films minces.

## Annexe A

# Méthodes de mesure de résistances hautes impédances



**FIG. A.1:** Schéma de principe de la mesure de résistance.  $V_{ac}$  et  $V_{dc}$  sont des sources de tension respectivement alternative et continue.  $R_p$  est la résistance de polarisation de l'ordre de  $10^7 - 10^8 \Omega$ . Le gain du convertisseur courant-tension est donné par  $R_{fb}$  de l'ordre de  $10^7 - 10^8 \Omega$ .  $V$  représente un voltmètre et Lock-In une détection synchrone.

La figure A.1 présente le schéma de principe de notre méthode de mesure de résistance. Le courant est systématiquement mesuré à l'aide d'un convertisseur courant-tension de transimpédance  $R_{fb} = 10^7 - 10^8 \Omega$ , fabriqué au laboratoire (cf. convertisseur courant-tension du STM §1.3.2). Étant donné que les échantillons de hautes impédances sont fortement non-linéaires, il est capital de compenser, à l'aide de la source de tension continue  $V_{dc}$ , la tension d'offset à l'entrée de ce convertisseur qui est de quelques centaines de microVolts. Par ailleurs, pour s'assurer que tout le courant traverse l'échantillon, il est indispensable d'utiliser, pour la mesure de tension aux bornes de l'échantillon, un amplificateur différentiel de haute impédance d'entrée (typiquement  $10^8 \Omega$ ). Nous avons utilisé pour nos mesures

l'amplicateur différentiel bas-bruit Stanford SR560. Les mesures de courant et de tension continus sont obtenues avec deux multimètres Agilent 34401A (notés  $V$  sur le schéma). Les deux détections synchrones Stanford SR830 mesurent les courants et tensions alternatifs.

À partir de ce schéma, nous pouvons décliner trois configurations différentes.

**1. Configuration 4 fils polarisée en courant :**

L'échantillon est polarisé en courant en appliquant une tension alternative à la résistance  $R_p$  en série avec l'échantillon. Le courant et la tension alternative sont mesurés par les deux détections synchrones. Cette méthode est utilisée pour les basses et moyennes impédances.

**2. Configuration 2 fils polarisée en tension :**

L'échantillon est polarisé en tension en appliquant une tension alternative de l'ordre du microVolts directement aux bornes de l'échantillon (sans  $R_p$ ). Le courant alternatif traversant l'échantillon est alors mesuré par une détection synchrone. Cette méthode est adaptée pour la mesure des hautes impédances. Elle ne permet, cependant, pas de s'affranchir des résistances de contact dont la dépendance en température et en champ magnétique peut interférer avec la mesure de l'échantillon. Par ailleurs, elle ne permet pas, non plus, de remonter à la résistance par carré.

**3. Configuration 4 fils polarisée en tension :**

Une méthode alternative que nous avons utilisée dans cette thèse, consiste à mesurer la chute de potentiel aux bornes de l'échantillon en polarisant l'échantillon en tension. On s'affranchit ainsi des deux inconvénients de la configuration 2 fils. La mesure devient indépendante de la résistance des contacts et elle permet d'accéder à la résistance par carré du film mince.

Les mesures de transport non-linéaire s'obtiennent avec la configuration 4 fils, en appliquant une rampe de courant continu à l'aide de la source de tension continue et de la résistance de polarisation  $R_p$ . Les courants et tensions, continus et alternatifs, sont alors mesurés pour chaque incrément de courant appliqué, ce qui permet d'accéder à la caractéristique  $V(I)$  et à la résistance différentielle  $R = dV/dI$ .

Tous les instruments sont interfacés par liaison GPIB avec le logiciel TestPoint (Keithley).

