



HAL
open science

Etude de l'effet Hall quantique dans le graphène exfolié en vue d'une application en métrologie quantique

Jérémie Guignard

► **To cite this version:**

Jérémie Guignard. Etude de l'effet Hall quantique dans le graphène exfolié en vue d'une application en métrologie quantique. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. Français. NNT : 2011PA112116 . tel-00664374

HAL Id: tel-00664374

<https://theses.hal.science/tel-00664374v1>

Submitted on 30 Jan 2012

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.



THESE

Préparée au
LNE

Laboratoire national de métrologie et d'essais
SPEC - CEA Saclay
Service de Physique de l'Etat Condensé

En vue de l'obtention du
Doctorat de l'Université d'Orsay

Ecole Doctorale de Physique
de la région parisienne

Spécialité :
Physique de la matière condensée
Arrêté du 07 août 2006

par
Jérémie GUIGNARD

ETUDE DE L'EFFET HALL QUANTIQUE
DANS LE GRAPHÈNE EXFOLIÉ
EN VUE D'UNE APPLICATION EN MÉTROLOGIE QUANTIQUE

Date de soutenance :
8 Juillet 2011

Composition du jury :

Président du jury	M. Claude PASQUIER
Rapporteurs	M. Christophe CHAUBET M. Beat JECKELMANN
Examineur	M. Stefano BORINI
Directeur des travaux	M. Wilfrid POIRIER
Directeur de thèse	M. Christian GLATTLI

dans le domaine du pouillemesque

Remerciements

Mes plus sincères et chaleureux remerciements vont en premier lieu à Christian GLATTLI, Wilfrid POIRIER et Félicien SCHOPFER. Leur encadrement pendant plus de 3 ans m'a permis de réaliser ces travaux de thèse. Leur soutien m'a permis de ne pas lâcher, même dans les moments les plus difficiles. J'espère avoir été digne de la confiance qu'ils m'ont témoignée.

Je remercie le Laboratoire National de Métrologie et d'Essais qui a pris le risque de financer ces travaux permettant ainsi d'effectuer un travail expérimental de fond en vue d'une application en métrologie quantique. La liberté d'action conféré par le LNE nous a permis de poser les bases d'un travail de développement que réaliseront les actuels et futurs doctorants de l'unité Effet Hall Quantique.

Je tiens à remercier Christian GLATTLI (une fois de plus) et Keyan BENNACEUR pour leur accueil à l'Orme des Merisiers. Ce sont eux qui m'ont permis de générer mes premiers feuillets de graphène. Sans eux, ce travail de thèse n'aurait jamais pu voir le jour. Le soutien de Christian ainsi que ses connaissances scientifiques resteront un exemple pour moi.

Je souhaite remercier Messieurs Christophe CHAUBET et Beat JECKELMANN pour avoir participé au jury de cette thèse en tant que rapporteurs et Monsieur Claude PASQUIER pour avoir présider le jury.

De nouveau, j'aimerais exprimer ma plus profonde gratitude envers Wilfrid POIRIER et Félicien SCHOPFER. Ils ont eu la patience de diriger mes travaux de thèse en m'inculquant un raisonnement physique stricte et surtout avec la rigueur imposée par la métrologie. Je les remercie d'avoir pris le temps de lire, et de relire, mon manuscrit afin d'y gommer les erreurs et autres incohérences. Et même si nous n'avons pas toujours d'accord, ces 3 années resteront gravées dans ma mémoire.

Je remercie l'ensemble du Bâtiment Maxwell au LNE. Sophie, Valérie, François (x2), Olivier (x2), Nicolas, Laurent, Samy, Mauro et j'en oublie beaucoup, votre chaleur humaine a rendu ce travail de thèse bien plus qu'une aventure scientifique et technique. Avec eux, j'ai pu confirmé le fait que le rire est un des meilleurs exutoires. Je vous souhaite le meilleur pour l'avenir.

J'exprime de sincères remerciements envers les chercheurs et techniciens du SPEC à l'Orme des Merisiers. Beaucoup d'entre eux ont pris le temps de m'écouter et d'éclairer ma lanterne. Ah les joies de la nanofabrication en salle blanche et des lithographies à 7h du mat' . Roland, l'homme qui murmurait à l'oreille des micro fils, Pief, pur bien utiliser les bâtis de dépôt, Patrice, Monsieur l'adjoint, Claudine, Fabien, le secrariat et bien d'autres, je vous souhaite à tous bonne continuation dans vos activités respectives.

Je remercie tous mes amis thésards et post-docs qui ont contribué, de manière directe ou non, à mon travail de thèse.

J'aimerais remercier mes nouveaux collègues de Cryoconcept qui ont eu la patience de me laisser finir mon manuscrit alors que je commençais ma vie de cryogéniste.

Pour finir, je remercie du plus profond de mon cœur mes parents, mon frère et ma sœur qui m'ont toujours soutenu.

Et maintenant, c'est 10 mK sur ordonnance.

Table des matières

Introduction	15
1 Introduction à la métrologie quantique	17
1.1 Introduction	17
1.2 Le Système International d'unités (SI)	17
1.3 Unités électriques dans le SI	19
1.3.1 La représentation du volt et l'effet Josephson	19
1.3.2 La représentation de l'ohm et l'effet Hall quantique	21
1.3.3 L'ampère et les transistors monoélectroniques	22
1.3.4 La balance du Watt : lien entre unités électriques et mécaniques	24
1.4 Vers une redéfinition du SI	25
1.4.1 Nécessité d'une redéfinition	25
1.4.2 Détermination dans le SI	25
1.4.3 Connaissance de R_K	27
I Introduction au transport électronique	31
2 La transport électronique	33
2.1 Du transport classique au transport quantique	33
2.2 Temps et longueurs caractéristiques	35
2.2.1 La longueur d'onde	35
2.2.2 Libres parcours moyens et régimes de transport	36
2.2.3 La cohérence de phase	39
2.3 Le transport quantique cohérent	40
2.3.1 Formule de Landauer	40
2.3.2 Corrections à la conductance	42
3 L'Effet Hall	47
3.1 Un effet classique	47
3.1.1 Particule chargée dans un champ magnétique	47
3.1.2 Magnetorésistance dans le modèle de Drude	48
3.2 Un effet quantique	49
3.2.1 Les niveaux de Landau	49
3.2.2 Les effets du désordre	52
3.2.3 Les états de bord	55
3.2.4 Transport à température finie en régime d'effet Hall quantique	56
3.2.5 Théorie de Landauer-Büttiker	57
3.2.6 Robustesse de l'effet Hall quantique	58
3.3 Observation expérimentale	59

II	La Métrologie des résistances	61
4	La Représentation de l'ohm	63
4.1	Conservation de l'ohm	63
4.1.1	Principe	63
4.1.2	Réalisation d'un 2DEG	64
4.2	Dispositifs réels à effet Hall quantique	66
4.2.1	Les effets de température	66
4.2.2	Courant critique	67
4.2.3	Les contacts	68
4.2.4	Les guides techniques	69
4.3	Réseaux	70
4.4	Le comparateur cryogénique de courant	72
4.4.1	Principe	72
4.4.2	Exactitude et sensibilité	73
4.5	Etalonnage d'une résistance	74
4.5.1	Principe	74
4.5.2	Niveau de bruit et bilan d'incertitude	76
4.5.3	Etalonnage d'une résistance de 100 Ω	77
III	Le Graphène, des propriétés nouvelles	81
5	Les propriétés électroniques du graphène	83
5.1	Le matériau	83
5.1.1	Le feuillet de graphène	83
5.1.2	Procédés de fabrication	84
5.2	Structure de bande électronique d'une monocouche de graphène	85
5.2.1	Approche des liaisons fortes	85
5.2.2	Limite continue	88
5.2.3	Densité d'états	90
5.3	Structure de bande électronique d'une bicouche de graphène	91
6	Propriétés sous fort champ magnétique	95
6.1	Effet Hall quantique dans une monocouche	95
6.1.1	Traitement quantique	95
6.1.2	Densité d'état et quantification de la résistance	97
6.2	Effet Hall quantique dans une bicouche	97
6.3	Comparaison entre les EHQ	99
IV	Le Graphène pour la métrologie	101
7	Fabrication et conditionnement d'échantillons en graphène exfolié	103
7.1	L'exfoliation	103
7.1.1	Principe	103
7.1.2	Mise en œuvre pratique	103
7.2	Repérage optique des feuilles	105
7.2.1	Interférences d'une couche mince	105
7.2.2	Observation de monocouches atomiques	107
7.3	La spectroscopie Raman	109
7.4	Fabrication de barres de Hall	111
7.4.1	Préparation du substrat	111

7.4.2	Réalisation de barres de Hall	113
7.4.3	Contacts Métal-Graphène	114
7.5	Dispositif à effet de champ	115
7.6	Nettoyage <i>in situ</i>	116
8	Dispositif expérimental	119
8.1	Cryostats	119
8.2	Bobines magnétiques	120
8.3	Cannes de mesure et porte échantillons	120
8.4	Caractérisations des feuillets de graphène	121
8.5	Mesures au pont de comparaison	123
9	Transport électronique dans des monocouches et des bicouches	125
9.1	Mécanismes possibles de diffusion	126
9.1.1	Diffusion par des impuretés chargées	127
9.1.2	Diffuseurs neutres	128
9.1.3	Diffuseurs ponctuels	129
9.1.4	Diffusions par les phonons et l'ondulation	129
9.1.5	Bilan	130
9.2	$\sigma(V_G)$	131
9.2.1	Conductivité à champ nul	131
9.2.2	Mobilités	140
9.2.3	Manifestation de l'inhomogénéité de la densité	141
9.3	Corrections quantiques	145
9.3.1	Localisation faible	145
9.3.2	Fluctuations de conductance	150
9.4	Effets Hall quantiques « anormaux »	153
9.4.1	Historique	153
9.4.2	Effet Hall quantique dans une monocouche	153
9.4.3	Effet Hall quantique dans une bicouche	156
10	Métrie de l'effet Hall quantique	157
10.1	Caractérisations des contacts Métal-Graphène	157
10.1.1	Contacts électriques dans les hétérostructures de semi-conducteurs	157
10.1.2	Contacts électriques sur des feuillets de graphène	158
10.1.3	Mesure des résistances de contact sur des feuillets de graphène	159
10.2	Etude de l'effet Hall quantique dans l'échantillon BL006	164
10.2.1	Effet Hall quantique dans la bicouche BL006	164
10.2.2	Tests de quantification dans l'échantillon BL006	168
10.3	Etude de la dissipation en régime d'effet Hall quantique dans BL006	174
10.3.1	Rappels	174
10.3.2	Expériences	176
10.3.3	Modèle de champ électrique local	181
10.3.4	Effet de la température	184
10.3.5	Fluctuations de R_{xx}	187
10.4	Test de quantification dans l'échantillon ML002	189
10.4.1	Résistance longitudinale en régime d'effet Hall quantique	189
10.4.2	Test de quantification dans la monocouche ML002	190
10.5	Autres travaux métrologiques sur le graphène	192
	Conclusion	195
	Annexe	199

Bibliographie

203

Table des figures

1.1	Schéma de principe d'une jonction Josephson	20
1.2	Photographie d'un réseau Josephson et marches de Shapiro	21
1.3	Evolution de la représentation de l'ohm avant et après la découverte de l'EHQ	22
1.4	Schéma d'une jonction tunnel et d'un transistor SET	23
1.5	Schéma électrique d'une pompe à électrons et marches de courant	23
1.6	Schéma de principe des deux phases de l'expérience de la balance du Watt	24
1.7	Comparaison des valeurs de la constante de structure fine α	26
1.8	Schéma d'un pont de Wheatstone quantique	28
2.1	Différents régimes de transport mésoscopiques	37
2.2	Représentation schématique d'un conducteur unidimensionnel monomode	40
2.3	Modélisation d'un conducteur quantique en configuration quatre fils	42
2.4	Mécanismes de retrodiffusion cohérente	44
3.1	Mouvement cyclotron d'une particule chargée	48
3.2	Schéma d'une configuration de mesure de Hall	49
3.3	Schéma de la quantification des niveaux d'énergie sous champ magnétique	51
3.4	Effet du désordre sur les niveaux de Landau	53
3.5	Schéma des déplacements des électrons sur des potentiels de désordre	54
3.6	Représentation schématique du comportement de R_H et de R_{xx} en fonction de ν	54
3.7	Potentiel de confinement dans un conducteur réel	55
3.8	Représentation des points chauds	56
3.9	Schéma d'une barre de Hall et des états de bord pour $\nu = 2$	58
3.10	Description de l'effet Hall quantique pour un ruban	59
3.11	Effet Hall quantique observé dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs	59
4.1	Etalons primaire et secondaire	63
4.2	Suivi temporel d'une résistance de 100Ω	64
4.3	Bandes d'énergie d'un hétérostructure GaAs/AlGaAs	65
4.4	Schéma d'empilement des couches dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs	65
4.5	Ecart relatif à la valeur quantifiée en fonction de ρ_{xx}	66
4.6	Rupture de l'effet Hall quantique	67
4.7	Ecart relatif de R_H en fonction de la résistance des contacts	69
4.8	Schéma d'une mesure 3-fils	71
4.9	Association série de deux barres de Hall et connection multiple	71
4.10	Schéma et photographie d'un Comparateur de Courant	72
4.11	Schéma de la boucle de feedback	73
4.12	Schéma du couplage entre le CCC et le SQUID	74
4.13	Schéma du pont de comparaison de résistances	75
4.14	Schéma du pont de comparaison de résistances	78

5.1	Structure crystallographique et réseau réciproque d'une monocouche	84
5.2	Schéma des sauts dans une monocouche	87
5.3	Relation de dispersion dans l'approche des liaisons fortes	87
5.4	Relation de dispersion dans une monocouche de graphène.	89
5.5	Vu en perspective de la structure d'une bicouche et des sauts électroniques	91
5.6	Relation de dispersion d'une bicouche dans l'approche des liaisons fortes	93
6.1	Niveaux de Landau dans une monocouche en fonction du champ magnétique	97
6.2	Densité d'états sous champ magnétique pour une monocouche	98
6.3	Niveaux de Landau dans une bicouche en fonction du champ magnétique	99
6.4	Densité d'états sous champ magnétique pour une bicouche	99
6.5	Comparaison des énergies dans GaAs, une monocouche et une bicouche	100
7.1	Photographies de l'adhésif avant et après l'exfoliation	104
7.2	Schéma des interactions au cours du dépôt	105
7.3	Schéma des faisceaux lumineux dans une lame mince	106
7.4	Spectres de réflectance mesurés pour trois épaisseurs d'oxyde différentes	107
7.5	Schéma des faisceaux lumineux en présence de graphène et modèle géométrique	107
7.6	Photographie d'une monocouche de graphène	108
7.7	Photographies de trois monocouches sur trois épaisseurs d'oxydes différentes	109
7.8	Photographie d'une monocouche et images sur les pixels CCD	109
7.9	Image optique et spectres Raman en zone mono- et bicouche	110
7.10	Image AFM d'une bicouche	111
7.11	Photographie d'un substrat avec le masque de repérage en résine UV	112
7.12	Schéma des différentes étapes d'une lithographie à résine positive	113
7.13	Feuillet de graphène après lithographie des contacts et après gravure	114
7.14	Schéma de contacts invasifs et de contacts non-invasifs	114
7.15	Principe de l'effet de champ	115
7.16	Evolution de la résistance transverse au cours du recuit de l'échantillon ML001	117
7.17	Evolution de la densité à $n_{S,0}$ et de μ au cours du recuit de ML002	117
7.18	Images MEB d'une feuillet après rupture des bras de contacts	118
8.1	Photographie de la bobine 18 – 20 T	120
8.2	Photographie des porte échantillons sur la canne du cryostat ^3He	121
8.3	Photographie de la tête de la canne de mesure	121
8.4	Photographie du boîtier de mise à la masse	122
8.5	Dispositif expérimental pour les caractérisations	122
8.6	Dispositif expérimental pour les mesures au pont de comparaison	123
9.1	Caractérisation par effet de champ d'un feuillet de graphène	125
9.2	Observation des flaques d'électrons et de trous	126
9.3	Observation des ondulations d'un feuillet de graphène par MEB	130
9.4	Evolution de la mobilité en fonction de la température	131
9.5	Caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ et $\sigma(n_S)$ de deux monocouches et d'une bicouche	132
9.6	Ajustement linéaire de $\sigma(n_S)$ pour l'échantillon ML002	134
9.7	Temps de transport expérimental pour l'échantillon ML002	135
9.8	$\sigma(n_S)$ par des mécanismes de diffusion résonnante pour ML002	136
9.9	Ajustement super-linéaire de $\sigma(n_S)$ pour l'échantillon BL006	137
9.10	Temps de transport expérimental d'une bicouche	137
9.11	$\sigma(n_S)$ par des mécanismes de diffusion résonnante pour ML001	138
9.12	$\sigma(n_S)$ en tenant compte de diffuseurs courte portée pour ML001	139
9.13	$\sigma(n_S)$ linéarisée par des diffuseurs chargés pour ML001	139
9.14	Mobilités des porteurs dans trois échantillons	140

9.15	Conductivités en deux zones différentes de l'échantillon ML002	142
9.16	Manifestation de l'inhomogénéité avec une structure à double pic	143
9.17	Conductivité de l'échantillon BL006 pour deux configurations différentes	144
9.18	Magnetorésistance d'un bicouche	145
9.19	Schéma d'ondes électroniques avec retour à l'origine.	146
9.20	Magnetoconductivités brutes à différentes densité	148
9.21	Magnetoconductivités moyennes à deux températures	149
9.22	Procédure d'extraction des UCF pour l'échantillon BL006	152
9.23	UCF en densité pour l'échantillon BL006	153
9.24	Première observation de l'effet Hall quantique dans des feuillets de graphène	154
9.25	Observation de l'effet Hall quantique à température ambiante dans une monocouche	154
9.26	Effet Hall quantique dans la monocouche ML001	155
9.27	Effet Hall quantique dans la monocouche ML002	155
9.28	Effet Hall quantique dans la bicouche BL006	156
10.1	Schéma de contacts invasifs et de contacts non-invasifs	157
10.2	Schéma d'une mesure 3-fils	158
10.3	Evaluation des résistances de contacts pour l'échantillon ML002	160
10.4	Evaluation des résistances de contacts pour l'échantillon BL006	162
10.5	Recuit en courant de contacts résistifs	163
10.6	Effet Hall quantique dans la bicouche BL006	164
10.7	Manifestation de l'inhomogénéité en régime d'effet Hall quantique pour BL006	165
10.8	$R_{18,24}(I)$ en régime d'effet Hall quantique pour BL006	166
10.9	Evaluation des erreurs du pont à bas courant	167
10.10	Asymétrie I+/I- au pont comparaison pour l'échantillon BL006	169
10.11	Description qualitative de traces asymétriques	169
10.12	Ecart à la quantification en fonction de la densité dans l'échantillon BL006	170
10.13	Description qualitative du couplage R_{xx}/R_H	171
10.14	Ecart à la quantification en fonction du courant dans BL006	171
10.15	Ecart à la quantification en fonction de R_{xx} dans BL006 pour deux configurations	172
10.16	Ecart à la quantification en fonction de R_{xx} dans BL006 à deux densités	174
10.17	Transitions possibles entre des niveaux de Landau	176
10.18	Rupture de l'effet Hall quantique dans l'échantillon BL006	177
10.19	Courant critique en fonction du facteur de remplissage pour l'échantillon BL006	177
10.20	Breakdown de l'effet Hall quantique dans l'échantillon BL006	178
10.21	Conductivité longitudinale en fonction du courant dans l'échantillon BL006	178
10.22	Comparaison de σ_{xx} à $T = 0.35$ K et $T = 1.5$ K dans l'échantillon BL006	179
10.23	Ecart en énergie en fonction du facteur de remplissage	180
10.24	Schématisation des niveaux de Landau sans et avec désordre	181
10.25	Probabilité de transitions inter niveaux de Landau	182
10.26	Circulation du courant dans une image de type Thouless	183
10.27	Evolution typique des conductivités à $T = 0.35$ K et $T = 1.5$ K	185
10.28	Ajustement des conductivités à $T = 0.35$ K et $T = 1.5$ K	185
10.29	Energies de gap en fonction du facteur de remplissage	186
10.30	Fluctuations de R_{xx} en régime d'effet Hall quantique pour BL006	188
10.31	Résistance longitudinale sur le plateau $\nu = 2$ dans un LEP514	189
10.32	Effet Hall quantique dans la monocouche ML002	189
10.33	Caractérisation du plateau $\nu = +2$ par mesure de R_{xx} sur ML002	190
10.34	Ecart à la quantification en fonction de R_{xx} dans l'échantillon ML002	191
10.35	Caractérisations métrologiques d'une monocouche exfoliée en 2008	192
10.36	Caractérisations métrologiques de plusieurs monocouches épitaxiées en 2010	193
10.37	Diagramme d'Ishikawa pour l'analyse du processus de mesure	200

Introduction

La représentation d'une unité nécessite l'utilisation pratique d'un principe de mesure répétable et reproductible. Aussi, dès 1980 et la première observation de la quantification de la résistance transverse dans un MOSFET silicium sous fort champ magnétique [1], *i.e.* l'effet Hall quantique, il avait été envisagé son utilisation pour la métrologie. L'effet Hall quantique permet d'obtenir une résistance électrique qui ne dépend que des constantes fondamentales de la physique h (constante de Planck) et e (charge de l'électron). Il peut donc être employé comme étalon de représentation des résistances électriques. Dix ans plus tard, l'utilisation de l'effet Hall quantique était recommandée par le Comité International des Poids et Mesures (CIPM) pour la métrologie des résistances électriques. L'effet Hall quantique dans des hétérostructures GaAs/AlGaAs constitue à ce jour l'étalon de conservation et a permis de réduire de trois ordres de grandeur l'incertitude relative sur la représentation de l'ohm ; elle est à l'heure actuelle égale à 10^{-9} .

En 2005, l'effet Hall quantique a pu être observé [2] dans une couche d'atomes de carbone d'un seul atome d'épaisseur : le graphène. Par la suite, l'effet Hall quantique a été mesuré dans une bicouche de graphène. L'effet Hall quantique dans une monocouche et dans une bicouche représentent un double intérêt pour la métrologie. En premier lieu, les métrologues peuvent envisager la réalisation de tests d'universalité de l'effet Hall quantique, c'est à dire la comparaison directe de deux effets Hall quantiques dans deux matériaux différents. Un électron dans une monocouche de graphène obéit à une équation de Dirac à l'inverse d'un électron dans un semi conducteur conventionnel (MOSFET silicium ou hétérostructure GaAs) qui obéit à une équation de Schrödinger. La réalisation d'une comparaison directe entre l'effet Hall quantique de « fermions de Dirac » et l'effet Hall quantique de « fermions de Schrödinger » constituerait un important test d'universalité. Ces tests d'universalité sont nécessaires non seulement pour améliorer la compréhension de l'effet Hall quantique mais aussi dans le processus actuel de révision du Système International d'unités. Le second intérêt pour la métrologie est la réalisation d'un étalon quantique de résistance opérant à plus haute température et/ou plus faible champ magnétique par rapport à l'étalon actuel. En effet, l'effet Hall quantique dans une monocouche de graphène est plus robuste que dans un semi conducteur conventionnel ; il a par exemple pu être observé à température ambiante [3]. L'effet Hall quantique dans le graphène serait donc un étalon de résistance plus pratique à mettre en œuvre. Pour atteindre ces deux objectifs, il est nécessaire avant toute chose de vérifier la quantification de la résistance transverse dans les feuillets de graphène. Il s'agit là de l'objectif de ce travail de thèse.

La métrologie des résistances s'inscrit dans le cadre plus large de la métrologie électrique. Depuis deux décennies, celle-ci est en constante évolution grâce à la découverte et à la maîtrise expérimentale d'effets de la matière condensée tels que l'effet Hall quantique et l'effet Josephson. Le progrès de la représentation des unités électrique amène à envisager une modification du Système International d'unités (SI), ce qui constituerait l'avènement de l'application métrologique de l'effet Hall quantique et de l'effet Josephson. Le Chapitre 1 sera l'occasion de présenter le SI, puis de s'intéresser aux cas de la métrologie électrique. Nous verrons aussi dans ce chapitre, au travers des expériences du triangle métrologique et de la Balance du Watt, comment l'effet Hall quantique joue un rôle crucial pour cette modification du SI. Le Chapitre 1 permettra de comprendre les

motivations de ce travail de thèse.

Nous présenterons dans le Chapitre 2 une introduction au transport électronique et le Chapitre 3 sera consacré à la description de l'effet Hall quantique. En particulier, nous essaierons de comprendre pourquoi, sous fort champ magnétique, la résistance transverse d'un conducteur bidimensionnel forme des plateaux et, en parallèle à ces plateaux, la résistance longitudinale s'annule.

Dans le Chapitre 4, nous décrirons comment l'ohm est réalisé dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs. Nous présenterons ensuite le pont de comparaison de résistances qui est basé sur un comparateur de courant. Cet outil de précision permet d'étalonner des résistances matérielles avec une incertitude de l'ordre de 10^{-9} .

Les feuillets de graphène existent à l'état naturel sous forme empilée dans des grains de graphite, autrement dit du charbon. La monocouche de graphène possède des propriétés électroniques nouvelles, à la fois sans champ magnétique mais aussi lorsqu'il est soumis à un fort champ magnétique. Ces propriétés ne sont pas les mêmes dans le cas de la bicouche. Les Chapitres 5 et 6 nous permettront de présenter les propriétés des deux matériaux, respectivement sans champ magnétique puis sous fort champ.

Pour fabriquer des échantillons à base de graphène en vue d'une application en métrologie, nous avons utilisé la méthode de clivage micro-mécanique, aussi appelée exfoliation. Au début de ce travail de thèse, il s'agissait de la seule méthode permettant d'observer l'effet Hall quantique dans des feuillets de graphène. Nous présenterons au Chapitre 7 le principe de cette méthode ainsi que les moyens d'observation et de repérage des feuillets.

Nous décrirons au Chapitre 8 le dispositif expérimental du travail de thèse. Les deux cryostats, les deux bobines magnétiques, les cannes de mesure et les appareils de mesures seront détaillés.

Avant d'étudier les échantillons sous fort champ magnétique, nous avons cherché à comprendre les propriétés de transport dans nos échantillons monocouches et bicouches. Ces propriétés, à la fois sans champ magnétique puis en régime mésoscopique, seront présentées au Chapitre 9.

Enfin, l'étude de l'effet Hall quantique dans une monocouche et dans une bicouche fera l'objet du Chapitre 10; nous y présenterons l'étude des résistances des contacts métal/graphène puis les tests de quantification que nous avons réalisés au LNE. Il s'agit des premiers tests de quantification de l'effet Hall quantique dans une bicouche de graphène exfolié jamais réalisés. Nous avons démontré un accord entre l'effet Hall quantique dans une bicouche et l'effet Hall quantique dans l'étalon en GaAs/AlGaAs avec une incertitude relative de 4×10^{-7} . Pour comprendre l'origine de la limitation sur les incertitudes obtenues, nous avons étudié la rupture de l'effet Hall quantique dans cette bicouche lorsqu'on augmente le courant. L'ordre de grandeur de notre test de quantification, observé aussi lors des mesures de quantification dans une monocouche, confirme les précédents tests réalisés dans des monocouches et confirme aussi l'intérêt du graphène en tant qu'étalon de résistance.

Chapitre 1

Introduction à la métrologie quantique

1.1 Introduction

La nécessité d'un système unifié des poids et mesures est apparue au cours de la Révolution française. En particulier, lors d'un discours en mars 1790, Talleyrand soulève la question de prendre en considération des phénomènes physiques connus et des lois associées afin d'obtenir une représentation la plus universelle possible des unités pour rendre possible les échanges, notamment économiques. Ce principe d'universalité reste à l'heure actuelle un des éléments fondateurs du système d'unités.

Les premières démarches ont consisté à définir les échelles de division ainsi que le mètre. Ces définitions furent adoptées respectivement en 1793 avec l'adoption des préfixes latins et en 1795 pour le mètre. Ce dernier est alors défini à partir du méridien terrestre et le kilogramme à partir de la masse de 100 centimètres cube d'eau à 4 °C. Les premiers étalons matériels qui constituent la première représentation des unités de longueur et de masse furent fabriqués.

Au cours du XIX^{ème}, lors de leurs travaux sur les champs électromagnétiques, des physiciens comme Gauss et Maxwell ont élaboré des systèmes d'unités basés sur les trois grandeurs, longueur, masse et temps. La nécessité d'un système d'unités était alors d'origine scientifique. C'est Maxwell qui mit en place le premier système CGS (Centimètre, Gramme et Seconde). Ce système cohérent d'unités comprenait déjà à l'époque des unités principales et des unités dérivées : il s'agit de l'ancêtre du Système International d'unités (SI).

Lorsque la métrologie s'organise au niveau international à la fin du XIX^{ème}, les unités électriques, le volt, l'ohm et l'ampère, sont intégrées au système d'unité. C'est réellement en 1948 que les travaux concernant un système d'unités dans sa forme actuelle ont débuté et se sont terminés en 1960 quand le SI fut adopté.

1.2 Le Système International d'unités (SI)

Le principe du SI est d'avoir un système cohérent d'unités avec des unités de base, associées à des grandeurs indépendantes, *i.e.* de natures différentes, et des unités dérivées formées par des produits de puissance des unités de base. En outre, le SI est un système pouvant évoluer au gré des avancées scientifiques et technologiques ; le nombre d'unités de base ainsi que leur définition et

leur réalisation peuvent changer. Ce fut le cas pour le mètre dont la définition a changé trois fois entre 1875 et 1983.

Le SI est composé de sept unités de base et d'unités dérivées. Les dates d'adoption des définitions des unités de base s'étalent sur un siècle, la plus ancienne étant celle du kilogramme et la plus récente celle du mètre. Le tableau ci-dessous donne les définitions de ces sept unités de base :

Unité	Symbole	Définition
mètre	m	Le mètre est la longueur du trajet parcouru dans le vide par la lumière pendant une durée de $1/299\,792\,458$ seconde (17 ^{ème} CGPM, 1983)
kilogramme	kg	Le kilogramme est l'unité de masse; il est égal à la masse du prototype international du kilogramme (3 ^{ème} CGPM, 1901)
seconde	s	La seconde est la durée de $9\,192\,631\,770$ périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de césium 133 (13 ^{ème} CGPM, 1967/68)
ampère	A	L'ampère est l'intensité d'un courant constant qui, maintenu dans deux conducteurs parallèles, rectilignes, de longueur infinie, de section circulaire négligeable et placé à une distance de 1 mètre l'un de l'autre dans le vide, produirait entre ces conducteurs une force égale à $2 \cdot 10^{-7}$ newton par mètre de longueur (9 ^{ème} CGPM, 1948)
kelvin	K	Le kelvin, unité de température thermodynamique, est la fraction $1/273.16$ de la température thermodynamique du point triple de l'eau (10 ^{ème} CGPM, 1954)
mole	mol	La mole est la quantité de matière d'un système contenant autant d'entités élémentaires qu'il y a d'atomes dans 0.012 kg de carbone (14 ^{ème} CGPM, 1971)
candela	cd	La candela est l'intensité lumineuse, dans une direction donnée, d'une source qui émet un rayonnement monochromatique de fréquence $540 \cdot 10^{12}$ Hz et dont l'intensité énergétique dans cette direction est $1/683$ watt par stéradian (16 ^{ème} CGPM, 1979)

On remarque rapidement que le kilogramme occupe une place à part. En effet, il s'agit de la seule unité qui est encore à l'heure actuelle définie à partir d'un artefact matériel. La seconde est définie à partir d'un « phénomène » quantique (transitions électroniques dans l'atome de césium) et le mètre à partir de la seconde et d'une constante physique dimensionnée et considérée comme exacte, en l'occurrence la vitesse de la lumière dans le vide c . La seconde et le mètre sont les seules unités qui possèdent une définition « moderne » dans le sens où elles sont basées sur un phénomène quantique. Pour clore cette description rapide du SI, on constate que la définition du kelvin est basée sur un état physique correspondant à un équilibre thermodynamique; la définition de l'ampère, tout en reposant sur la mécanique, nécessite que μ_0 (la perméabilité magnétique du vide) soit fixée.

L'incertitude d'une mesure caractérise l'erreur probable sur le résultat de cette mesure. Actuellement, ce sont les besoins industriels qui définissent les incertitudes recherchées de chaque grandeur. Par exemple, pour les résistances électriques, les incertitudes relatives demandées par l'industrie sont de 10^{-6} . Les centres d'étalonnage doivent donc avoir des références dont les incertitudes sont de l'ordre de 10^{-7} . De fait, l'incertitude relative des étalons primaires dans les instituts nationaux de métrologie doit être de l'ordre de 10^{-9} .

1.3 Unités électriques dans le SI

Les unités électriques sont liées au SI par l'intermédiaire de l'ampère. Celui-ci, tout en étant une unité de base du SI, est défini à partir du mètre, du kilogramme et de la seconde. Les autres unités électriques, le volt pour la tension, le coulomb pour la charge, l'ohm pour la résistance, le farad pour la capacité et le henry pour l'inductance, sont toutes définies à partir de l'ampère et des autres unités de base du SI. L'ampère joue donc le rôle de pierre angulaire pour les définitions des unités électriques dans le SI.

Toutefois, la définition de l'ampère est une définition purement théorique et ne permet pas d'obtenir d'étalon facilement exploitable. En effet, les hypothèses de fils de longueurs infinie et de section négligeable sont très difficiles à réaliser expérimentalement au regard des incertitudes recherchées.

Au milieu du XX^{ème} siècle, un théorème en électrostatique offrit de nouvelles perspectives concernant la réalisation d'étalons d'unités électriques. Il s'agit du théorème de Thompson-Lampard qui relie les capacités croisées de quatre électrodes placées dans le vide. Ce théorème permet ainsi la réalisation d'un étalon calculable de capacité qui est à la fois un étalon de définition et un étalon de représentation du farad. Grâce à l'étalon calculable éponyme, le farad est l'unité électrique dont la définition est réalisée avec la plus faible incertitude à l'heure actuelle dans le SI. C'est pourquoi il est apparu naturel d'avoir une représentation des unités électriques reposant sur l'étalon Thompson-Lampard.

Durant la seconde moitié du XX^{ème}, la découverte et la maîtrise expérimentale de l'effet Josephson et de l'effet Hall quantique a modifié la représentation des unités électriques.

Dans ce qui suit, nous serons amenés à distinguer deux sortes d'étalons différents :

- **étalon de définition** : il s'agit d'un étalon permettant la *réalisation* d'une unité à partir de sa définition dans le SI ;
- **étalon de conservation** : il s'agit d'un étalon permettant la *représentation* pratique d'une unité, il est utilisé dans les laboratoires nationaux de métrologie afin de disséminer l'unité.

A l'heure actuelle, la représentation des grandeurs électriques est basée sur des effets quantiques. Ces effets présentent l'intérêt d'offrir une grande reproductibilité et une universalité des références. Toutefois, les valeurs des étalons quantiques exprimées à partir des unités du SI ne sont pas bien connues.

1.3.1 La représentation du volt et l'effet Josephson

Le volt est défini comme "la différence de potentiel électrique qui existe entre deux points d'un fil conducteur transportant un courant constant de un ampère, lorsque la puissance dissipée entre ces points est égale à un watt". Autrement dit, le volt est une unité dérivée de l'ampère et des unités mécaniques. Pendant longtemps, il était réalisé à partir de la balance du volt qui consiste à comparer une force électrostatique (par exemple la force entre les deux armatures d'un condensateur) à une force mécanique.

La conservation du volt quant à elle se faisait par l'intermédiaire de piles étalons au cadmium, les piles Weston saturées, qui ont une force électromotrice de 1.01864 V à 20°C. Du fait de la présence d'une solution électrolytique, ces piles ne sont pas aisément transportables. La reproductibilité de conservation du volt était alors limitée à quelques 10^{-6} .

Prédit en 1962 par B. Josephson [4] (récompensé en 1973 par le prix Nobel de physique), l'effet Josephson a été observé au cours de l'année suivante par S. Shapiro [5]. Les dispositifs à effet Josephson sont utilisés aujourd'hui comme étalons de représentation du volt. L'effet Josephson apparaît lorsque l'on place un matériau isolant entre deux matériaux supraconducteurs. La supraconductivité est un phénomène quantique macroscopique se manifestant à basse température dans

certain matériaux ; elle se caractérise notamment par l'appariement d'électrons en paires de Cooper. Considérons une jonction Josephson constituée de deux systèmes supraconducteurs séparés par une barrière isolante (*c.f.* Figure 1.1), les paires de Cooper peuvent traverser la barrière isolante par effet tunnel.

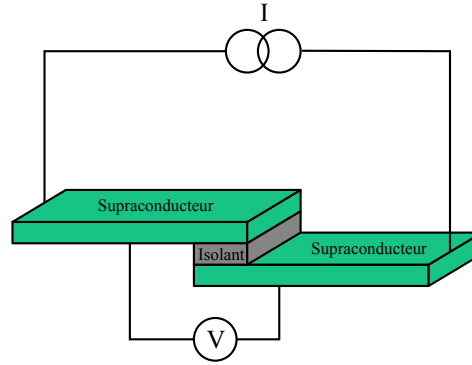


FIGURE 1.1 – Schéma de principe d'une jonction Josephson ; en vert les deux électrodes supraconductrices et en gris la barrière isolante. V est la tension de polarisation de la jonction.

Lorsque la tension de polarisation de la jonction est nulle, il apparaît un supercourant, I_S , entre les deux électrodes :

$$I_S = I_0 \sin(\Delta\phi) \quad (1.1)$$

où I_0 est le supercourant maximal que peut supporter la jonction et $\Delta\phi$ est la différence de phase entre les deux électrodes supraconductrices. Il s'agit de l'effet Josephson continu.

Si la jonction est polarisée par une tension V non nulle, la différence de phase obéit à l'équation suivante :

$$\frac{d\Delta\phi}{dt} = \frac{2eV}{h} \quad (1.2)$$

Dans le cas où la tension de polarisation est continue, le supercourant circulant au travers de la jonction est alternatif de fréquence $\nu = 2eV/h$. Et si on irradie la jonction avec un signal hyperfréquence de fréquence f_J , le supercourant se synchronise avec l'onde électromagnétique à la fréquence f_J . La caractéristique $I(V)$ de la jonction est alors composée de marches pour des valeurs de V telles que : $V = n_J f_J (h/2e)$ où n_J est un nombre entier. Cette caractéristique porte le nom de marches de Shapiro (*c.f.* Figure 1.2-b)).

Dans l'étude de l'effet Josephson, la constante Josephson K_J est introduite et définie comme le rapport entre la fréquence d'irradiation et la différence de potentiel sur la marche $n_J = 1$. Elle est théoriquement liée aux constantes h et e par la relation :

$$K_J \equiv \frac{2e}{h} \left(= \frac{1}{\Phi_0} \right) \quad K_J \approx 4.827 \times 10^{14} \text{ Hz/V} \quad (1.3)$$

Les marches de tension sont données par :

$$V = K_J^{-1} f_J \quad (1.4)$$

Dans les années 1980, cette relation fut testée dans des jonctions faites de matériaux différents ou de géométries différentes avec une incertitude relative de quelques 10^{-16} . Il a alors été décidé d'utiliser l'effet Josephson pour la conservation du volt.

Toutefois, les tensions délivrées par une jonction Josephson restent faibles ; on a typiquement $144.9 \mu\text{V}$ avec une fréquence de la polarisation de 70 GHz et $207 \mu\text{V}$ avec une fréquence de 100 GHz. Pour obtenir des tensions plus élevées, on réalise un réseau de jonctions en série (additivité des tensions). Les premiers réseaux Josephson sont apparus au cours des années 1980. A l'heure actuelle, un réseau composé de plus de 8192 jonctions (réseau de jonctions programmables) permet d'obtenir un étalon de 1 volt (Figure 1.2-a)) avec des incertitudes relatives inférieures à 10^{-10} .

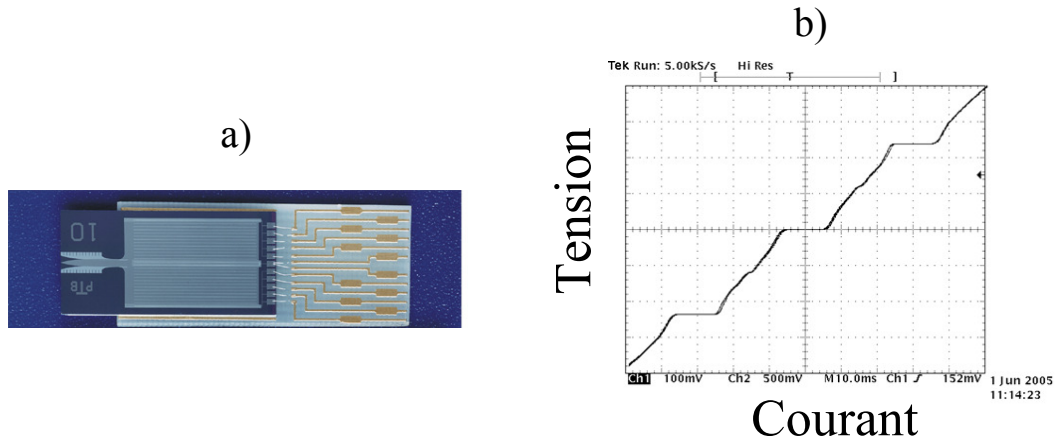


FIGURE 1.2 – a) Photographie d'un réseau de jonctions Josephson programmables comprenant 8192 jonctions utilisé comme étalon à 1 volt. b) Marches de Shapiro de ce réseau issues de caractérisations faites au LNE.

Un aperçu de la conservation du volt montre ainsi que l'incertitude sur la représentation du volt entre les différents laboratoires nationaux de métrologie est passée de 10^{-4} à 10^{-6} avec les piles Weston entre 1930 et 1970. L'introduction de l'effet Josephson et des dispositifs à une seule jonction ont permis de passer à 10^{-8} et enfin l'introduction des réseaux Josephson au milieu des années 80 a fait descendre cette incertitude sur l'accord du volt entre les laboratoires à moins de 10^{-9} . Autrement dit, l'effet Josephson a considérablement amélioré la représentation du volt. Une revue de l'utilisation de l'effet Josephson en métrologie du volt est disponible dans [6].

1.3.2 La représentation de l'ohm et l'effet Hall quantique

L'ohm est défini comme *"la résistance électrique qui existe entre deux points d'un conducteur lorsqu'une différence de potentiel constante de un volt, appliquée entre ces deux points, produit, dans le conducteur, un courant de un ampère, ce conducteur n'étant le siège d'aucune force électromotrice."*

La réalisation de l'ohm dans le SI s'effectuait par l'intermédiaire d'un étalon du farad, comme l'étalon calculable de Thompson Lampard, en utilisant un pont d'impédance dit de quadrature qui permet de comparer une résistance à une capacité si la fréquence d'alimentation du pont est bien déterminée.

La conservation de l'unité s'effectuait jusqu'en 1990 par des résistances métalliques bobinées conservées dans des bains maintenus à température constante. La dispersion relative entre différents NMIs était alors de quelques 10^{-6} illustrant la mauvaise représentation de l'ohm à cette époque (Figure 1.3-a)).

La découverte de l'effet Hall quantique en 1980 [1] a abouti à l'attribution du prix Nobel de physique à K. von Klitzing en 1985. Au même titre que l'effet Josephson pour la représentation du volt, l'effet Hall quantique a profondément changé la représentation de l'ohm. En effet, l'incertitude

sur la représentation de l'ohm entre les différents laboratoires nationaux de métrologie est passée de quelques 10^{-6} au début des années 80 (utilisation de résistances bobinées) à quelques 10^{-9} à l'heure actuelle grâce à l'effet Hall quantique (Figure 1.3-b)). Il est à noter que seulement dix ans après sa découverte, le CIPM recommandait son utilisation pour le maintien de l'ohm [7] tout comme l'effet Josephson pour le maintien du volt.

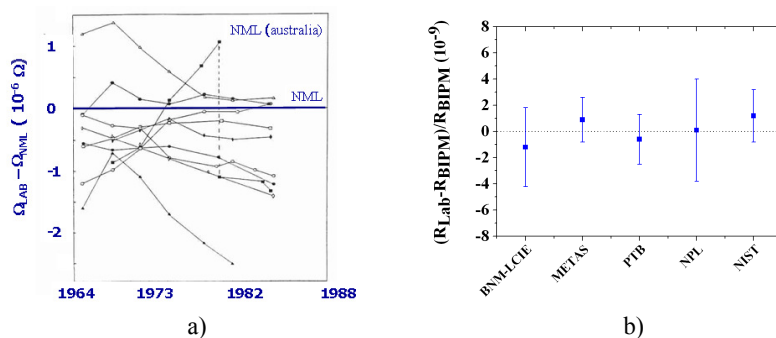


FIGURE 1.3 – a) Comparaison de l'ohm entre différents NMIs (Ω_{LAB}) et le NML d'Australie (Ω_{NMI}); b) Comparaison bilatérale entre le BIPM et différents NMIs.

Nous verrons au Chapitre 3 comment la résistance transverse d'un conducteur bidimensionnel placé à basse température et sous fort champ magnétique est quantifiée en R_K/i , i étant un entier et R_K la constante de von Klitzing :

$$R_K \equiv \frac{e^2}{h} \quad R_K \approx 25812.807 \Omega \quad (1.5)$$

1.3.3 L'ampère et les transistors monoélectroniques

L'ampère est défini comme "l'intensité d'un courant constant qui, maintenu dans deux conducteurs parallèles, rectilignes, de longueur infinie, de section circulaire négligeable et placé à une distance de 1 mètre l'un de l'autre dans le vide, produirait entre ces conducteurs une force égale à 2.10^{-7} newton par mètre de longueur". Comme nous l'avons dit précédemment, cette définition théorique est très difficile à mettre en œuvre expérimentalement au regard des incertitudes recherchées à l'heure actuelle. Une nouvelle voie de réalisation de l'ampère fondée sur un effet quantique est apparue dans les années 1990.

La figure 1.4-a) représente une jonction tunnel : il s'agit d'une structure métallique interrompue par un isolant d'épaisseur fine (2 – 3 nm). Dans une telle structure, les électrons ont une probabilité non nulle de traverser la barrière isolante par effet tunnel, un effet observé à la fin des années 60 [8]. L'énergie de Coulomb de l'îlot est $Q^2/(2C)$ où Q est sa charge électrique et C est sa capacité. $Q^2/(2C)$ est l'énergie à payer pour ajouter un électron dans l'îlot. Le passage d'un électron au travers de la jonction n'est possible que s'il y a un état libre, dans l'îlot, ayant énergie inférieure à celle de l'électron. Il s'agit du blocage de Coulomb.

Le transistor à un électron (SET) permet de mettre à profit le blocage de Coulomb. C'est d'ailleurs sur de tels dispositifs que fut observé expérimentalement le phénomène de blocage [9]. Un SET est un circuit électrique interrompue par deux jonctions tunnel qui définissent un îlot (*c.f.* figure 1.4-b)). En outre l'îlot est couplé capacitivement à une électrode de grille. Celle-ci permet, lorsqu'on la polarise en tension, de contrôler l'état de charge et donc l'occupation de l'îlot. Ainsi, en exploitant le blocage de Coulomb, il est possible de générer un courant où les électrons passent un par un ou pas du tout. En effet, en raison de l'énergie de charge de l'îlot, un électron ne peut

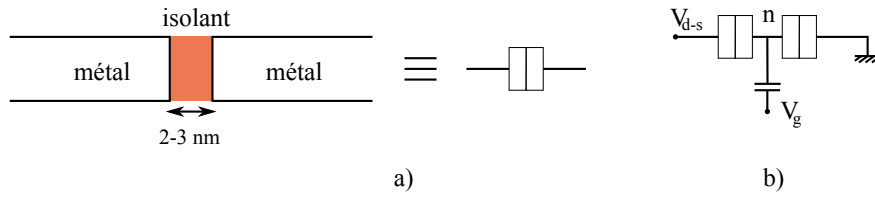


FIGURE 1.4 – a) Représentation d’une jonction tunnel métal/isolant/métal ; b) Schéma électrique d’un transistor SET, n est le nombre d’électrons en excès sur l’îlot.

entrer dans l’îlot par une jonction tunnel que si le précédent électron a quitté l’îlot par l’autre jonction.

Pour une application en métrologie, il est nécessaire de maîtriser le débit des électrons passant au travers du système. Pour cela, les dispositifs proposés et utilisés sont les pompes à électrons ; elles ont vu le jour au début des années 90 [10]. Les pompes à électrons sont des circuits électriques interrompus par N jonctions tunnel définissant $N - 1$ îlots qui fonctionnent comme des écluses à électrons. La figure 1.5-a) représente une pompe à trois jonctions. En mode dynamique, c’est à dire lorsqu’on applique des tensions alternatives déphasées typiquement de $\pi/2$ sur les deux électrodes de grille, on observe des marches de courant (*c.f.* figure 1.5-b)) pour lesquelles la valeur du courant est quantifiée. On appelle fréquence de pompage des électrons, f , la fréquence des tensions de grille des deux îlots (un des deux tensions est déphasée par rapport à l’autre). Le courant circulant dans une pompe à électrons s’écrit :

$$I = \pm Qf \quad \text{avec } Q = e \quad (1.6)$$

Dans les pompes à électrons avec une fréquence de pompage de 100 MHz, le courant généré est 16 pA.

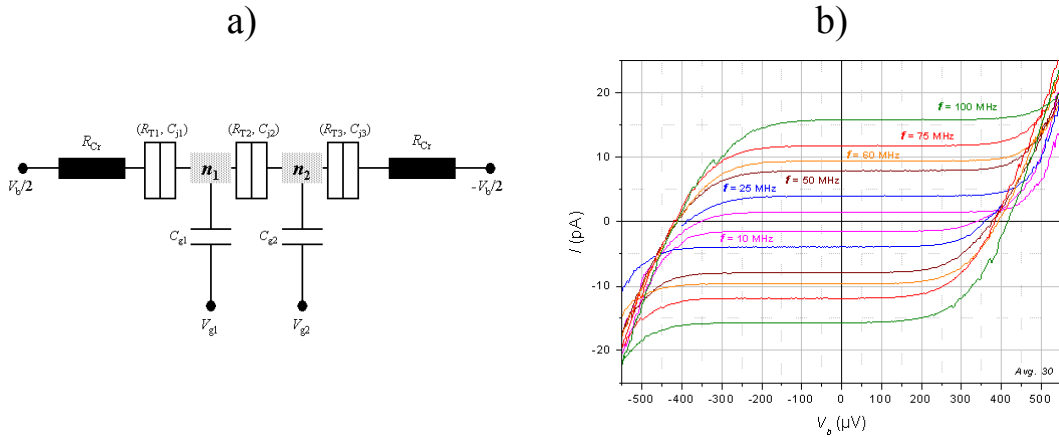


FIGURE 1.5 – a) Schéma électrique d’une pompe à électrons à trois jonctions ; b) Marches de courant à différentes fréquences.

De tels dispositifs ont fait l’objet de nombreux travaux métrologiques afin d’obtenir un étalon de représentation de l’ampère. Cependant les courants générés étant très faibles (typiquement de l’ordre de 10^{-11} A), des amplificateurs basés sur des comparateurs cyogéniques de courants sont utilisés pour les mesurer. Leur bruit sont à l’origine d’une augmentation des incertitudes de mesure. Les pompes à électrons ne permettent pas, à l’heure actuelle, d’obtenir une représentation

métrologique de l'ampère avec une incertitude requise par les besoins industriels (10^{-8}). La principale raison est que l'effet tunnel n'est pas aussi robuste que l'effet Josephson et l'effet Hall quantique.

Toutefois, intégrées dans l'expérience du triangle métrologique, elles devraient permettre de vérifier la cohérence des trois phénomènes quantiques que sont l'effet Josephson, l'effet Hall quantique et l'effet tunnel à un électron. Dans une voie directe, l'expérience du triangle métrologique consiste à vérifier la loi d'Ohm avec des étalons quantiques de tension, de courant et de résistance. Le courant généré par un dispositif SET circule dans une résistance étalonnée en termes de R_K grâce à l'effet Hall quantique. La tension induite aux bornes de la résistance est comparée à une tension créée par un réseau Josephson. Cette comparaison permet de déterminer le produit $R_K K_J Q$ et de le comparer à la valeur attendue, en l'occurrence 2. On trouvera un exposé détaillé de l'expérience du triangle métrologique menée au LNE dans [11]. Cette expérience du triangle métrologique s'inscrit dans le cadre plus large de redéfinition des unités qui aboutirait à une redéfinition du SI.

1.3.4 La balance du Watt : lien entre unités électriques et mécaniques

Il reste une dernière expérience à évoquer dans cet aperçu de la métrologie électrique. Il s'agit de l'expérience de la balance du Watt. Elle fut proposée en 1975 par Kibble dans [12] (chapitre 5). Le principe de cette expérience est de comparer une masse à des grandeurs électriques. Elle doit permettre de relier le kilogramme aux unités électriques par le biais d'une comparaison de puissances.

L'expérience a deux phases :

- Une phase statique (*c.f.* figure 1.6-a)) pendant laquelle on fait circuler un courant I dans un conducteur de longueur l placé dans un champ magnétique radial B de telle sorte que la force de Laplace compense exactement le poids de la masse placée en vis-à-vis sur la balance. On a alors $mg = BIl$.
- Une phase dynamique (*c.f.* figure 1.6-b)) qui consiste à déplacer l'ensemble de la balance dans un mouvement rectiligne à la vitesse v sans faire circuler de courant dans le conducteur mais en maintenant le champ magnétique radial. La tension e induite aux bornes du conducteur est : $e = Blv$. La phase dynamique a pour but de déterminer les paramètres géométriques du circuit magnétique. En combinant les deux équations, on a : $mgv = eI$.

Lors de la phase statique, le courant I est mesuré grâce à la loi d'Ohm, c'est à dire en mesurant la tension V qui apparaît aux bornes d'une résistance R . Les grandeurs V et R sont elle-mêmes déterminées avec une très faible incertitude grâce à l'effet Josephson et l'effet Hall quantique. On obtient la relation : $mgv = A/(K_J^2 R_K)$ où A est un paramètre connu.

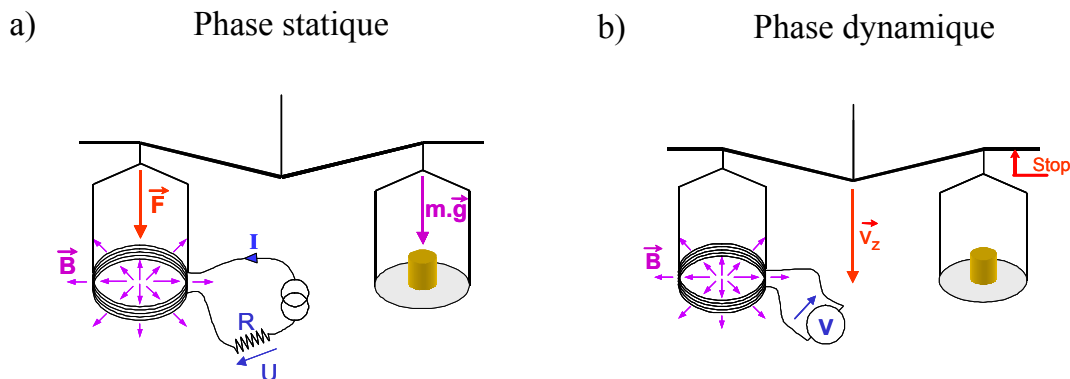


FIGURE 1.6 – a) Schéma de principe des deux phases de l'expérience de la balance du Watt, a) en phase statique et b) en phase dynamique.

L'expérience de la balance du Watt permet donc de déterminer le produit $K_J^2 R_K$ dans le SI. Si l'on prend en considération les relations théoriques vues précédemment pour l'effet Josephson et l'effet Hall quantique : $K_J \equiv 2e/h$ et $R_K \equiv h/e^2$, l'expérience de la balance du Watt consiste à relier le kilogramme à la constante de Planck. On trouvera un exposé détaillé de l'expérience de la balance du Watt menée au LNE dans [13]. A termes, la balance du Watt permettrait de définir le kilogramme à partir de h que l'on aurait fixé dans un futur SI.

1.4 Vers une redéfinition du SI

1.4.1 Nécessité d'une redéfinition

L'effet Hall quantique et l'effet Josephson ont révolutionné la représentation la représentation des unités électriques. En outre, la possibilité de relier l'ampère à la charge de l'électron grâce aux pompes à électrons est intensivement étudiée. Ces dispositifs sont basés sur un troisième effet quantique de la matière condensée qui est l'effet tunnel. La très grande reproductibilité et l'universalité de ces effets quantiques ont pour origine le lien intrinsèque avec les constantes fondamentales h et e . Ces caractéristiques ont amené les métrologues à envisager la redéfinition du SI vers un SI plus « naturel » qui serait obtenu en fixant certaines constantes fondamentales de la physique : h , e , c , k_B et \mathcal{N}_A . Ce SI naturel serait plus en adéquation avec la physique moderne et en particulier les effets quantiques de la matière condensée. Cette redéfinition permettrait de combler l'écart qui existe entre les représentations actuelles et les définitions des unités.

A l'heure actuelle, le kilogramme est la dernière unité définie par rapport à un artéfact matériel. Comme nous l'avons vu précédemment, une voie possible pour redéfinir le kilogramme est de le relier aux unités électriques dans l'expérience de la balance du watt. Ceci permettrait de tirer pleinement profit de la grande reproductibilité des représentations quantiques du volt et de l'ohm.

L'effet Hall quantique et l'effet Josephson joue un rôle clef dans cette redéfinition. Cette dernière serait une réussite majeure pour la métrologie électrique quantique et en particulier de l'application en métrologie électrique de l'effet Hall quantique. Avant de pouvoir redéfinir le SI, plusieurs objectifs doivent être atteints. En particulier, il est impératif de vérifier la relation $R_K = h/e^2$. Cette vérification passe par les déterminations indépendantes de R_K et de h/e^2 dans le SI.

De plus, étant donné le rôle crucial joué par l'effet Hall quantique (il intervient dans les expériences du triangle métrologique et de la balance du watt), il est nécessaire d'améliorer sa maîtrise expérimentale et d'en approfondir notre compréhension.

1.4.2 Détermination dans le SI

Nous allons nous focaliser sur l'unité de résistance électrique, l'ohm, représentée par l'effet Hall quantique. Cet effet se manifeste par la quantification de la résistance transverse d'un conducteur bidimensionnel en sous multiples de R_K . Nous verrons au Chapitre 3 qu'il existe des arguments théoriques forts, tels que l'invariance topologique par exemple, permettant de déterminer théoriquement R_K :

$$R_K \equiv \frac{h}{e^2} . \tag{1.7}$$

Le point de vue adopté par les métrologues est le suivant ; avec quel niveau d'incertitude les techniques expérimentales actuelles permettent-elles de vérifier l'égalité théorique entre R_K et h/e^2 . Pour répondre à cette question, il est nécessaire de déterminer indépendamment R_K et h/e^2 dans le SI.

Détermination de R_K dans le SI

Pour déterminer R_K dans le SI, les métrologues utilisent l'étalon calculable de capacité [14]. L'étalon calculable est basé sur le théorème Thompson-Lampard qui relie les capacités croisées d'électrodes. Cet étalon permet d'obtenir une capacité qui ne dépend que de caractéristiques géométriques : la capacité calculable est reliée au mètre et à μ_0 , perméabilité du vide, qui est fixée dans le SI.

Un pont de quadrature est un pont de comparaison d'impédances fonctionnant en courant alternatif. Il permet de comparer une résistance matérielle étalonnée en termes de R_K et une capacité calculable. Grâce à cette méthode, l'incertitude sur la valeur de R_K dans le SI obtenue au LNE en 2003 est 5.3×10^{-8} . Au total, il existe plusieurs déterminations issues de différents NMIs. Après calcul d'une moyenne pondérée sur ces valeurs, le groupe CODATA a attribué l'incertitude de 1.7×10^{-8} à la détermination de R_K dans le SI [15].

Détermination de h/e^2 dans le SI

Quant à la détermination de h/e^2 dans le SI, rappelons que dans le SI actuel les constantes c , vitesse de la lumière dans le vide, et μ_0 , perméabilité du vide, sont fixées : les incertitudes associées à ces deux grandeurs sont nulles. De fait, déterminer α , constante de structure fine, revient à déterminer h/e^2 car :

$$\alpha = \frac{\mu_0 c}{2 \frac{h}{e^2}} \quad (1.8)$$

α fut introduite par A. Sommerfeld en 1916 ; elle régit la force électromagnétique entre le noyau et les électrons d'un atome assurant sa cohérence. La meilleure détermination a été réalisée en 2006 par des mesures du rapport gyromagnétique de l'électron, g , combinées à des calculs d'électrodynamique quantique (calculs de diagrammes de Feynman) [16]. L'incertitude relative obtenue par cette voie est 0.7×10^{-10} (valeur entourée en vert sur la Figure 1.7). α peut aussi être déterminée par des mesures d'interférométrie atomique avec du rubidium ; ce type de mesure permet d'atteindre une incertitude de 6.7×10^{-9} (valeur entourée en bleu sur la Figure 1.7).

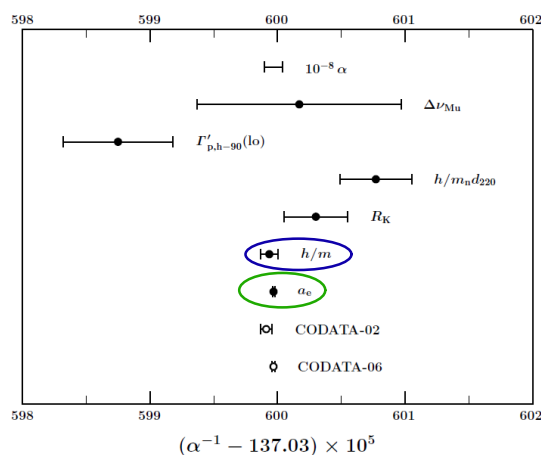


FIGURE 1.7 – Comparaison des valeurs de la constante de structure fine α .
 Courbe tirée de [15].

Au vu des incertitudes sur la détermination de α , c'est la détermination de R_K dans le SI qui freine actuellement la vérification de l'égalité théorique entre R_K et h/e^2 avec les meilleures incertitudes. De nouvelles déterminations sont donc nécessaires. A cette fin, un nouvel étalon

calculable de capacité est en cours de développement au LNE afin de réduire l'incertitude sur la détermination de R_K dans le SI.

Constantes conventionnelles exactes

Prenant en compte le fait que R_K doit très probablement être égale à h/e^2 , le CIPM a attribué à R_K entachée d'une incertitude égale à 1×10^{-7} :

$$R_K = 25812.807 \, \Omega \, (1 \pm 1 \times 10^{-7}) \quad (1.9)$$

Pour des raisons pratiques, il a été adopté en 1990 une valeur conventionnelle exacte de R_K pour la communauté des personnes mesurant des résistances électriques. C'est une valeur connue de tous et sur laquelle il n'y a aucune incertitude. Il s'agit de R_{K-90} :

$$R_{K-90} = 25812.807 \, \Omega \quad (1.10)$$

Lorsqu'on utilise la valeur conventionnelle exacte, aucune incertitude sur R_{K-90} n'est prise en compte dans les certificats d'étalonnage. Autrement dit, les résistances matérielles sont étalonnées en termes de R_{K-90} . Il faut souligner que le même raisonnement est appliqué à la métrologie du volt : une valeur conventionnelle exacte a été fixée pour K_J en 1990 :

$$K_{J-90} = 483597.9 \, \text{GHz} \cdot \text{V}^{-1} \quad (1.11)$$

Les étalonnages de tensions sont réalisés en termes de K_{J-90} .

1.4.3 Connaissance de R_K

Au delà de la détermination dans le SI, une meilleure compréhension de l'effet Hall quantique passe par une meilleure connaissance de la constante R_K . En effet, outre l'amélioration des modèles physiques qui permettent de décrire l'effet Hall quantique, il est nécessaire de vérifier qu'en tant qu'étalon cet effet est reproductible et universel avec des incertitudes de mesure les plus faibles possibles.

Tests de reproductibilité de l'effet Hall quantique

Un test de reproductibilité consiste à vérifier que l'effet reste le même au cours du temps. Une manière de le vérifier est de comparer de façon directe l'effet Hall quantique dans quatre barres de Hall réalisées dans le même matériau. Il s'agit d'un test de quantification directe en faisant varier très peu de paramètres.

Un test de reproductibilité de l'effet Hall quantique dans quatre barres de Hall en GaAs/Al-GaAs a été réalisé au LNE [17]. Le montage utilisé consiste à disposer quatre barres de Hall différentes, et caractérisées individuellement au préalable, dans une géométrie de pont de Wheatstone *c.f.* Figure 1.8). Ce pont est polarisé avec une tension ; si l'effet Hall quantique dans une des quatre barres diffère de l'effet Hall quantique dans les trois autres barres, il apparaît un courant de déséquilibre au centre du pont. Le comparateur cryogénique de courants, que nous présenterons au Chapitre 4, est utilisé comme amplificateur de courant pour mesurer ce courant de déséquilibre. Dans le système utilisé au LNE, il a été démontré une reproductibilité avec une incertitude relative inférieure à 4×10^{-11} dans GaAs [18].

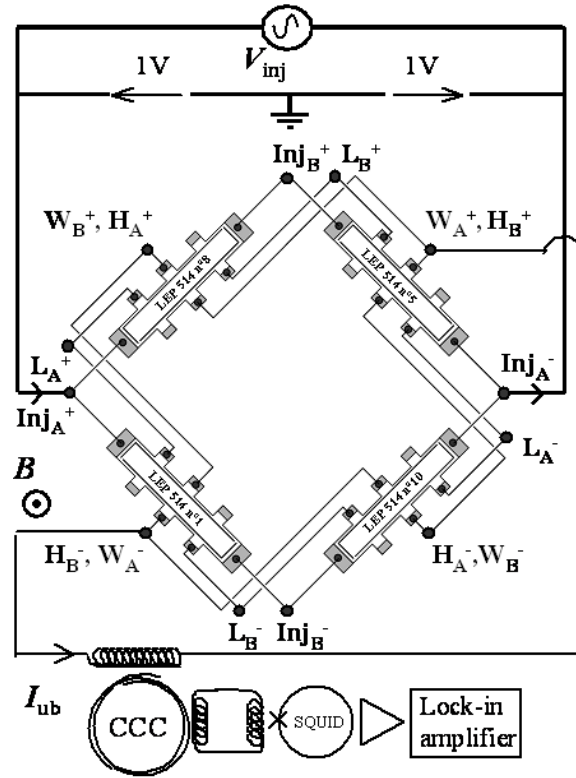


FIGURE 1.8 – Schéma du pont de Wheatstone quantique utilisé au LNE pour tester la reproductibilité de l'effet Hall quantique dans quatre barres de Hall GaAs/AlGaAs. La tension est appliquée entre les points InjA+ et InjA- et le courant de déséquilibre est mesuré entre les contacts HB+ et HB-.

Tests d'universalité de l'effet Hall quantique

Pour approfondir la connaissance de R_K , on peut envisager la comparaison directe entre deux effets Hall quantiques ayant lieu simultanément dans deux matériaux différents. Ce type de mesure constitue un test d'universalité de l'effet Hall quantique. On ne s'attend pas à observer d'écart, toutefois il est nécessaire de réaliser cette comparaison avec la plus faible incertitude relative possible.

Des tests d'universalité ont déjà été réalisés : Delahaye *et al.* [19] en 1986 ont comparé l'effet Hall quantique entre des barres de Hall fabriquées en GaAs/AlGaAs et d'autres en InGaAs/InP. Ils ont démontré, sur les plateaux $\nu = 2$ et $\nu = 4$, un accord avec une incertitude relative de 2.2×10^{-8} . Hartland *et al.* [20] en 1991 ont comparé de manière directe l'effet Hall quantique dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs (plateau $\nu = 2$) à l'effet Hall quantique dans un MOSFET silicium (plateau $\nu = 4$) ; ils ont démontré un accord avec une incertitude relative de 3.5×10^{-10} .

Un montage du type pont de Wheatstone peut être mis à profit pour réaliser un test d'universalité de haute exactitude. Pour cela, on utilise trois barres de Hall fabriquées en GaAs/AlGaAs et précaractérisées individuellement et une quatrième barre de Hall dans un matériau différent, elle aussi caractérisée au préalable.

Depuis 2005 et la première observation de l'effet Hall quantique dans des feuillets de graphène, les métrologues ont rapidement envisagé que le graphène puisse servir à la réalisation

de tels tests. Comme nous verrons au Chapitre 6, la physique de l'effet Hall quantique dans une monocouche de graphène est différente de celle dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs : dans le premier cas on a un effet Hall quantique pour des fermions de Dirac alors que dans le second cas, il s'agit d'un effet Hall quantique de fermions de Schrödinger. Nous expliquerons ces appellations aux Chapitres 2 et 6.

Pour envisager la réalisation d'un test d'universalité en utilisant un feuillet de graphène, il est nécessaire de vérifier la qualité de la quantification de la résistance de Hall dans ce feuillet. Ces tests de quantification consistent à comparer indirectement la résistance de Hall dans le feuillet à la résistance de Hall dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs à l'aide d'un étalon de transfert. Pour envisager la réalisation d'un test d'universalité, il faut mesurer l'écart relatif entre la résistance de Hall dans le feuillet de graphène et la résistance de Hall dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs avec une incertitude de l'ordre de 10^{-9} .

C'est dans ce contexte que ce travail de thèse a débuté. Son objectif est de réaliser des tests de quantification de la résistance de Hall dans des feuillets monocouche et bicouche de graphène pour envisager la réalisation future de tests d'universalité en comparant l'effet Hall quantique dans le graphène avec l'effet Hall quantique dans une GaAs.

Première partie

Introduction au transport
électronique

Chapitre 2

La transport électronique

2.1 Du transport classique au transport quantique

Les propriétés de conduction électrique locale d'un matériau sont décrites par la conductivité σ ou son inverse, la résistivité ρ . Une conductivité élevée indique que les porteurs de charge (électrons ou trous) peuvent se déplacer librement en subissant peu de collisions. Pour étudier le transport électronique, nous nous placerons dans le cadre de la réponse linéaire en courant à une excitation électrique. La rédaction de ce chapitre s'appuie sur des ouvrages de référence tels que les œuvres de Datta [21], de Imry [22], de Montambaux et Akkermans [23] ou encore Beenakker et van Houten [24].

Dans toute la suite, nous nous focaliserons sur le transport à fréquence quasi nulle, c'est-à-dire en courant continu : $\hbar\omega \ll k_B T$ et $\hbar\omega \ll eV$ où \hbar est la constante de Planck, k_B la constante de Boltzmann, $-e$ la charge électrique de l'électron ($e > 0$), $f = \omega/2\pi$ la fréquence, T la température et V est la différence de potentiel électrostatique, *i.e.* l'excitation électrique.

Afin de décrire les propriétés de conduction dans un conducteur macroscopique, on peut utiliser le modèle de Drude. Dans le cadre de ce modèle, les électrons sont considérés comme des particules ponctuelles et soumises à une force extérieure $-e\mathbf{E}$ (où \mathbf{E} est le champ électrique créé par la différence de potentiel appliquée). En outre, dans un solide, les électrons ont une masse effective m^* , différente de la masse dans le vide. Cette masse effective est propre à la cristallographie du solide considéré. Par exemple, dans GaAs, la masse effective des électrons est $m^* = 0.067m_e$ avec $m_e \approx 9.11 \times 10^{-31}$ kg.

Au sein du conducteur, les électrons vont subir des collisions. Deux grandes hypothèses sont à la base du modèle de Drude : la première consiste à supposer qu'entre deux chocs, les électrons se déplacent sans interagir avec leur environnement, par exemple les autres électrons. Par conséquent, ces électrons ont un mouvement rectiligne et uniforme entre deux chocs. La seconde hypothèse concerne ces derniers : ils sont instantanés et assurent une redistribution aléatoire et isotrope de la vitesse des électrons.

Pendant l'intervalle de temps Δt qui s'écoule depuis sa dernière collision, l'électron acquiert une vitesse de dérive $\mathbf{v} = -\frac{e\Delta t}{m^*}\mathbf{E}$. La valeur moyenne de Δt est appelée temps de collision τ . Ainsi, la valeur moyenne de cette vitesse de dérive est :

$$\mathbf{v}_{drift} = -\frac{e\tau}{m^*}\mathbf{E} = \mu_e\mathbf{E}, \quad (2.1)$$

où on a défini la mobilité électronique $\mu_e \equiv -\frac{e\tau}{m^*}$. La mobilité est d'autant plus grande que le désordre est faible. Nous allons principalement nous intéresser à des conducteurs bidimensionnels. Il est à l'heure actuelle possible d'obtenir des gaz 2D d'électrons dans des hétérostructures

GaAs/AlGaAs qui atteignent plusieurs $10^7 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ de mobilité à basse température. Dans le cas de nos échantillons de graphène, les mobilités typiques sont beaucoup plus faible : $5 \times 10^3 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$.

En multipliant l'équation 2.1 par $-en$ (n est la densité volumique de porteurs), on obtient la densité de courant qui est reliée à la conductivité par la Loi d'Ohm ($\mathbf{j}_{drift} = \sigma \mathbf{E}$). La comparaison des deux égalités permet d'obtenir la conductivité de Drude :

$$\sigma \equiv en\mu_e = \frac{ne^2\tau}{m^*} . \quad (2.2)$$

Sous l'effet d'un champ électrique extérieur les électrons sont donc mis en mouvement ce qui provoque un gradient de concentration ∇n . En réponse à ce gradient, il apparaît un courant de diffusion donné par la Loi de Fick :

$$\mathbf{j}_{diff} = eD\nabla n , \quad (2.3)$$

où D est le coefficient de diffusion.

Les électrons sont des fermions et obéissent à une distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\epsilon) = \frac{1}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} - 1} . \quad (2.4)$$

Pour une telle distribution, en raison du principe de Pauli, seuls les électrons situés au niveau de Fermi (où, à température finie, situés dans un intervalle $\pm k_B T$ autour du niveau de Fermi) vont pouvoir participer à la conduction, les électrons situés à des énergies inférieures n'ayant pas d'états libres accessibles. L'énergie du niveau de Fermi est appelée énergie de Fermi ϵ_F .

Lorsqu'on se place à l'équilibre thermodynamique, le potentiel chimique donné par $\mu = \epsilon_F + eV$ (V est la tension appliquée) est uniforme :

$$\nabla\mu = \mathbf{0} \Rightarrow e\mathbf{E} + \frac{\partial\epsilon_F}{\partial n}\nabla n = \mathbf{0} \quad (2.5)$$

$$\Rightarrow \mathbf{E} = -\frac{1}{e} \frac{1}{\frac{\partial n}{\partial \epsilon_F}} \nabla n , \quad (2.6)$$

avec $\frac{\partial n}{\partial \epsilon_F} = g(\epsilon_F)$ la densité d'états (densité d'états électroniques par unité d'énergie) évaluée à l'énergie de Fermi.

En outre, la notion d'équilibre thermodynamique revient à dire que le courant total, somme du courant de dérive et du courant de diffusion, s'annule. On a donc :

$$\mathbf{j} = \mathbf{0} \Rightarrow \sigma \mathbf{E} + eD\nabla n = \mathbf{0} . \quad (2.7)$$

Ainsi, en combinant 2.6 et 2.7, on obtient la relation d'Einstein qui relie la conductivité au coefficient de diffusion :

$$\sigma = e^2 D g(\epsilon_F) . \quad (2.8)$$

Cette relation lie la conductivité électrique à deux grandeurs mesurées au niveau de Fermi (*a priori* D dépend de l'énergie).

La conductivité est une grandeur locale qui permet de faire une description microscopique : elle relie la densité locale de courant au champ électrique ($\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$, loi d'Ohm locale). Une expérience de transport ne permet pas d'avoir accès à la conductivité mais permet de mesurer la conductance, G . En effet, G relie le courant total à la chute de potentiel ($I = GV$, loi d'Ohm intégrée). C'est une grandeur globale. Notant L et W respectivement la longueur et la section du conducteur bidimensionnel, on peut déterminer la relation qui lie conductivité et conductance :

$$G = \frac{W}{L} \sigma . \quad (2.9)$$

Cette loi d'échelle, qui décrit le comportement ohmique d'un conducteur, soulève une question : jusqu'à quel point peut-on diminuer les dimensions du conducteur (L et/ou W) avant que cette relation ne soit mise en défaut ? Par exemple, en diminuant la longueur L , observe-t-on une divergence de la conductance G ? Pour répondre à cette question, il est nécessaire d'introduire des longueurs caractéristiques du transport électronique.

2.2 Temps et longueurs caractéristiques

Jusqu'à maintenant, nous avons considéré les porteurs de charge comme des corpuscules. Nous allons voir par la suite que la description des propriétés de transport électronique nécessite de tenir compte aussi de leur caractère ondulatoire, c'est à dire réaliser une description quantique de l'électron. En particulier, la fonction d'onde qui décrit l'électron est solution d'un Hamiltonien. A ce titre là, on peut définir la longueur d'onde. Ensuite, les différents processus de diffusion subis par les porteurs dans le conducteur amènent à définir des temps et des longueurs caractéristiques de ces différents processus. De plus, en raison du caractère ondulatoire des électrons, il faut introduire un concept fondamental qui est la cohérence de phase. Ces échelles de longueur permettent de définir un domaine situé entre le microscopique et le macroscopique : le domaine mésoscopique où se manifeste le caractère ondulatoire des électrons..

2.2.1 La longueur d'onde

Considérons un électron libre, *i.e.* soumis à aucune force. L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \Delta \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.10)$$

Les solutions de cette équation différentielle sont du type [25] :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = A e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \epsilon(\mathbf{k})/\hbar t)} \quad (2.11)$$

où $\epsilon(\mathbf{k})$ est donnée par la relation de dispersion de l'électron libre : $\epsilon(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$.

Selon le principe de superposition, toute combinaison linéaire de ces solutions est aussi solution de l'équation de Schrödinger. De cette manière, on construit des paquets d'ondes qui décrivent les électrons [25] :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int g(\mathbf{k}) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \epsilon(\mathbf{k})/\hbar t)} d^3k \quad (2.12)$$

où $g(\mathbf{k})$ présente un maximum en un \mathbf{k} donné qui représente le vecteur d'onde central du paquet d'ondes, noté \mathbf{k}_0 .

On appelle vitesse de groupe, v_G , la vitesse de déplacement du paquet d'ondes : $v_G \equiv 1/\hbar \partial \epsilon / \partial k$ (dérivée prise en $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0$). Avec la relation de dispersion, on obtient : $v_G = \hbar |\mathbf{k}_0| / m^*$. La vitesse de groupe est la vitesse de l'électron décrit par le paquet d'ondes.

Les électrons situés au niveau de Fermi ont un vecteur d'onde de module k_F , tel que :

$$k_F = \frac{1}{\hbar} \sqrt{2m^* \epsilon_F} . \quad (2.13)$$

On peut associer au vecteur d'onde \mathbf{k}_F une longueur d'onde :

$$\lambda_F \equiv \frac{2\pi}{k_F} . \quad (2.14)$$

La longueur d'onde représente l'extension spatiale du paquet d'ondes électronique. Elle permet de définir la dimensionnalité d'un conducteur en comparaison avec ses dimensions. En effet, si une de ses dimensions, par exemple son épaisseur, est inférieure ou égale λ_F , alors la fonction d'onde ne peut pas « s'étendre » : on dit que l'électron est confiné suivant une direction. On parle alors de gaz bidimensionnel d'électrons (2DEG). De tels systèmes ont pu voir le jour grâce à l'amélioration des procédés de fabrication, en particulier l'épitaxie par jets moléculaires (MBE pour « Molecular Beam Epitaxy »).