# Bibliographie

- [1] ABRAHAMS, E., ANDERSON, P. W., LICCIARDELLO, D. C., AND RAMAKRISHNAN, T. V. Scaling theory of localization : Absence of quantum diffusion in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.* 42, 10 (1979), 673–676.
- [2] ABRAHAMS, E., KRAVCHENKO, S. V., AND SARACHIK, M. P. Metallic behavior and related phenomena in two dimensions. *Rev. Mod. Phys.* 73, 2 (2001), 251–266.
- [3] ABRIKOSOV, A. A. *Sov. Phys. JETP* 5 (1957), 1174.
- [4] AKKERMANS, E., AND MONTAMBAUX, G. *Physique mésoscopique des électrons et des photons*. EDP Sciences/CNRS Éditions, 2004.
- [5] ALTSHULER, B. L., AND ARONOV, A. G. *Electron-Electron Interaction in Disordered Conductors*. edited by A.L. Efros and M. Pollak (Amsterdam : Elsevier Scientific Publishing), 1985.
- [6] ALTSHULER, B. L., VARLAMOV, A. A., AND REIZER, M. Y. Interelectron effects and the conductivity of disordered two-dimensional electron systems. *Sov. Phys. JETP* 57, 6 (1983), 1329.
- [7] ANDERSON, P. W. *Phys. Rev.* 102 (1958), 1008.
- [8] ANDERSON, P. W. *J. Phys. Chem. Solid* 11 (1959), 26.
- [9] ASLAMASOV, L., AND LARKIN, A. I. *Sov. Phys. Solid State* 10 (1968), 875.
- [10] ASLAMASOV, L., AND LARKIN, A. I. *Phys. Lett.* 26A (1968), 238.
- [11] AUBIN, H., MARRACHE-KIKUCHI, C. A., POURRET, A., BEHNIA, K., BERGE, L., DUMOULIN, L., AND LESUEUR, J. Magnetic-field-induced quantum superconductor-insulator transition in  $Nb_{0.15}Si_{0.85}$ . *Phys. Rev. B* 73, 9 (2006), 094521.
- [12] BARTOSCH, L., AND KOPIETZ, P. Zero bias anomaly in the density of states of low-dimensional metals. *Eur. Phys. J. B* 28 (2002), 29.
- [13] BATURINA, T. I., ISLAMOV, D. R., BENTNER, J., STRUNK, C., BAKLANOV, M. R., AND SATTA, A. Superconductivity on the localization threshold and magnetic-field-tuned superconductor-insulator transition in TiN films. *JETP Lett.* 79 (2004), 337–341.
- [14] BATURINA, T. I., MIRONOV, A. Y., VINOKUR, V. M., BAKLANOV, M. R., AND STRUNK, C. Localized superconductivity in the quantum-critical region around the disorder-driven superconductor-insulator transition. *Cond-mat/0705.1602* (2007).
- [15] BATURINA, T. I., STRUNK, C., BAKLANOV, M. R., AND SATTA, A. Quantum metallicity on the high-field side of the superconductor-insulator transition. *Physical Review Letters* 98, 12 (2007).



- [16] BEASLEY, M. R., MOOIJ, J. E., AND ORLANDO, T. P. Possibility of vortex-antivortex pair dissociation in two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.* *42*, 17 (1979), 1165–1168.
- [17] BELOBORODOV, I. S., EFETOV, K. B., AND LARKIN, A. I. Magnetoresistance of granular superconducting metals in a strong magnetic field. *Phys. Rev. B* *61*, 13 (2000), 9145–9161.
- [18] BELOGOLOVSKII, M. A., KHACHATUROV, A. I., AND CHERNYAK, O. I. Effects of fluctuations on the tunneling conductance of tin films. *Sov. J. Low Temp. Phys.* *12*, 6 (1986), 357.
- [19] BEREZINSKII, V. L. *Sov. Phys. JETP Lett.* *34* (1971), 610.
- [20] BERGMANN, G. Amorphous metals and their superconductivity. *Physics Reports* *27* (1976), 159–185.
- [21] BINNIG, G., AND ROHRER, H. Scanning tunneling microscopy—from birth to adolescence. *Rev. Mod. Phys.* *59*, 3 (1987), 615–625.
- [22] BLADH, K., GUNNARSSON, D., HÜRFELD, E., DEVI, S., KRISTOFFERSSON, C., SMALANDER, B., PEHRSON, S., CLAESON, T., AND DELSING, P. Comparison of cryogenic filters for use in single electronics experiments. *Rev. Sci. Instr.* *74*, 3 (2003), 1323.
- [23] BOZOVIC, I., LOGVENOV, G., VERHOEVEN, M. A. J., CAPUTO, P., GOLDOBIN, E., AND BEASLEY, M. R. Giant proximity effect in cuprate superconductors. *Phys. Rev. Lett.* *93*, 15 (2004), 157002.
- [24] CHA, M.-C., FISHER, M. P. A., GIRVIN, S. M., WALLIN, M., AND YOUNG, A. P. Universal conductivity of two-dimensional films at the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. B* *44*, 13 (1991), 6883–6902.
- [25] CHAIKIN, P. M., AND LUBENSKY, T. C. *Principles of condensed matter physics*. Cambridge University Press, 2000.
- [26] COLONNA-ROMANO, L., PIERSON, S. W., AND FRIESEN, M. Dynamic scaling theory of the kosterlitz-thouless-berezinskii transition : ubiquitous finite size effects. *Cond-mat/0009226* (2000).
- [27] CROMMIE, M. F., LUTZ, C. P., AND EIGLER, D. M. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. *Science* *262* (1993), 218–220.
- [28] CUCOLO, A. M., CUOCO, M., AND VARLAMOV, A. A. Role of interelectron interaction in the pseudogap opening in high- $T_c$  tunneling experiments. *Phys. Rev. B* *59*, 18 (1999), R11675–R11678.
- [29] DAGOTTO, E. Complexity in strongly correlated electronic systems. *Science* *309* (2005), 257–262.
- [30] DAGOTTO, E., HOTTA, T., AND MOREO, A. Colossal magnetoresistant materials : The key role of phase separation. *Phys. Rep.* *344* (2001), 1.
- [31] DE GENNES, P. G. *Superconductivity in Metals and Alloys*. Benjamin, New York, 1966.
- [32] DUBI, Y., MEIR, Y., AND AVISHAI, Y. Theory of the magnetoresistance of disordered superconducting films. *Phys. Rev. B* *73*, 5 (2006), 054509.

- [33] DYNES, R. C., NARAYANAMURTI, V., AND GARNO, J. P. Direct measurement of quasiparticle-lifetime broadening in a strong-coupled superconductor. *Phys. Rev. Lett.* *41*, 21 (1978), 1509–1512.
- [34] DYNES, R. C., WHITE, A. E., GRAYBEAL, J. M., AND GARNO, J. P. Breakdown of eliashberg theory for two-dimensional superconductivity in the presence of disorder. *Phys. Rev. Lett.* *57*, 17 (1986), 2195–2198.
- [35] EMERY, V. J., AND KIVELSON, S. A. Importance of phase fluctuations in superconductors with small superfluid density. *Nature* *374* (1995), 434.
- [36] ESCOFFIER, W. *Étude de la cohérence quantique dans les systèmes supraconducteur-métal normal par microscopie et spectroscopie à effet tunnel*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2004.
- [37] ESCOFFIER, W., CHAPELIER, C., HADACEK, N., AND VILLEGIER, J.-C. Anomalous proximity effect in an inhomogeneous disordered superconductor. *Phys. Rev. Lett.* *93*, 21 (2004), 217005.
- [38] EVERS, F., AND MIRLIN, A. D. Anderson transitions. *Cond-mat/0707.4378*.
- [39] FEIGEL'MAN, M. V., IOFFE, L. B., KRAVTSOV, V. E., AND YUZBASHYAN, E. A. Eigenfunction fractality and pseudogap state near the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.* *98*, 2 (2007), 027001.
- [40] FINKEL'STEIN, A. M. Superconducting transition temperature in amorphous films. *JETP Lett.* *45*, 1 (1987), 46.
- [41] FINKEL'STEIN, A. M. Suppression of superconductivity in homogeneously disordered systems. *Physica B* *197* (1994), 636–648.
- [42] FISCHER, O., KUGLER, M., MAGGIO-APRILE, I., BERTHOD, C., AND RENNER, C. Scanning tunneling spectroscopy of high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.* *79*, 1 (2007), 353–419.
- [43] FISHER, M. P. A. Quantum phase transitions in disordered two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.* *65*, 7 (1990), 923–926.
- [44] FISHER, M. P. A., AND LEE, D. H. Correspondence between two-dimensional bosons and a bulk superconductor in a magnetic field. *Phys. Rev. B* *39*, 4 (1989), 2756–2759.
- [45] GALITSKI, V. M., AND LARKIN, A. I. Disorder and quantum fluctuations in superconducting films in strong magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.* *87*, 8 (2001), 087001.
- [46] GALITSKI, V. M., AND LARKIN, A. I. Superconducting fluctuations at low temperature. *Phys. Rev. B* *63*, 17 (2001), 174506.
- [47] GANTMAKHER, V. F., GOLUBKOV, M. V., DOLGOPOLOV, V. T., SHASHKIN, A. A., AND TSYDYNZHAPOV, G. E. Observation of the parallel-magnetic-field-induced superconductor-insulator transition in thin amorphous InO films. *JETP Lett.* *71* (2000), 473.
- [48] GANTMAKHER, V. F., GOLUBKOV, M. V., DOLGOPOLOV, V. T., TSYDYNZHAPOV, G. E., AND SHASHKIN, A. A. Destruction of localized electron pairs above the magnetic-field-driven superconductor-insulator transition in amorphous In-O films. *JETP Lett.* *68* (1998), 363.