De manière analogue, on peut définir des systèmes unidimensionnels lorsque les électrons sont confinés suivant deux dimensions de l'espace. Enfin, les objets dits « zéro dimension », aussi appelés boîtes quantiques, correspondent à un confinement selon les trois dimensions de l'espace. Les systèmes de basse dimensionnalité ont pour point commun la quantification des niveaux d'énergie en raison du confinement, au point que les boîtes quantiques se comportent comme des atomes artificiels avec une discrétisation complète du spectre d'énergie.

Dans l'espace des impulsions, les électrons occupent un certain volume délimité par la surface de Fermi. Généralement, on assimile ce volume à une sphère, appelée sphère de Fermi. En fonction de la dimensionnalité du conducteur, on peut relier le vecteur d'onde k_F à la densité n (on considère ici une seule vallée d'énergie et une dégénérescence double de spin) :

$$\begin{aligned} k_F &= \sqrt[3]{3\pi^2 n} && \text{pour un conducteur 3D, } n \text{ est alors une densité volumique} \\ k_F &= \sqrt{2\pi n} && \text{pour un conducteur 2D, } n \text{ est alors une densité surfacique.} \end{aligned}$$

Dans un métal où la densité volumique de porteur est de l'ordre de $n_V = 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, on trouve une longueur d'onde voisine du nanomètre (9 \AA). Par contre, dans un semiconducteur de densité $n_V = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, on trouve $\lambda_F \simeq 20 - 30 \text{ nm}$. Cette dernière valeur permet de comprendre pourquoi il est possible de confiner des électrons dans des structures à base de matériaux semiconducteurs et de techniques de fabrication à l'échelle nanométrique.

2.2.2 Libres parcours moyens et régimes de transport

Dans le modèle de Drude, nous avons succinctement évoqué la notion de collision. Nous allons maintenant décrire plus en détail la nature des centres diffuseurs qui sont responsables de ces collisions.

Il existe deux grandes familles de collisions : les collisions élastiques et les collisions inélastiques.

Chocs élastiques

Lors d'une collision élastique, l'énergie de l'électron est conservée. Ce type de collision concerne les impuretés présentes dans le solide. On entend par impuretés toute espèce inattendue dans le réseau. On inclut donc dans le terme impuretés les atomes en substitution ou en position interstitielle, les dislocations ou encore les bords de l'échantillon.

La longueur caractéristique des chocs élastiques, l_e , est la distance parcourue par un électron situé au niveau de Fermi entre deux chocs élastiques. On a :

$$l_e = v_F \tau_e . \tag{2.15}$$

l_e est appelé libre parcours moyen élastique.

Quand la longueur du conducteur est supérieure au libre parcours moyen ($L > l_e$), on parle de régime de conduction diffusif (2.1-a). Lors de leur traversée du conducteur, les électrons vont subir plusieurs chocs élastiques contre des impuretés. Ce sont ces chocs qui définissent la trajectoire des

électrons. Dans ce régime, on peut observer des phénomènes d'interférences entre des trajectoires électroniques qui vont apporter des corrections quantiques à la conductance (localisation faible, fluctuations universelles de conductance, ...)

Le libre parcours moyen permet d'exprimer le coefficient de diffusion introduit précédemment en fonction de la dimensionnalité du conducteur :

$$D = \frac{1}{d} v_F l_e \quad \text{où } d \text{ est la dimensionnalité du conducteur.} \quad (2.16)$$

Le libre parcours moyen élastique est proche de 20 nm à température ambiante pour de très bons métaux (cuivre et or par exemple) et peut atteindre 20 μm dans le cas de l'or à basse température (15 K). Il est à remarquer que pour du cuivre idéalement pur, le libre parcours moyen théorique grimpe à 390 μm à 15 K. Pour un semiconducteur tridimensionnel, il est de l'ordre de 100 nm. Par contre, dans une structure bidimensionnelle de semiconducteur, le libre parcours moyen élastique peut atteindre 30 à 40 μm à basse température.

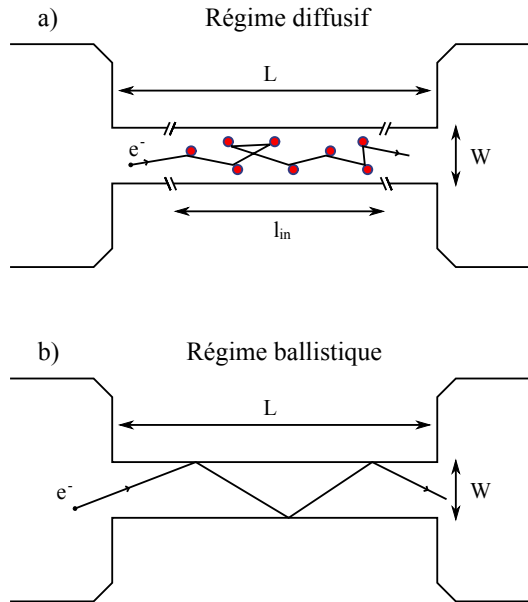


FIGURE 2.1 – Différents régimes de transport mésoscopiques : en a) régime diffusif et en b) régime ballistique. Les cercles rouge entourés de bleu représentent les impuretés. L est la longueur du système et W sa largeur.

Chocs inélastiques

Cette catégorie concerne l'ensemble des collisions au cours desquelles il y a échange d'énergie entre l'électron et le centre diffuseur. Les collisions inélastiques sont à l'origine du processus de thermalisation des électrons. On y regroupe les collisions entre porteurs ou les collisions sur les phonons.

Comme précédemment, on définit un libre parcours moyen inélastique : $l_{in} = v_F \tau_{in}$.

Lorsque la longueur du conducteur est plus petite que les libres parcours moyens élastique et inélastique : $L, W \leq l_e, l_{in}$, on parle de régime de conduction ballistique 2.1-b). La trajectoire des électrons est alors entièrement déterminée par les collisions sur les bords de l'échantillon.

C'est donc la géométrie de l'échantillon qui définit ses propriétés électroniques de transport. Des effets d'interférences entre trajectoires électroniques peuvent aussi être observés dans les billiards quantiques qui sont des systèmes ballistiques.

On peut aussi distinguer un cas intermédiaire entre les régimes diffusif et ballistique correspondant au régime quasi-ballistique pour lequel $W \ll l_e \ll L$. Ce régime obéit à des lois analogues à celles du régime diffusif. Dans le cas de nos échantillons de graphène, nous serons dans le cas du transport quantique diffusif : $W \gg \min(l_e, l_{in})$.

Evolution en fonction de la température

Les modes de phonons sont d'autant plus peuplés que la température est élevée. A température ambiante, ce sont les collisions sur les phonons qui sont prépondérantes. Au fur et à mesure que la température diminue, les vibrations du réseau diminuent elles aussi. A basse température, ce sont les collisions sur les impuretés et les collisions entre électrons qui dominent.

Temps de transport

Dans le cadre du modèle de Drude introduit précédemment nous avons supposé que les vitesses des porteurs étaient redistribuées de manière isotrope après les collisions. Dans la pratique, les mécanismes de diffusion (« scattering ») au sein du conducteur peuvent engendrer une anisotropie. On distingue alors deux temps caractéristiques : le temps de relaxation du transport, ou temps de vie de diffusion, noté τ_{tr} et le temps de vie quantique noté τ_e . C'est τ_{tr} qui détermine la conductivité (c'est le temps caractéristique qui intervient dans la formule de Drude 2.2) alors que τ_e est le temps de vie moyen d'un état propre de vecteur d'onde \mathbf{k} et d'énergie ϵ . Il est couramment appelé temps de vie élastique

Le rapport τ_{tr}/τ_e permet de rendre compte de l'anisotropie du champ des vitesses engendrée par les centres diffuseurs. Dans le cas d'une isotropie parfaite (pas de direction de diffusion privilégiée), ce rapport est égale à 1 ; les deux temps caractéristiques sont égaux. Dans un gaz bidimensionnel d'électron obtenu par exemple dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs, ce rapport est proche de 15 indiquant une grande anisotropie des mécanismes de diffusion ; les mécanismes entraînant une diffusion vers l'avant (« forward scattering ») sont prépondérants.

D'un point de vue expérimental, la conductivité à champ magnétique nul permet d'extraire le temps de transport. Pour estimer le temps de vie élastique, il faut par exemple étudier l'évolution en fonction de l'induction magnétique B des oscillations Shubnikov-de Haas (*c.f.* page 59).

Taux de désordre et longueur de localisation

Il est intéressant de comparer la longueur entre les événements de diffusion (*i.e.* le libre parcours moyen) et la longueur d'onde de Fermi. Etant donné que la longueur d'onde est reliée au vecteur d'onde, cela revient à regarder l'évolution du produit $k_F l_e$. Il s'agit du critère de Ioffe-Regel pour traiter de la localisation.

Si $k_F l_e \gg 1$ ($l_e \gg \lambda_F$) alors l'électron peut de se propager entre deux collisions ; on dit que le désordre est faible.

A l'inverse, si $k_F l_e \ll 1$ ($l_e \ll \lambda_F$) alors l'électron ne peut pas se propager avant de subir des collisions. On parle de désordre fort.

De manière générale, le désordre a pour conséquence de localiser les porteurs de charge ; l'enveloppe de leur fonction d'onde décroît de manière exponentielle à grande distance du centre de localisation. Ce phénomène de localisation qui est d'origine quantique est caractérisé par la longueur de localisation ξ_{loc} .

Dans le cas de conducteurs 1D et 2D, on peut montrer que, quel que soit le taux de désordre, les longueurs de localisation ne sont pas infinies. En particulier, d'un point de vue théorique, ces systèmes sont des isolants d'Anderson. Néanmoins, à température nulle, si la longueur de l'échantillon, notée L , est inférieure à ξ_{loc} , on observe un comportement métallique. A température non nulle, il faut comparer ξ_{loc} à la longueur de cohérence de phase L_ϕ (voir plus loin) car cette longueur correspond à la taille typique sur laquelle se manifestent les effets quantiques. Si $L_\phi > \xi_{loc}$, les électrons sont localisés et le système est isolant ; si $\xi_{loc} > L_\phi$, le système est conducteur.

Dans le cas d'un conducteur 3D, on assiste à une transition métal-isolant lorsque le taux de désordre augmente. En effet, lorsque $k_F l_e \gg 1$ (*i.e.* pour un désordre faible), la longueur de localisation est infinie et le système conduit le courant électrique car les porteurs de charge peuvent se déplacer d'une extrémité à l'autre du système. A partir d'un certain taux de désordre, ξ devient fini : les porteurs sont alors localisés sur de très petites distances. Dans une telle situation, le système ne peut plus conduire aucun courant, il devient isolant.

2.2.3 La cohérence de phase

Présentation

D'un point de vue général, une onde est caractérisée par une amplitude, A , et une phase, ϕ : $\Psi = Ae^{i\phi}$. La fonction d'onde est solution d'un Hamiltonien ($H\Psi = \epsilon\Psi$). Dans le cas où H se résume à un terme cinétique ($H = p^2/2m^*$, cas de l'électron libre), la fonction d'onde se met sous la forme : $\Psi = Ae^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \epsilon/ht)}$.

Au cours de la propagation, l'onde accumule une phase, par exemple pour une onde de vecteur d'onde \mathbf{k} parcourant une distance d , la phase accumulée est égale à $\int_0^d \mathbf{k} d\mathbf{l}$. On appelle temps de cohérence de phase, le temps τ_ϕ au bout duquel la cohérence de phase a été détruite suite à une évolution irréversible de la phase. Les mécanismes qui peuvent briser la cohérence de phase d'un électron au sein d'un conducteur sont les collisions inélastiques ou les collisions sur des impuretés magnétiques (inversion du spin).

Le temps τ_ϕ est aussi appelé temps de relaxation de la phase. On appelle L_ϕ la longueur parcourue par l'électron avant que sa cohérence de phase ne soit détruite.

- En régime ballistique, on a :

$$L_\phi = v_F \tau_\phi \quad (2.17)$$

- Par contre, en régime diffusif L_ϕ est donnée par :

$$L_\phi = \sqrt{D\tau_\phi} \quad (2.18)$$

où D est le coefficient de diffusion.

Le premier cas correspond généralement aux semiconducteurs à grande mobilité (donc à très faible désordre) alors que le second correspond aux systèmes fortement désordonnés.

Système mésoscopique

Lorsqu'un conducteur a ses dimensions inférieures à la longueur de cohérence de phase, on dit qu'il est cohérent. Au vu des valeurs numériques, cette échelle de longueur est intermédiaire entre le microscopique et le macroscopique ; on l'appelle mésoscopique.

Un système mésoscopique est un système conducteur dont une des dimensions est inférieure ou du même ordre que la longueur de cohérence de phase : $L \leq L_\phi$. La propagation des électrons est cohérente. De fait, il est possible d'observer des phénomènes d'interférences mettant en jeu la nature ondulatoire des électrons.

Les concepts développés pour l'étude des systèmes mésoscopiques ont émergé dès la fin des années cinquante grâce à Landauer. Toutefois, les premières études expérimentales ne datent que des années quatre-vingt avec l'amélioration des techniques de croissance, de lithographie et de cryogénie. Ces améliorations ont permis de réduire la taille des systèmes étudiés. Il s'agit donc d'une physique jeune mais qui connaît depuis trente ans un grand engouement expérimental.

2.3 Le transport quantique cohérent

Dans cette partie, nous allons considérer le cas de systèmes dont les dimensions sont inférieures à la longueur de cohérence de phase. Ces systèmes sont cohérents et une description par des grandeurs locales n'a plus de sens : il est nécessaire d'utiliser des grandeurs globales comme la conductance G . Pour se faire, l'approche dite de « scattering » a été mise en place par Landauer à la fin des années cinquante puis poursuivie par Büttiker dans les années 80 [26].

2.3.1 Formule de Landauer

L'approche de Landauer consiste à décrire le courant traversant le conducteur mésoscopique en terme de probabilité qu'un électron soit transmis au travers du conducteur. Elle peut être généralisée à des conducteurs tridimensionnels mais nous allons nous limiter au cas quasi-unidimensionnel.

A l'échelle mésoscopique, les dimensions des fils conducteurs sont telles qu'ils se comportent comme des guides d'onde électronique. En effet, les conditions d'annulation aux limites imposent que la fonction d'onde voit son vecteur d'onde transverse quantifié. Ces conditions de quantification définissent de fait des modes unidimensionnels de propagation pour les électrons. Dans ce qui suit, nous établirons les relations dans le cas où il n'y a qu'un seul mode de propagation, et nous généraliserons au cas d'un système multimode.

Prenons le cas d'un conducteur unidimensionnel relié à deux réservoirs (Figure 2.2). Ces réservoirs ont pour rôle d'injecter des électrons et d'absorber les électrons qu'ils reçoivent (pas de réémission). L'émission se fait de telle sorte que les électrons n'ont aucune corrélation de phase entre eux. Les réservoirs sont le lieu de tous les phénomènes inélastiques (et donc dissipatifs) : c'est dans les réservoirs que les électrons perdent leur cohérence de phase. On parle souvent de corps noirs à électrons pour les réservoirs. Enfin, pour imposer le passage des électrons dans le conducteur, on applique une différence de potentiel chimique, *i.e.* on décale l'un des deux réservoirs d'une énergie $eV = \mu_1 - \mu_2$ par rapport à l'autre.

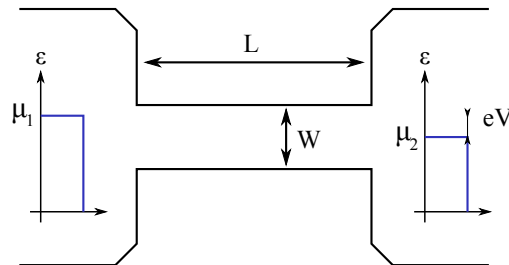


FIGURE 2.2 – Représentation schématique d'un conducteur unidimensionnel monomode connecté à deux réservoirs. La différence de potentiel chimique entre les deux réservoirs est imposée par la différence de potentiel V .

Sans chercher à décrire exactement les processus microscopiques de diffusion au sein du conducteur, on le modélise simplement par une barrière de potentiel de transmission T et de réflexion $R = 1 - T$. Les électrons susceptibles de porter du courant sont les électrons qui ont une énergie située entre μ_1 et μ_2 . Cette tranche d'énergie contient $eV.g_{1D}(\epsilon_F)$ électrons (on a supposé que la tension appliquée reste suffisamment faible de sorte que ni g_{1D} ni T ne varie dans la gamme $\epsilon_F + eV$). Ces électrons se déplacent à la vitesse $v(\epsilon_F)$. Etant donné que ces électrons ont une probabilité T d'être transmis, on peut écrire le courant sous la forme :

$$\begin{aligned} I &= eV.g_{1D}(\epsilon_F)ev(\epsilon_F)T \\ &= e^2 \frac{1}{\pi\hbar} TV \end{aligned}$$

On aboutit à la formule de Landauer pour un conducteur unidimensionnel monomode pour la conductance deux fils en tenant compte du spin :

$$G = 2 \frac{e^2}{h} T . \quad (2.19)$$

La quantité e^2/h est appelée quantum de conductance : elle ne dépend que de constantes fondamentales de la physique. On a : $e^2/h \approx (25812.807 \Omega)^{-1}$

Pour comprendre l'origine de ce quantum de conductance, on peut faire une description qualitative du courant dans le canal unidimensionnel. En effet, on peut y construire une succession de paquets d'ondes qui, en vertu du principe de Pauli, ne peuvent contenir, au maximum, qu'un seul électron aux dégénérescences de vallée et de spin près, respectivement g_v et g_s . En outre, en utilisant le principe de Heisenberg reliant le temps et l'énergie, ces paquets d'ondes sont séparés en temps par la quantité $\tau = h/\Delta\epsilon$.

Ainsi, on peut écrire le courant dans le canal sous la forme :

$$I = (1 \times e) \left(\frac{\Delta\epsilon}{h} \right) = e \frac{eV}{h} . \quad (2.20)$$

Par conséquent le quantum de conductance a pour origine la nature même des porteurs de charge qui sont des fermions et donc obéissent à la statistique de Fermi-Dirac.

Il est possible de généraliser la formule de Landauer dans le cas d'un conducteur multimode (la transmission du n^{eme} mode est notée T_n) :

$$G = g_s g_v \frac{e^2}{h} \sum_{n=1}^N T_n . \quad (2.21)$$

Ainsi la conductance dépend de la transmittance du conducteur vis-à-vis de chaque mode susceptible de se propager. En faisant un rapprochement avec la formule d'Einstein 2.8, il apparaît que la conductivité d'un conducteur dépend de la « facilité » avec laquelle les électrons peuvent se propager dans le conducteur. Cette notion abstraite de facilité est donnée, dans l'approche quantique, par des coefficients de transmission relatifs à des modes de propagation, et dans l'approche semi-classique, par un coefficient de diffusion évalué à l'énergie de Fermi.

Nous venons d'établir l'expression de la conductance en prenant la différence de potentiel chimique entre les réservoirs. Il s'agit donc de la conductance du système conducteur+réservoirs dans une configuration « deux fils » . Même si les modes sont parfaitement transmis ($T_n = 1$), la conductance reste finie du fait de la résistance entre les réservoirs et le conducteur, la résistance de contact.

Dans une configuration « quatre fils » (Figure 2.3), on ne mesure pas la chute de potentiel entre les réservoirs (« fils de courant ») mais au niveau de deux fils supplémentaires (« fils de

tension \gg). La conductance du conducteur quantique est donnée par $\frac{\mu_3 - \mu_4}{eI}$. Le calcul donne la formule de Landauer-Büttiker pour un conducteur multiterminal :

$$G = g_s g_v \frac{e^2 T}{h R} \quad (2.22)$$

On remarque qu'un système qui transmet parfaitement ($T = 1$) a une conductance infinie ($R = 1 - T = 0$).

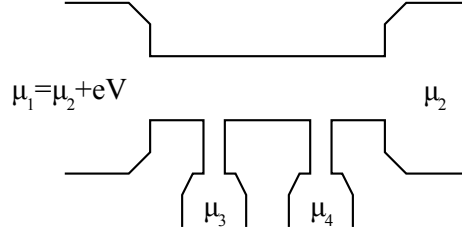


FIGURE 2.3 – Modélisation d'un conducteur quantique en configuration quatre fils : la tension est appliquée entre les contacts 1 et 2, la conductance du conducteur quantique peut être mesurée grâce aux contacts 3 et 4.

D'un point de vue des résistances, il est utile de définir la notation « quatre fils » du formalisme de Landauer-Büttiker sous la forme (le courant circule entre les contacts α et β) :

$$R_{\alpha\beta,\gamma\delta} \equiv \frac{\mu_\gamma - \mu_\delta}{eI_{\alpha \rightarrow \beta}} = \frac{V_\gamma - V_\delta}{I_{\alpha \rightarrow \beta}} \quad (2.23)$$

Dans toute la suite, en particulier au niveau des résultats expérimentaux, toutes les résistances seront notées dans ce formalisme.

Pour terminer, on peut écrire dans le cadre de cette approche de diffusion du transport électronique le courant qui entre dans le contact α du conducteur sous la forme :

$$I_\alpha = \frac{e}{h} \left((M_\alpha - R_\alpha) \mu_\alpha - \sum_{\beta \neq \alpha} T_{\beta\alpha} \mu_\beta \right) \quad (2.24)$$

où M_α est le nombre de modes entrant dans le contact α , R_α et μ_α sont respectivement le coefficient de réflexion et le potentiel chimique du contact α , et $T_{\beta\alpha}$ est le coefficient de transmission du contact α vers le contact β . Cette relation permet de retrouver facilement la loi des noeuds ($\sum_\alpha I_\alpha = 0$). Il s'agit en fait des lois de Kirchhoff quantique :

$$I_\alpha = \sum_\beta G_{\alpha\beta} V_\beta \quad (2.25)$$

où $\mu_\beta = eV_\beta$ et les $G_{\alpha\beta}$ sont les conductances généralisées :

$$G_{\alpha\beta} \equiv \frac{dI_\alpha}{dV_\beta} \quad (2.26)$$

2.3.2 Corrections à la conductance

Considérons un système de taille supérieure à L_ϕ . En raison du caractère ondulatoire des électrons, des effets d'interférences quantiques apparaissent sur chaque zone de taille L_ϕ au sein

de l'échantillon. Ces effets d'interférence apportent des corrections à la conductance telle qu'on l'a calculée dans le modèle de Drude. On peut écrire la conductance sous la forme :

$$G = G_{CI} + \Delta G_Q . \quad (2.27)$$

Lorsque l'on mesure la conductance d'un tel système, on est sensible à la combinaison incohérente (parallèle ou série) des conductances de chaque « boîte » de taille L_ϕ . Parmi tous les effets de localisations et de fluctuations à l'origine de corrections à la conductance, certains disparaissent lorsque la dimension du système augmente alors que d'autres résistent. Nous allons nous intéresser à la localisation faible (exemple d'effet d'interférences qui résiste) et aux fluctuations universelles de conductance (exemple qui disparaît).

Dans une description semi-classique de chemins de diffusion valide pour $k_F l_e \gg 1$, la probabilité d'aller d'un point \mathbf{r} à un point \mathbf{r}' pendant un temps t est la somme des amplitudes de probabilité, A_j , sur tous les chemins reliant \mathbf{r} à \mathbf{r}' :

$$P(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \left| \sum_j A_j \right|^2 = \sum_j |A_j|^2 + \sum_{j \neq i} A_i A_j^* \quad (2.28)$$

Dans le cas d'un conducteur quasi-unidimensionnel, cette probabilité est égale à la transmission qui apparaît dans la formule de Landauer :

$$G \simeq 2 \frac{e^2}{h} \left(\sum_j |A_j|^2 + 2 \operatorname{Re} \left(\sum_{j \neq i} A_i A_j^* \right) \right) \quad (2.29)$$

$$\simeq 2 \frac{e^2}{h} \left(\sum_j |A_j|^2 + 2 \sum_{j \neq i} |A_i A_j^*| \cos(\phi_i - \phi_j) \right) \quad (2.30)$$

où $\phi_i - \phi_j$ est la différence des phases accumulées entre les chemins i et j .

Fluctuations universelles de conductance

Considérons dans un premier temps la probabilité de diffusion d'un point \mathbf{r} à un point \mathbf{r}' . Dans l'hypothèse où il est possible de définir un potentiel vecteur, \mathbf{A} , non nul, la phase accumulée le long d'un chemin j se met sous la forme très générale suivante :

$$\phi_j = \int_j \left(\mathbf{k}(\mathbf{r}_j) d\mathbf{r}_j + e \mathbf{A} d\mathbf{r}_j + \frac{V - \epsilon_F}{\hbar} dt \right) \quad (2.31)$$

où $d\mathbf{r}_j$ est la coordonnée le long du chemin j et V est le potentiel de désordre.

Avec les équations 2.30 et 2.31, on voit que la conductance dépend du détail microscopique du conducteur car elle résulte des interférences entre trajectoires électroniques. En modifiant l'un des paramètres que sont le potentiel-vecteur \mathbf{A} , l'énergie de Fermi ϵ_F et le potentiel de désordre V , on met en évidence des fluctuations de conductance. Ces fluctuations obéissent au principe d'ergodicité, c'est à dire que l'amplitude observée des fluctuations est la même que l'on fasse varier le potentiel-vecteur (au travers d'une modification de l'induction magnétique \mathbf{B}) ou l'énergie de Fermi (par exemple en faisant varier la densité de porteur dans un semi-conducteur). Ces fluctuations de conductance sont dites universelles : leur amplitude ne dépend que de la dimensionnalité du conducteur et de sa symétrie. En particulier, ces corrections de conductance ne dépendent pas de la conductance. Ces fluctuations universelles peuvent être observées de trois manières différentes : soit par variation du champ magnétique, soit en modifiant le potentiel de désordre (par réchauffage de l'échantillon, on peut avoir réorganisation des centres diffuseurs) ou en déplaçant le niveau de

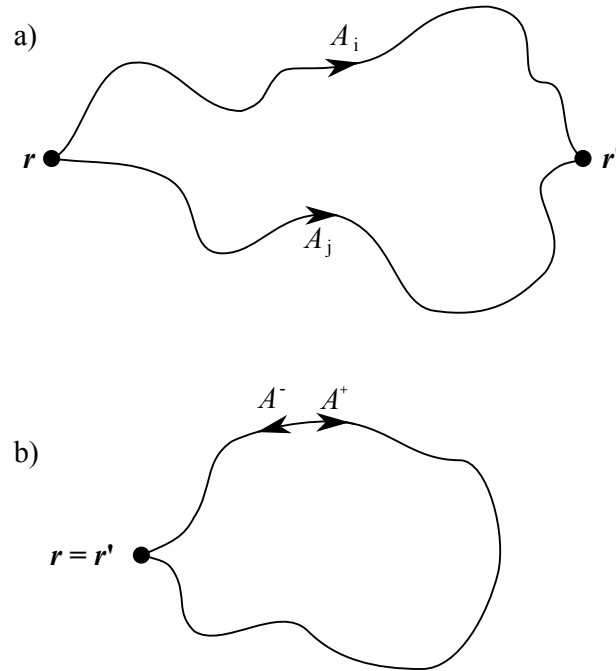


FIGURE 2.4 – Mécanismes de rétrodiffusion cohérente ; dans le cas général a), les amplitudes de probabilité A_i et A_j de deux trajectoires différentes reliant r à r' n'ont pas de corrélation de phase entre elles. En b), pour un retour à l'origine, les amplitudes A^+ et A^- , symétriques par renversement du temps, sont égales.

Fermi (par couplage capacitif à une grille par exemple). Dans l'hypothèse d'ergodicité, ces trois méthodes sont équivalentes et permettent d'observer des fluctuations de même amplitude.

Pour un conducteur de taille supérieure à la longueur de cohérence de phase, chaque « boîte » de taille L_ϕ donne lieu à des fluctuations de conductance dont les variances s'automoyennent, cet effet d'automoyennage augmentant avec la taille de l'échantillon. On a donc des fluctuations très faibles autour de la conductance classique. Cependant, les fluctuations universelles de conductance (UCF pour « Universal Conductance Fluctuations ») permettent d'obtenir la signature du désordre propre à un échantillon donné. C'est donc un outil supplémentaire pour évaluer la qualité (au sens du désordre) d'un conducteur.

Localisation faible

Dans le cas d'un retour à l'origine (r et r' sont confondus, Figure 2.4 b)), on peut regrouper les termes d'interférences par paires symétriques par renversement du temps A^+ et A^- . Dans le cas où le problème est invariant par renversement du temps, les amplitudes de probabilité des chemins de propagation horaire et anti-horaire sont identiques : $A^+ = A^- \equiv A$. La probabilité de rétrodiffusion cohérente est donc : $|A^+ + A^-|^2 = 4|A|^2$, soit le double de la probabilité classique. Cette augmentation de la probabilité de retour à l'origine entraîne une réduction du coefficient de diffusion et donc une réduction de la conductivité. Il s'agit là de l'essence même de la localisation faible.

L'application d'un champ magnétique faible détruit l'augmentation de résistance due à la localisation faible. En effet, ce champ magnétique brise la symétrie par renversement du temps : les chemins horaire (+) et anti-horaire (-) n'accumulent plus la même phase. Il apparaît une différence

de phase, $\Delta\phi$, entre les chemins + et - qui est donnée par :

$$\begin{aligned}\Delta\phi &= \frac{1}{\hbar} \oint_+ \mathbf{p}^+ \cdot d\mathbf{l} - \frac{1}{\hbar} \oint_- \mathbf{p}^- \cdot d\mathbf{l} \\ &= \frac{2e}{\hbar} \int (\nabla \times \mathbf{A}) \cdot d\mathbf{S} \\ &= \frac{2eBS}{\hbar} \equiv \frac{2S}{l_B^2},\end{aligned}$$

où S est la surface fermée définie par la trajectoire et $l_B \equiv \sqrt{\hbar/eB}$ est la longueur magnétique. La somme des amplitudes associées à des trajectoires de surface fermée S variables conduit à un terme d'interférence qui s'automoyenne à zéro.

Rappelons que le conducteur n'est pas, ici, nécessairement mésoscopique ; en particulier il peut être plus grand que L_ϕ . On peut donc définir des grandeurs locales. La correction négative, $\delta\sigma_{loc}$, à la conductivité de Drude en raison de la localisation faible est proportionnelle à la probabilité de retour à l'origine. Dans le cas d'un conducteur bidimensionnel de largeur W et de longueur L , on a : $\delta G_{loc} \equiv (W/L)\delta\sigma_{loc}$. On peut montrer que l'expression complète de la correction de conductance à 2D due à la localisation faible et sans tenir compte du couplage spin-orbite est [24] :

$$\delta G_{loc}^{2D} = \frac{W}{L} g_s g_v \frac{e^2}{4\pi^2 \hbar} \left[\Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{\tau_B}{2\tau_\phi}\right) - \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{\tau_B}{2\tau_e}\right) + \ln\left(\frac{\tau_\phi}{\tau_e}\right) \right], \quad (2.32)$$

où $\tau_B = l_B^2/2D$ est le temps de relaxation magnétique et $\Psi(x)$ la fonction digamma. C'est l'ajustement de ce modèle à une mesure de magnétoconductance qui permet d'extraire τ_ϕ et L_ϕ .

Chapitre 3

L'Effet Hall

Ce chapitre a pour but de présenter l'effet Hall quantique que l'on peut observer lorsque l'on place un conducteur bidimensionnel sous un fort champ magnétique perpendiculaire et à très basse température. Aussi, nous ne nous intéresserons qu'à des systèmes à deux dimensions. Ce chapitre s'appuie sur quelques livres de référence, écrits par Prange et Girvin [27] et Yoshioka [28], des notes de cours donnés par D.C. Glattli et par M.O. Goerbig et un article de revue écrit par Poirier et Schopfer [29]. Nous commencerons par décrire le comportement d'une particule chargée sous champ magnétique ainsi que l'effet Hall classique qui se manifeste à faible champ. Ensuite, à l'aide de la mécanique quantique, nous expliquerons pourquoi la conductance transverse d'un tel conducteur peut être quantifiée en multiples de e^2/h .

3.1 Un effet classique

3.1.1 Particule chargée dans un champ magnétique

Lorsqu'un électron se déplace à deux dimensions en présence d'un champ magnétique perpendiculaire à sa trajectoire, il est soumis à une force de Lorentz. Les équations du mouvement sont :

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -e\dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B} \quad (3.1)$$

En utilisant des coordonnées complexes ($z = x + iy$), on peut résoudre le système précédent :

$$z = Z_0 - \frac{iv_0 e^{i\omega_c t}}{\omega_c}, \quad Z_0 = X_0 + iy, \quad \omega_c = \frac{eB}{m}. \quad (3.2)$$

L'électron décrit une orbite cyclotron (Figure 3.1-a)) à la pulsation ω_c , le centre de l'orbite étant immobile.

Lorsque l'on ajoute un champ électrique dans la direction x (Figure 3.1-b)), les équations du mouvement deviennent :

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -e(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}) \quad (3.3)$$

Via une transformation de Galilée, on peut montrer que l'électron a toujours un mouvement cyclotron, cette fois-ci dans une repère mobile se déplaçant à la vitesse v_0 dans la direction y :

$$\mathbf{v} = \frac{\mathbf{E} \wedge \mathbf{B}}{B^2}, \quad v_0 = \frac{E}{B}. \quad (3.4)$$

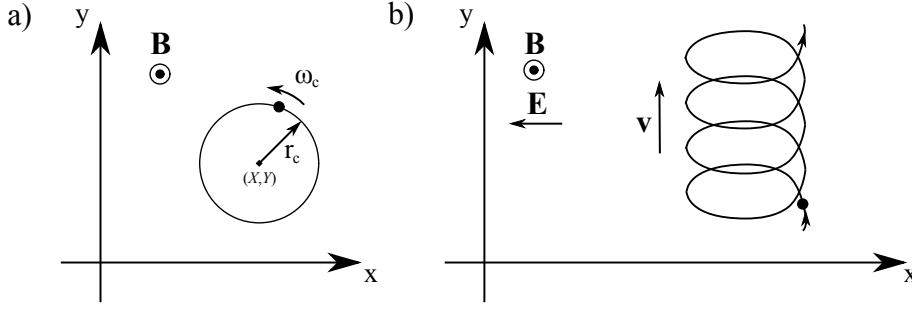


FIGURE 3.1 – Mouvement cyclotron d'une particule chargée, a) dans un champ magnétique et b) dans un champ magnétique et un champ électrique.

3.1.2 Magnetorésistance dans le modèle de Drude

Considérons un conducteur 2D dans le plan xy , de densité n_S , de longueur L suivant x et de largeur W suivant y , placé dans un champ magnétique dans la direction z et soumis à un champ électrique dans la direction y . En tenant compte des processus de diffusion sous la forme d'un terme de relaxation, les équations du mouvement des électrons vont s'écrire :

$$m^* \ddot{\mathbf{r}} = -e(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}) - \frac{m^*}{\tau_e} \dot{\mathbf{r}}. \quad (3.5)$$

La densité de courant ($\mathbf{j} = -en\dot{\mathbf{r}}$) est liée au champ électrique par le tenseur de résistivité :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} \\ -\rho_{xy} & \rho_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix}, \quad \rho_{xx} = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \quad \text{et} \quad \rho_{xy} = -\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \quad (3.6)$$

A l'aide des équations précédentes, on détermine les deux composantes du tenseur de résistivité :

$$\rho_{xx} = \frac{m^*}{n_S e^2 \tau_{tr}} \quad \text{et} \quad \rho_{xy} = \frac{B}{n_S e} \quad (3.7)$$

Si l'on fait passer un courant suivant la direction x dans le conducteur 2D soumis à un champ magnétique perpendiculaire, on a accumulation de charges de signes opposés sur les bords de l'échantillon ce qui engendre une tension transverse non nulle.

En outre, la résistance transverse R_H (appelée résistance de Hall) se calcule en divisant la tension transverse du conducteur ($V = WE_y$) par le courant ($J = Wj_x$), soit : $R_H = E_y/j_x = \rho_{xy}$. Autrement dit, il n'y a pas de différence entre résistance de Hall et résistivité de Hall : c'est un invariant d'échelle. L'expérience donne donc directement accès à la résistivité de Hall permettant ainsi d'extraire la densité de porteurs n_S dans le conducteur. L'élément diagonal du tenseur est la résistivité longitudinale. Pour un conducteur donné (et donc une masse m^* donnée), cette résistivité permet de connaître le temps de transport dans le conducteur. Les mesures de Hall (en référence à des mesures de magnétorésistances transverse et longitudinale) sont des outils de base pour caractériser des structures de semiconducteurs, en particulier la densité et la mobilité des porteurs.

Revenons-en au déplacement d'un électron dans un champ magnétique. Le rayon de l'orbite cyclotron qu'il décrit est inversement proportionnel au champ magnétique : plus le champ augmente, plus le rayon est faible. Dans la limite où la taille des orbites devient plus petite que la longueur de cohérence de phase l_ϕ , il faut faire une description quantique des particules chargées sous fort champ magnétique.

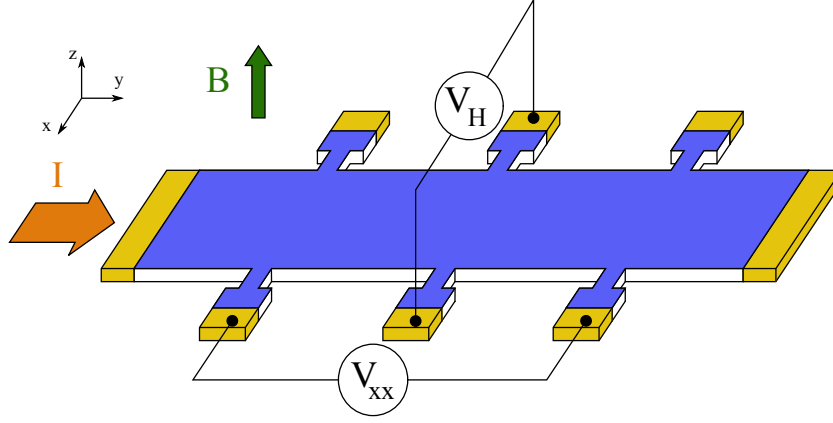


FIGURE 3.2 – Représentation schématique d'une configuration de mesure de Hall permettant de mesurer les composantes du tenseur de résistivité d'un conducteur bidimensionnel sous champ magnétique.

3.2 Un effet quantique

3.2.1 Les niveaux de Landau

Pour tenir compte du champ magnétique, on substitue à l'opérateur d'impulsion $\hat{\mathbf{p}}$, l'opérateur d'impulsion dynamique $\hat{\mathbf{\Pi}}$ qui contient le potentiel vecteur :

$$\hat{\mathbf{\Pi}} = \hat{\mathbf{p}} + e\mathbf{A} \quad , \quad \begin{aligned} \Pi_x &= p_x + eA_x = m^*\dot{x} \\ \Pi_y &= p_y + eA_y = m^*\dot{y} \end{aligned} \quad (3.8)$$

Si l'on tient compte de l'effet Zeeman qui lève la dégénérescence de spin, le Hamiltonien d'un électron sous champ magnétique s'écrit sous la forme :

$$\hat{H} = \frac{\hat{\mathbf{\Pi}}^2}{2m^*} \pm \frac{g\mu_B B}{2} \quad , \quad (3.9)$$

où g est le facteur de Landé et μ_B est la magneton de Bohr. Nous ne tiendrons pas compte de l'effet Zeeman dans la suite et nous ferons les calculs pour un spin donné.