- [49] GANTMAKHER, V. F., GOLUBKOV, M. V., LOK, J. G. S., AND GEIM, A. K. Giant negative magnetoresistance in semi-insulating amorphous indium oxide films in strong magnetic fields. *JETP* 82 (1996), 951.
- [50] GARLAND, J. C., AND LEE, H. J. Influence of a magnetic field on the two-dimensional phase transition in thin-film superconductors. *Phys. Rev. B* 36, 7 (1987), 3638–3650.
- [51] GEORGES, A., AND CHITRA, R. *Introduction au problème à  $N$  corps et à la physique des fermions fortement corrélés*. 2004. Cours du DEA de Physique des Solides et Milieux Denses, Orsay.
- [52] GHOSAL, A., RANDEIRA, M., AND TRIVEDI, N. Role of spatial amplitude fluctuations in highly disordered  $s$ -wave superconductors. *Phys. Rev. Lett.* 81, 18 (1998), 3940–3943.
- [53] GHOSAL, A., RANDEIRA, M., AND TRIVEDI, N. Inhomogeneous pairing in highly disordered  $s$ -wave superconductors. *Phys. Rev. B* 65, 1 (2001), 014501.
- [54] GIAZOTTO, F., HEIKKILÄ, T. T., LUUKANEN, A., SAVIN, A. M., AND PEKOLA, J. P. Opportunities for mesoscopies in thermometry and refrigeration : Physics and applications. *Rev. Sci. Instrum.* 78 (2006), 217.
- [55] GOLUBOV, A. A., AND HARTMANN, U. Electronic structure of the abrikosov vortex core in arbitrary magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.* 72, 22 (1994), 3602–3605.
- [56] GRAYBEAL, J. M., AND BEASLEY, M. R. Localization and interaction effects in ultrathin amorphous superconducting films. *Phys. Rev. B* 29, 7 (1984), 4167–4169.
- [57] GRAYBEAL, J. M., BEASLEY, M. R., AND GREEN, R. L. *Physica B + C* 126 (1984), 731.
- [58] HADACEK, N. *Étude de films minces et de jonctions Josephson en nitrures supraconducteurs (TiN et NbN) ; application à la logique RSFQ*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2002.
- [59] HADACEK, N., SANQUER, M., AND VILLEGIER, J.-C. Double reentrant superconductor-insulator transition in thin TiN films. *Phys. Rev. B* 69, 2 (2004), 024505.
- [60] HALPERIN, B. I., AND NELSON, D. R. *J. Low. Temp. Phys.* 36 (1979), 599.
- [61] HARRIS, AND CREDE. *Shock and Vibration Handbook*. Mc Graw Hill, 1976.
- [62] HAVILAND, D. B., LIU, Y., AND GOLDMAN, A. M. Onset of superconductivity in the two-dimensional limit. *Phys. Rev. Lett.* 62, 18 (1989), 2180–2183.
- [63] HEBARD, A. F., AND PAALANEN, M. A. Magnetic-field-tuned superconductor-insulator transition in two-dimensional films. *Phys. Rev. Lett.* 65, 7 (1990), 927–930.
- [64] HESS, H. F., ROBINSON, R. B., DYNES, R. C., VALLES, J. M., AND WASZCZAK, J. V. Scanning-Tunneling-Microscope observation of the abrikosov flux lattice and the density of states near and inside a fluxoid. *Phys. Rev. Lett.* 62, 2 (1989), 214–216.
- [65] HSU, S.-Y., CHERVENAK, J. A., AND VALLES, JR., J. M. Magnetic field enhanced order parameter amplitude fluctuations in ultrathin films near the superconductor-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.* 75, 1 (1995), 132–135.
- [66] HÉRITIER, M. *Mécanique statistique et transitions de phase*, vol. 1. 2004. Cours du DEA de Physique des Solides et Milieux Denses, Orsay.

- [67] ILANI, S., YACOBY, A., AND SHTRIKMAN, D. M. H. Microscopic structure of the metal-insulator transition in two dimensions. *Science* 292 (2001), 1354.
- [68] IMRY, Y. *Introduction to Mesoscopic Physics*. Oxford University Press, 1997.
- [69] IMRY, Y., AND MA, S.-K. Random-field instability of the ordered state of continuous symmetry. *Phys. Rev. Lett.* 35, 21 (1975), 1399–1401.
- [70] INGOLD, G. L., AND NAZAROV, Y. *Charge tunneling rates in ultrasmall junctions*. in Single Charge Tunneling, edited by H. Grabert and M. Devoret eds., Plenum, 1982.
- [71] IOFFE, A. F., AND REGEL, A. R. *Prog. Semicond.* 4 (1960), 237.
- [72] IOFFE, A. F., AND REGEL, A. R. *Phys. Rep.* 295 (1998), 1.
- [73] IOFFE, L. B., AND LARKIN, A. I. Properties of superconductors with a smeared transition temperature. *Sov. Phys. JETP* 54 (1981), 378.
- [74] KADIN, A. M., EPSTEIN, K., AND GOLDMAN, A. M. Renormalization and the kosterlitz-thouless transition in a two-dimensional superconductor. *Phys. Rev. B* 27, 11 (1983), 6691–6702.
- [75] KAMENEV, A., AND ANDREEV, A. Electron-electron interactions in disordered metals : Keldysh formalism. *Phys. Rev. B* 60, 4 (1999), 2218–2238.
- [76] KAPITULNIK, A., AND KOTLIAR, G. Anderson localization and the theory of dirty superconductors. *Phys. Rev. Lett.* 54, 5 (1985), 473–476.
- [77] KIVELSON, S., LEE, D.-H., AND ZHANG, S.-C. Global phase diagram in the quantum hall effect. *Phys. Rev. B* 46, 4 (1992), 2223–2238.
- [78] KOGAN, V. G. Interaction of vortices in thin superconducting films and the berezinskii-kosterlitz-thouless transition. *Phys. Rev. B* 75, 6 (2007), 064514.
- [79] KOSTERLITZ, J. M., AND THOULESS, D. J. *J. Phys. C* 6 (1973), 1181.
- [80] KOTLIAR, G., AND KAPITULNIK, A. Anderson localization and the theory of dirty superconductors. II. *Phys. Rev. B* 33 (1986), 3146.
- [81] KOWAL, D., AND OVADYAHU, Z. Disorder induced granularity in an amorphous superconductor. *Solid State Commun.* 90 (1994), 783.
- [82] LARKIN, A., AND VARLAMOV, A. *Theory of Fluctuations in Superconductors*. Oxford University Press, 2005.
- [83] LARKIN, A. I. Superconductor-insulator transitions in films and bulk materials. *Ann. Phys.* 8 (1999), 785–794.
- [84] LARKIN, A. I., AND KHMEL’NITSKII, D. E. Activation conductivity in disordered systems with large localization length. *Sov. Phys. JETP* 56, 3 (1982), 647.
- [85] LE SUEUR, H., AND JOYEZ, P. Room-temperature tunnel current amplifier and experimental setup for high resolution electronic spectroscopy in millikelvin scanning tunneling microscope experiments. *Rev. Sci. Instrum.* 77 (2006), 123701.
- [86] LEE, P. A., AND RAMAKRISHNAN, T. V. Disordered electronic systems. *Rev. Mod. Phys.* 57 (1985), 287–337.
- [87] LETURCQ, R. Étude expérimentale de la transition métal-isolant en dimension deux. *Ann. Phys. Fr.* 29, 2-3 (2004), 1–271.