Nous avons vu dans le cas de l'effet Hall classique que le mouvement de l'électron se décompose en deux parties : l'électron décrit une rotation et le centre de guidage dérive en présence d'un champ électrique. On introduit donc les coordonnées complexes du centre de guidage : $C = C_x + iC_y$. L'opérateur $\hat{\mathbf{\Pi}}$ décrit quant à lui le mouvement cyclotron. On a :

$$z = C - \frac{i}{eB}(\Pi_x + \Pi_y) \quad (3.10)$$

Les relations de commutation des opérateurs $\hat{\mathbf{\Pi}}$ et \hat{C} sont :

$$[\hat{\Pi}_x, \hat{\Pi}_y] = -\frac{i\hbar^2}{l_M^2}, \quad [\hat{C}_x, \hat{C}_y] = il_M^2, \quad [\hat{\Pi}, \hat{H}] = [\hat{C}, \hat{H}] = 0, \quad l_B^2 = \frac{\hbar}{eB} \quad . \quad (3.11)$$

En particulier, $\hat{\mathbf{\Pi}}$ et \hat{C} sont indépendants : on peut séparer l'étude du mouvement du centre de guidage et l'étude de la rotation cyclotron.

Au vu des relations de commutations précédentes, on peut définir les opérateurs d'échelle a et b caractéristiques de l'oscillateur harmonique :

$$\begin{aligned}\hat{a}^\dagger &= \sqrt{\frac{1}{2\hbar eB}}(\hat{\Pi}_x + i\hat{\Pi}_y) & \hat{a} &= \sqrt{\frac{1}{2\hbar eB}}(\hat{\Pi}_x - i\hat{\Pi}_y) \\ \hat{b}^\dagger &= \sqrt{\frac{eB}{2\hbar}}(\hat{C}_x - i\hat{C}_y) & \hat{b} &= \sqrt{\frac{eB}{2\hbar}}(\hat{C}_x + i\hat{C}_y)\end{aligned}\quad (3.12)$$

Il s'agit d'opérateurs de création ($\hat{a}^\dagger, \hat{b}^\dagger$) ou d'annihilation (\hat{a}, \hat{b}) qui vérifient : $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = [\hat{b}, \hat{b}^\dagger] = 1$. A l'aide de ces définitions, le Hamiltonien peut être mis sous la forme :

$$\hat{H} = \hbar\omega_c \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right), \quad (3.13)$$

dont le spectre en énergie est :

$$\epsilon = \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2} \right). \quad (3.14)$$

Ces niveaux d'énergie sont appelés niveaux de Landau, n est la valeur propre de $\hat{a}^\dagger \hat{a}$: c'est un nombre entier, positif ou nul, qui correspond à l'indice du niveau de Landau. Etant donné que \hat{H} commute avec \hat{C} et ses composantes, on a une très forte dégénérescence des niveaux de Landau par rapport au centre de guidage. Il est possible de décrire cette dégénérescence à l'aide du nombre quantique m qui est la valeur propre de $\hat{b}^\dagger \hat{b}$. Les états propres associés à chaque niveau de Landau peuvent être notés : $|n, m\rangle$. Ils sont obtenus en appliquant successivement l'opérateur de création en partant du vide : $|n=0, m\rangle$. Par définition, cet état est le seul vérifiant la relation : $\hat{a}|0, m\rangle = 0$. On a : $|1, m\rangle = \hat{a}^\dagger|0, m\rangle$ ce qui permet de construire de proche en proche les états propres du Hamiltonien :

$$|n, m\rangle = \frac{(\hat{a}^\dagger)^n (\hat{b}^\dagger)^m}{\sqrt{n!m!}} |0\rangle \quad (3.15)$$

La forme exacte des fonctions d'onde dans l'espace réel dépend du choix de jauge pour le potentiel vecteur. La représentation spatiale de la fonction d'onde associée au niveau de Landau d'indice n est la fonction $\Psi_{n,k}(x, y) = \langle x, y | n, m \rangle$. Par exemple dans la jauge symétrique, les fonctions d'onde du plus bas niveau de Landau sont :

$$\Psi_{0,m}(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi l_B^2 (2^m m!)}} \left(\frac{\bar{z}}{l_B} \right)^m e^{-\frac{|z|^2}{4l_B^2}}, \quad z = x + iy \quad (3.16)$$

Dans le cas de jauge de Landau, on montre que :

$$\Psi_{n,k}(x, y) = \frac{1}{L_y} e^{iky} H_n(x - x_k) e^{-\frac{(x-x_k)^2}{2l_B^2}} \quad \text{avec } x_k = kl_B^2. \quad (3.17)$$

Les x_k sont les centres des orbites cyclotron et $H_n(x)$ est le polynôme de Hermite d'ordre n .

L'espace des phases est ici le plan xy , c'est-à-dire le plan physique. En effet la relation de commutation entre les composantes de l'opérateur du centre de guidage ($[\hat{C}_x, \hat{C}_y] = il_B^2$) nous indique qu'elles sont canoniquement conjuguées. De plus, on en déduit la relation d'incertitude : $\Delta C_x \Delta C_y = l_B^2 = \frac{\hbar}{eB}$. Autrement dit, la surface occupée par un électron est traversée par un quantum de flux : $2\pi l_B^2 = \frac{\hbar}{eB} = \frac{\phi_0}{B}$.

Une autre manière de voir cela consiste à calculer la densité d'états de chaque niveau de Landau. Pour une valeur de spin donnée, on montre que chaque niveau de Landau contient $1/2\pi l_B^2$

états. Ainsi, la densité d'états de chaque niveau de Landau est égale à la densité de quantum de flux (n_B) :

$$\frac{1}{2\pi l_B^2} = \frac{eB}{h} = n_B \quad (3.18)$$

La densité d'états pour un conducteur bidimensionnel sans désordre est représentée Figure 3.3-a). Lorsque le nombre d'électrons dans le conducteur bidimensionnel est un multiple de n_B ($n_S = pn_B$), le niveau de Fermi coïncide avec le niveau de Landau d'indice p . Dans une telle situation, pour ajouter un électron supplémentaire, il faut fournir l'énergie $\hbar\omega_c$ pour commencer à remplir le niveau de Landau suivant. Avec $B = 10$ T et $m^* = 0.067m_e$ (hétérostructure de GaAs/AlGaAs), on a $\hbar\omega_C = 17.5$ meV, soit deux ordres de grandeur au dessus de l'énergie thermique à $T = 1.5$ K. On dit que le fluide électronique est incompressible (il est impossible de modifier la densité d'électron dans le conducteur) ou encore que le conducteur est non-dissipatif (car il ne peut échanger d'énergie inférieure à $\hbar\omega_C$). Cette propriété a pour origine la conservation du volume dans l'espace des phases qui est ici le plan xy .

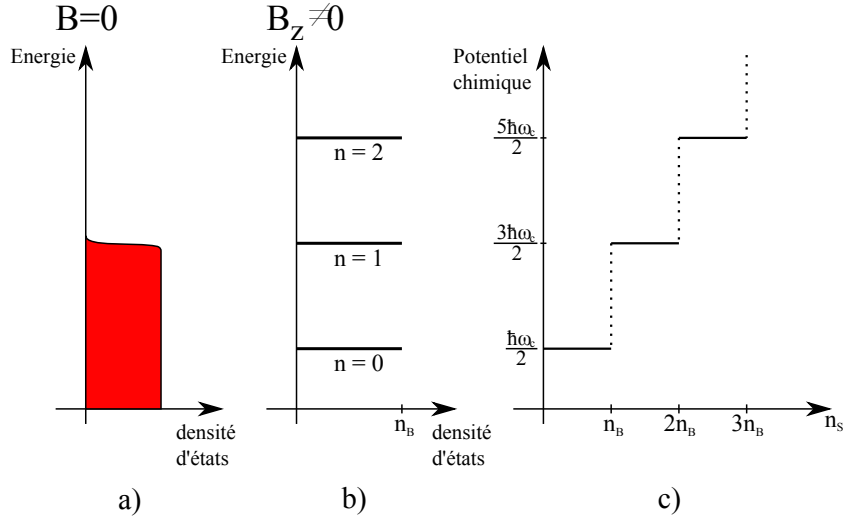


FIGURE 3.3 – Densités d'état d'un 2DEG ballistique sans champ en a) et sous fort champ magnétique en b). En c), évolution du potentiel chimique lorsqu'on augmente la densité d'électrons dans le 2DEG.

On appelle facteur de remplissage ν , le rapport entre la densité d'électrons dans le conducteur et le nombre de quantum de flux le traversant : $\nu = n_S/n_B$. Il y a deux manières de modifier ν : la première consiste à modifier le champ magnétique afin de modifier la densité de quantum de flux et la seconde consiste à modifier la densité d'électrons dans le conducteur (par exemple par effet capacitif en le couplant à une grille). Pour un conducteur parfait (*i.e.* sans désordre), lorsque ν est entier, on peut montrer dans une approche semi-classique que :

$$R_{xx} = 0 \quad \text{et} \quad R_{xy} = \rho_{xy} = \frac{B}{n_S e} = \frac{h}{\nu e^2} \quad (3.19)$$

Partons de la situation où le niveau de Fermi est situé sur le plus haut niveau de Landau rempli. Lorsque ce dernier est complètement rempli et qu'on l'on continue à augmenter ν , le niveau de Fermi saute de manière abrupte de ce niveau de Landau vers le niveau de Landau suivant. En d'autres termes, la quantification de la résistance de Hall n'existe que pour les valeurs entières de ν ; il n'y a pas de plateau de résistance pour un conducteur sans désordre.

On peut retrouver ce résultat d'une autre manière. Considérons un conducteur soumis, en plus du champ magnétique, à un champ électrique suivant la direction x . Les valeurs propres et les états propres, dans la jauge de Landau, sont :

$$\begin{aligned}\epsilon_{n,k} &= \left(n + \frac{1}{2}\right) + eEx_k + \frac{m^*}{2} \left(\frac{E}{B}\right)^2 \\ \Psi_{n,k} &= \frac{1}{L_y} e^{iky} H_n(x - x_k) e^{-\frac{(x-x_k)^2}{2l_B^2}} \\ \text{avec } x_k &= \left(kl_B^2 - \frac{eE}{m^*\omega_c^2}\right)\end{aligned}\tag{3.20}$$

On peut alors calculer les composantes de la vitesse des électrons :

$$\begin{aligned}\langle \Psi | v_x | \Psi \rangle &= \langle \Psi | \frac{\Pi_y + eBx}{m^*} | \Psi \rangle = E/B \\ \langle \Psi | v_y | \Psi \rangle &= \langle \Psi | \frac{\Pi_x}{m^*} | \Psi \rangle = 0\end{aligned}$$

On a donc une dérive des électrons perpendiculairement au champ électrique appliqué : ils sont délocalisés suivant la direction y . On retrouve ici le résultat classique.

Cette délocalisation a pour origine l'invariance du problème par translation dans la direction y . Aussi, pour expliquer l'existence de plateaux de résistance, il faut tenir compte du désordre au sein du conducteur. La principale conséquence du désordre est de briser l'invariance par translation.

3.2.2 Les effets du désordre

Nous avons vu au premier chapitre qu'appliquer un champ magnétique revient à briser la symétrie par renversement du temps et donc modifie les propriétés de localisation électronique. Lorsque l'on tient compte du désordre dans un conducteur bidimensionnel, on brise une autre symétrie qui est l'invariance par translation : toutes les portions du conducteur ne sont plus équivalentes.

De manière générale, le désordre lève la dégénérescence des niveaux de Landau en introduisant deux types d'états : des états localisés entre les niveaux de Landau et des états délocalisés (ou étendus) au centre de chaque niveau (Figure 3.4). Ces deux types d'états jouent un rôle fondamental dans l'effet Hall quantique.

Pour discuter des effets du désordre, commençons par regarder le déplacement d'un électron en présence d'un potentiel $V(\mathbf{r})$ qui peut être un potentiel extérieur, comme dans le cas du champ électrique, ou un potentiel de désordre engendré par des impuretés dans le conducteur. On va supposer que ce potentiel varie de manière lente sur une longueur l_B . Cette condition peut être mise sous la forme :

$$|l_B \nabla(V(\mathbf{r}))| \ll \hbar\omega_C\tag{3.21}$$

Lorsque cette condition est vérifiée, le potentiel vu par les électrons au cours d'une rotation cyclotron reste le même. On peut alors montrer que :

$$\dot{\mathbf{C}} = \frac{1}{eB} \mathbf{z} \wedge \nabla V(\mathbf{r})\tag{3.22}$$

Autrement dit, les électrons se déplacent le long des lignes équipotentielles et le sens de ce déplacement dépend du gradient local du potentiel. Focalisons-nous pour le moment sur un potentiel de désordre. Ce dernier engendre des fluctuations autour d'un potentiel moyen (le niveau de Landau) : on a des sommets et des creux (Figure 3.5). Les lignes équipotentielles autour de ces

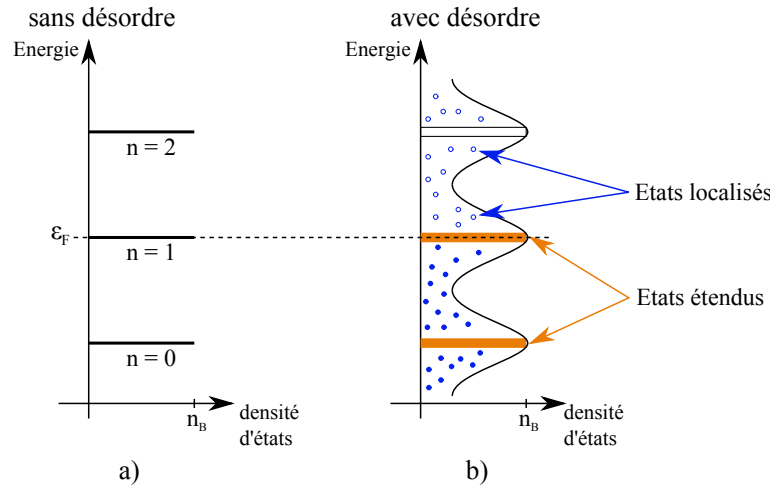


FIGURE 3.4 – Densités d'état sous fort champ magnétique d'un 2DEG sans désordre en a) et lorsque l'on tient compte du désordre en b). Les cercles bleus représentent les états localisés ; lorsque le niveau de Fermi coïncide avec le niveau de Landau $n = 1$, les cercles pleins sont occupés alors que les cercles creux ne le sont pas.

sommets et ces creux sont fermées : les électrons sont donc localisés. En particulier, étant piégés, ces électrons ne contribuent pas au courant net dans le conducteur. Les impuretés sont à l'origine d'une densité d'états localisés finie entre les niveaux de Landau. Ces états localisés définissent un gap de mobilité. Entre deux niveaux de Landau, la longueur de localisation, ξ_{loc} , est petite. Au fur et à mesure qu'on se rapproche du centre d'un niveau Landau (en augmentant ou en diminuant ν), ξ_{loc} augmente : les porteurs occupent des équipotentielles de rayons de plus en plus larges. Pour une certaine valeur d'énergie, noté ϵ_m , ξ_{loc} devient supérieure à la longueur de l'échantillon à $T = 0$ K, où, à température finie, supérieure à l_ϕ ; les porteurs ne sont plus localisés et ils participent au courant net dans le conducteur. On dit que ϵ_m définit les bords de mobilité : lorsque les porteurs ont une énergie comprise entre ϵ_m et ϵ_c (énergie du centre du niveau de Landau) ils participent à la conduction. En dehors de l'intervalle $[\epsilon_c - \epsilon_m, \epsilon_c + \epsilon_m]$, les porteurs sont piégés par le désordre et ne contribuent pas au courant net. La dépendance de ξ_{loc} en fonction de l'énergie est [30] :

$$\xi_{loc}(\epsilon) = |\epsilon - \epsilon_c|^{-\gamma} \quad (3.23)$$

où $\gamma = 2.3$.

On peut faire une analogie pour décrire le comportement du conducteur ; entre deux niveaux de Landau, les fluctuations de potentiel engendrent des flaques indépendantes qui contiennent des électrons. Lorsqu'on augmente le facteur de remplissage, on augmente la quantité d'électrons piégés dans ces flaques. Les électrons occupent des équipotentielles de plus en plus larges ; la taille apparente des flaques augmente. Puis, lorsqu'on approche un niveau de Landau, les flaques « débordent » et communiquent entre elles : le « fluide » d'une flaque peut communiquer avec le fluide des flaques voisines. Il s'agit du seuil de percolation : apparaissent alors les états délocalisés qui s'étendent sur tout le conducteur analogues à un cours d'eau formé par la mise en commun du fluide des flaques.

Du fait de l'existence d'une densité d'états finie entre les niveaux de Landau, le niveau de Fermi se déplace de manière continue lorsque l'on fait varier le facteur de remplissage. Pour $\nu = p$ entier, le niveau de Fermi se situe entre deux niveaux de Landau : les états localisés ne contribuent pas au courant et, en raison du gap énergétique important, les états étendus ne sont pas excités. On a donc $R_{xx} = 0$ et $R_H = h/pe^2$. Si, à partir de cette situation, on augmente le facteur de

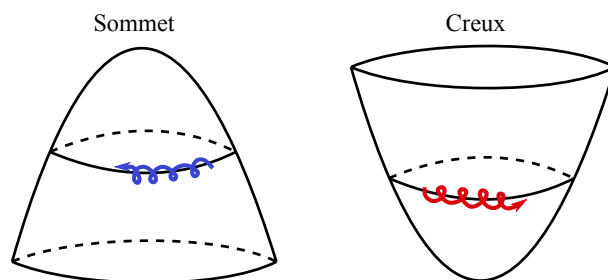


FIGURE 3.5 – Vision semi-classique du déplacement des électrons sur des lignes équipotentielles engendrées par le désordre : à gauche dans le cas d'une fluctuation supérieure au potentiel moyen (sommets) et à droite une fluctuation inférieure (creux).

remplissage, de plus en plus d'états localisés sont occupés mais R_H reste constant car ces états ne portent aucun courant. Ensuite, lorsque ν est tel que près de la moitié du niveau de Landau suivant est occupée, on atteint le seuil de percolation et les états étendus participent à la conduction ; R_{xx} augmente alors brusquement et R_H s'écarte de la valeur quantifiée. Enfin, lorsque que l'on quitte le niveau de Landau, les états localisés piègent de nouveau des électrons et les états étendus ne sont pas excités : R_{xx} chute de manière abrupte jusqu'à zéro et R_H devient égale à $h/(p+1)e^2$. Ces variations de R_{xx} sont appelées oscillations de Shubnikov - de Haas.

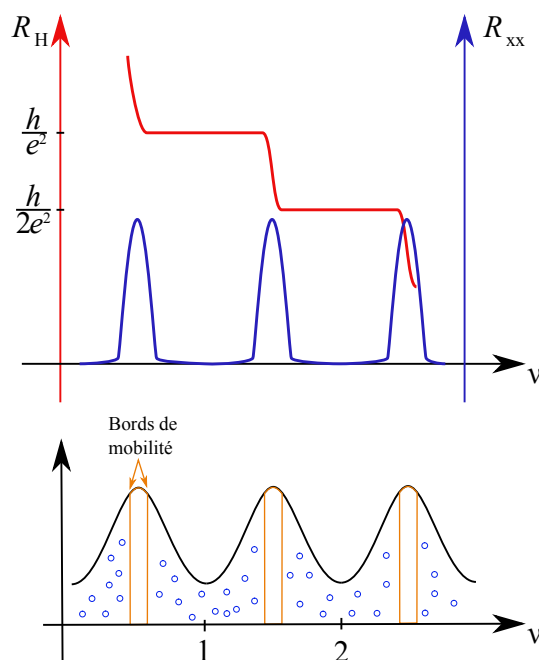


FIGURE 3.6 – Représentation schématique du comportement de R_H et de R_{xx} en fonction du facteur de remplissage ν : R_H reste accrochée à sa valeur quantifiée lorsque ν est entier, *i.e.* lorsque le niveau de Fermi est entre deux niveaux de Landau.

Nous venons de voir comment le désordre introduit des états localisés et des états étendus qui expliquent la formation de plateaux de résistance. Cependant, jusqu'à maintenant nous avons considéré que le conducteur était d'extension infinie. Aussi, pour décrire un conducteur bidimen-

sionnel réel, il faut décrire ses bords et en particulier introduire un potentiel de confinement.

3.2.3 Les états de bord

Pour traduire le fait que les électrons ne peuvent sortir du conducteur, on introduit un potentiel de confinement représenté Figure 3.7 a). Le Hamiltonien en présence d'un champ magnétique et d'un potentiel extérieur devient :

$$H = \frac{1}{2m^*} \Pi^2 + V(x) \quad (3.24)$$

Loin des bords du conducteur, c'est-à-dire dans le « bulk », le potentiel de confinement est nul. Etats propres et valeurs propres sont alors déterminés dans la jauge de Landau (Eq. 3.17). Près des bords, il faut tenir compte de ce potentiel de confinement. Celui-ci a pour effet de courber chaque niveau de Landau au voisinage des bords (Figure 3.7 b)). Considérons le cas illustré sur la figure pour lequel le niveau de Fermi se situe entre deux niveaux de Landau dans le bulk. En raison de la courbure sur les bords, les niveaux de Landau interceptent le niveau de Fermi sur les bords. On a donc un nombre d'états finis au niveau de Fermi sur les bords du conducteur : ce sont les états de bord.

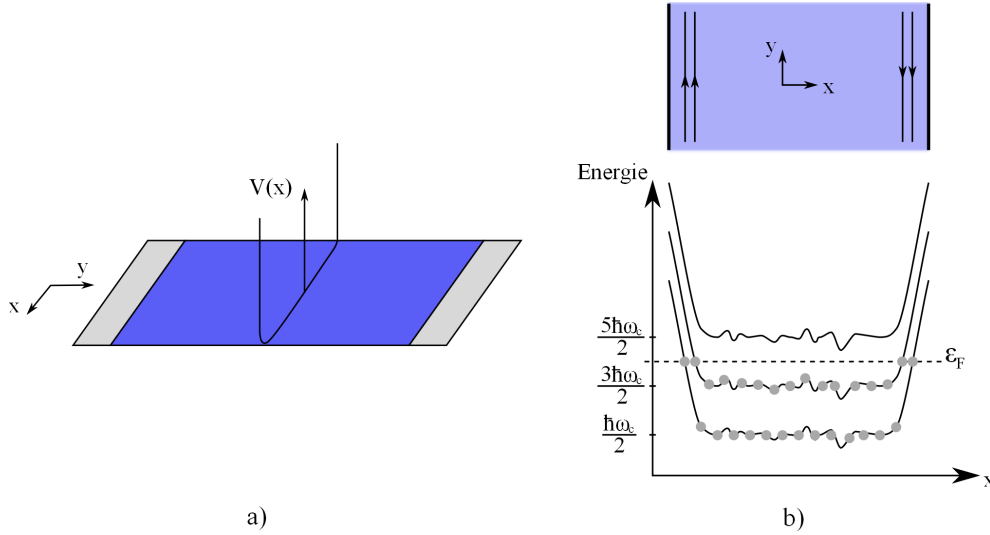


FIGURE 3.7 – a) Représentation schématique du potentiel de confinement dans la direction x pour un conducteur réel. b) Courbure des niveaux de Landau au voisinage des bords et intersection avec le niveau de Fermi dans la situation $\nu = 2$.

Comme dans la partie précédente, on suppose que le potentiel varie de manière lente sur une longueur l_B . Ceci a pour conséquence l'absence de couplage entre les niveaux de Landau sur le bord du conducteur. On peut donc écrire les valeurs propres du Hamiltonien sous la forme :

$$\epsilon_{n,k} = \hbar\omega_C \left(n + \frac{1}{2} \right) + V(x_k) \quad (3.25)$$

On peut ensuite calculer la composante de la vitesse de groupe selon la direction x :

$$v_{g,x} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \epsilon_{n,k}}{\partial k} = \frac{1}{eB} \frac{\partial V}{\partial y} \quad (3.26)$$

La direction et l'amplitude de la vitesse de groupe dépendent donc de la courbure locale du potentiel de confinement. En particulier, les vitesses de groupe des états situés sur des bords opposés ont des directions opposées (Figure 3.7 -b)) : ils sont spatialement séparés. On parle d'états de bord chiraux. Etant donné que la largeur de l'échantillon est supérieure à l_B , la rétrodiffusion, qui consiste à faire passer un électron d'un bord à l'autre du conducteur par des mécanismes tunnel, est extrêmement faible (proportionnelle à $\exp(-W/l_B)$). En d'autres termes, lorsque le niveau de Fermi est situé entre deux niveaux de Landau dans le bulk, il n'y a pas de rétrodiffusion donc pas de dissipation dans le conducteur : $R_{xx} = 0$.

La principale conséquence est que les états de bord sont des canaux de conduction unidimensionnels parfaitement transmis. Ainsi, en utilisant la formule de Landauer introduite au chapitre précédent, la conductance s'écrit ($g_s = 2$ et $g_v = 1$) :

$$G = N \frac{2e^2}{h} \quad (3.27)$$

avec N le nombre de niveaux de Landau remplis dans le bulk. N est aussi le nombre de canaux de bord.

La théorie des états de bord permet d'expliquer la quantification de la conductance comme une conséquence directe de l'absence de rétrodiffusion des électrons. Dans la pratique, il y a bel et bien dissipation. En effet, on vient de voir qu'il n'y a pas de chute de potentiel le long des bords mais qu'il y a une chute de potentiel d'un bout à l'autre du conducteur (*i.e.* entre les contacts de courant). La dissipation, c'est-à-dire la variation brutale du potentiel électrique, a lieu au niveau d'un coin des deux contacts de courant (Figure 3.8).

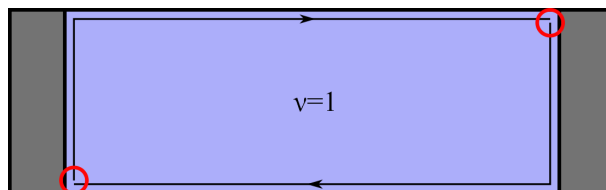


FIGURE 3.8 – Représentation des deux points chauds au niveau des contacts de courant en régime d'effet Hall quantique. En traits fins noirs on a représenté les équipotentielles dans le cas $\nu = 1$.

Arrivé au terme de la description des états de bord, il est nécessaire de faire une remarque concernant la répartition du courant dans le conducteur. En effet, cette description donne l'image que le courant circule uniquement sur les bords de l'échantillon. Ce n'est pas complètement vrai, le courant circule aussi dans le bulk, c'est à dire loin des bords. La théorie des états de bord n'a pas vocation à décrire la distribution locale de courant. Pour obtenir cette distribution locale, il est nécessaire de tenir compte des électrons situés en-dessous du niveau de Fermi ainsi que du champ électrique local. En régime d'effet Hall quantique, lorsque l'on prend en considération l'écrantage électrostatique des états de bord, on montre [31] que le fluide électronique est constitué de bandes incompressibles (*i.e.* dont la densité ne peut être modifiée) spatialement séparées par des bandes compressibles. Ces bandes ont pu être observées expérimentalement à l'aide d'une pointe STM (« Scanning Tunneling Microscope ») équipée d'un transistor monoélectronique [32] et [33].

3.2.4 Transport à température finie en régime d'effet Hall quantique

Nous venons de voir qu'à température nulle, il ne peut y avoir rétrodiffusion des porteurs de charge lorsque le facteur de remplissage est entier (*i.e.* lorsque le niveau de Fermi est situé entre deux niveaux de Landau) et par conséquent la conductivité longitudinale est nulle. Le système a alors le comportement d'un isolant.

A température faible mais non nulle, des mécanismes tunnels assistés par des phonons ont lieu dans le bulk et sont responsables de la rétrodiffusion de porteurs. Ces mécanismes portent le nom de sauts tunnels à portée variable dépendante de la température (VRH pour « Variable Range Hopping »). Il faut souligner que ce type de conduction est prépondérant à basse température dans les systèmes désordonnés isolants. Le VRH est à l'origine d'une conductivité finie à très basse température. En tenant compte des interactions entre électrons, la dépendance en température est [30] :

$$\sigma_{xx}(T) \propto \exp[-(\frac{T_0}{T})^{1/2}] \quad \text{avec} \quad T_0(\nu) \propto \frac{e^2}{4k_B\epsilon_r\epsilon_0\xi_{loc}(\nu)} \quad (3.28)$$

avec $\xi_{loc}(\nu)$ la longueur de localisation au facteur de remplissage ν , I le courant, ϵ_r et ϵ_0 les constantes diélectriques respectives du matériau et du vide.

Lorsque l'on fait circuler un courant, les électrons acquièrent une température effective donnée par :

$$k_B T_{eff} = \frac{eE\xi_{loc}(\nu)}{2} = \frac{eR_H I \xi_{loc}(\nu)}{2W} \quad (3.29)$$

La dépendance en courant de la conductivité en régime de VRH est [34] :

$$\sigma_{xx}(I) \propto \exp[-(\frac{I_0(\nu)}{I})^{1/2}] \quad \text{avec} \quad I_0(\nu) \propto \frac{k_B T_0(\nu) W}{e \xi_{loc}(\nu) R_H} \quad (3.30)$$

Au fur et à mesure que la température continue d'augmenter, un deuxième phénomène remplace le VRH. Il s'agit de l'activation thermique. Celle ci peut être à l'origine de transitions d'électrons vers les niveaux de Landau situés de part et d'autre du niveau de Fermi. Obéissant à une loi du type Arrhenius, la dépendance de σ en fonction de la température peut être mise sous la forme [35] :

$$\sigma_{xx}(T) \propto \exp[-\epsilon_g/(2k_B T)] \quad (3.31)$$

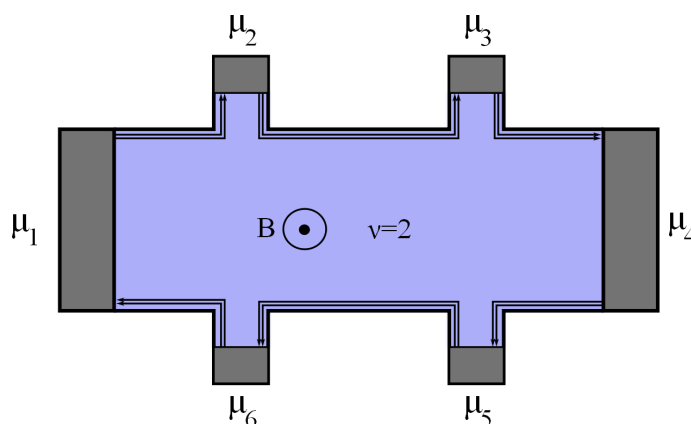
où ϵ_g correspond au gap en énergie entre les états étendus des niveaux de Landau successifs.

L'étude de l'évolution de σ en fonction du courant ou de la température permet de mettre en évidence ces deux comportements successifs [36] où d'estimer la longueur de localisation ξ et ainsi de vérifier son comportement en loi de puissance en fonction de l'énergie (Equation 3.23).

3.2.5 Théorie de Landauer-Büttiker

Dans le cadre de la théorie de Landauer-Büttiker, le courant résulte d'une différence de potentiels chimiques et non du champ électrique. Le conducteur bidimensionnel à électrodes multiples est décrit comme un système relié à des réservoirs électroniques (les contacts) dont les potentiels chimiques sont définis : le potentiel chimique d'un contact i est : $\mu_i = \mu_0 + eV_i$ où V_i est le potentiel électrique. La Figure 3.9 représente un conducteur bidimensionnel en régime d'effet Hall quantique $\nu = 2$ avec six contacts. On a donc deux états de bords. Le courant circule entre les contacts 1 et 4.

On va maintenant utiliser la formule 2.24 du chapitre précédent ; les états de bord sont des modes parfaitement transmis ($M_\alpha = 2$ et $R_\alpha = 0$). En outre, on suppose qu'il n'y a pas de diffusion élastique au sein du conducteur : il n'y a pas d'échange d'énergie entre les états de bord contrapropageants. Cela se traduit par le fait que les coefficients de transmission sont égaux au nombre d'états de bord, en l'occurrence : $T_{\beta\alpha} = 2$. Enfin, nous allons considérer que les contacts sont parfaits, *i.e.* la population des états de bord en sortie des contacts est à l'équilibre.

FIGURE 3.9 – Barre de Hall à six contacts et états de bord pour $\nu = 2$.

La formule 2.24 nous donne :

$$\begin{aligned}
 \text{pour le contact 1 : } & I = \frac{e}{h}(2\mu_2 - 2\mu_6) \\
 \text{pour le contact 2 : } & 0 = \frac{e}{h}(\mu_2 - \mu_1) \\
 \text{pour le contact 3 : } & 0 = \frac{e}{h}(\mu_3 - \mu_2) \\
 \text{pour le contact 4 : } & -I = \frac{e}{h}(2\mu_5 - 2\mu_3) \\
 \text{pour le contact 5 : } & 0 = \frac{e}{h}(\mu_5 - \mu_4) \\
 \text{pour le contact 6 : } & 0 = \frac{e}{h}(\mu_6 - \mu_5)
 \end{aligned} \tag{3.32}$$

On retrouve donc la règle d'équipotentialité :

$$\mu_1 = \mu_2 = \mu_3 = \mu_L \quad \text{et} \quad \mu_4 = \mu_5 = \mu_6 = \mu_R, \tag{3.33}$$

puis :

$$R_{xx} = \frac{V_2 - V_3}{I} = 0 \quad \text{et} \quad R_H = \frac{V_6 - V_2}{I} = \frac{h}{2e^2} \tag{3.34}$$

Dans le cadre de cette théorie, on peut montrer que deux mauvais contacts adjacents peuvent provoquer un écart de R_H à la valeur quantifiée car les états de bord ne vont plus être peuplés de manière équilibrée. Toutefois, la présence de diffuseurs inélastiques permet de restaurer une population équilibrée des états de bord car ils autorisent les échanges d'énergie. La grande force de la théorie des états de bord tient au fait que l'effet Hall quantique est un effet macroscopique pour lequel la cohérence de phase n'est requise qu'à l'échelle de la longueur magnétique ; en particulier l'effet Hall quantique peut être observé sur des échantillons de très grande taille.

3.2.6 Robustesse de l'effet Hall quantique

Il existe plusieurs arguments théoriques forts justifiant de la robustesse de l'effet Hall quantique et de la relation $R_K = h/e^2$. En 1981, Laughlin [37] fournit la première explication de l'effet Hall quantique et de son caractère universel. En utilisant un 2DEG ayant une géométrie de ruban fermé sur lui-même, il a démontré que l'effet Hall quantique est issu d'une propriété d'invariance de jauge du Hamiltonien et non du détail de la structure microscopique du 2DEG.

Les idées de Laughlin ont été reprises, par exemple par Thouless *et al.* [38]. La conductance en régime d'effet Hall quantique est un invariant topologique, c'est-à-dire qu'elle ne dépend pas du détail microscopique au sein du conducteur. De plus, des arguments récents ont montré que la conductance de Hall n'est pas sensible au champ gravitationnel [39]. Enfin, nous avons vu en page 48 que la conductivité en régime d'effet Hall quantique est un invariant topologique.

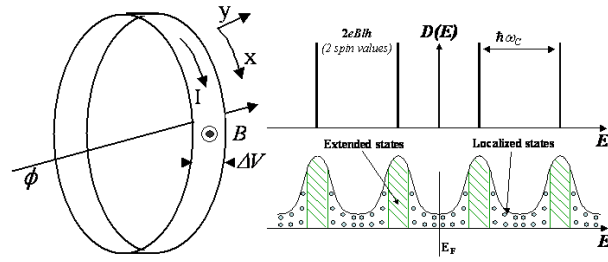


FIGURE 3.10 – Description de l’effet Hall quantique pour un 2DEG ayant une géométrie cylindrique (à gauche). A droite, les densités d’états dans le cas sans désordre (en haut) et avec désordre (en bas). Schémas tirés de [37].

De façon globale, la robustesse de l’effet Hall quantique a pour origine le principe d’exclusion de Pauli, le principe d’incertitude de Heisenberg et la chiralité des canaux de conduction sous fort champ magnétique.

3.3 Observation expérimentale

La Figure 3.11 montre la résistance longitudinale et la résistance de Hall mesurées dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs en fonction du champ magnétique selon la configuration représentée Figure 3.2. Dans la partie faible champ, *i.e.* jusqu’à $B = 2\text{ T}$, la résistance de Hall dépend linéairement du champ ; il s’agit de l’effet Hall classique. En parallèle, on remarque que la résistance longitudinale marque des oscillations. Il s’agit d’oscillations Shubnikov-de Haas. Ces oscillations ont pour origine la modification de la densité d’état, *i.e.* l’apparition des niveaux de Landau.

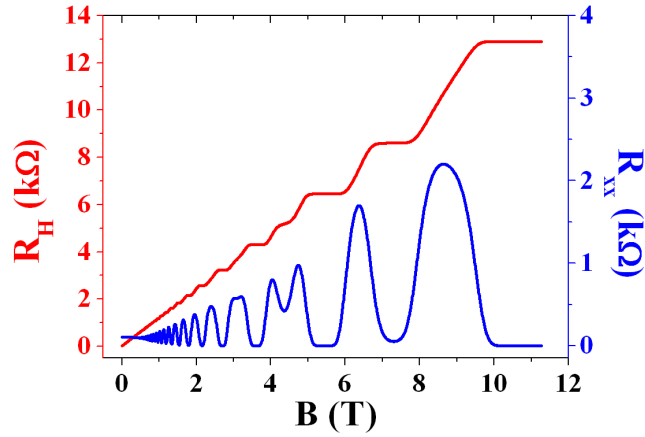


FIGURE 3.11 – Résistance longitudinale (en bleu) et résistance transverse (en rouge) mesurées dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs à $T = 1.3\text{ K}$ en fonction du champ magnétique avec un courant de $42\ \mu\text{A}$.

A plus fort champ magnétique, la résistance de Hall forme des plateaux aux valeurs prédites par la théorie : $\frac{h}{4e^2}$, $\frac{h}{3e^2}$, $\frac{h}{2e^2}$. Lorsque cette résistance transverse est quantifiée, la résistance longitudinale chute à des valeurs proches de zéro : le système est alors non dissipatif. Lorsque la résistance

transverse s'écarte de la valeur quantifiée, le niveau de Fermi passe entre deux niveaux de Landau dans le bulk, la résistance longitudinale marque alors un maximum puis décroît de nouveau quand le niveau de Fermi est proche d'un niveau de Landau. Il faut bien remarquer que dans ce type de mesure, le niveau de Fermi est fixé par la valeur de la densité de porteurs et que le fait de varier le champ magnétique fait « défiler » les niveaux de Landau. Soulignons enfin qu'on peut observer sur la Figure 3.11 entre 4 et 5 T une levée de dégénérescence de spin.

Dans les instituts nationaux de métrologie, la résistance de Hall d'une hétérostructure GaAs/AlGaAs sur le plateau $\nu = 2$ sert de référence pour étalonner des résistances matérielles comme nous allons le voir dans le chapitre suivante.

Deuxième partie

La Métrologie des résistances

Chapitre 4

La Représentation de l'ohm

4.1 Conservation de l'ohm

4.1.1 Principe

Les Instituts Nationaux de Métrologie (NMIs pour « National Metrology Institutes ») utilisent des gaz bidimensionnels d'électrons (2DEG) obtenus dans des hétérostructures GaAs/AlGaAs pour reproduire l'effet Hall quantique afin de réaliser l'unité de résistance électrique. Les barres de Hall ainsi obtenues ont des dimensions macroscopiques : la largeur est de $400\ \mu\text{m}$ et la distance entre deux électrodes de tension adjacente est de $500\ \mu\text{m}$ (Figure 4.1-a). Ces dispositifs sont montés sur des supports en céramique (alumine Al_2O_3) appelés TO8 (Figure 4.1-b)), refroidis à $1.5\ \text{K}$ au centre d'une bobine supraconductrice. Les résistances de Hall, R_H , et la résistance longitudinale, R_{xx} , sont respectivement données par :

$$R_H = \frac{V_H}{I} \quad R_{xx} = \frac{V_{xx}}{I} \quad (4.1)$$

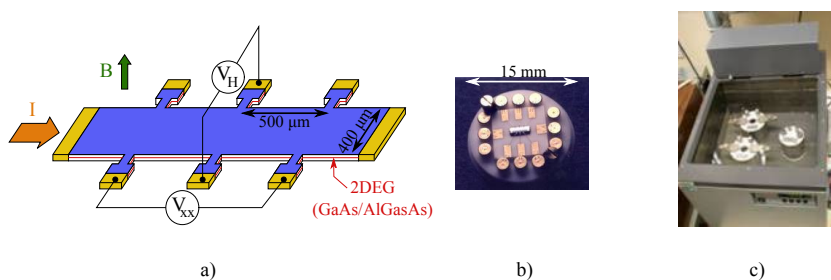


FIGURE 4.1 – a) Schéma d'un 2DEG basé sur une hétérostructure GaAs/AlGaAs et utilisé en métrologie; b) Photographie du dispositif sur le support en céramique; c) Photographie d'une résistance matérielle dans son bain d'huile thermorégulé.

Les mesures de tension sont réalisées avec des courants de l'ordre de plusieurs dizaines de micro ampère (typiquement $40\ \mu\text{A}$). La Figure 3.11 de la page 59 représente le comportement de R_H et de R_{xx} en fonction du champ magnétique. En particulier, pour certaines plages de valeurs du champ magnétique, la résistance de Hall est quantifiée et, en parallèle, la résistance longitudinale chute à zéro ce qui signifie que le transport a lieu sans dissipation, *i.e.* sans rétro-diffusion des électrons.

L'étalonnage d'une résistance matérielle constituée d'un fil bobiné est réalisé en comparant sa valeur à la résistance de Hall sur un plateau i ($R_H = R_K/i$) grâce à un pont de comparaison de résistance. Dans la pratique, le plateau $i = 2$ est majoritairement utilisé car il est le mieux quantifié. Comme nous l'avons dit au Chapitre 1, la résistance matérielle est étalonnée en termes de R_{K-90} qui est exacte (l'incertitude associée est nulle dans le SI). La Figure 4.2 montre le suivi au cours du temps d'une résistance de 100Ω étalonnée grâce à l'effet Hall quantique. On constate grâce à l'effet Hall quantique qu'hormis une dérive linéaire, l'étalon peut être stable à quelques 10^{-9} .

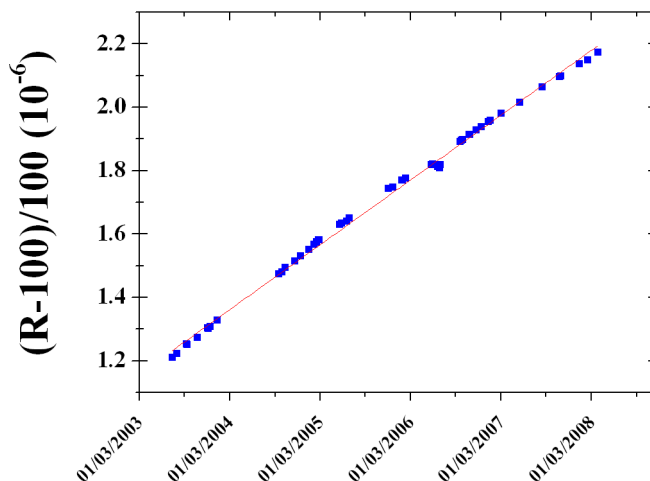


FIGURE 4.2 – Suivi temporel d'une résistance de 100Ω étalonnée en termes de R_{K-90} .

Des conditions assez strictes concernant le dispositif de mesure et son environnement sont nécessaires pour atteindre ce degré de précision. En particulier, la salle de mesure dont la température et le taux d'humidité sont régulés est située dans une cage de Faraday afin de limiter les perturbations électromagnétiques extérieures.

4.1.2 Réalisation d'un 2DEG

Plusieurs méthodes existent pour obtenir des 2DEG : dans des MOSFET silicium (« Metal Oxyde Semiconductor Field Effect Transistor ») ou dans des hétérostructures de semiconducteurs III-V. Les propriétés électroniques, notamment la mobilité, obtenues dans des hétérostructure de GaAs/AlGaAs permettent des applications en métrologie. Ces hétérostructures forment un puits de potentiel dans lequel les électrons sont confinés (Figure 4.3).

Pour commencer, rappelons que l'on appelle "gap", la différence d'énergie entre le haut de la bande de valence (BV) et le bas de la bande de conduction (BC) d'un matériau semiconducteur. Pour un semiconducteur non dopé, cette bande d'énergie située entre BV et BC constitue une bande d'énergie interdite : il n'y a pas d'états accessibles aux électrons. Par exemple, dans le cas de GaAs non dopé, le gap est 1.42 eV, et dans le cas de $Al_xGa_{1-x}As$ avec $x = 0.28$ le gap est 1.77 eV. Lorsque deux matériaux semiconducteurs de gaps différents sont mis en contact, les potentiels chimiques des deux matériaux s'équilibrent. Considérons le cas d'une couche de GaAs non dopée et une couche de AlGaAs dopée avec des atomes de silicium jouant le rôle d'impuretés donneuses d'électrons. Pour que les potentiels chimiques puissent s'équilibrer, des électrons fournis par les dopants de AlGaAs sont transférés vers GaAs. Ce transfert de charge a pour conséquence

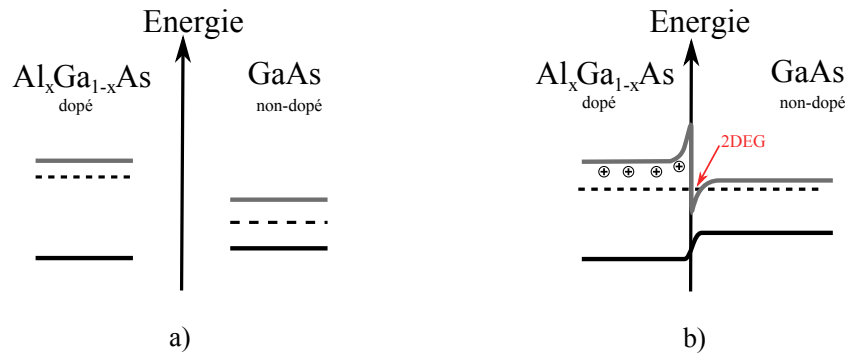


FIGURE 4.3 – Représentation des bandes d'énergie (bas de la bande de conduction en trait gris, haut de la bande de valence en trait noir et niveau de Fermi en pointillé) en a) pour deux matériaux distants et en b) lorsque les deux matériaux sont en contact.

de courber les bandes d'énergie de telle sorte qu'il apparaît au niveau de l'interface un potentiel de confinement de profil triangulaire. La largeur du puits est de l'ordre de 10 nm, ce qui permet de confiner quantiquement les électrons.

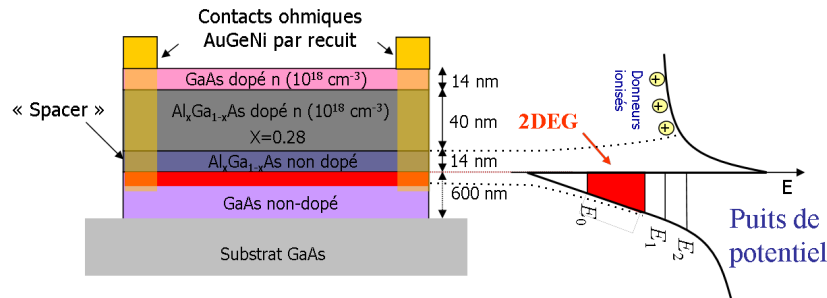


FIGURE 4.4 – A gauche, schéma d'empilement des couches dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs. La couche « spacer » est une couche non dopée qui permet d'isoler le 2DEG des impuretés ionisées. A droite, agrandissement des bandes d'énergie au voisinage de l'interface : il apparaît un puits de potentiel de profil triangulaire.

Du fait de ce confinement, le vecteur d'onde transverse à l'interface est quantifié. Il apparaît des sous-bandes d'énergie. L'écart en énergie de ces sous-bandes est lié à la largeur du puits. Dans le cas des 2DEG que nous utilisons, cet écart en énergie est de l'ordre de 0.1 eV. Cet écart en énergie est très grand devant l'énergie thermique (à $T = 1.3$ K, $k_B T \approx 1 \times 10^{-4}$ eV). De fait, seule la première sous-bande électronique est occupée; on considère que les électrons ont une dynamique purement bidimensionnelle. La Figure 4.4 représente l'empilement des différentes couches qui permettent d'obtenir un 2DEG. Ce type d'empilement est réalisé par épitaxie par jets moléculaires (MBE pour « Molecular Beam Epitaxy ») ou par dépôt chimique en phase gazeuse (MOCVD pour « Metal Organic Chemical Vapor Deposition »). Au final, le 2DEG se situe à 70 nm de la surface. Les contacts électriques, permettant de faire les mesures de tension et l'injection de courant, sont obtenus en chauffant un empilement de couches d'or, de germanium et de nickel. Lors de ce chauffage, l'eutectique AuGe se forme et diffuse verticalement en profondeur jusqu'à atteindre le gaz d'électrons. Ce type de contacts porte le nom de contact ohmique.

4.2 Dispositifs réels à effet Hall quantique

La description de l'effet Hall quantique lors du chapitre précédent a été faite à température nulle. Or dans le cas de mesures métrologiques, les échantillons sont placés à température finie ; il y a toujours un peu de dissipation au sein du 2DEG. De fait, des guides techniques doivent être suivis par les métrologues afin que la mise en œuvre de l'effet Hall quantique fournisse une résistance quantifiée avec une incertitude de 10^{-9} .

4.2.1 Les effets de température

Nous avons vu au Chapitre 2 (page 67) qu'en régime d'effet Hall quantique à température finie, une conductivité longitudinale finie apparaît. Cette conductivité est due à des phénomènes de rétrodiffusion dans l'échantillon.

D'un point de vue général, à partir du moment où il y a de la rétrodiffusion des électrons, on peut s'attendre à un écart de quantification, ΔR_H , qui dépend de R_{xx} . Ce lien n'a rien d'universel et dépend de nombreux paramètres (température, rapport d'aspect, courant, ...). En pratique, pour des applications en métrologie, il est nécessaire de déterminer ce lien expérimentalement puis d'extrapoler R_H à zéro dissipation (*i.e.* zéro R_{xx}) puisque seulement dans ce cas la quantification parfaite est attendue. La figure 4.5-a) montre les dépendances linéaires entre ΔR_H et ρ_{xx} pour plusieurs échantillons. Cette relation linéaire subsiste sur plusieurs décades et le coefficient de proportionnalité dépend de l'échantillon, de la paire d'électrodes de mesure et un peu du sens du champ magnétique. Dans le cas des échantillons pour la métrologie, le coefficient est typiquement compris entre 0.1 et 1.

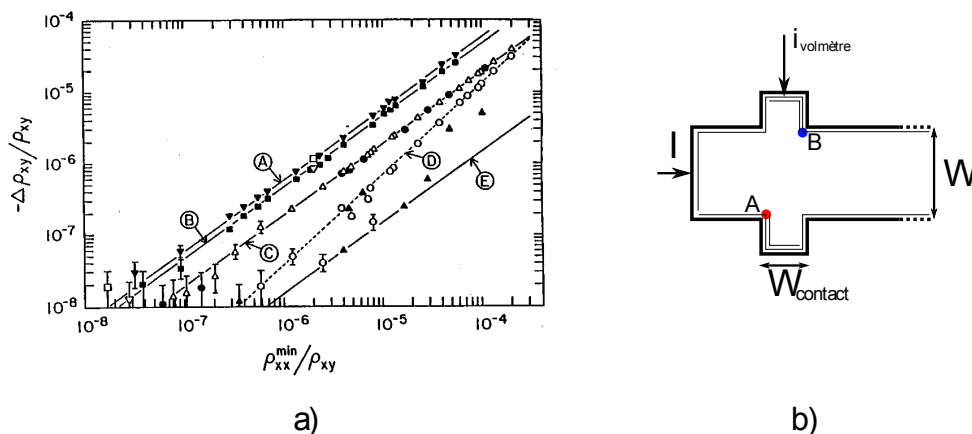


FIGURE 4.5 – A gauche, écart relatif entre la résistance transverse et la valeur quantifiée en fonction de ρ_{xx} , courbe extraite de [40]. A droite, schématisation d'une barre de Hall avec les lignes équipotentielles engendrées par le courant de mesure du voltmètre.

Quand la résistance longitudinale est finie, les lignes équipotentielles ne sont plus parallèles aux bords de l'échantillon. La résistance transverse n'est alors plus égale à la valeur quantifiée. Les réflexions des métrologues autour de ces problématiques amènent à utiliser des modèles relativement simples pour appréhender ces phénomènes. Par exemple, dans une approche semi classique, l'écart à la quantification peut être approximé par (l est la distance entre le contact de courant et les contacts de tension mesurant V_H) :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H} = 4 \frac{R_{xx}}{R_H} \exp\left(\frac{-l\pi}{W}\right) \quad (4.2)$$

Numériquement, pour un rapport l/W égal à 2, l'écart relatif de quantification est de l'ordre de 10^{-11} , ce qui est beaucoup plus faible que les valeurs observées sur la figure 4.5-a). Pour expliquer les écarts observés, il faut revenir sur les propriétés des états de bord en régime d'effet Hall quantique. En particulier, ils sont chiraux (les électrons ne se déplacent que dans un seul sens sur un bord donné). Lorsque l'on fait une mesure de tension, le voltmètre injecte un faible courant de mesure dans l'échantillon. Or la chiralité des états de bord impose un désalignement effectif des « points » de mesures de la tension : le voltmètre mesure la chute de potentiel totale entre les points A et B (Figure 4.5-b)). Le désalignement effectif des électrodes de tension est à l'origine d'un couplage linéaire entre ΔR_H et R_{xx} . En effet, l'écart entre la résistance mesurée et la résistance quantifiée est :

$$\Delta R_H = \frac{V_{AB} - V_H}{I} = -\frac{W_{contact}}{W} R_{xx} \quad (4.3)$$

où $W_{contact}$ est la largeur des électrodes de tension. Les 2DEG que l'on utilise en métrologie sont tels que $W_{contact}/W < 1/8$ afin de limiter ce désalignement effectif. En outre, l'inhomogénéité de la densité de porteur peut engendrer un désalignement effectif similaire. En effet, lorsque la densité présente de fortes inhomogénéités, il apparaît une composante transverse du courant entre les électrodes de tension. Toutefois, le signe de la déviation ΔR_H change lorsqu'on inverse le sens du champ magnétique :

$$\Delta R_H(-B) = -\Delta R_H(B) \quad (4.4)$$

On peut donc s'affranchir de cette déviation en moyennant des mesures faites en champ positif et en champ négatif.

4.2.2 Courant critique

Lorsqu'on augmente le courant dans le 2DEG, on observe une brusque augmentation de la résistance longitudinale à partir d'une certaine valeur du courant (Figure 4.6-a)). Il s'agit de la rupture (« breakdown ») de l'effet Hall quantique. Au delà de I_C (le courant critique), la résistance de Hall commence à s'écarter de la valeur quantifiée.

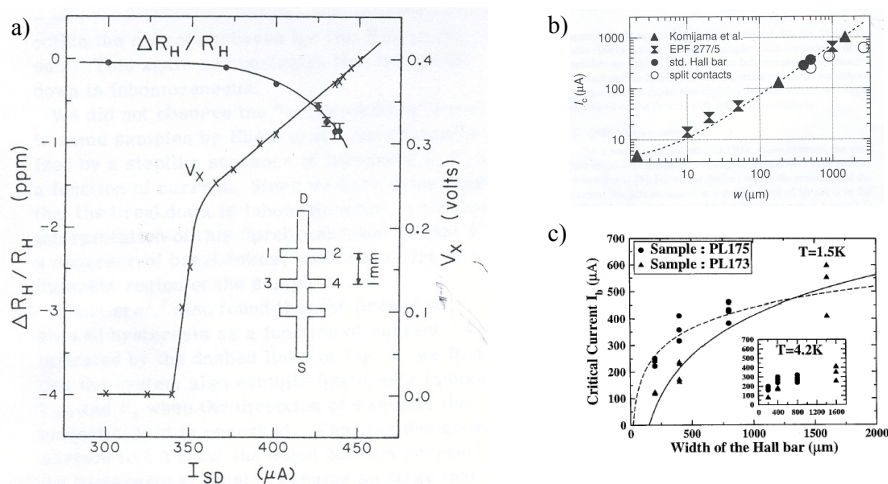


FIGURE 4.6 – a) Rupture de l'effet Hall quantique en fonction du courant (courbe tirée de [40]); dépendances de I_C avec la largeur de la barre de Hall : b) dépendance linéaire tirée de [41] et c) dépendance sous-linéaire tirée de [42].

Pour comprendre, on peut faire la description qualitative suivante ; en raison de la résistivité finie, il se développe une puissance thermique interne, Q_{in} , sous l'effet du courant : $Q_{in} = \rho_{xx}(T_{el})I^2$

où T_{el} est la température des électrons. Cette température électronique est aussi liée à l'environnement des électrons, c'est à dire au flux de chaleur, Q_{out} , qu'ils peuvent échanger (évacuer) avec le réseau qui est à la température T_L . Le système est thermodynamiquement stable si $Q_{in} = Q_{out}$. Cette condition de stabilité suppose que :

$$\frac{\partial Q_{in}}{\partial T_{el}} < \frac{\partial Q_{out}}{\partial T_{el}} \quad (4.5)$$

Quand le courant devient supérieur au courant critique, la relation précédente n'est plus vérifiée et le système devient instable d'un point de vue thermique. La température électronique augmente alors de façon brutale et le régime d'effet Hall quantique est détruit. Une approche plus précise montre que la rupture de l'effet Hall quantique fait intervenir des transitions inter et intra niveaux de Landau (*c.f.* Chapitre 10).

Dans les barres de Hall que nous utilisons en métrologie, le courant critique peut atteindre plusieurs centaines de micro ampères; la différence de potentiel chimique est alors très grande devant l'énergie cyclotron qui sépare deux niveaux de Landau. En effet, pour $I_C = 400 \mu A$ et $B = 10 T$, $\Delta\mu \approx 5 eV$ soit $\Delta\mu \approx 300\hbar\omega_c$. Dans le régime des forts courants, le courant électrique n'est pas localisé sur les bords de l'échantillon : il passe aussi dans le bulk. On s'attend donc à ce que I_C dépende de la largeur du 2DEG. Les figures 4.6-b) et 4.6-c) tirées de différents résultats expérimentaux, montrent respectivement une dépendance linéaire et sous-linéaire du courant critique en fonction de la largeur. On constate que plus le 2DEG est large, plus le courant critique est élevé. De fait, pour la métrologie, on cherche à avoir les 2DEG les plus larges possibles de sorte que le courant critique soit le plus élevé possible et des résistances longitudinales les plus faibles possibles.

4.2.3 Les contacts

Nous avons discuté de l'influence des contacts lors de la description de l'effet Hall quantique dans le cadre de la théorie de Landauer-Büttiker (page 58). En particulier, il est crucial que les contacts soient bons, *i.e.* qu'ils ne soient pas résistifs, afin de préserver un bon niveau de quantification.

Pour discuter des résistances de contact, nous allons nous appuyer sur des résultats expérimentaux obtenus par des métrologues [43] et représentés figure 4.7. Celle-ci représente l'écart relatif de la résistance de Hall, $|\Delta R_H|/R_H$, en fonction de la résistance relative des contacts utilisés pour la mesure de la tension de Hall, R_C/R_H , pour les plateaux de résistance $i = 2$ et $i = 4$. Ces mesures ont été effectuées à 0.3 K avec un courant de 20 μA . Les valeurs élevées des résistances de contact sont, dans le cas de cette expérience, dues à l'existence d'une barrière Schottky à la suite d'un mauvais recuit du contact AuGeNi ou dues à une déplétion des électrons au voisinage du contact dans le 2DEG pendant le refroidissement. Ces mauvais contacts sont ici obtenus volontairement en utilisant une grille placée sur le bras de contact.

On remarque que les points présentent une forte dispersion et qu'il est impossible d'en tirer une relation bien définie entre déviation relative et résistance des contacts. Une résistance de contact peut engendrer des détails microscopiques compliqués et notamment un chauffage des électrons. Cependant, on constate que la déviation relative à la valeur quantifiée reste inférieure à 10^{-9} si la résistance des contacts reste inférieure à 10 Ω , et ce quel que soit le plateau considéré ($i = 2$ et $i = 4$). Au-delà, le contact perturbe la population des états de bord, on observe alors des écarts à la quantification qui peuvent être importants (écart de 10^{-6} lorsque R_C est de l'ordre de 20 k Ω). Toutefois, dans cette expérience, l'effet d'un mauvais contact est un effet local; l'utilisation d'une paire de bons contacts sur le même échantillon permet de mesurer une résistance parfaitement quantifiée.

Ce travail [43] montre que pour obtenir des écarts à la quantification qui soient inférieurs à 10^{-9} , il est nécessaire d'avoir des résistances de contact qui soient inférieures à 10 Ω pour les

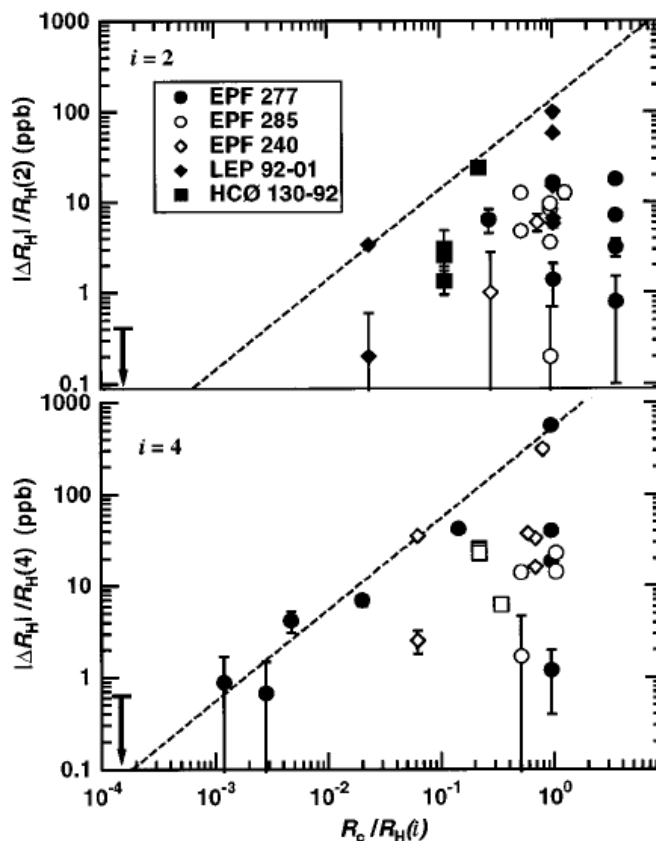


FIGURE 4.7 – Ecart relatif de la résistance de Hall en fonction de la résistance des contacts pour les plateaux $i = 2$ (courbe supérieure) et $i = 4$ (courbe inférieure).

plateaux $i = 2$ et $i = 4$. Pour des applications en métrologie, on cherche donc à avoir les résistances de contact les plus faibles possibles, supportant les forts courants et à disposer de plusieurs paires sur un même 2DEG. En outre, les contacts doivent avoir un comportement ohmique. Nous verrons au Chapitre 10 comment se réalise la mesure d'une résistance de contact.

4.2.4 Les guides techniques

Comme nous venons de le voir, la mesure de l'effet Hall quantique dans un dispositif réel peut donner des résultats écartés de la valeur quantifiée, avec parfois des écarts relatifs importants (de l'ordre de 10^{-6}). Certaines caractérisations doivent donc être menées au préalable afin de disposer d'une résistance quantifiée en termes de R_K avec une incertitude relative inférieure à 10^{-9} . L'ensemble des recommandations à prendre est résumé dans les *Guides Techniques* (« Technical Guidelines ») [44]. De manière générale, les 2DEGS doivent présenter des plateaux de Hall larges et un désordre peu élevé. Ces recommandations se classent en deux catégories.

Tout d'abord, les propriétés électroniques du 2DEG et la géométrie du dispositif doivent vérifier certains critères :

- Pour une hétérostructure de GaAs/AlGaAs, la mobilité doit vérifier :

$$40 \text{ T}^{-1} < \mu < 80 \text{ T}^{-1} \quad (4.6)$$

avec $1 \text{ T}^{-1} \equiv 1 \text{ m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$.

- Il ne doit pas y avoir de conduction parallèle dûe au remplissage d'une deuxième sous-bande dans le 2DEG. La densité doit être telle que :

$$3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2} < n_S < 5.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2} \quad (4.7)$$

- Les contacts doivent avoir des résistances inférieures à 10Ω , un comportement linéaire en courant (comportement dit ohmique) et supporter les forts courants.
- Enfin, la barre de Hall doit avoir des dimensions telles que :
 - le canal est le plus large possible pour avoir le courant critique le plus élevé possible
 - la distance entre deux contacts de tension est la plus grande possible afin de favoriser une population à l'équilibre des états de bord
 - la largeur des contacts de tension doit être faible devant les dimensions de la barre de Hall (pour avoir une mesure de tension quasi-ponctuelle) mais suffisamment large pour éviter tout phénomène de déplétion des électrons.

Ensuite, un ensemble de mesures doit être réalisé pour être sûr que la barre de Hall fournisse la résistance la mieux quantifiée :

- pour être dans l'état de non dissipation, ou à défaut dans l'état de dissipation la plus faible possible, il est nécessaire de mesurer la résistance longitudinale sur le plateau de Hall (en faisant varier le champ magnétique ou la tension de grille) pour en extraire le minimum, R_{xx}^{min} , des deux côtés de la barre et ainsi vérifier l'homogénéité de la densité de porteurs. Si R_{xx}^{min} n'est pas négligeable, R_H devra être extrapolée à $R_{xx} = 0$.
- vérifier que les résistances des contacts sont faibles.
- s'assurer que R_H ne dépende pas du sens du champ magnétique et qu'elle reste constante sur le plateau considéré.
- s'assurer que R_H ne dépende pas de la paire de contact utilisée pour la mesure.

En particulier, le point concernant les contacts nécessite de directement mesurer la valeur des résistances de contact au centre du plateau. Pour ce faire, nous utilisons une configuration « 3-fils » représentée Figure 4.8. Cette configuration tire partie des propriétés de quasi équipotentialité en régime d'effet Hall quantique. En effet, les deux contacts utilisés pour la mesure de tension sont à des potentiels électriques proches. La tension mesurée est donc la somme de la chute de potentiel au niveau du contact (sur la figure, le contact i), de la chute de potentiel dans le câble de mesure relié à ce même contact (« lead ») et la chute de potentiel longitudinale, supposée faible, entre les deux contacts de la mesure. En termes de résistances, on a :

$$R_{ij,il} = R_c + R_{lead} + R_{xx} \quad (4.8)$$

Dans la mesure où la résistances des fils est connue et que la résistance longitudinale est très faible, cette méthode nous permet donc d'évaluer la résistance de chacun des contacts.

4.3 Réseaux

Les métrologues utilisent les valeurs quantifiées sur les plateaux $i = 2$ et $i = 4$ afin de réaliser l'ohm avec une incertitude de l'ordre de 10^{-9} . Pour obtenir d'autres valeurs quantifiées on peut associer des barres de Hall entre elles, en série et/ou en parallèle. Toutefois, l'association de barres de Hall par des liens résistifs apportent une contribution à la résistance du réseau : il apparaît des résistances d'interconnexion. Aussi, pour limiter leur poids relatif, les barres de Hall doivent être reliées entre elles par des liens redondants entre les contacts de tension et de courant ;

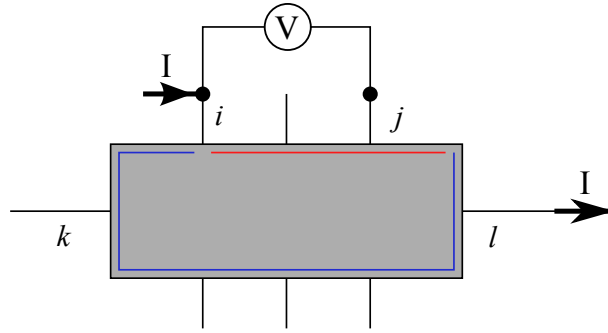


FIGURE 4.8 – Représentation d’une mesure de résistance de contact en configuration 3-fils sur le plateau $\nu = 1$.

il s’agit de la technique de connexions multiples. Cette méthode permet de définir des résistances 4-fils quantifiées pour des réseaux de barres de Hall. La Figure 4.9 représente l’association en série de deux barres de Hall.

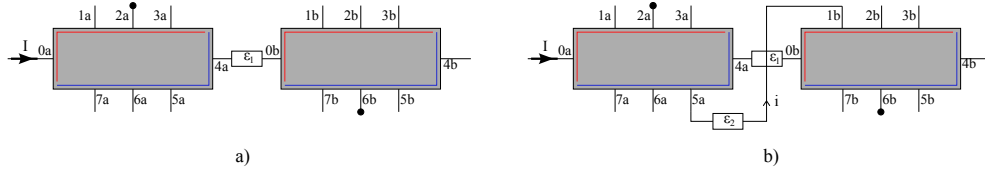


FIGURE 4.9 – a) Association en série de deux barres de Hall. b) Technique de connexion multiple pour une association en série.

Dans le cas d’une association simple (Figure 4.9-a)), les deux barres de Hall sont reliées entre elles par un lien résistif de résistance $R_{lien} = \epsilon_1 R_H$. La tension V_{2a-6b} est :

$$V_{2a-6b} = V_{2a-5a} + V_{4a-0b} + V_{1b-7b} = 2R_H I (1 + \epsilon_1/2) \quad (4.9)$$

On a donc un écart à la valeur $2R_H$ attendue. Ceci a pour origine le fait que les contacts 0b, 1b et 2b ne sont pas au même potentiel électrique que les contacts 4a, 5a et 6a en raison du lien résistif. Si on place un second lien entre les contacts (Figure 4.9-b)), une petite portion du courant va circuler entre les deux échantillons. La tension V_{2a-6b} devient :

$$V_{2a-6b} = V_{2a-5a} + V_{5a-1b} + V_{1b-7b} = 2R_H I (1 + \epsilon_1 \epsilon_2/4) \quad (4.10)$$

La résistance ainsi mesurée est donc moins écartée dans le cas de la double connexion.

D’un point de vue général, pour un réseau composé de n liens, on peut montrer que l’écart à la valeur quantifiée est de l’ordre de $O(\epsilon^n)$. Par exemple, considérant des liens de 1Ω de résistance, on peut obtenir des réseaux de barres de Hall étalons de résistance (QHARS pour « Quantum Hall Array Resistance Standard ») dont l’incertitude est inférieure à 10^{-9} pour $n = 3$ connexions.

Les réseaux permettent de réaliser des étalons de forte valeur de résistance stables. A termes, ces réseaux vont permettre de raccourcir et d’améliorer la chaîne d’étalonnage car les valeurs de ces étalons s’étendent sur une plus large gamme : de 100Ω à $1 \text{ M}\Omega$. Un autre atout des réseaux est leur compatibilité avec les besoins industriels. En effet, les réseaux fournissent des résistances exactes à plus fort courants de mesure (jusqu’au mA pour des réseaux parallèles) ; les réseaux de barres de Hall peuvent être utilisés au sein des ponts de comparaison. A l’heure actuelle, les QHARS sont utilisés comme des étalons quantiques de transfert entre NMIs pour des comparaisons internationales.

4.4 Le comparateur cryogénique de courant

L'effet Hall quantique possède une très grande reproductibilité et permet d'étalonner des résistances matérielles qui servent à leur tour à disséminer l'unité. Pour tirer pleinement profit des propriétés de l'effet Hall quantique, il est nécessaire de disposer de l'instrumentation adéquate, en l'occurrence le pont de comparaison de résistances basé sur un Comparateur Cryogénique de Courants (CCC).

4.4.1 Principe

La Figure 4.10-a) représente de manière schématique un CCC. Il s'agit d'un transformateur parfait fonctionnant en courant continu. Il est constitué de deux enroulements de fils en supraconducteur niobium-titane (NbTi) dont les nombres de tours sont N_1 et N_2 . Ces enroulements sont placés dans un blindage torique en plomb qui se recouvre sur lui-même sans contact électrique. L'ensemble du dispositif fait approximativement 4 cm de diamètre (Figure 4.10-b)) et est placé dans l'hélium liquide ($T = 4.2$ K) de sorte que le blindage en plomb soit supraconducteur.

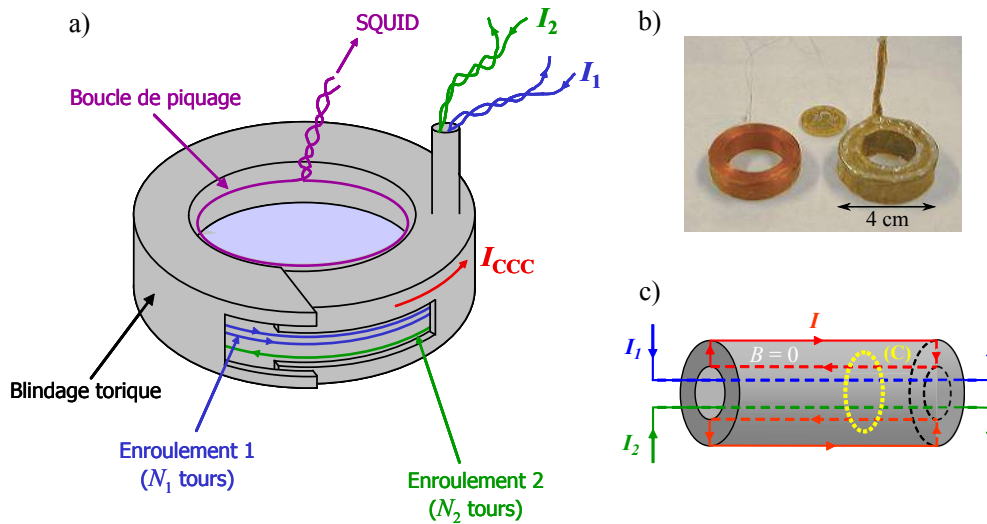


FIGURE 4.10 – a) Représentation schématique d'un Comparateur Cryogénique de Courant. b) Photographie d'un CCC. c) Conducteur cylindrique supraconducteur traversé par deux courants de sens opposés.

Le principe d'un CCC repose sur le théorème d'Ampère et l'effet Meissner. Considérons un tube supraconducteur traversé par deux fils dans lesquels circulent deux courants, I_1 et I_2 , en sens opposé (voir Figure 4.10-c)). En vertu de l'effet Meissner, l'induction magnétique est nulle au sein du supraconducteur ; il apparaît un courant d'écranage I en surface de celui-ci. Le théorème d'Ampère sur le chemin fermé (C) donne :

$$\mu_0(I_1 + I_2 - I) = \oint_{(C)} \mathbf{B} \cdot d\mathbf{l} = 0 \quad (4.11)$$

soit, $I = I_1 + I_2$.

Dans le cas du CCC, l'application du théorème d'Ampère donne :

$$I_{CCC} = N_1 I_1 - N_2 I_2 \quad (4.12)$$

où I_{CCC} est le supercourant d'écranage sur le blindage en plomb.

Etant donné que le blindage se referme sur lui-même sans contact électrique, le courant d'écrantage est forcé de circuler de la surface intérieure vers la surface extérieure en suivant un chemin fermé. Ce courant est détecté via une boucle de piquage connectée à un dispositif à interférences électroniques (SQUID pour « Superconducting Quantum Interference Device »).

Dans la pratique, la source de courant primaire est asservie sur la source de courant secondaire. De plus, le CCC est utilisé en flux nul : une boucle de rétro-action en utilisant la sortie du SQUID permet d'agir sur le courant I_2 afin d'annuler le courant d'écrantage. Le rapport des courants dépend alors uniquement du rapport des enroulements : $I_1/I_2 = N_2/N_1$. Le CCC est un amplificateur qui peut être exact à quelques 10^{-11} près.

4.4.2 Exactitude et sensibilité

L'exactitude du rapport de courant est limitée par la fuite de flux magnétique à l'extrémité du blindage torique. Ces fuites sont liées à la géométrie du CCC et tout particulièrement à la longueur de recouvrement du blindage sur lui-même. En effet, cette fuite conduit à un rapport I_1/I_2 qui s'écarte du rapport N_2/N_1 :

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{N_2}{N_1}(1 + \alpha) \quad (4.13)$$

Afin d'évaluer ces erreurs, on oppose les flux magnétiques générés par des enroulements qui sont supposés avoir le même nombre de tours et parcourus par le même courant mais en sens inverses. Pour la longueur de recouvrement du blindage utilisée dans le CCC du LNE, les incertitudes relatives sur les rapports d'enroulements sont inférieures à 10^{-10} .

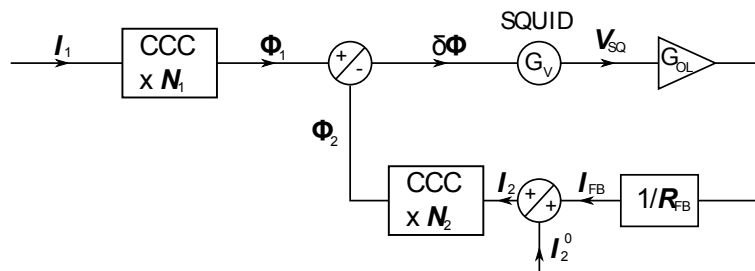


FIGURE 4.11 – Schéma de la boucle de feedback externe utilisée pour le pilotage du courant secondaire.

Pour calculer l'exactitude du CCC, nous avons représenté sur la figure 4.11 le principe de la boucle de rétro-action externe. Le courant I_2^0 est le courant de préajustement de la source secondaire. En utilisant la sortie du SQUID, la boucle de rétro-action permet d'ajuster le courant de cette source secondaire pour annuler le courant d'écrantage.

Un second élément limitant l'exactitude relative est le gain, G , de l'électronique du SQUID (Figure 4.11). Ce gain est donné par : $G = N_2 G_V G_{OL} / (S_{CCC} R_{FB})$ où G_V et G_{OL} sont respectivement les gains en tension et en boucle ouverte, S_{CCC} est la sensibilité du CCC et R_{FB} est la résistance de la boucle de rétro-action. G étant fini, on a [29] :

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{N_2}{N_1} \left[1 + \frac{(I_2 - I_2^0)/I_2}{G} \right] \quad (4.14)$$

G est de l'ordre de 10^5 à la fréquence de 10 mHz. Si I_2^0 permet un ajustement relatif de I_2 à moins de 10^{-5} , alors l'erreur sur le rapport de courant devient inférieure à 10^{-10} . De manière générale,

on peut augmenter N_2 pour réduire l'erreur mais la contrepartie sera une gamme de stabilité plus étroite pour le CCC ; un compromis doit être trouvé.

La sensibilité du CCC, S_{CCC} , est le plus petit courant qui génère un quantum de flux ϕ_0 dans le SQUID. Elle est définie par :

$$S_{CCC} = \left| \frac{\partial I_{CCC}}{\partial \phi_{SQ}} \right| \quad (4.15)$$

où ϕ_{SQ} est le flux magnétique vu par le SQUID.

Pour calculer la sensibilité du CCC, on a représenté sur la figure 4.12 le schéma du couplage entre le CCC et le SQUID. Ce couplage est réalisé par l'intermédiaire d'un transformateur de flux, *i.e.* d'une boucle de piquage située au centre du blindage torique pour convertir le courant I_{CCC} en flux magnétique au niveau du SQUID. La sensibilité du CCC dépend directement de cette boucle de piquage. Dans la pratique, l'inductance du CCC, le facteur de couplage entre la boucle de piquage et le blindage torique ainsi que l'inductance d'entrée du SQUID sont les éléments principaux qui déterminent la sensibilité.