- [88] LEVITOV, S., AND SHYTOV, A. V. Semiclassical theory of the coulomb anomaly. *JETP Lett.* 66, 3 (1997), 214.
- [89] LIU, Y., HAVILAND, D. B., NEASE, B., AND GOLDMAN, A. M. Insulator-to-superconductor transition in ultrathin films. *Phys. Rev. B* 47, 10 (1993), 5931–5946.
- [90] MA, M., AND LEE, P. A. Localized superconductors. *Phys. Rev. B* 32 (1985), 5658.
- [91] MAEKAWA, S., EBISAWA, H., AND FUKUYAMA, H. *J. Phys. Soc. Jpn.* 52 (1983), 1352.
- [92] MAEKAWA, S., AND FUKUYAMA, H. *J. Phys. Soc. Jpn.* 51 (1982), 1380.
- [93] MARKOVIĆ, N., CHRISTIANSEN, C., MACK, A. M., HUBER, W. H., AND GOLDMAN, A. M. Superconductor-insulator transition in two dimensions. *Phys. Rev. B* 60, 6 (1999), 4320–4328.
- [94] MARRACHE-KIKUCHI, C. A. *Effets dimensionnels dans un système désordonné au voisinage des transitions métal-isolant et supraconducteur-isolant*. Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud XI, 2002.
- [95] MARTINIS, J. M., DEVORET, M. H., AND CLARKE, J. Experimental tests for the quantum behavior of a macroscopic degree of freedom : The phase difference across a josephson junction. *Phys. Rev. B* 35, 10 (1987), 4682–4698.
- [96] MASON, N., AND KAPITULNIK, A. Dissipation effects on the superconductor-insulator transition in 2D superconductors. *Phys. Rev. Lett.* 82, 26 (1999), 5341–5344.
- [97] MATVEEV, K. A., AND LARKIN, A. I. Parity effect in ground state energies of ultrasmall superconducting grains. *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997), 3749.
- [98] MCELROY, K., LEE, D.-H., HOFFMAN, J. E., LANG, K. M., LEE, J., HUDSON, E. W., EISAKI, H., UCHIDA, S., AND DAVIS, J. C. Coincidence of checkerboard charge order and antinodal state decoherence in strongly underdoped superconducting  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. Lett.* 94, 19 (2005), 197005.
- [99] MCELROY, K., LEE, J., SLEZAK, J. A., LEE, D.-H., EISAKI, H., UCHIDA, S., AND DAVIS, J. C. Atomic-scale sources and mechanism of nanoscale electronic disorder in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ . *Science* 309 (2005), 1048.
- [100] MIRLIN, A. D. Statistics of energy levels and eigenfunctions in disordered systems. *Phys. Rep.* 326 (2000), 259.
- [101] MOTT, N. F. *Adv. Phys.* 16 (1967), 49.
- [102] MOTT, N. F., AND TWOSE, W. D. *Adv. Phys.* 10 (1961), 107.
- [103] MOUSSY, N., COURTOIS, H., AND B., P. A very low temperature stm for the local spectroscopy of mesoscopic structures. *Rev. Sci. Inst.* 72 (2001), 128.
- [104] NELSON, D. R. Defects in superfluids, superconductors and membranes. *Cond-mat/9502114*.
- [105] NELSON, D. R., AND KOSTERLITZ, J. M. Universal jump in the superfluid density of two-dimensional superfluids. *Phys. Rev. Lett.* 39, 19 (1977), 1201–1205.
- [106] OKUMA, S., TERASHIMA, T., AND KOKUBO, N. Anomalous magnetoresistance near the superconductor-insulator transition in ultrathin films of  $a - Mo_xSi_{1-x}$ . *Phys. Rev. B* 58, 5 (1998), 2816–2819.