La sensibilité du SQUID est donnée par l'inverse de l'inductance mutuelle :

$$S_{SQ} = M_{SQ}^{-1} \quad \text{en} \quad \phi_0 \cdot A^{-1} \quad (4.16)$$

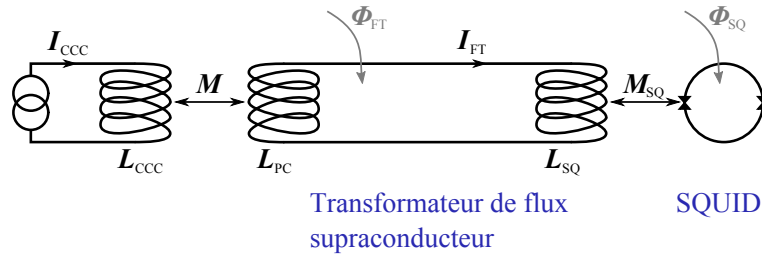


FIGURE 4.12 – Schéma du couplage entre le CCC et le SQUID par l'intermédiaire d'un transformateur de flux.

Le CCC utilisé au LNE a sensibilité :

$$S_{CCC} = 13.6 \mu A \cdot \text{tours} / \phi_0 \quad (4.17)$$

En prenant 2000 pour le nombre de tours et $10^{-4} \phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ pour le niveau de bruit du SQUID, on obtient la sensibilité du CCC, en $A / \sqrt{\text{Hz}}$, utilisé dans le pont de comparaison du LNE :

$$S_{CCC} \approx 680 \text{ fA} / \text{Hz}^{1/2} \quad (4.18)$$

4.5 Etalonnage d'une résistance

4.5.1 Principe

Le pont de comparaison de résistances utilisé au LNE est représenté schématiquement Figure 4.13. Le principe du pont consiste à comparer les courants circulant dans ces résistances avec la condition d'égalité des tensions aux bornes des résistances. La différence entre ces deux tensions est contrôlée à l'aide d'un détecteur de zéro (DZ) qui est un voltmètre analogique de précision (EMN11). Dans toute la suite nous appellerons primaire toutes les caractéristiques (courant, résistance, enroulement) situé du côté de la résistance de valeur la plus élevée et secondaire du côté de la résistance de valeur la plus faible.

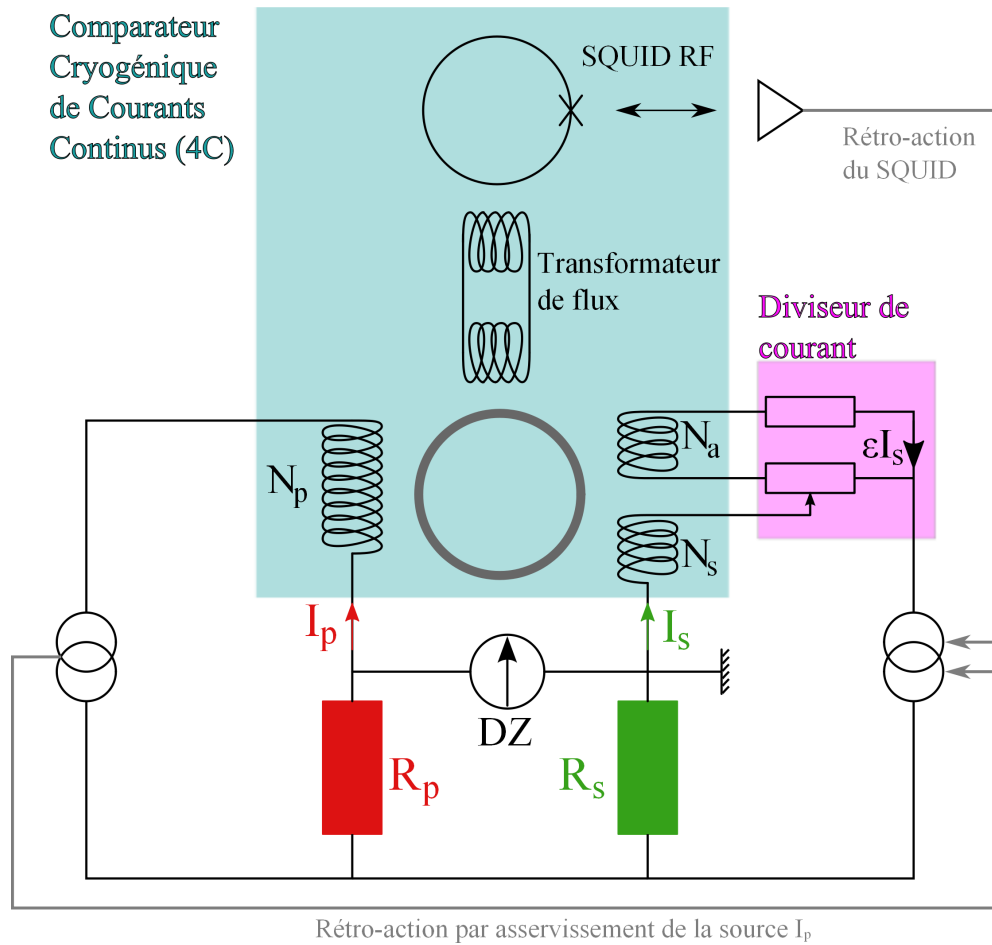


FIGURE 4.13 – Schéma du pont de comparaison de résistances basé sur un CCC et un diviseur de courant.

Les courants sont fournis par deux sources ; la source secondaire est asservie sur la source primaire. Le choix des enroulements du CCC permet de mettre le rapport des courants dans le rapport inverse des enroulements. Par construction, les enroulements sont tels que le rapport N_s/N_p est proche du rapport R_s/R_p à quelques 10^{-5} afin que le courant d'écrantage, I_{CCC} , soit faible lorsque les tensions aux bornes des résistances sont équilibrées.

Une première étape de l'étalonnage consiste à pré-ajuster le rapport des courants de telle sorte que la tension vue par le détecteur de zéro soit inférieure à 10^{-6} fois la chute de tension aux bornes de la résistance. Par exemple, lors de l'étalonnage d'une résistance de 100Ω par rapport à $R_K/2$ (plateau $\nu = 2$ dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs) avec un courant primaire de $42 \mu\text{A}$, la chute de tension aux bornes de la résistance primaire est de l'ordre de 0.54 V . Lors du préajustement, on cherche à obtenir une tension de $0.5 \mu\text{V}$ sur le détecteur de zéro.

Pour améliorer l'ajustement du rapport des courants dans le rapport inverse des résistances et donc pour que la tension aux bornes de l'EMN11 soit nulle, une fraction du courant secondaire est déviée vers un enroulement auxiliaire, N_a , grâce à un diviseur de courant. Cette fraction du courant est notée ϵI_s où ϵ est appelé compensation. Enfin, la rétro-action externe permet d'ajuster le courant I_s pour être dans la condition de flux nul ($I_{CCC} = 0$).

Le fonctionnement du pont de comparaison peut se résumer aux deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} R_p I_p &= R_s I_s && \text{traduisant l'égalité des tensions} \\ N_p I_p &= N_s I_s + \epsilon N_a I_s && \text{traduisant la condition de flux nul} \end{aligned} \quad (4.19)$$

En combinant ces deux équations, on obtient :

$$\frac{R_s}{R_p} = \frac{N_s}{N_p} \left(1 + \epsilon \frac{N_a}{N_s} \right) \quad (4.20)$$

De fait, le rapport des résistances, c'est à dire leur comparaison, est déterminé par le rapport des enroulements primaires et secondaires ainsi que par l'enroulement auxiliaire. L'exactitude de ce type de pont de comparaison est principalement limitée par l'incertitude du rapport d'enroulements et par l'incertitude de l'étalonnage du diviseur de courant permettant d'alimenter l'enroulement auxiliaire. Le pont de comparaison utilisé au LNE permet détalonner une résistance de 100 Ω situé au secondaire en terme de R_{K-90} avec une incertitude relative de 1×10^{-9} .

4.5.2 Niveau de bruit et bilan d'incertitude

Plusieurs précautions sont nécessaires afin de réaliser un étalonnage le plus précis possible. En particulier, l'exactitude du pont repose sur la parfaite égalité du courant circulant dans la résistance et dans l'enroulement. L'isolation électrique entre les câbles de mesure ainsi qu'entre l'électronique du pont et la terre doit donc être grande ; dans le dispositif utilisé au LNE, l'isolation du circuit à la terre est de 1 T Ω = 10¹² Ω . Un système de garde a été mis en place pour court-circuiter tout couplage capacitif avec l'environnement. Les fils situés à des potentiels électriques voisins sont torsadés ensemble et les différentes gaines sont recouvertes d'une tresse métallique mise à la masse. Le point bas du détecteur de zéro est relié à l'armature de l'appareil (*i.e.* à sa garde interne) pour réduire les effets de mode commun. De plus, le point bas qui est relié à la résistance de plus faible valeur (la 100 Ω) est mis à la terre pour mettre les fuites à la terre en parallèle avec la résistance de plus faible valeur. Ainsi, du fait de l'isolation de l'ordre du T Ω , les fuites à la terre sont mises en parallèle avec la résistance de 100 Ω ; ces fuites créent une erreur $< 10^{-10}$ en valeur relative.

Une seconde précaution concerne la stabilité des sources de courant. En effet, elles doivent être stables durant toute la mesure (qui peut atteindre plus d'une heure). Elles sont constituées de composants électroniques stables. De plus, la comparaison de résistances étant faite en courant continu, toute force électromotrice au niveau des connecteurs due à des effets de températures doit être supprimée. De même, une fois les câbles raccordés au pont et aux résistances à comparer, un temps d'attente est nécessaire pour que ces phénomènes se dissipent.

Le tableau 4.1 donne les niveaux de bruit typiques aux bornes de la résistance de 100 Ω lors d'un étalonnage avec $I_p = 42 \mu\text{A}$, $N_p = 1936$, $N_s = 15$ et $N_a = 15$. La principale source de bruit est le détecteur de zéro. Pour une acquisition de 4 minutes, l'incertitude relative de type A sur l'étalonnage est de 1 n Ω/Ω , soit 1×10^{-9} .

Source de bruit	Niveau de bruit (nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$)
RF SQUID	2.7
Détecteur de zéro	7
Bruit thermique	1.6
Bruit total	7.7

TABLE 4.1 – Niveaux de bruit lors d'un étalonnage d'une 100 Ω .

Pour finir, plusieurs éléments sont à l'origine de l'incertitude de type B : l'erreur sur le rapport d'enroulements du CCC, les fuites directes de courant, les fuites à la terre, des erreurs

sur l'étalonnage du diviseur de courant, des erreurs de quantification dues à un R_{xx} fini, ... Pour le pont que nous utilisons au LNE, les différentes sources de l'incertitude de type B et leur valeur sont données dans le tableau 4.2.

Cause d'incertitude	Incertitude relative (10^{-9})
Erreur sur le rapport d'enroulements du CCC	0.2
Fuite de courant directe	0.2
Fuite de courant à la masse	0.4
Gain fini en boucle ouverte du SQUID	0.03
Erreurs sur l'étalonnage du diviseur de courant	0.35
Non linéarité du détecteur de zéro	0.1
Erreur de quantification	0.5
Incertitude totale	0.72

TABLE 4.2 – Contributions à l'incertitude de type B.

4.5.3 Etalonnage d'une résistance de 100 Ω

L'étalon quantique de résistance (LEP514) est refroidi jusqu'à 1.3 K. Dans le but d'obtenir une référence la mieux quantifiée, certaines vérifications sont nécessaires en accord avec les Guides Techniques. En particulier, le minimum de R_{xx} est déterminé en faisant varier le champ magnétique. Ensuite, les résistances des contacts sont évaluées par la méthode 3-fils; pour les contacts de courant, le courant de mesure est égal au courant qui sera utilisé pour l'étalonnage ($I = 42 \mu A$) alors que pour les contacts de tension, le courant utilisé est beaucoup plus faible (typiquement 1 μA) pour ne pas les endommager.

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, la compensation ϵ permet d'annuler la tension mesurée par le DZ. Dans la pratique, on s'écarte volontairement de la situation à l'équilibre en choisissant deux compensations ϵ_+ et ϵ_- successives qui permettent de mesurer deux tensions opposées V_+ et V_- . La compensation à l'équilibre qui permet de déterminer le rapport des résistances est donnée par :

$$\epsilon = \epsilon_- + (\epsilon_+ - \epsilon_-) \frac{|V_-|}{|V_+| + |V_-|} \quad (4.21)$$

Pour les deux sens de courant, on va mesurer les tensions V_+ et V_- pour chaque compensation puis extraire la compensation à l'équilibre. L'utilisation d'une table traçante en sortie du DZ permet de suivre l'évolution de la tension de déséquilibre au cours de la mesure. La sortie du DZ est aussi reliée à un ordinateur via une liaison IEEE optiquement découplée permettant le traitement automatique des données.

Dans le cas de l'étalonnage d'une résistance de 100 Ω , on utilise les paramètres suivants : $R_p = R_K/2$, $N_p = 1936$, $N_s = 15$ ($N_p/N_s \simeq 129.06 \simeq R_p/R_s$) et $N_a = 15$. Le choix des compensations doit respecter certains critères : les tensions de déséquilibre doivent rester faibles pour s'affranchir des défauts de linéarité du détecteur de zéro et symétriques par rapport à zéro afin de minimiser l'incertitude. De plus, elles doivent être symétriques lorsqu'on inverse ce courant. Cette dernière condition signifie que les tensions doivent être proches en valeur absolue et de signes opposés d'une compensation à une autre et pour les deux sens du courant : $V(\epsilon_+, I_+) \simeq -V(\epsilon_+, I_-)$, $V(\epsilon_+, I_+) \simeq -V(\epsilon_-, I_+)$ et $V(\epsilon_+, I_-) \simeq -V(\epsilon_-, I_-)$. Une fois que les compensations sont choisies, le programme d'acquisition automatique est lancé. La Figure 4.14 représente l'évolution au cours du temps de la tension de déséquilibre pour une compensation.

Une mesure complète se décompose en groupes de mesure, et chaque groupe est constitué de plusieurs étapes :

- A : Etablissement des courants $I_{p,+}$ et $I_{s,+}$ dans les résistances.

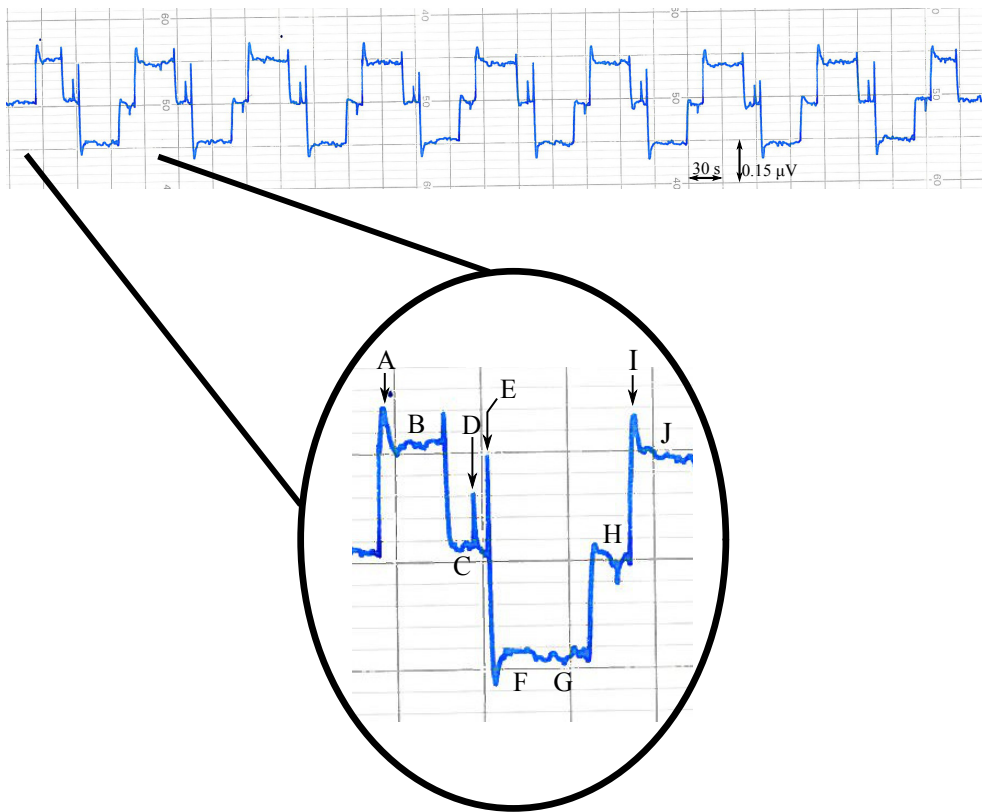


FIGURE 4.14 – Schéma du pont de comparaison de résistances basé sur un CCC et un diviseur de courant.

- B : Après un temps d'attente de 20 s, acquisition de la tension de déséquilibre $V(\epsilon_+, I_+)$. Ce temps d'attente permet de s'affranchir de tout phénomène transitoire et ainsi réaliser une mesure en courant continu.
- C : Annulation des courants circulant dans les résistances : $I = 0_+$.
- D : Commutation des sources de courant de $I = 0_+$ à $I = 0_-$.
- E : Etablissement des courants $I_{p,-}$ et $I_{s,-}$ dans les résistances.
- F : Après un temps d'attente de 20 s, première acquisition de la tension de déséquilibre $V(\epsilon_+, I_-)$.
- G : Seconde acquisition de la tension de déséquilibre $V(\epsilon_+, I_-)$.
- H : Courants nuls dans les résistances et commutation de $I = 0_-$ à $I = 0_+$.
- I : Etablissement des courants $I_{p,+}$ et $I_{s,+}$ dans les résistances.
- J : Seconde acquisition de la tension de déséquilibre $V(\epsilon_+, I_+)$. Immédiatement après débute la première acquisition de la tension $V(\epsilon_+, I_+)$ du groupe de mesure suivant.

Chaque groupe de mesure est constitué de deux mesures de chaque tension de déséquilibre et une mesure complète est généralement composée de six à huit groupes de mesure. Une mesure complète dure approximativement 45 minutes pour huit groupes de mesure. Une fois les tensions de déséquilibre mesurées pour les deux sens de courant et pour chaque compensation, le programme synthétise les tensions moyennes de déséquilibre pour chaque groupe de mesure. On utilise ensuite une fiche de mesure qui tient compte de l'étalonnage du diviseur de courant. De plus, on tient compte de la température et du taux d'humidité de la pièce ainsi que de la température de la

résistance secondaire car ce sont des paramètres qui influent sur la mesure. Au final, on détermine une valeur de la résistance de 100Ω en termes de R_K avec une incertitude relative proche de 1×10^{-9} .

Au-delà de l'étalonnage pour l'industrie, le pont de comparaison de résistances permet de comparer, par le biais de la résistance de 100Ω , deux résistances de Hall entre elles. En effet, par détermination successive de la valeur de la 100Ω par rapport à l'effet Hall quantique dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs puis par rapport à l'effet Hall quantique dans un autre matériau, on réalise une comparaison indirecte entre GaAs/AlGaAs et cet autre matériau.

Troisième partie

**Le Graphène, des propriétés
nouvelles**

Chapitre 5

Les propriétés électroniques du graphène

5.1 Le matériau

5.1.1 Le feuillet de graphène

Le graphite naturel est constitué de feuilles de graphène empilées les unes sur les autres. Ces feuilles sont elles-mêmes composées d'atome de carbone en hybridation sp^2 : le mélange, dans le plan de la feuille, des orbitales atomiques $2s$, $2p_x$ et $2p_y$ engendre les orbitales moléculaires σ à l'origine de la rigidité mécanique du cristal. Au nombre de trois, ces orbitales σ constituent les liaisons covalentes qui sont coplanaires et forment des angles de 120° entre elles. Les orbitales atomiques $2p_z$, perpendiculaires au plan de la feuille, se recouvrent d'un atome à l'autre et forment les orbitales moléculaires π (orbitale liante) et π^* (orbitale anti-liante). Ces deux orbitales sont à l'origine des bandes de valence et de conduction qui sont concourantes : le feuillet de graphène est un matériau conducteur. Par comparaison, le diamant est lui aussi constitué d'atomes de carbone mais qui sont en hybridation sp^3 : les quatre liaisons covalentes forment un tétraèdre. Cette structure est particulièrement robuste d'un point de vue mécanique. Ainsi, à l'inverse du graphite qui est très friable en raison de sa structure en feuillet, le diamant est quant à lui le matériau le plus dur au monde. Enfin, le diamant est un isolant électrique avec une bande interdite égale 5.4 eV.

Les atomes de carbone forment un réseau bidimensionnel d'hexagones au sein d'une feuille de graphène (Figure 5.1-a) à gauche). Ce type de structure est aussi appelée structure en nid d'abeille de par sa forme. On peut classer les atomes de carbone en deux catégories selon la position des trois atomes de carbone qui l'entourent ; pour un atome de carbone de type « A » , les trois atomes de carbone qui sont ses plus proches voisins sont dans les directions « haut-gauche » , « haut-droite » et « bas » alors que pour un atome de type « B » , les plus proches voisins sont dans les directions « bas-gauche » , « bas-droite » et « haut » (Figure 5.1-a) à droite). Ces deux types d'atomes de carbone ne sont pas équivalents : on parle de sous-réseaux. En raison de cette non équivalence, le réseau en nid d'abeille n'est pas un réseau de Bravais. Cependant, chaque sous-réseau est un réseau de Bravais triangulaire. On peut donc décrire la structure en nid d'abeille par un réseau de Bravais triangulaire à deux atomes par maille (A et B) situés à une distance $a=0.142$ nm l'un de l'autre.

La maille élémentaire du réseau réciproque est appelée première zone de Brillouin (PZB). Elle contient toutes les vibrations élémentaires se propageant dans le cristal (vibration du réseau ou paquet d'ondes électronique). Dans le cas d'un réseau de Bravais triangulaire, la PZB est un

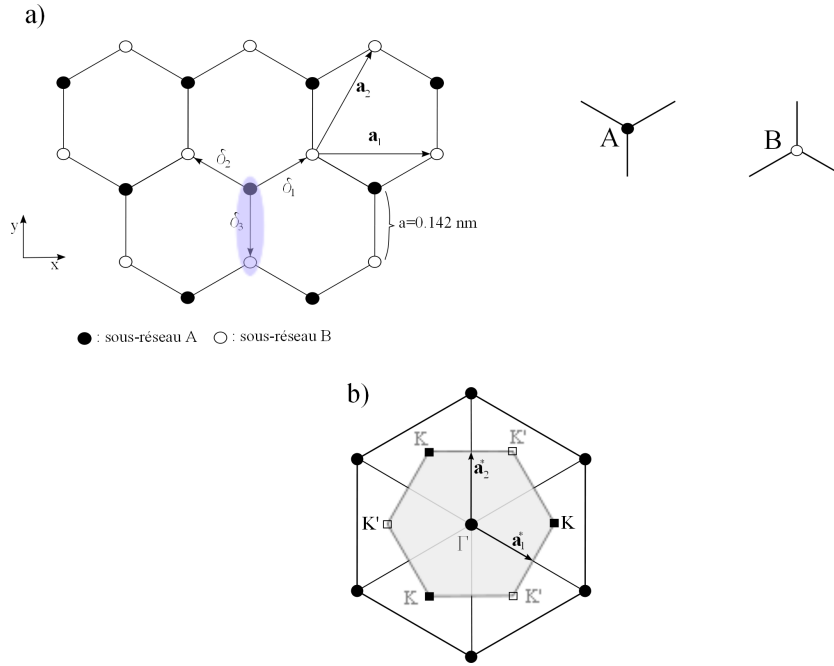


FIGURE 5.1 – a) Structure en nid d'abeille. Les vecteurs \mathbf{a}_1 et \mathbf{a}_2 sont les vecteurs de base du réseau de Bravais ; les vecteurs δ_1 , δ_2 et δ_3 relient un atome de carbone à ses plus proches voisins. La zone bleutée correspond à la maille élémentaire. b) Réseau réciproque dont les vecteurs de base sont \mathbf{a}_1^* et \mathbf{a}_2^* . En grisée la première zone de Brillouin et les points inéquivalents K (carrés pleins noirs) et K' (carrés blancs).

hexagone dont les sommets peuvent être regroupés en deux triplets de points inéquivalents K et K' (Figure 5.1-b)). Ces deux points sont appelés points de Dirac et sont donnés par :

$$\pm \mathbf{K} = \pm \frac{4\pi}{3\sqrt{3}a} \mathbf{e}_x . \quad (5.1)$$

5.1.2 Procédés de fabrication

A l'heure actuelle, il existe deux grandes voies de fabrication du graphène : l'exfoliation (mécanique [45],[46] ou chimique [47], [48], [49]) et l'épitaxie [50] [51]. En parallèle de ces deux voies, émergent des procédés nouveaux tels que le dépôt en surface de métaux de transition par CVD [52], [53] ou la synthèse par plasma [54].

Historiquement, la première méthode qui a permis de produire des monocouches de graphène et de réaliser des mesures de transport est l'exfoliation mécanique de graphite naturel en 2004. Elle tire profit de la structure en feuillets du graphite naturel. En effet, lorsque l'on frotte un morceau de graphite, par exemple la mine d'un crayon, sur une surface, de nombreux micro-grains ainsi que des systèmes plus fins sont arrachés du morceau de graphite et se déposent sur la surface en contact. Le principe de l'exfoliation consiste à maîtriser le dépôt lorsque l'on met en contact des grains de graphite avec un substrat. La méthode, détaillée plus largement par la suite, consiste à cliver des grains macroscopiques de graphite naturel en grains plus petits grâce à un ruban adhésif. Lorsque la répartition de ces grains est quasi uniforme sur le ruban, on l'applique contre un substrat préalablement nettoyé. Afin de favoriser le contact entre les micro grains et la surface

du substrat, on peut placer les échantillons sous presse afin de chasser les bulles d'air. Enfin, lorsque l'on enlève le ruban adhésif du substrat, on peut observer sur la surface des distributions aléatoires de feuilles uniques, de bicouches, de systèmes ayant plusieurs feuilles d'épaisseur mais aussi de micro-grains. Le clivage des grains de graphite peut aussi être réalisé par voie chimique. En effet, par des procédés d'intercalation, il est possible d'insérer des molécules entre les plans de graphène. Il est alors possible de provoquer le délaminage des feuilles grâce à une expansion chimique. On a alors exfoliation du graphite en solution.

La seconde grande méthode de synthèse de graphène est l'épitaxie sur carbure de silicium, aussi appelée graphitisation. La croissance de films graphitiques très fins est un phénomène connu depuis une trentaine d'années. A l'inverse d'une épitaxie par dépôt qui consiste à faire croître une structure cristalline en venant déposer les matériaux couche atomique après couche atomique, l'épitaxie du graphène repose sur l'utilisation d'un substrat qui contient des atomes de Carbone et qui a une structure crystallographique proche de celle du graphène (pavage d'hexagones). Le substrat en question est le carbure de Silicium (SiC). Lorsqu'un tel matériau est soumis à une température élevée (typiquement plus de 1000°C) dans une atmosphère contrôlée, les atomes de Silicium des premières couches atomiques sont vaporisés et, après reconstruction de la surface, on a formation de plans de graphène : on parle de graphitisation. Il faut souligner que jusqu'en 2009, les systèmes générés par cette méthode étaient très épais (une dizaine de plans dans le meilleur des cas) et les feuilles n'étaient pas couplées entre elles comme dans du graphite naturel. En utilisant des substrats SiC avec une terminaison carbone (les atomes de la surface sont des atomes de carbone), on observe une rotation des couches de graphène ; elles sont donc découplées du substrat. Grâce à une meilleure maîtrise de l'atmosphère et des températures pendant les différentes phases, il a été possible d'obtenir des monocouches de graphène et d'observer l'effet Hall quantique.

Suite aux premières observations expérimentales sur du graphène exfolié, de nombreuses autres voies de synthèse du graphène ont été étudiées. Parmi elles, on retrouve le dépôt par voie chimique en phase gazeuse (CVD, pour Chemical Vapor Deposition). Cette méthode, notamment utilisée dans la croissance de nanofils de semi-conducteurs, repose sur l'utilisation d'un précurseur chimique et d'un catalyseur métallique sous forme de film mince. Dans le cas du graphène, le précurseur chimique est le méthane, CH_4 . Ce gaz va être « craqué » à haute température en surface d'un métal de transition (Ni, Cu, . . .) : les atomes de carbone et d'hydrogène se dissocient. Les atomes de carbone sont alors incorporés dans le film métallique. Lors du refroidissement, on assiste à la formation du plan de graphène. Un autre procédé de synthèse est la synthèse par plasma. Elle consiste à placer un liquide contenant des atomes de Carbone (par exemple de l'éthanol) dans un plasma d'argon.

Il existe une différence majeure entre tous ces procédés de synthèse. En effet, dans le cas de l'exfoliation chimique, de la croissance CVD et de la synthèse par plasma, il est possible d'obtenir des feuillets de graphène isolés de tout substrat. Cela peut permettre une plus grande intégration avec d'autre matériau. Toutefois, obtenir des feuillets en suspension dans un liquide n'est pas sans défaut (risques de repliement de la feuille, contamination, . . .). A l'inverse, l'exfoliation mécanique et l'épitaxie permettent quant à elles d'obtenir des systèmes liés aux substrats et donc soumis aux transferts de charge, aux interactions coulombienne des espèces chargées, . . .

5.2 Structure de bande électronique d'une monocouche de graphène

5.2.1 Approche des liaisons fortes

Plusieurs approches sont possibles afin de décrire la structure de bande d'une monocouche de graphène. Un de ces approches est la méthode des liaisons fortes : elle consiste à fabriquer une fonction d'onde en un nœud du réseau par combinaison linéaire des fonctions d'onde atomiques au

nœud considéré en supposant que ces fonctions d'onde atomiques décroissent très rapidement dès qu'on s'éloigne du nœud. Dans le cas du graphène on va écrire la fonction comme une combinaison linéaire sur chaque sous-réseau :

$$\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = a_{\mathbf{k}}\psi_{\mathbf{k}}^A(\mathbf{r}) + b_{\mathbf{k}}\psi_{\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}), \quad (5.2)$$

où $a_{\mathbf{k}}$ et $b_{\mathbf{k}}$ représentent le « poids » de chaque sous-réseau dans la fonction d'onde totale. En outre, les fonctions d'onde de chaque sous-réseau sont des fonctions de Bloch :

$$\psi_{\mathbf{k}}^{(A/B)}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{R}_j} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_j} \phi^{(A/B)}(\mathbf{r} + \boldsymbol{\delta}_{(A/B)} - \mathbf{R}_j). \quad (5.3)$$

Pour déterminer la structure de bande électronique, il faut déterminer les valeurs propres du Hamiltonien. Celles ci sont données par l'équation de Schrödinger $\hat{H}\Psi_{\mathbf{k}} = \epsilon_{\mathbf{k}}\Psi_{\mathbf{k}}$. En représentation matricielle, on doit donc résoudre l'équation séculaire :

$$\det[\mathcal{H}_{\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{k}}\mathcal{S}_{\mathbf{k}}] = 0, \quad (5.4)$$

où $\mathcal{H}_{\mathbf{k}}$ est la matrice du Hamiltonien et $\mathcal{S}_{\mathbf{k}}$ celle de recouvrement.

On peut décomposer le Hamiltonien en deux parties :

- une partie atomique, \mathcal{H}^{at} , dont les états propres sont les fonctions d'onde atomiques $\psi_{\mathbf{k}}^{(A/B)}$ et les valeurs propres associées sont appelées énergies de site. Lorsque le réseau est constitué d'atomes identiques, ces énergies provoquent un simple décalage des bandes.
- l'interaction coulombienne engendrée par les autres noyaux du réseau, ΔV . C'est cette interaction qui est à l'origine des sauts des électrons entre un atome et un autre. On peut ainsi définir la matrice de saut dont les éléments sont :

$$t_{\mathbf{k}}^{ij} = \sum_{\mathbf{R}_n} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_n} \iint d^2r \phi_{\mathbf{k}}^{(i)*}(\mathbf{r}) \Delta V \phi_{\mathbf{k}}^{(j)}(\mathbf{r} + \boldsymbol{\delta}_{ij} - \mathbf{R}_n). \quad (5.5)$$

On a deux types de saut possibles : ceux vers un sous-réseau différent (premiers voisins, troisièmes voisins, ...) qui sont les éléments non diagonaux de la matrice de saut et ceux vers un sous-réseau identique (deuxièmes voisins, quatrièmes voisins, ...) qui sont les éléments diagonaux. En se limitant aux premiers et seconds plus proches voisins, on définit les amplitudes de saut respectives t et t' (Figure 5.2). De manière analogue, on limite les termes de recouvrement aux premiers voisins et on note s son amplitude. Les vecteurs \mathbf{a}_1 , \mathbf{a}_2 et \mathbf{a}_3 relient un atome d'un sous-réseau donné à ses plus proches voisins du sous-réseau identique.

Les éléments non diagonaux de la matrice de saut sont :

$$\begin{aligned} t_{\mathbf{k}}^{AB} = (t_{\mathbf{k}}^{BA})^* &= t^{A \rightarrow B_1} + t^{A \rightarrow B_2} + t^{A \rightarrow B_3} \\ &= t(1 + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{a}_2} + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{a}_3}) \\ &= t\gamma_{\mathbf{k}}, \end{aligned}$$

et ceux de la diagonale :

$$t_{\mathbf{k}}^{AA} = t_{\mathbf{k}}^{BB} = t'(|\gamma_{\mathbf{k}}|^2 - 3). \quad (5.6)$$

On peut ainsi réécrire l'équation séculaire sous la forme :

$$\begin{vmatrix} t'(|\gamma_{\mathbf{k}}|^2 - 3) - \epsilon_{\mathbf{k}} & (t - s\epsilon_{\mathbf{k}})\gamma_{\mathbf{k}}^* \\ (t - s\epsilon_{\mathbf{k}})\gamma_{\mathbf{k}} & t'(|\gamma_{\mathbf{k}}|^2 - 3) - \epsilon_{\mathbf{k}} \end{vmatrix} = 0, \quad (5.7)$$

dont les solutions sont au nombre de deux, indicées par λ ($\lambda = \pm 1$) :

$$\epsilon_{\mathbf{k}}^{\lambda} = \frac{t'(|\gamma_{\mathbf{k}}|^2 - 3) + \lambda t|\gamma_{\mathbf{k}}|}{1 + \lambda s|\gamma_{\mathbf{k}}|}. \quad (5.8)$$

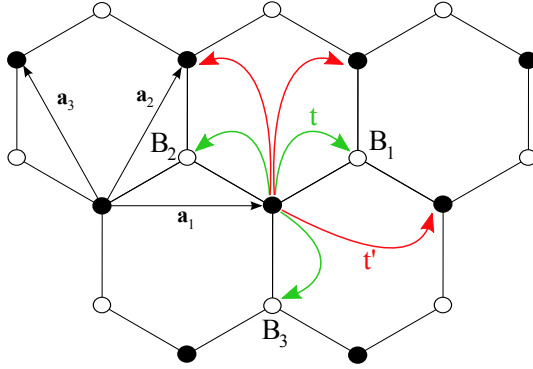


FIGURE 5.2 – Représentation schématique des sauts aux plus proches voisins (t , flèches vertes) et aux seconds plus proches voisins (t' , flèches rouges) dans une monocouche de graphène.

Supposons maintenant que la correction de recouvrement soit faible ($s \ll 1$) et que l'amplitude de saut au deuxième plus proche voisin reste faible devant celle de saut au plus proche voisin ($t' \ll t$). Dans ces conditions, on peut faire un développement limité du dénominateur de l'équation 5.8. Notant $t_{eff} = t' - st$ et après élimination des constantes additives, on obtient la relation de dispersion suivante :

$$\epsilon_{\mathbf{k}}^{\lambda} \approx 2t_{eff} \sum_{j=1}^3 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}_j) + \lambda t \sqrt{3 + 2 \sum_{j=1}^3 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{a}_j)}. \quad (5.9)$$

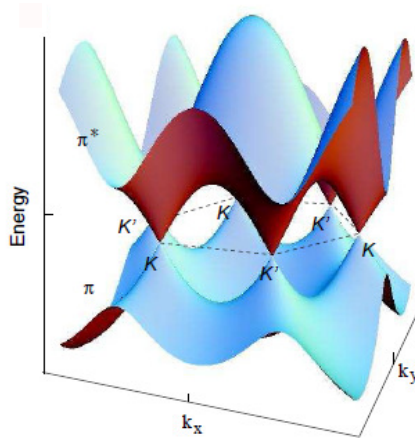


FIGURE 5.3 – Relation de dispersion d'une monocouche de graphène dans l'approche des liaisons fortes calculée pour $t'/t=0.1$.

Cette relation de dispersion, représentée Figure 5.3, fait apparaître deux bandes ($\lambda = +1$ et $\lambda = -1$) qui contiennent le même nombre d'états. Chaque atome de carbone fournissant un électron, la bande de basse énergie ($\lambda = -1$) est complètement remplie. On l'appelle bande de valence ou bande π . La bande de haute énergie ($\lambda = +1$) est quant à elle complètement vide ; c'est la bande de conduction ou bande π^* . Ces deux bandes ne sont pas symétriques si $t_{eff} \neq 0$, *i.e.* les sauts aux deuxièmes plus proches voisins et les corrections de recouvrement brisent la symétrie

électrons-trous. Pour un système non dopé, le niveau de Fermi se situe à l'intersection des deux bandes. Ces points d'intersection coïncident avec les points de Dirac introduits précédemment :

$$\pm \mathbf{K} = \pm \frac{4\pi}{3\sqrt{3}a} \mathbf{e}_x . \quad (5.10)$$

Il existe donc, dans une monocouche de graphène, deux vallées d'énergie correspondant aux deux points de Dirac. Le graphène est un semi-métal à recouvrement nul avec deux vallées d'énergie. Dans la littérature, on trouve souvent le terme de semiconducteur à gap nul.

5.2.2 Limite continue

Lorsqu'on s'intéresse aux propriétés de transport, on considère des excitations électroniques de « basse énergie » (*i.e.* des excitations dont les énergies caractéristiques sont petites devant la largeur de bande $\sim |t|$). On va donc se focaliser sur le voisinage des points de Dirac : on décompose le vecteur d'onde \mathbf{k} sous la forme $\mathbf{k} = \pm \mathbf{K} + \mathbf{q}$ où $|\mathbf{q}| \ll |\mathbf{K}| \sim 1/a$. On a donc $|\mathbf{q}|a \ll 1$ ce qui permet de faire un développement limité de $\gamma_{\mathbf{k}}$. En introduisant la vitesse de Fermi donnée par :

$$v_F = \frac{3|t|a}{2\hbar} , \quad (5.11)$$

on peut écrire le Hamiltonien effectif au premier ordre en $|\mathbf{q}|a$:

$$\mathcal{H}_{\mathbf{q}}^{eff,\xi} = \xi \hbar v_F \mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\sigma} = \lambda \hbar v_F \begin{pmatrix} 0 & q_x - iq_y \\ q_x + iq_y & 0 \end{pmatrix} , \quad (5.12)$$

où $\boldsymbol{\sigma}$ sont les matrices de Pauli et $\xi = \pm 1$ l'indice de vallée : $\xi = +1$ correspond au point K, et $\xi = -1$ au point K'. L'équation 5.12 est une équation de type Dirac. Il faut souligner le fait que le Hamiltonien effectif au premier ordre ne tient pas compte des sauts aux deuxièmes plus proches voisins ni des corrections de recouvrement car ces termes sont d'ordre deux en $|\mathbf{q}|a$. La relation de dispersion autour des points K et K' va maintenant s'écrire :

$$\boxed{\epsilon_{\mathbf{q},\xi}^\lambda = \lambda \hbar v_F |\mathbf{q}|} \quad (5.13)$$

où $v_F = 1.1 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ ($t \approx 2.5 \text{ eV}$ [55], [56]).

Plusieurs remarques peuvent être faites concernant cette relation de dispersion :

- Cette relation est linéaire en $|\mathbf{q}|$.
- Elle ne fait pas intervenir la masse ; les électrons se comportent comme des particules relativistes sans masse se propageant à la vitesse v_F qui joue alors le rôle de vitesse limite dans le graphène.
- Elle est symétrique de part et d'autre de l'énergie nulle (comme il a été dit précédemment, à l'ordre 1 on néglige le terme t_{eff} qui est à l'origine de l'asymétrie électron-trou).
- La relation de dispersion ne dépend pas de la vallée considérée car elle est indépendante de ξ . La dégénérescence de vallée subsiste donc pour les excitations de basse énergie.
- En dessous des points de Dirac, la bande est complètement remplie en électrons et la bande située au dessus est remplie de trous (*i.e.* complètement vide d'électrons).
- De par sa forme (Figure 5.4), on appelle souvent cette relation de dispersion « cône de Dirac ».

Les spineurs (fonction d'onde à deux composantes) qui sont les états propres du Hamiltonien 5.12 s'écrivent sous la forme :

$$\Psi_{\mathbf{k},\xi=+1} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm e^{i\phi(\mathbf{k})} \end{pmatrix} , \quad \Psi_{\mathbf{k},\xi=-1} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm e^{-i\phi(\mathbf{k})} \end{pmatrix} , \quad (5.14)$$

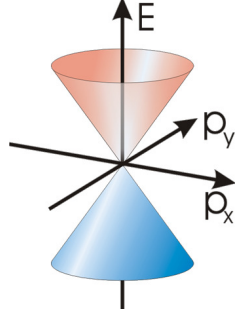


FIGURE 5.4 – Relation de dispersion dans une monocouche de graphène.

où $\phi(\mathbf{k})$ est le déphasage d'une composante par rapport à l'autre.

Le passage de la vallée K à la vallée K' consiste à inverser le rôle des deux sous-réseaux A et B. On peut réécrire le Hamiltonien effectif et la fonction d'onde en représentation de spineur à quatre composantes :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{k}}^{eff,\xi} = \hbar v_F \tau^z \otimes \mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\sigma}, \quad \Psi_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \Psi_{\mathbf{k},+}^A \\ \Psi_{\mathbf{k},+}^B \\ \Psi_{\mathbf{k},-}^B \\ \Psi_{\mathbf{k},-}^A \end{pmatrix}, \quad (5.15)$$

avec

$$\tau^z \otimes \boldsymbol{\sigma} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\sigma} & 0 \\ 0 & -\boldsymbol{\sigma} \end{pmatrix}. \quad (5.16)$$

Dans cette représentation, les deux premières composantes de la fonction d'onde correspondent aux composantes au point K et les deux dernières à celles au point K'.

Deux jeux de matrices de Pauli interviennent dans le Hamiltonien effectif. On a ainsi deux « pseudo-spins » qu'il faut bien distinguer : l'isospin de sous-réseau et l'isospin de vallée. Le premier, représenté par les matrices σ^j , relie le « spin up » à une composante sur un sous-réseau et le « spin down » à la composante sur l'autre sous-réseau. L'isospin de réseau n'est qu'une conséquence indirecte de l'existence des deux sous-réseaux. Enfin, le second ensemble de matrices de Pauli est représenté par les matrices τ^j et a pour origine la dégénérescence de vallée. Seule la composante sur z intervient dans le Hamiltonien.

Dans chaque vallée d'énergie, les particules ont une chiralité : dans la vallée \mathbf{K} , les électrons ont une quasi-impulsion \mathbf{p} telle que $\boldsymbol{\sigma}\mathbf{p}/p = +1$ alors que dans cette même vallée, l'impulsion des trous vérifie $\boldsymbol{\sigma}\mathbf{p}/p = -1$. A l'inverse, dans la vallée \mathbf{K}' , la chiralité est inversée : $\boldsymbol{\sigma}\mathbf{p}/p = -1$ pour les électrons et $\boldsymbol{\sigma}\mathbf{p}/p = +1$ pour les trous. L'isospin de réseau provoque l'accumulation par les électrons d'une phase de Berry égale à π sur une trajectoire fermée dans l'espace des phases car \mathbf{p} est colinéaire à $\boldsymbol{\sigma}$.

La chiralité des porteurs de charge est à l'origine de propriétés nouvelles comparées à des semi-conducteurs conventionnels. La première propriété dont nous allons parler est l'absence de rétrodiffusion. Considérons un potentiel de diffusion élastique dû à une impureté V_{imp} . Nous allons de plus supposer que ce potentiel ne peut pas provoquer de diffusion entre les deux vallées : il s'agit de diffusion intra vallée. L'impulsion, \mathbf{p} , est conservée ainsi que l'indice de vallée, ξ . L'unique degré de liberté restant est l'angle θ de diffusion. On note $|\mathbf{p}, \xi\rangle$ et $|\mathbf{p}', \xi'\rangle$ respectivement les états initiaux et finaux, la probabilité de diffusion s'écrit [57] :

$$P(\theta) \propto |\tilde{V}_{imp}(p' - p)|^2 \cos^2(\theta/2) \quad (5.17)$$

En particulier, on peut montrer que la probabilité de diffusion sous l'angle $\theta = \pi$ est nulle : $P(\pi) = 0$. Cette relation implique qu'un potentiel de diffusion élastique intra vallée ne peut pas provoquer de rétrodiffusion des électrons dans un feuillet de graphène.

La deuxième propriété que nous allons aborder est l'existence d'une conductivité finie non nulle lorsque le dopage est nul. Comme nous le verrons au Chapitre 7, on peut modifier le dopage d'un feuillet de graphène déposé sur un isolant par effet de champ (*c.f.* page 115). En modifiant la tension de grille, on déplace le niveau de Fermi dans le feuillet. Quand le niveau de Fermi coïncide avec la position du point de Dirac, la conductivité du feuillet ne tend pas vers zéro mais reste à une valeur finie. Les valeurs de ce minimum de conductivité reportées dans les premiers travaux expérimentaux étaient toujours proches de $4e^2/h$ suggérant l'existence d'une valeur universelle. Les premiers calculs théoriques concernant le minimum de conductivité [58] d'un ruban de graphène ballistique ($L, W \leq l$ où l est le libre parcours moyen) semblaient confirmer l'existence d'une valeur universelle. Pour ce calcul, l'approche de Landauer-Büttiker a été employée : la conductance d'un ruban court et large de graphène est vue comme la somme des transmissions de chaque mode de propagation électronique. Au niveau du point de Dirac, la transmission est finie et la conductivité tend vers la valeur de $4e^2/\pi h$. Les travaux expérimentaux qui ont pu être publiés dans les années suivantes ont confirmé l'existence d'un minimum de conductivité mais ont montré dans le même temps que la valeur observée n'était pas systématiquement la même.

Enfin, la dernière propriété que nous allons discuter est le paradoxe de Klein. Considérons une barrière de potentiel ; pour une particule non-relativiste, celle-ci a une probabilité non nulle de traverser la barrière par effet tunnel. Toutefois, le coefficient de transmission décroît exponentiellement avec la hauteur et la largeur de la barrière. Dans le cas d'une particule obéissant à l'équation de Dirac, la probabilité de transmission dépend peu de la hauteur de la barrière et elle s'approche de la valeur 1 lorsque la hauteur augmente [59]. Pour une barrière infiniment haute, la transmission devient parfaite. Il s'agit de l'effet tunnel de Klein.

5.2.3 Densité d'états

Pour terminer cette partie dévolue à la structure de bande d'une monocouche de graphène, nous allons calculer la densité d'états c'est à dire la densité d'électrons par unité d'énergie $g(\epsilon)$. Considérons dans un premier temps la bande d'énergie positive (bande π^*) ; elle contient $N^{\lambda=+}$ états électroniques avec :

$$N^{\lambda=+} = g_s g_v \sum_{\substack{\mathbf{k} \\ \epsilon_k < \epsilon}} \mathbf{k} = A \int_0^\epsilon g(\epsilon') d\epsilon' \quad (5.18)$$

où $g_s = g_v = 2$ sont les dégénérescences de spin et de vallée et A est une surface.

Dans la limite continue et du fait de l'isotropie de la relation de dispersion 5.13 au voisinage des points K et K', on peut identifier :

$$\sum_{\substack{\mathbf{k} \\ \epsilon_k < \epsilon}} \mathbf{k} \approx \frac{A}{2\pi} \int_0^{q(\epsilon)} q dq . \quad (5.19)$$

Ainsi, on a :

$$g(\epsilon) = \frac{g_s g_v}{2\pi} \frac{\partial N^+}{\partial \epsilon} = \frac{g_s g_v}{2\pi} \frac{q(\epsilon)}{\partial \epsilon / \partial q} \quad (5.20)$$

Le calcul de $\partial\epsilon/\partial q$ est immédiat grâce à la relation de dispersion 5.13. Le calcul de la densité d'états pour la bande d'énergie négative (bande π) se fait de la même manière. Au final, on obtient pour la densité d'états :

$$g_{ML}(\epsilon) = \frac{g_s g_v |\epsilon|}{2\pi \hbar^2 v_F^2}. \quad (5.21)$$

La densité d'états dans une monocouche de graphène tend linéairement vers zéro au voisinage des points de Dirac. Il convient d'insister sur le fait que ce comportement est radicalement différent des semi-conducteurs 2D conventionnels pour lesquels la relation de dispersion est parabolique $\epsilon = \hbar^2 k^2 / 2m^*$; dans ce cas, la densité d'états est constante : $g(\epsilon) = g_s g_v m^* / 2\pi \hbar$.

5.3 Structure de bande électronique d'une bicouche de graphène

La bicouche de graphène est un système de deux feuillets empilés l'un sur l'autre. Dans cet empilement, un atome du sous-réseau A de la feuille supérieure se situe directement au dessus d'un atome du sous-réseau B de la feuille inférieure (Figure 5.5). Ces deux atomes forment un dimère : on parle de couplage fort A2-B1 et d'empilement de type Bernal. La maille élémentaire contient maintenant quatre atomes, deux dans chaque feuille, notés A1, B1, A2 et B2. En outre, la première zone de Brioullin est identique à celle de la monocouche : il s'agit d'un hexagone dont les sommets peuvent être regroupés en deux triplets de points inéquivalents, K et K', situés aux mêmes positions que dans le cas de la monocouche. On a donc une dégénérescence de vallée analogue au cas de la monocouche.

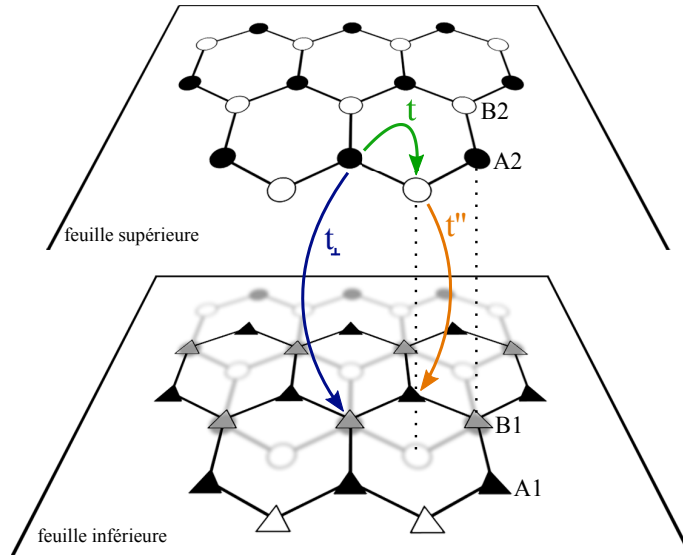


FIGURE 5.5 – Vue en perspective de l'empilement de deux feuillets de graphène dans une bicouche. Les triangles pleins (creux) représentent les atomes du sous-réseau A (B) de la feuille du dessous et les cercles pleins (creux) les atomes du sous-réseau A (B) de la feuille du dessus. On a fait figurer l'ombre de la feuille du dessus afin de bien se rendre compte de l'empilement.

Pour déterminer la structure de bande électronique, on peut se limiter au couplage entre premiers voisins, t , dans chaque feuille, au couplage fort, t_{\perp} , au niveau des dimères (A2-B1) et au

couplage direct faible, t'' , entre A1 et B2 (Figure 5.5). En négligeant les termes de recouvrement entre plus proches voisins d'une même feuille, on peut écrire le Hamiltonien à quatre composantes sous la forme :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \Delta & t\gamma_{\mathbf{k}}^* & 0 & t''\gamma_{\mathbf{k}}^* \\ t\gamma_{\mathbf{k}} & \Delta & t_{\perp} & 0 \\ 0 & t_{\perp} & -\Delta & t\gamma_{\mathbf{k}}^* \\ t''\gamma_{\mathbf{k}} & 0 & t\gamma_{\mathbf{k}} & -\Delta \end{pmatrix}, \quad (5.22)$$

où $\gamma_{\mathbf{k}} = 1 + e^{i\mathbf{k}\mathbf{a}_2} + e^{i\mathbf{k}\mathbf{a}_3}$.

Le terme Δ traduit la différence possible entre les énergies de sites de chaque feuille. Dans certaines conditions, ce terme peut être à l'origine d'une ouverture de gap [60],[61].

On note $\Psi = (\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3, \varphi_4)$ où les φ_i sont les composantes respectives sur les atomes A1, B2, A2 et B1. Sans chercher à faire une résolution exacte de l'équation de Schrödinger, on peut déterminer les bandes de « basse énergie » en supposant $\epsilon < t_{\perp}$. Dans ce cas-là, les composantes sur les atomes formant les dimères (A2 et B1) vont très peu intervenir dans la fonction d'onde totale alors que les composantes sur les atomes A1 et B2 jouent un rôle essentiel. On parle de grandes composantes. De plus, on a vu au cours de l'étude sur la monocouche que lors du passage à la limite continue, les termes du type $t\gamma_{\mathbf{k}}$ correspondent aux termes $v\pi = v(p_x + ip_y)$ dans le Hamiltonien effectif ($v = \frac{3|t_{\perp}|a}{2\hbar}$).

Ainsi, une fois écrit le système de quatre équations aux valeurs propres, on isole les composantes sur les atomes A2 et B1 et on se ramène à un système de deux équations pour les composantes φ_1 et φ_4 :

$$\begin{aligned} \Delta\varphi_1 - \frac{v(\pi^{\dagger})^2}{t_{\perp}}\varphi_4 + v''\pi^{\dagger}\varphi_4 &= \epsilon\varphi_1 \\ -\frac{v\pi^2}{t_{\perp}}\varphi_1 + v''\pi\varphi_1 - \Delta\varphi_4 &= \epsilon\varphi_4 \end{aligned}$$

Il s'agit d'une équation aux valeurs propres pour un Hamiltonien à deux composantes dans laquelle on voit apparaître des termes en $\pi^2 \simeq p^2$. Par analogie, on pose :

$$-\frac{v^2}{t_{\perp}} \equiv -\frac{\hbar^2}{2m^*}. \quad (5.23)$$

On a un dispersion de type parabolique (Figure 5.6-a)) au voisinage des points de Dirac dans une bicouche de graphène : les porteurs de charge se comportent comme des particules chirales et massives. Le Hamiltonien, dans la limite continue et pour les basses énergies, peut être mis sous la forme :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{k}} = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \begin{pmatrix} 0 & (p_x - ip_y)^2 \\ (p_x + ip_y)^2 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.24)$$

Une résolution exacte de l'équation aux valeurs propres du Hamiltonien à quatre composantes [60] donne les quatre bandes d'énergie : deux bandes, $\epsilon_{\pm}^{(2)}$, de haute énergie, correspondent aux dimères A2-B1 et deux bandes de basse énergie, $\epsilon_{\pm}^{(1)}$ qui permettent de rendre compte des propriétés de transport. En effet, on peut montrer [60] que la bande de haute énergie n'est occupée qu'à haute densité de porteurs ($\sim 2.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$). Les quatre bandes sont représentées figure 5.6-b). En particulier, les deux bandes de basse énergie peuvent être approximées par :

$$\epsilon_{\pm}^{(1)}(p) \approx \pm \frac{t_{\perp}}{2} \left(\sqrt{1 + 4\frac{v^2 p^2}{t_{\perp}^2}} - 1 \right) \quad (5.25)$$

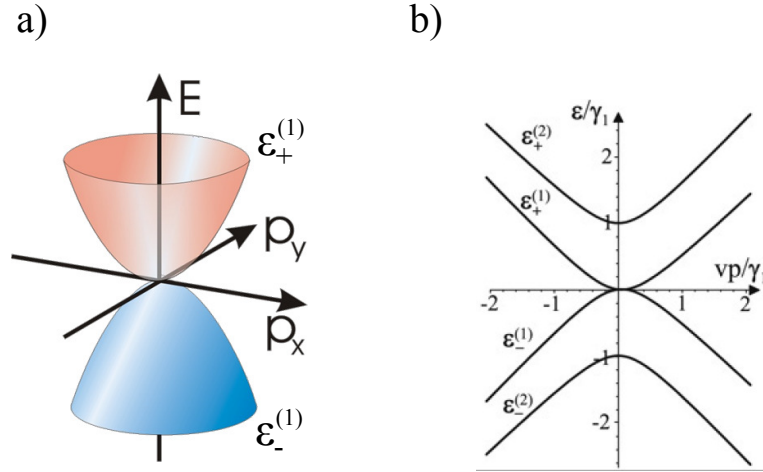


FIGURE 5.6 – a) Profil parabolique des bandes d'énergies au voisinage des points \mathbf{K} et \mathbf{K}' . b) Relation de dispersion d'une bicouche de graphène dans l'approche des liaisons fortes calculée pour $t_{\perp}/t = 0.1$ tirée de [62].

De la même manière que dans la monocouche, les particules ont une chiralité dans chaque vallée d'énergie de la bicouche. Les électrons ont une phase de Berry égale à 2π dans une bicouche de graphène.

La masse effective des porteurs de charge est relié aux coefficients de sauts [62] :

$$m^* = \frac{\hbar^2}{2} \frac{t'}{(\sqrt{3}at/2)^2} \quad (5.26)$$

où $a = 0.246$ nm, $t = 3.16$ eV, $t' = 0.39$ eV et $t'' = 0.315$ eV.

Pour terminer cette étude de la bicouche de graphène, la densité d'états est identique à celle d'un semi-conducteur 2D conventionnel; elle est constante et vaut :

$$g_{BL}(\epsilon) = \frac{g_s g_v m^*}{2\pi\hbar^2} \quad (5.27)$$

Chapitre 6

Propriétés sous fort champ magnétique

Nous avons vu dans le chapitre précédent que monocouche et bicouche de graphène ont des structures de bandes électroniques atypiques par rapport à des semiconducteurs conventionnels. Nous allons maintenant regarder les propriétés qui émergent lorsque l'on soumet ces deux matériaux à un champ magnétique. Ensuite, après une présentation des différentes observations expérimentales qui ont pu être faites, nous préciserons pourquoi le graphène intéresse les métrologues.

6.1 Effet Hall quantique dans une monocouche

Afin de se placer dans le cas de la limite continue et ainsi utiliser le hamiltonien effectif 5.12, il faut que le flux magnétique au travers d'une maille élémentaire reste petit devant le quantum de flux. Autrement dit, la longueur magnétique, qui joue le rôle de longueur fondamentale en présence de champ magnétique, doit être grande devant la distance entre atomes de carbone. Rappelons que dans le cas du graphène la distance interatomique est $a \simeq 0.14$ nm et d'autre part que $l_B = \sqrt{\hbar e/B} \simeq 26$ nm/ $\sqrt{B[T]}$. Pour les champs magnétiques actuels (45 T en continu et 80 T en pulsé) la condition est donc vérifiée.

De plus, on pourra vérifier *a posteriori* que l'énergie caractéristique en présence d'un champ magnétique reste inférieure à l'énergie de saut entre plus proches voisins (soit $\simeq 3$ eV).

6.1.1 Traitement quantique

Pour utiliser l'Hamiltonien effectif (5.12), on substitue à \mathbf{p} l'impulsion sous champ magnétique. Nous ne tiendrons pas compte de l'effet Zeeman comme cela a été fait dans le chapitre 2. De plus, pour simplifier les équations, nous allons faire les calculs pour un seul spin et une seule vallée d'énergie. Le hamiltonien sous champ magnétique est :

$$\hat{\mathcal{H}}_B^{eff} = v_F(\hat{\Pi}_x \sigma^x + \hat{\Pi}_y \sigma^y) = v_F \begin{pmatrix} 0 & \hat{\Pi}_x - i\hat{\Pi}_y \\ \hat{\Pi}_x + i\hat{\Pi}_y & 0 \end{pmatrix} \quad (6.1)$$

Les composantes de $\hat{\Pi}$ ne commutent pas entre elles : $[\hat{\Pi}_x, \hat{\Pi}_y] = -i\hbar^2/l_M^2$. On va introduire l'opérateur d'échelle comme cela a été fait au Chapitre 2 :

$$\hat{a} = \sqrt{\frac{1}{2\hbar e B}}(\hat{\Pi}_x - i\hat{\Pi}_y) \quad \text{et son conjugué} \quad \hat{a}^\dagger = \sqrt{\frac{1}{2\hbar e B}}(\hat{\Pi}_x + i\hat{\Pi}_y) \quad (6.2)$$

avec $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$.

En termes de ces deux opérateurs, le hamiltonien devient :

$$\hat{\mathcal{H}}_B^{eff} = \sqrt{2\hbar e B} v_F \begin{pmatrix} 0 & \hat{a} \\ \hat{a}^\dagger & 0 \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

On cherche les états propres qui vérifient : $\hat{\mathcal{H}}_B^{eff} \Psi_n = \epsilon_n \psi_n$ sous la forme d'une fonction d'onde à deux composantes :

$$\Psi_n = \begin{pmatrix} u_n \\ v_n \end{pmatrix} \quad (6.4)$$

où u_n et v_n représentent les composantes respectives sur les sous-réseaux A et B (dans cet ordre pour la vallée considérée).

Grâce au système de deux équations, on peut écrire l'équation vérifiée par v_n :

$$\hat{a}^\dagger \hat{a} v_n = \left(\frac{\epsilon_n}{v_F \sqrt{2\hbar e B}} \right)^2 v_n \quad (6.5)$$

Or, les états propres de $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ sont les états $|n\rangle$ de l'oscillateur harmonique (cf page 50) : $\hat{a}^\dagger \hat{a} |n\rangle = n |n\rangle$ avec $n \geq 0$. On peut donc identifier, à un facteur numérique près, v_n et $|n\rangle$.

Avant d'aller plus loin, il faut exclure, pour le moment, le cas $n = 0$. En effet, la relation usuelle $\hat{a} |n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle$ de l'oscillateur harmonique n'est vraie que pour $n > 0$.

En utilisant la relation 6.5, on peut directement déterminer les valeurs propres sous champ magnétique, c'est à dire les énergies des niveaux de Landau :

$$\epsilon_{n,\pm} = \pm v_F \sqrt{2\hbar e B} = \pm \frac{\hbar v_F \sqrt{2n}}{l_B} \quad (6.6)$$

Les niveaux de Landau ont, dans le cas de la monocouche de graphène, une dépendance en \sqrt{nB} (Figure 6.1) ce qui est radicalement différent du cas des semiconducteurs conventionnels. On associe les états d'énergie négatives aux trous, et ceux d'énergie positive aux électrons.

Ensuite, les états propres du hamiltonien sous champ magnétique sont :

$$\Psi_{n,\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} |n-1\rangle \\ \pm |n\rangle \end{pmatrix} \quad (6.7)$$

Enfin, utilisant la relation $\hat{a} |n=0\rangle = 0$, l'état propre à énergie nulle est :

$$\Psi_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ |n=0\rangle \end{pmatrix} \quad (6.8)$$

Revenons maintenant sur la validité de la limite continue : l'énergie caractéristique doit rester négligeable devant l'énergie de saut entre plus proche voisin $\epsilon_n \ll t$. En utilisant $\hbar v_F = 3ta/2$, la condition précédente devient : $n \ll (l_M/a)^2 \simeq 3 \times 10^4 / B[T]$. Autrement dit, l'utilisation de la limite continue est justifiée pour les niveaux de Landau d'indices $n \ll 10^3$, ce qui est toujours le cas dans la pratique.

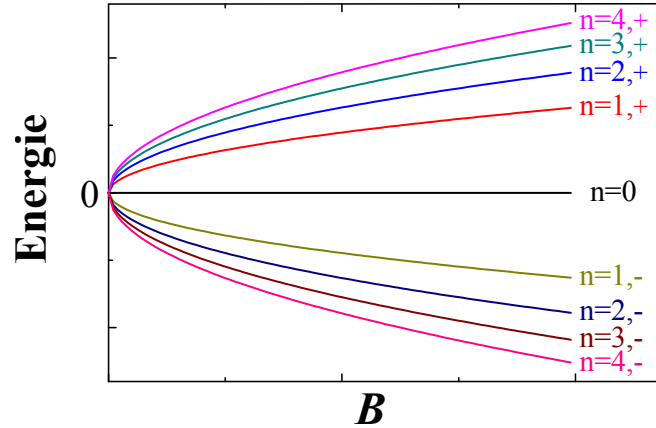


FIGURE 6.1 – Niveaux de Landau d'énergies positive et négative dans une monocouche en fonction du champ magnétique

6.1.2 Densité d'état et quantification de la résistance

Pour un niveau de Landau donné, il y a $n_B \equiv \phi/\phi_0$ valeurs permises pour le vecteur d'onde par unité de surface. En tenant compte des deux vallées d'énergie et du spin des électrons, la dégénérescence d'un niveau de Landau est $4n_B$.

En outre, du fait de la dépendance en \sqrt{B} , les niveaux sont de plus en plus proches les uns des autres au fur et à mesure que l'indice des niveaux augmente (Figure 6.2-b)). En particulier, ils ne sont pas équidistants comme c'est le cas dans un semiconducteur conventionnel.

Sous l'effet du désordre, les niveaux de Landau s'élargissent ; la densité d'état prends alors la forme représentée Figure 6.2-c).

De manière analogue à l'étude du Chapitre 2, on introduit le facteur de remplissage ν :

$$\nu = n_S/n_B \quad (6.9)$$

où n_S est la densité de porteurs de charge par unité de surface dans la monocouche. Etant données les dégénérescences de spin et de vallée, le facteur de remplissage marque des sauts de valeur 4 entre deux plateaux de résistance de Hall consécutifs. De plus, l'existence d'un niveau de Landau à énergie nulle associée à la chiralité des porteurs modifie la séquence des résistances. La résistance de Hall est, dans la monocouche de graphène, quantifiée selon :

$$R_H = \frac{R_K}{2(2n+1)} \quad \text{avec } R_K \equiv \frac{h}{e^2} \quad \text{et } n \in \mathbb{Z} \quad (6.10)$$

soit, $R_H = \pm h/2e^2, \pm h/6e^2, \pm h/10e^2, \dots$. La signature d'une monocouche est donc unique en ce qui concerne le régime d'effet Hall quantique.

A dopage nul, *i.e.* lorsque que $n_S = 0$, tous les niveaux de Landau d'énergie négative sont remplis, le niveau $n = 0$ est rempli à moitié (état symétrique électrons-trous) et tous les niveaux d'énergie positive sont vides (Figure 6.2-c)).

6.2 Effet Hall quantique dans une bicouche

L'étude de la bicouche sous fort champ magnétique suit les mêmes étapes que dans le cas de la monocouche. Le Hamiltonien effectif en terme d'opérateurs d'échelle et en négligeant l'effet

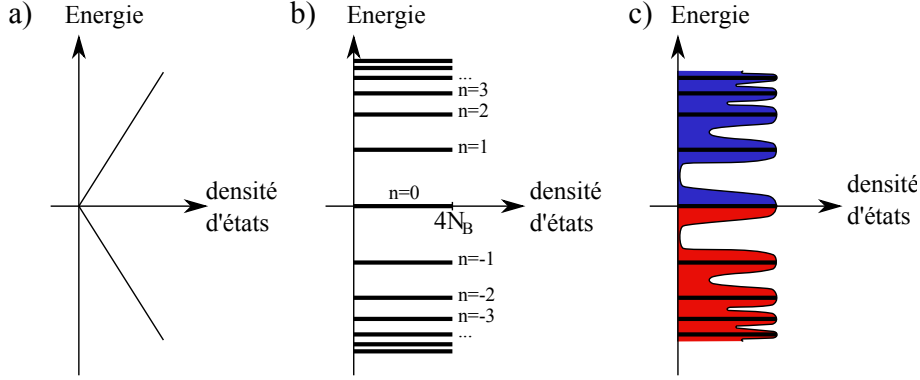


FIGURE 6.2 – Densités d'états d'une monocouche : a) sans champ magnétique, b) quantification des niveaux de Landau sous champ magnétique et c) élargissement des niveaux sous l'effet du désordre : en rouge états des trous et en bleu états des électrons.

Zeeman, est :

$$\widehat{\mathcal{H}}_B^{eff} = \frac{\hbar e B}{m^*} \begin{pmatrix} 0 & (\widehat{a}^\dagger)^2 \\ \widehat{a}^2 & 0 \end{pmatrix}. \quad (6.11)$$

On cherche les solutions sous la forme $\Psi_n = \begin{pmatrix} u_n \\ v_n \end{pmatrix}$ où u_n et v_n représentent les composantes sur les atomes A2 et B1 (cf page 93).

La résolution du système de deux équations fournies par le Hamiltonien permet d'obtenir le spectre en énergie ainsi que les états propres associés. En particulier, on montre que $u_n \propto |n\rangle$ et $v_n \propto \widehat{a}^2 u_n$.

Pour $n \geq 2$, on a :

$$\epsilon_{n,\pm} = \pm \hbar \omega_c \sqrt{n(n-1)}, \quad (6.12)$$

et, pour $n = 0$ et $n = 1$:

$$\epsilon = 0. \quad (6.13)$$

On retrouve le comportement d'un semiconducteur conventionnel car les énergies des niveaux de Landau dépendent linéairement du champ magnétique (Figure 6.3).

Les états propres sont :

$$\text{pour } n \geq 2 : \Psi_{n,\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} |n\rangle \\ \pm \sqrt{n(n-1)} |n-2\rangle \end{pmatrix} \quad (6.14)$$

et

$$\Psi_1 = \begin{pmatrix} |1\rangle \\ 0 \end{pmatrix} \quad \Psi_0 = \begin{pmatrix} |0\rangle \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (6.15)$$

Chaque niveau de Landau possède une dégénérescence 4 en raison du spin et des deux vallées d'énergie ; en outre, le niveau d'énergie nulle a une dégénérescence 8 (coexistence de deux niveaux de Landau). Au fur et à mesure que l'on modifie le champ magnétique ou la densité de porteurs, le facteur de remplissage marque des sauts de valeurs 4 comme dans la monocouche de graphène. Toutefois, du fait de la coexistence des niveaux $n = 0$ et $n = 1$ à énergie nulle, on retrouve la même séquence de résistances de Hall quantifiées que dans le cas de semiconducteurs conventionnels :

$$R_H = \frac{R_K}{4n} \quad \text{avec } n \in \mathbb{Z} \quad (6.16)$$

soit $R_H = \pm h/4e^2, \pm h/8e^2, \pm h/12e^2, \dots$

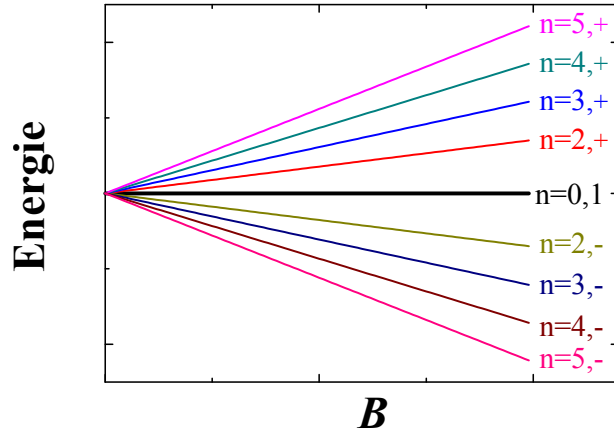


FIGURE 6.3 – Niveaux de Landau d'énergies positive et négative dans une bicouche en fonction du champ magnétique

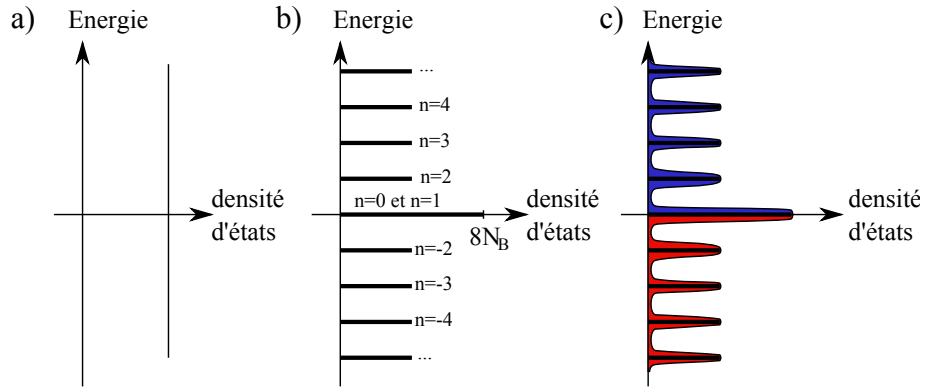


FIGURE 6.4 – Densités d'états d'une bicouche : a) sans champ magnétique, b) quantification des niveaux de Landau sous champ magnétique et c) élargissement des niveaux sous l'effet du désordre : en rouge états des trous et en bleu états des électrons.

6.3 Comparaison entre les EHQ

Pour comparer les effets Hall quantiques entre GaAs, la monocouche et la bicouche de graphène, on peut calculer les énergies de transition entre les premiers niveaux de Landau dans les trois systèmes.

Sous une induction magnétique de 1 T, on a :

$$\text{pour GaAs} \quad \epsilon_1 - \epsilon_0 = \hbar\omega_c \approx 1.72 \text{ meV} \quad (6.17)$$

$$\text{pour la monocouche} \quad \epsilon_1 - \epsilon_0 = \sqrt{2\hbar v_F^2 eB} \approx 36.2 \text{ meV} \quad (6.18)$$

$$\text{pour la bicouche} \quad \epsilon_2 - \epsilon_0 = \sqrt{2}\hbar\omega_c \approx 4.94 \text{ meV} . \quad (6.19)$$

Sous une induction magnétique de 10 T, on a :

$$\text{pour GaAs} \quad \epsilon_1 - \epsilon_0 = \hbar\omega_c \approx 17.2 \text{ meV} \quad (6.20)$$

$$\text{pour la monocouche} \quad \epsilon_1 - \epsilon_0 = \sqrt{2\hbar v_F^2 e B} \approx 114.6 \text{ meV} \quad (6.21)$$

$$\text{pour la bicouche} \quad \epsilon_2 - \epsilon_0 = \sqrt{2}\hbar\omega_c \approx 49.4 \text{ meV} . \quad (6.22)$$

On constate que les énergies sont beaucoup plus élevées dans le cas de la monocouche par rapport à GaAs. Quant à la bicouche, les énergies sont proches du double de celles rencontrées dans les hétérostructures de semiconducteurs conventionnels. La figure 6.5 représente ces énergies de transition en fonction de l'induction magnétique. Du fait de ces transitions d'énergies plus élevées, l'effet Hall quantique est plus robuste dans des feuillets de graphène que dans des semiconducteurs conventionnels. L'effet Hall quantique dans une monocouche de graphène est si robuste qu'il a pu être observé à température ambiante [3]. C'est cette robustesse qui attire l'intérêt des métrologues : une monocouche de graphène pourrait être un étalon primaire de résistance plus pratique à mettre en œuvre car fonctionnant à plus faible champ magnétique et/ou plus haute température.

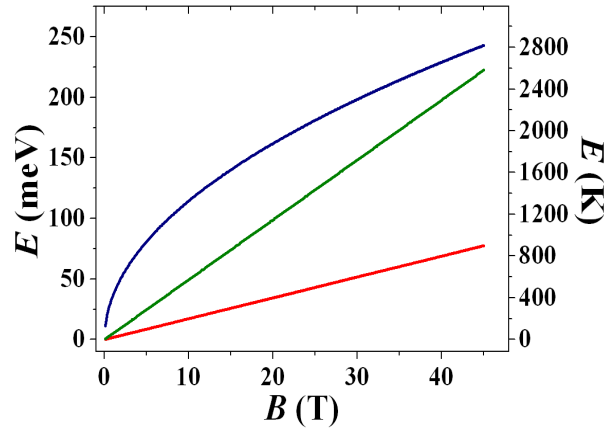


FIGURE 6.5 – Comparaison des énergies de transition entre premiers niveaux de Landau dans GaAs (trait rouge), une monocouche (trait bleu) et une bicouche (trait vert) de graphène en fonction de l'induction magnétique.

Quatrième partie

Le Graphène pour la métrologie

Chapitre 7

Fabrication et conditionnement d'échantillons en graphène exfolié

7.1 L'exfoliation

7.1.1 Principe

Du fait de sa structure en feuillet, le graphite est un matériau friable ; l'expérience montre d'ailleurs que le simple fait de frotter un morceau de charbon sur une surface permet d'arracher de nombreux grains eux-mêmes constitués d'un nombre important de feuilles. Même si à l'heure actuelle le graphite des mines de crayons est mélangé à de l'argile afin d'obtenir un trait plus ou moins fin, il n'en reste pas moins qu'un trait dessiné au crayon contient un très grand nombre de feuillets de graphène. En outre, lorsqu'on ne fait qu'appuyer avec la pointe du crayon sur une surface, cela suffit à déposer des micro-grains visibles à l'oeil nu.

L'exfoliation mécanique consiste à maîtriser le dépôt des feuilles de graphène [45],[46] sur un substrat à partir de graphite naturel ou de "Kish" graphite. Ce dernier est un résidu de fabrication de la sidérurgie lors de l'enrichissement de métaux en Carbone. Aussi appelé HOPG pour "Highly Ordered Pyrolytic Graphite" (Graphite Pyrolytique Hautement Ordonné), le Kish graphite contient peu d'impuretés ou de défauts alors que le graphite naturel peut contenir des dopants tels que des minéraux ou des molécules organiques. Pour maîtriser le dépôt, l'idée de départ est de cliver les grains macroscopiques de graphite en micro-grains à l'aide d'un morceau de ruban adhésif puis d'appliquer la surface collante sur laquelle sont les micro-grains au contact d'un substrat. La méthode de l'exfoliation est aussi appelée "clivage micro-mécanique".

7.1.2 Mise en œuvre pratique

Dans le cadre de la fabrication de nos échantillons, on peut schématiser la méthode de l'exfoliation par les étapes suivantes :

- On dépose quelques grains de graphite sur un morceau d'adhésif (Figure 7.1-(a)).
- On replie l'adhésif sur lui-même afin que chaque grain soit collé sur ses deux faces.
- On décolle l'adhésif afin de cliver chaque grain en deux grains plus petits.
- On répète ce processus sur une autre direction de pliage du ruban adhésif.
- Après répétition successive des collages et décollages, on obtient une répartition quasi homogène de micro-grains de graphite sur la surface de l'adhésif (Figure 7.1-(b)).