- [107] OVADYAHU, Z., AND IMRY, Y. On the role of the correlation length near the onset of non-metallic conduction. *J. Phys. C* 16 (1983), L471.
- [108] PAN, S. H., HUDSON, E. W., AND DAVIS, J. C.  $^3\text{He}$  refrigerator based very low temperature scanning tunneling microscope. *Rev.Sci. Inst.* 70 (1999), 1459.
- [109] PEARL, J. in *Low Temperature Physics-LT9*. edited by J. G. Daunt, D. O. Edwards, F. J. Milford, and M. Yagub (Plenum, New York, 1965).
- [110] PETITON, H., AND PAYET-BURIN, P. *Pilotage par microcontrôleur des moteurs piézoélectriques d'un microscope à force atomique*. Rapport de stage, INPG-ENSERG, Grenoble, 1997.
- [111] PIERRE, F., POTHIER, H., JOYEZ, P., BIRGE, N. O., ESTEVE, D., AND DEVORET, M. H. Electrodynamic dip in the local density of states of a metallic wire. *Phys. Rev. Lett.* 86, 8 (2001), 1590–1593.
- [112] PIERSON, S. W., AND VALLS, O. T. Renormalization group study of the intrinsic finite-size effect in two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. B* 61, 1 (2000), 663–670.
- [113] POURRET, A., AUBIN, H., LESUEUR, J., MARRACHE-KIKUCHI, C. A., BERGÉ, L., DUMOULIN, L., AND BEHNIA, K. Observation of the nernst signal generated by fluctuating cooper pairs. *Nature Physics* 2 (2006), 683.
- [114] QIN, Y., VICENTE, C. L., AND YOON, J. Magnetically induced metallic phase in superconducting tantalum films. *Phys. Rev. B* 73, 10 (2006), 100505.
- [115] SACÉPÉ, B., CHAPELIER, C., MARCENAT, C., KAČMARČIK, J., KLEIN, T., BERNARD, M., AND BUSTARRET, E. Tunneling spectroscopy and vortex imaging in boron-doped diamond. *Phys. Rev. Lett.* 96, 9 (2006), 097006.
- [116] SADOVSKII, M. V. Superconductivity and localization. *Phys. Rep.* 282 (1997), 225.
- [117] SAMBANDAMURTHY, G., ENGEL, L. W., JOHANSSON, A., PELED, E., AND SHAHAR, D. Experimental evidence for a collective insulating state in two-dimensional superconductors. *Phys. Rev. Lett.* 94, 1 (2005), 017003.
- [118] SAMBANDAMURTHY, G., ENGEL, L. W., JOHANSSON, A., AND SHAHAR, D. Superconductivity-related insulating behavior. *Phys. Rev. Lett.* 92, 10 (2004), 107005.
- [119] SAMBANDAMURTHY, G., JOHANSSON, A., PELED, E., SHAHAR, D., BJÖRNSSON, P. G., AND MOLER, K. A. Power law resistivity behavior in 2D superconductors across the magnetic field-tuned superconductor-insulator transition. *Europhys. Lett.* 75, 4 (2006), 611–617.
- [120] SATTA, A., VANTOMME, A., SCHUHMACHER, J., WHELAN, C. M., SUTCLIFFE, V., AND MAEX, K. Initial growth mechanism of atomic layer deposited TiN. *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004), 4571.
- [121] SCHMIDT, D. R., SCHOELKOPF, R. J., AND CLELAND, A. N. Photon-mediated thermal relaxation of electrons in nanostructures. *Phys. Rev. Lett.* 93, 4 (2004), 045901.
- [122] SHAHAR, D., HILKE, M., LI, C. C., TSUI, D. C., SONDHI, S. L., CUNNINGHAM, J. E., AND RAZEGHI, M. A new transport regime in the quantum Hall effect. *Solid State Comm.* 107, 1 (1998), 19.

- [123] SHAHAR, D., AND OVADYAHU, Z. Superconductivity near the mobility edge. *Phys. Rev. B* *46*, 17 (1992), 10917–10922.
- [124] SHAHAR, D., TSUI, D. C., SHAYEGAN, M., CUNNINGHAM, J. E., SHIMSHONI, E., AND SONDHI, S. L. On the nature of the Hall insulator. *Solid State Comm.* *102*, 11 (1997), 817.
- [125] SHAHAR, D., TSUI, D. C., SHAYEGAN, M., SHIMSHONI, E., AND SONDHI, S. L. Evidence for charge-flux duality near the quantum Hall liquid to insulator transition. *Science* *274* (1996), 589.
- [126] SHI, J., AND XIE, X. C. Droplet state and the compressibility anomaly in dilute 2D electron systems. *Phys. Rev. Lett.* *88*, 8 (2002), 086401.
- [127] SHIMSHONI, E., AUERBACH, A., AND KAPITULNIK, A. Transport through quantum melts. *Phys. Rev. Lett.* *80*, 15 (1998), 3352–3355.
- [128] SHIMSHONI, E., SONDHI, S. L., AND SHAHAR, D. Duality near quantum Hall transitions. *Phys. Rev. B* *55*, 20 (1997), 13730–13738.
- [129] SIMKIN, M. V., AND KOSTERLITZ, J. M. Finite size and current effects on IV characteristics of josephson junction arrays. *Phys. Rev. B* *55*, 17 (1997), 11646–11650.
- [130] SKVORTSOV, M. A., AND FEIGEL'MAN, M. V. Superconductivity in disordered thin films : Giant mesoscopic fluctuations. *Phys. Rev. Lett.* *95*, 5 (2005), 057002.
- [131] SMITH, R. A., REIZER, M. Y., AND WILKINS, J. W. Suppression of the order parameter in homogeneous disordered superconductors. *Phys. Rev. B* *51*, 10 (1995), 6470–6492.
- [132] SONDHI, S. L., GIRVIN, S. M., CARINI, J. P., AND SHAHAR, D. Continuous quantum phase transitions. *Rev. Mod. Phys.* *69*, 1 (1997), 315–333.
- [133] SONIER, J. E., BREWER, J. H., AND KIEFL, R. F.  $\mu$ SR studies of the vortex state in type-II superconductors. *Rev. Mod. Phys.* *72*, 3 (2000), 769–811.
- [134] SPIVAK, B., AND ZHOU, F. Mesoscopic effects in disordered superconductors near  $H_{c2}$ . *Phys. Rev. Lett.* *74*, 14 (1995), 2800–2803.
- [135] STEINER, M. A., BOEBINGER, G., AND KAPITULNIK, A. Possible field-tuned superconductor-insulator transition in high- $T_c$  superconductors : Implications for pairing at high magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.* *94*, 10 (2005), 107008.
- [136] THOULESS, D. J. Electrons in disordered systems and the theory of localization. *Phys. Rep.* *13* (1974), 93.
- [137] TIEDJE, T., AND BROWN, A. Performance limits for the scanning tunneling microscope. *J. Appl. Phys.* *68* (1990), 649.
- [138] TU, J., STRONGIN, M., AND IMRY, Y. An inhomogeneous josephson phase near the (super) conductor-insulator transition. *Cond-mat/0405625*.
- [139] VALLES, J. M., DYNES, R. C., AND GARNO, J. P. Superconductivity and the electronic density of states in disordered two-dimensional metals. *Phys. Rev. B* *40*, 10 (1989), 6680–6683.
- [140] VALLES, J. M., DYNES, R. C., AND GARNO, J. P. Electron tunneling determination of the order-parameter amplitude at the superconductor-insulator transition in 2D. *Phys. Rev. Lett.* *69*, 24 (1992), 3567–3570.



- [141] VAN KEULS, F. W., HU, X. L., JIANG, H. W., AND DAHM, A. J. Screening of the coulomb interaction in two-dimensional variable-range hopping. *Phys. Rev. B* *56*, 3 (1997), 1161–1169.
- [142] VARLAMOV, A. A., BALESTRINO, G., MILANI, E., AND LIVANOV, D. V. The role of density of states fluctuations in the normal state properties of high  $T_c$  superconductors. *Adv. Phys.* *48*, 6 (1999), 655–783.
- [143] VARLAMOV, A. A., AND DORIN, V. V. Fluctuation resistance of josephson junctions. *Sov. Phys. JETP* *57*, 5 (1983), 1089.
- [144] VICENTE, C. L., QIN, Y., AND YOON, J. Evidence of spatial inhomogeneity near the onset of magnetically induced insulating state in superconducting thin films. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* *74*, 10 (2006), 100507.
- [145] VINET, M. *Étude par STM de nanostructures supraconductrices par proximité*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 2001.
- [146] VON DELFT, J., AND RALPH, D. C. Spectroscopy of discrete energy levels in ultrasmall metallic grains. *Physics Reports* *345* (2001), 61–173.
- [147] YAZDANI, A., AND KAPITULNIK, A. Superconducting-insulating transition in two-dimensional  $a$ -MoGe thin films. *Phys. Rev. Lett.* *74*, 15 (1995), 3037–3040.