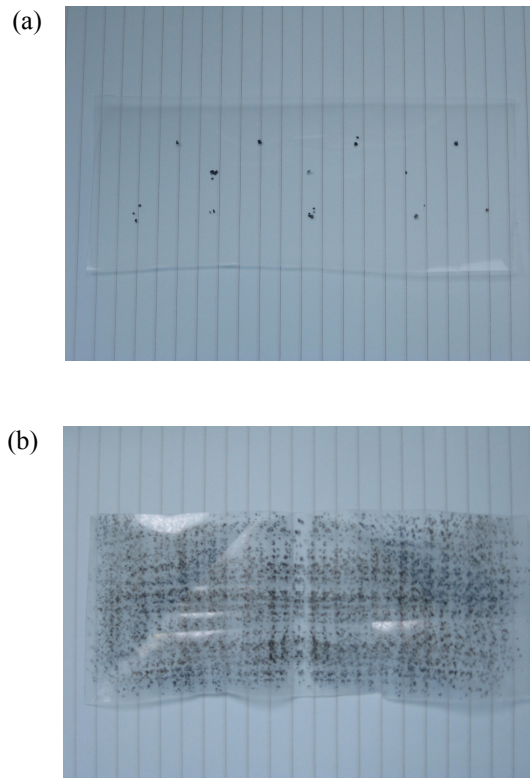


FIGURE 7.1 – Photographies de l'adhésif et des grains de graphite : (a) avant les collages-décollages successifs et (b) à la fin du processus.

Juste avant d'appliquer l'adhésif sur le substrat de silicium, on colle puis décolle une dernière fois l'adhésif afin de libérer des surfaces fraîches au niveau des micro-grains de graphite. Ce sont ces surfaces fraîches qui sont directement en contact avec la surface du substrat. Une fois l'adhésif placé au contact du substrat, l'ensemble substrat+adhésif est mis sous presse mécanique ; c'est-à-dire placé sous forte contrainte verticale. Cette opération a pour but de laisser le temps aux feuilles de graphène de mieux adhérer au substrat. Après une durée variable pouvant aller de quelques dizaines d'heures à plusieurs semaines, l'adhésif est délicatement retiré du substrat et on peut alors observer des feuilles de graphène sur la surface.

Comment un feuillet de graphène peut-il se déposer sur la surface ? La réponse à cette question vient de la nature des forces de "cohésion" entre les feuillets de graphène au sein d'un grain de graphite. En effet, les feuillets sont liées entre elles par des interactions de van der Waals. Or, lorsqu'on vient appliquer l'adhésif, le substrat soumet les premières feuilles d'un grain en contact à d'autres forces de van der Waals (Figure 7.2-(a) et (b)). Si ces dernières sont supérieures aux forces de van der Waals au sein du grain, alors le micro-grain abandonne une ou plusieurs feuilles sur la surface du substrat quand on retire l'adhésif (Figure 7.2-(c) et (d)).

Les substrats utilisés sont des substrats de silicium recouverts d'oxyde de silicium (SiO_2) dit thermique : l'oxyde est obtenu en plaçant les substrats à haute température sous un flux d'oxygène. L'épaisseur de l'oxyde dépend de la durée de l'exposition au flux. Le rôle premier de cet oxyde est d'assurer une isolation électrique entre la feuille de graphène et le silicium qui peut être dopé et donc conducteur. Avant l'application de l'adhésif, l'oxyde peut être préparé dans le but d'enlever des impuretés organiques mais aussi dans le but d'augmenter son pouvoir d'attraction vis-à-vis des feuillets de graphène.

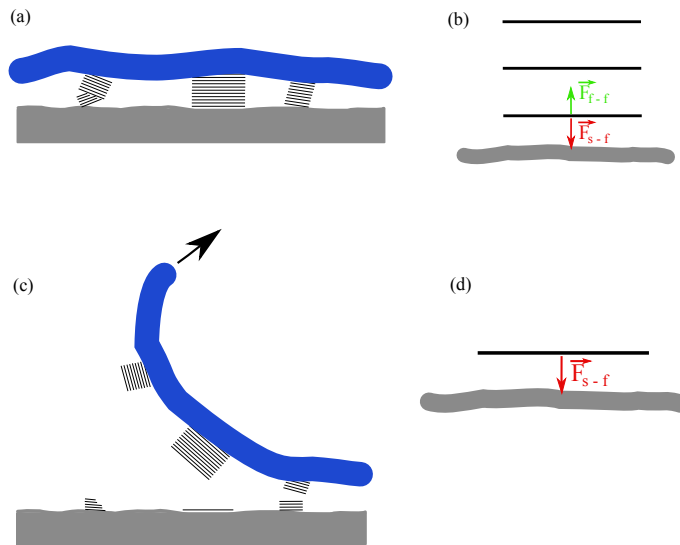


FIGURE 7.2 – Représentation schématique de l’interaction entre la première feuille de graphène et le substrat au moment de l’application de l’adhésif (a), vue détaillée en (b) et au moment du retrait (c), vue détaillée en (d). \vec{F}_{f-f} et \vec{F}_{s-f} sont les forces de Van der Waals respectivement entre deux feuillets et entre un feuillet et le substrat.

Au cours de la thèse, nous avons pratiqué l’un ou l’autre des deux traitements suivants pour nettoyer le substrat avant d’appliquer le ruban adhésif :

- Par attaque acide en milieu aqueux, par exemple un mélange d’acide sulfurique (H_2SO_4) et de peroxyde d’oxygène (H_2O_2 , aussi appelé eau oxygénée).
- Par attaque plasma et en particulier par plasma d’oxygène.

Le point commun de ces deux voies est la libération des liaisons pendantes des atomes de silicium situés en surface de l’oxyde. L’oxyde devient alors électroattracteur ce qui favorise le dépôt des feuilles sur la surface.

A la fin de l’exfoliation, l’échantillon est nettoyé avec de l’acétone afin de dissoudre les résidus de colle laissée par l’adhésif. Sur la surface, on obtient des distributions aléatoires de feuilles uniques, de bicouches, de systèmes ayant plusieurs feuilles d’épaisseur mais aussi de micro-grains. Il est alors impératif de pouvoir repérer et de savoir identifier les monocouches.

Il est important de souligner que la méthode de l’exfoliation a été testée avec succès sur d’autres matériaux qui ont une structure en feuillets analogue à celle du graphène [45]. De plus, cette méthode de dépôt a permis de transférer du graphène obtenu par épitaxie sur des substrats du type Si-SiO₂.

7.2 Repérage optique des feuilles

7.2.1 Interférences d’une couche mince

Les méthodes de détection privilégiées pour des objets de si petite taille (l’épaisseur d’une monocouche de graphène n’est que de 0.34 nm) sont les méthodes de microscopie en champ proche telles que la microscopie à force atomique (AFM) ou la microscopie par effet tunnel (STM). Malheureusement ces deux approches ne permettent pas de sonder de grandes surfaces tout en conservant

la résolution nécessaire à la distinction monocouche/bicouche. De manière presque surprenante, la microscopie optique permet de faire le repérage et l'identification des systèmes générés par exfoliation sur couche mince de SiO_2 [63].

En tenant compte du caractère ondulatoire de la lumière, l'intensité totale de deux sources cohérentes voisines émettant chacune une onde monochromatique de longueur d'onde λ va s'écrire :

$$I = |A_1|^2 + |A_2|^2 + 2A_1A_2 \cos(\Delta\phi) , \quad (7.1)$$

où A_i sont les intensités lumineuses émises par chaque source et $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$ est le déphasage entre les deux ondes considérées. Lorsque ce déphasage est un égale à 0 $[2\pi]$, l'intensité totale est supérieure à la somme des intensités individuelles ; on parle d'interférences constructives. À l'inverse, si le déphasage est un multiple de π $[2\pi]$, on parle d'interférences destructives. Dans la pratique, l'image d'interférence que l'on peut observer est constituée de franges sombres et brillantes.

Prenons l'exemple d'une couche mince dont l'épaisseur est voisine de la longueur d'onde de la lumière visible et dont l'indice optique, n_1 , est différent de celui de l'air et du matériau situé en dessous (Figure 7.3). On appelle angle d'incidence l'angle entre l'onde incidente et la normale à la surface. Pour un angle d'incidence θ quelconque, la différence de phases entre les deux rayons est : $\Delta\phi = \frac{4\pi e}{\lambda} n_1^2 / \sqrt{n_1^2 - \sin^2 \theta}$. Si la source est polychromatique, chaque onde donne lieu à un système d'interférence. En particulier, l'angle selon lequel les interférences sont constructives diffère d'une longueur d'onde à une autre. On assiste alors au phénomène d'irisation : de part et d'autre de la tâche centrale, il y a décomposition du spectre visible. On voit alors distinctement les longueurs d'onde présentes dans le spectre émis par la source.

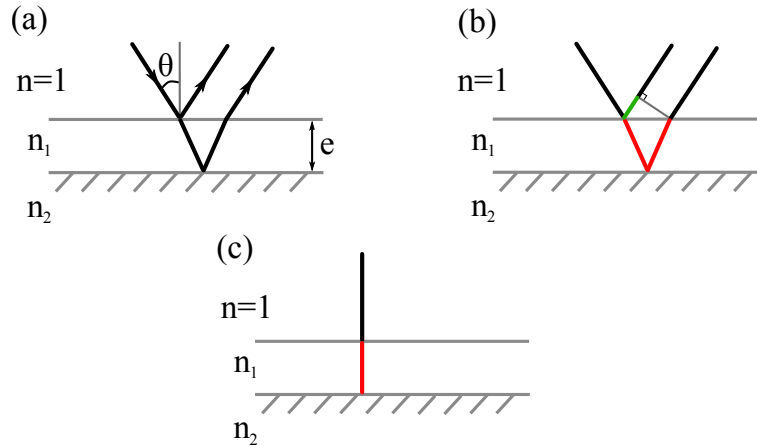


FIGURE 7.3 – Schémas des trajets lumineux dans une couche mince d'épaisseur e , (a) et (b) pour une incidence quelconque, (b) en rouge chemin optique parcouru entre les deux interfaces et en vert chemin optique parcouru par le rayon réfléchi en surface ; (c) incidence normale.

Dans le cas d'une incidence normale ($\theta = 0$), le déphasage se réécrit : $\Delta\phi = \frac{4\pi n_1 e}{\lambda}$. Ainsi, pour une épaisseur donnée, toutes les longueurs d'onde telles que $\lambda \simeq 4n_1 e$ subissent des interférences destructives alors que les longueurs d'onde telles que $\lambda \simeq 2n_1 e$ subissent des interférences constructives. L'œil perçoit le système selon la couleur correspondant à la longueur d'onde la mieux réfléchi ou, le cas échéant, un mélange des couleurs correspondant aux longueurs d'onde les mieux réfléchies.

La Figure 7.4 représente les spectres de réflexion mesurés sur trois échantillons avec des épaisseurs différentes de SiO_2 . On constate que certaines longueurs d'onde sont très peu réfléchies

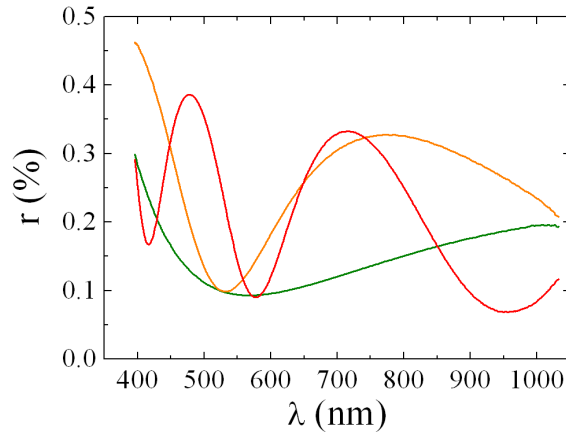


FIGURE 7.4 – Spectres de réflectance obtenus au CEA sur les trois types de substrats utilisés pendant la thèse ; les épaisseurs de SiO_2 sont différentes : en vert 90 nm, en orange 295 nm et en rouge 500 nm. Les couleurs ont été choisies afin de correspondre au mieux aux couleurs réelles perçues par l’oeil

($r \simeq 0.1$) pour une épaisseur donnée alors que d’autres longueurs d’onde sont bien réfléchies ($r \simeq 0.4$). De fait, les substrats ayant une épaisseur de 90 nm de SiO_2 sont perçus de couleur verte, ceux ayant une épaisseur de 295 nm de couleur orangée et enfin les substrats ayant une épaisseur de 500 nm de couleur rouge.

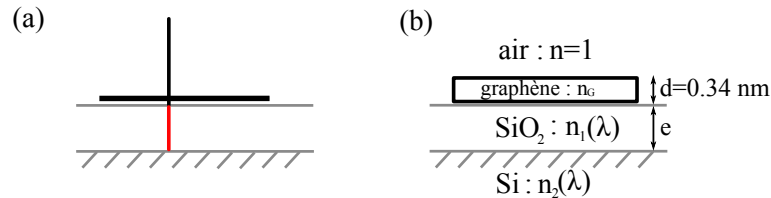


FIGURE 7.5 – (a) Schéma des trajets lumineux en incidence normale en présence d’une feuille de graphène. (b) Modèle à trois couches pris en compte pour le calcul du contraste.

7.2.2 Observation de monocouches atomiques

La particularité des feuilles de graphène est d’être des systèmes suffisamment fins et transparents pour ajouter un chemin optique sur le trajet des rayons lumineux sans les absorber complètement. Localement, la couleur d’interférence est modifiée par rapport au substrat ”nu” (sans feuilles de graphène).

Pour expliquer le contraste que l’on observe sur la Figure 7.6, on peut utiliser le modèle géométrique illustré sur la Figure 7.5-(b). Les relations de continuité du champ électromagnétique aux différentes interfaces permettent de calculer l’intensité réfléchie par un tel système selon une loi de type Fresnel. L’indice optique d’un feuillet de graphène est généralement $n_G \approx 2.6$ [63], [64]. En particulier, le contraste relatif, C , défini comme la différence relative d’intensité avec ($n_G \neq 1$)

et sans ($n_G = 1$) graphène :

$$C = \frac{I(n_G = 1) - I(n_G)}{I(n_G = 1)} \quad (7.2)$$

est non nul. Il est donc possible d'observer des systèmes de feuilles de graphène avec un simple microscope optique et ce jusqu'à l'épaisseur minimale de la monocouche. En effet, l'indice de réfraction d'une monocouche de graphène peut être modélisé par une partie réelle (terme de réfraction) et une partie complexe (terme d'absorption) [64]. En particulier, ce dernier étant non nul, la feuille de graphène absorbe une partie de la lumière. Par des mesures de transmission sur des échantillons déposés sur grille, l'absorption d'une monocouche dans le domaine visible est égale à $\pi\alpha$, où $\alpha \approx 1/137$ est la constante de structure fine.

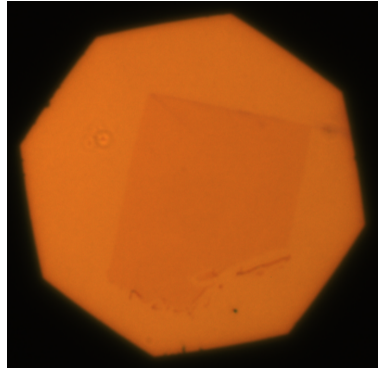


FIGURE 7.6 – Photographie d'une monocouche de graphène obtenue avec le grossissement x100 et diaphragme. La zone de couleur orange sombre correspond à la monocouche déposée sur substrat ayant 300 nm de SiO₂

Pendant la thèse, les observations ont été faites à l'aide d'un microscope optique muni d'objectifs Leica et d'une caméra CCD permettant l'enregistrement numérique de photographie. En outre la caméra CCD nous a permis d'optimiser certains paramètres lors de l'observation (isolation de certains pixels, temps d'exposition, ...). Observés avec un faible grossissement (x10), on constate la présence de micro-grains de graphite sur la surface des échantillons après retrait de l'adhésif. A plus fort grossissement (x20 - x50), on peut observer des tâches de couleur légèrement différente par rapport à celle du substrat. Ces petites tâches correspondent à des feuillettes de graphène. On peut alors optimiser les réglages du microscope (focalisation, temps d'exposition, ouverture du diaphragme, ...) et utiliser de plus forts grossissements afin de mieux voir la ou les feuilles. Selon l'épaisseur de l'oxyde (7.7), on remarque que le contraste généré par une monocouche n'est pas le même ; facilement visibles sur 90 nm et 285 nm, les monocouches sont plus difficiles à voir sur des substrats ayant 500 nm d'oxyde.

En outre, le contraste évolue en fonction de la longueur d'onde. Pour une épaisseur donnée, les monocouches génèrent du contraste aux longueurs d'onde qui subissent une réflexion maximale. Si l'image complète issue de la caméra CCD est décomposée selon les trois types de pixels (R pour "Red", G pour "Green" et B pour "Blue"), les trois images en nuances de gris présentent des contrastes différents au niveau de la feuille de graphène (Figure 7.8). Par exemple pour une monocouche déposée sur 285 nm de SiO₂, on remarque que la feuille est invisible sur les pixels bleu de la caméra (Figure 7.8-(b)) alors qu'elle est nettement visible sur les pixels vert et rouge (Figures 7.8-(c) et (d)).

Enfin, des mesures par transmission optiques dans le domaine du visible ont pu mettre en évidence le fait que l'absorption varie de manière linéaire avec le nombre de feuilles [65] : une bicouche absorbe $2 \times \pi\alpha$, une tricouche $3 \times \pi\alpha$, etc. ... De plus, l'absorption est uniforme sur la

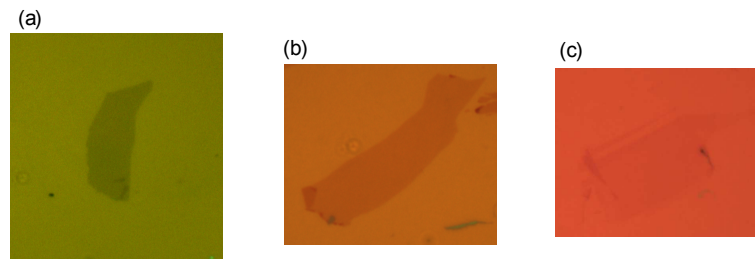


FIGURE 7.7 – Photographies de trois monocouches sur trois épaisseurs d'oxyde différentes : (a) 90 nm, (b) 285 nm et (c) 500 nm.

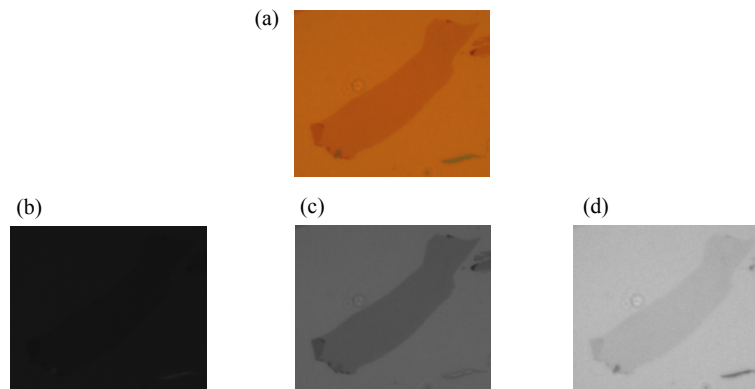


FIGURE 7.8 – (a) Photographie d'une monocouche sur 285 nm d'oxyde et images extraites des pixels de la CCD : (b) pixels bleus, (c) pixels verts et (d) pixels rouges.

gamme des longueurs d'onde du visibles. De fait, il est possible de déterminer le nombre de couche d'un système par analyse du contraste optique en réflexion ou en transmission.

7.3 La spectroscopie Raman

Le repérage optique de monocouches et de bicouches est possible lorsque le substrat est muni d'une couche mince d'un matériau transparent sur sa surface. Toutefois, lorsque l'épaisseur de la couche mince devient importante (≥ 500 nm), le contraste généré par les feuillets est trop faible pour être visible à l'aide d'un simple microscope optique. Il est donc nécessaire de disposer d'une deuxième méthode de repérage. Il s'agit de la spectroscopie Raman. De manière générale, quelle que soit l'épaisseur d'oxyde de silicium, cette spectroscopie constitue la voie non ambiguë pour détecter une monocouche.

La spectroscopie Raman est une méthode de caractérisation non destructive. Elle consiste à faire interagir un faisceau de photons avec le matériau que l'on souhaite analyser. L'énergie des photons incidents permet d'exciter par absorption des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. Au cours de la désexcitation, les électrons échangent des phonons avec le réseau et finissent par se recombiner de manière radiative avec les trous formés dans la bande de valence ; il y a réémission de phonons. Les modes de phonons échangés avec le réseau constituent « l'empreinte digitale » car ils dépendent de l'arrangement et de la nature des atomes qui le constituent ainsi que de la structure de bande électronique. La différence d'énergie entre les photons incidents et les photons réémis donnent accès aux modes de phonons participant au processus de diffusion des

électrons dans le matériau. On parle de diffusion Brillouin lorsqu'il s'agit de phonons acoustiques et de diffusion Raman pour des phonons optiques.

Dans le cas du graphite, des phénomènes de double résonance impliquant deux phonons apparaissent et jouent un rôle majeur pour la diffusion Raman [66]. Dans le cas de feuillets monocouches et bicouches, l'empreinte Raman reflète la différence des propriétés électroniques et permet de les discriminer [67]. En particulier, l'absorption inélastique d'un photon optique avec émission d'un ou deux phonons optiques n'est pas la même si on a une structure de bande d'une monocouche ou d'une bicouche de graphène. Ceci suffit à créer un décalage mesurable entre les fréquences de réémission des phonons optiques. En pratique, la raie $2D$ aux alentours de 2700 cm^{-1} est plus large pour les bicouches que pour les monocouches et sa position se déplace vers les nombres d'onde plus élevés (*c.f.* figure 7.9).

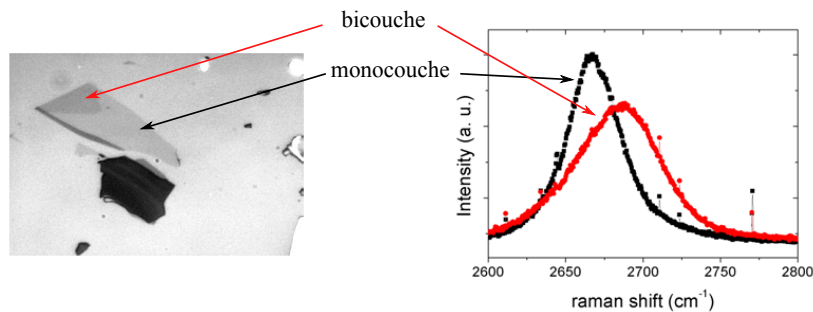


FIGURE 7.9 – À gauche, image optique isolée sur les pixels rouge de la caméra CCD et à droite spectres Raman acquis sur la zone monocouche et sur la zone bicouche.

Le microscope Raman qui a été utilisé pendant la thèse est un microscope Horiba-Jobin Yvon. Il s'agit d'un microscope confocal : par l'intermédiaire d'un système de lentille et d'un sténopé (diaphragme), un faisceau laser est focalisé sur une zone étroite de la surface de l'échantillon. Les photons réémis par l'échantillon à étudier sont collectés par la même lentille. Grâce à un jeu de lames semi-réfléchissantes, ces photons arrivent jusqu'à un détecteur composé d'un monochromateur et d'une caméra CCD refroidie par un système Peltier. Le monochromateur est constitué d'un réseau qui disperse les photons selon leur longueur d'onde, *i.e.* selon leur énergie. La caméra CCD permet de détecter les photons en fonction de leur distance spatiale par rapport au centre de la fenêtre optique située en sortie du monochromateur : la distance au centre de la fenêtre dépend de l'énergie du photon. L'acquisition d'un spectre en un point donné de la surface permet de connaître l'énergie des photons réémis par effet Raman en ce point. Le microscope que nous avons utilisé est équipé d'une platine motorisée par des systèmes piézo-électriques permettant de scanner une surface de l'échantillon. Les objectifs offrent les grossissements $x10$, $x20$, $x50$ et $x100$. Enfin, la source laser est une diode laser et nous avons utilisé la raie à 532 nm .

Pour terminer cette partie, nous avons également observé des feuillets avec un microscope à force atomique (AFM). Utilisé en mode contact, un AFM du LNE nous a permis d'obtenir une image d'une bicouche de graphène représentée figure 7.10. De plus, l'étude par AFM de différents feuillets nous a permis de constater que ceux-ci épousent la rugosité du substrat qui est de l'ordre de 2 nm .

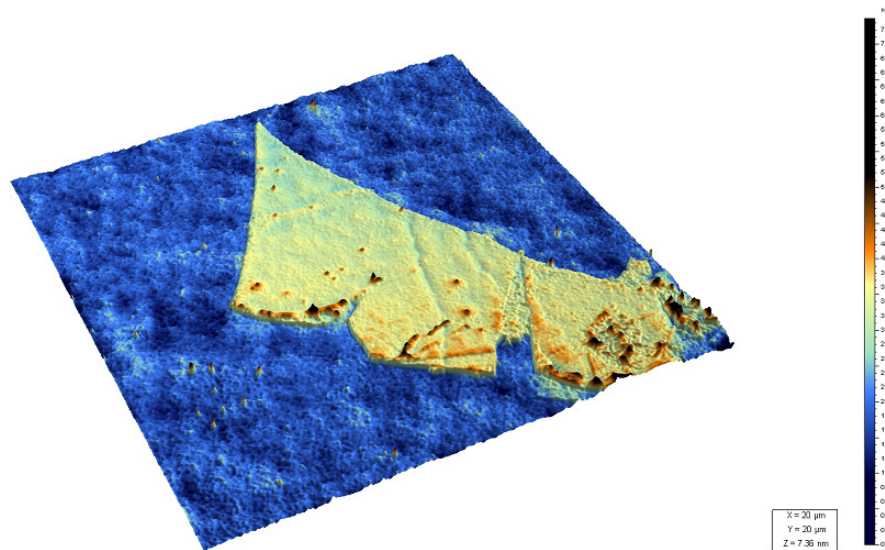


FIGURE 7.10 – Image obtenue par AFM au LNE d'une bicouche de graphène sur oxyde de silicium.

7.4 Fabrication de barres de Hall

7.4.1 Préparation du substrat

Les échantillons étudiés ont été fabriqués à partir de graphène exfolié. Comme il a été dit, cette méthode de dépôt permet de générer de manière aléatoire des systèmes plus ou moins épais. L'utilisation d'un microscope optique permet de localiser les systèmes fins (monocouches et bicouches) et le nombre de feuilles est confirmé grâce à la spectroscopie Raman. Toutefois, pour assurer un repérage complet, il est nécessaire de disposer d'un système de localisation en surface du substrat permettant ainsi le repositionnement et l'alignement au cours des lithographies.

La première étape de la fabrication consiste donc, avant même l'exfoliation, à réaliser un quadrillage sur toute la surface de l'échantillon par lithographie optique dans le domaine de l'Ultra-Violet (UV). Le motif répété est constitué de deux carrés de $5\ \mu\text{m}$ de côté ayant un sommet en commun de sorte qu'ils définissent une croix (figure 7.11). La distance entre deux motifs consécutifs est égale à $84\ \mu\text{m}$. De plus, un motif sur deux dispose d'un indice de ligne et d'un indice de colonne afin d'assurer le repérage sur la surface du substrat. Ces motifs sont réalisés par dépôt de $5\ \text{nm}$ de chrome (couche d'accroche) et de $50\ \text{nm}$ d'or afin de résister aux traitements précédant l'application de l'adhésif, mais aussi afin d'être visible au microscope électronique à balayage. Le dépôt de ces deux métaux a lieu dans un bâti à effet Joule qui consiste à faire passer un très fort courant (typiquement $150\ \text{A}$) au travers de creusets en tungstène qui contiennent les matériaux que l'on souhaite déposer. De cette manière, la température des creuset atteint des valeurs suffisamment élevées pour vaporiser des atomes des cibles. Ces atomes se déposent sur le substrat qui est placé en vis-à-vis. Les cibles peuvent avoir différentes formes (lingots, pépites, etc...) et sont pures à 99,9999%.

La Figure 7.12 représente les étapes successives d'une lithographie avec une résine positive :

- Etape n° 1 : Nettoyage du substrat à l'aide d'acétone et d'isopropanol (dissolution de molécules organiques) et séchage.
- Etape n° 2 : Enduction par rotation de la résine (la vitesse de rotation conditionne l'épaisseur du film) suivi du séchage de la résine.

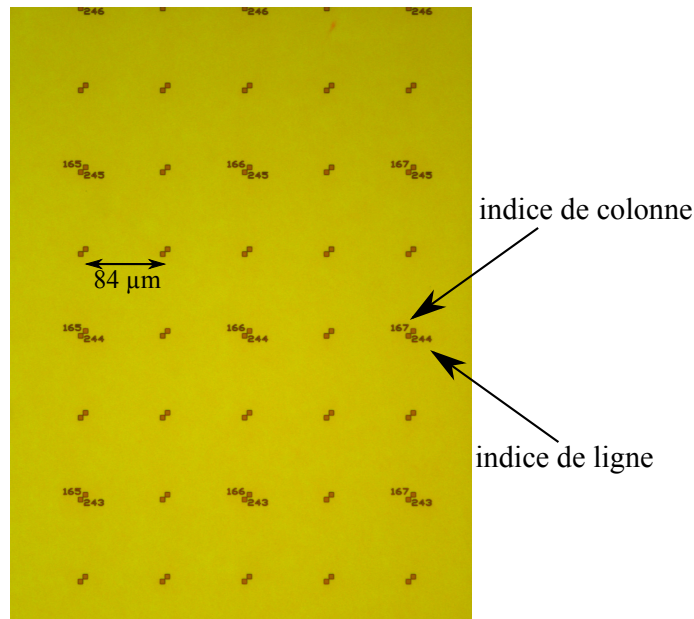


FIGURE 7.11 – Image optique au grossissement x20 d'un substrat recouvert de résine photosensible après exposition et développement.

- Etape n ° 3 : Exposition du film de résine à un faisceau (faisceau de photons UV dans le cas d'une résine photosensible et faisceau d'électrons dans le cas d'une résine électrosensible).
- Etape n ° 4 : Développement de la résine en solution. Dans le cas d'une résine positive, les zones exposées sont dissoutes par la solution.
- Etape n ° 5 : Dépôt des matériaux souhaités dans un bâti sous vide.
- Etape n ° 6 : Dissolution de la résine non exposée (« Lift-off »). Tout ce qui est sur la résine va partir, seuls restent les matériaux déposés directement sur le substrat au niveau des zones exposées.

Une fois que le substrat est équipé d'un système de repérage sur sa surface, il peut être préparé pour l'exfoliation et en particulier l'application de l'adhésif sur lequel se trouvent les micro-grains de graphite. Le but de cette préparation est de rendre l'oxyde de Silicium le plus propre possible (des résidus de résine UV peuvent être encore présents) mais aussi de favoriser le dépôt des feuilles de graphène.

Nous avons été amené à faire l'un ou l'autre des deux traitements suivants :

- en phase aqueuse par attaque d'une solution très acide. On utilise une solution d'acide sulfurique (H_2SO_4) très concentré et de peroxyde d'Hydrogène (H_2O_2). Outre des temps d'attaque relativement longs (environ une heure), cette méthode présente le désavantage de mettre directement en contact les substrats et plus particulièrement l'oxyde de silicium qui est hydrophile avec des molécules d'eau. Il est donc primordial de sécher puis de maintenir le substrat sous un flux d'azote gazeux jusqu'à l'application de l'adhésif.
- en phase gazeuse par attaque d'un plasma d'oxygène. Cette attaque a lieu dans un bâti au sein duquel on introduit une faible pression de dioxygène qu'on soumet à une forte différence de potentiel électrique grâce à deux électrodes (typiquement 100 V). Cette tension permet d'arracher des électrons aux molécules d' O_2 et ainsi de former le plasma. Cette technique, inspirée de la communauté des nanotubes de Carbone, présente l'intérêt d'avoir lieu en phase sèche, *i.e.* en l'absence d'eau.

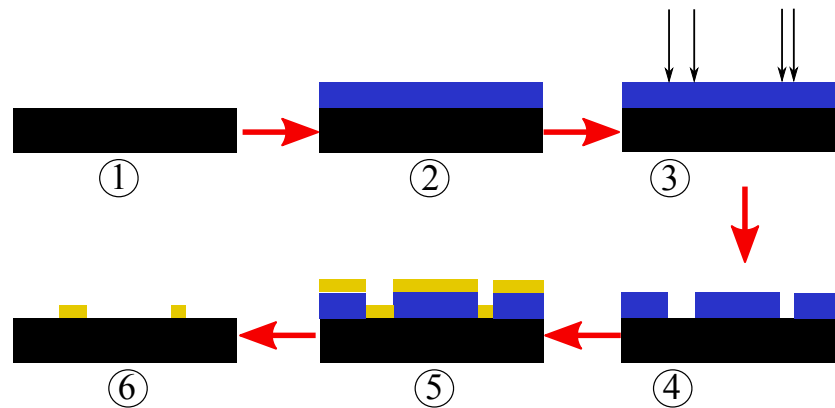


FIGURE 7.12 – Vue en coupe d'un substrat au cours des différentes étapes d'une lithographie à résine positive.

Sans étude statistique, il est difficile de dire si l'une ou l'autre des deux voies permet d'obtenir une densité de monocouches plus élevée. En outre, il est délicat de comparer deux exfoliations différentes car plusieurs paramètres peuvent varier : la quantité de grains de graphite sur l'adhésif au départ, nombre de collage/décollage, temps sous presse, . . . De manière identique, la comparaison entre deux graphites naturels, pour ce qui est de la taille et de la densité de monocouches, n'a rien d'absolu.

7.4.2 Réalisation de barres de Hall

Une fois qu'un feuillet, monocouche ou bicouche, a pu être repéré et localisé, la lithographie des contacts électriques est réalisée dans un microscope électronique à balayage (MEB). Un grand soin est apporté aux dessins de lithographie afin d'éviter les grains de graphite présents sur le substrat qui sont conducteurs et qui peuvent donc court-circuiter des pistes métalliques. Pour cela, des images du feuillet et de son environnement sont enregistrées à différents grossissements du microscope optique. Lors de la réalisation du dessin, on pourra ainsi vérifier que deux pistes ne se retrouvent pas en contact avec un même grain de graphite. Une fois le dessin terminé, l'échantillon est placé dans le MEB et la lithographie est réalisée via une carte de pilotage du faisceau d'électrons après alignement sur les croix de repérage. Après insolation de la résine électrosensible (PMMA, polyméthylméta acrylate), celle-ci est développée dans une solution de méthylisobutylctone (MIBK) puis l'échantillon est placé dans un bâti de dépôt sous vide afin de déposer le ou les métaux. Enfin, une fois ce dépôt réalisé, l'échantillon est placé dans de l'acétone afin de réaliser le « lift off » qui consiste à enlever la résine (et le ou les métaux situés dessus) là où elle n'a pas été insolée (*c.f.* figure 7.13-a)).

Pour terminer, il reste à graver le feuillet dans une géométrie de barres de Hall. Pour cela, on utilise le même dessin de lithographie pour conserver l'alignement au niveau des croix de repérage. La résine électrosensible est insolée là où l'on veut graver le graphène. Cette gravure a lieu à l'aide d'un plasma d'oxygène dilué dans l'argon. Cette gravure permet d'obtenir une barre de Hall dont la géométrie est bien définie (*c.f.* figure 7.13-c)). Après nettoyage dans de l'acétone, les échantillons sont étuvés à 110 C pendant 1 heure puis recouvert de PMMA pour limiter la contamination des feuillets avant les mesures de transport. Une dernière lithographie électronique permet de dégager les plots carrés de contact qui font 400 à 500 μm de large. L'échantillon est alors collé sur le porte-échantillon en céramique à l'aide d'époxy d'argent et des fils d'or de diamètre 25 μm sont collés eux-aussi à l'aide d'époxy d'argent entre les plots de contact et les pinoches du porte-échantillon.

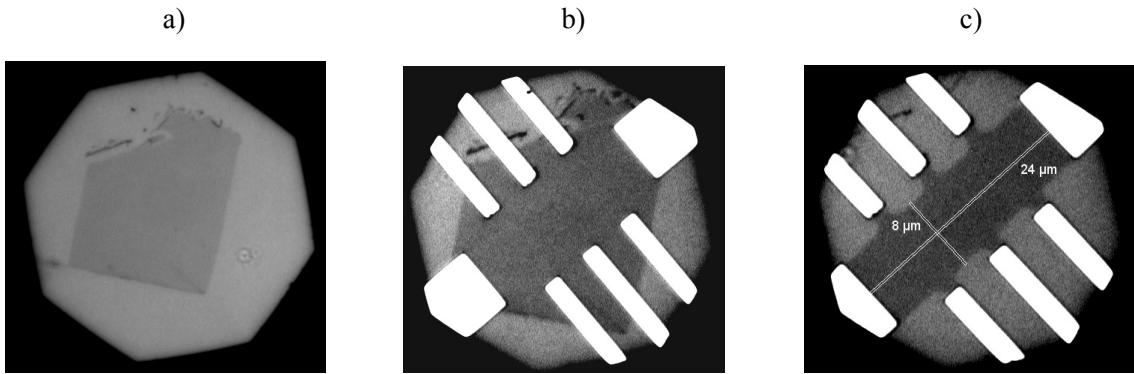


FIGURE 7.13 – En a), feuillet de graphène au départ, en b) après lithographie et dépôt des contacts et en c) après lithographie et gravure au plasma d'oxygène dilué dans l'argon.

7.4.3 Contacts Métal-Graphène

Nous avons vu aux chapitres 2 et 4 que la présence d'un contact résistif pouvait nuire à la qualité de la mesure de la résistance transverse dans un 2DEG. Nous avons donc cherché à obtenir des contacts métal-graphène qui aient la plus faible résistance électrique possible. Partant de l'hypothèse que le contact entre le métal et le feuillet de graphène est surfacique, nous avons cherché à maximiser les surfaces en regard entre les deux matériaux lors de la réalisation du dessin de lithographie. Nous verrons au chapitre 10 que malgré le soin apporté au dessin et lors des différentes étapes de la fabrication, il existe des disparités des résistances des contacts au sein d'un même échantillon. Ces différences peuvent être dues à des impuretés ou à des microcoupures du bras de contact.

De plus, on sait que la présence d'un contact de tension perturbe les états de bord et donc potentiellement le degré de quantification. Il existe deux catégories de contact de tension : les contacts invasifs et les contacts non-invasifs (*c.f.* figure 7.14). Les premiers correspondent au cas où la zone métallique empiète sur la canal alors que les seconds correspondent au cas où la zone métallique est reliée au canal par un bras de contact. Ce bras de contact est une portion du 2DEG ou du feuillet que l'on protège lors de la gravure chimique ou plasma. Les dimensions typiques des bras contacts que l'on a utilisé pour nos échantillons de graphène sont de $0.2 \mu\text{m}$ à $1 \mu\text{m}$ pour la longueur (distance entre le canal et la zone métallisée) et de $1 \mu\text{m}$ à $3 \mu\text{m}$ pour la largeur.

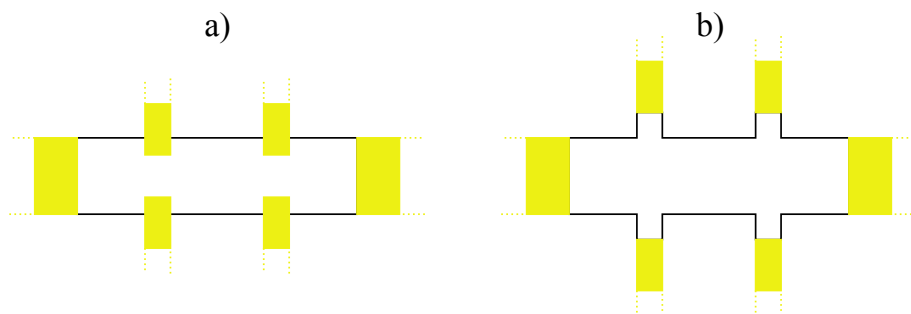


FIGURE 7.14 – Représentation schématique de deux barres de Hall : en a) avec des contacts de tension invasifs et en b) avec des contacts de tension non-invasifs.

Obtenir un bon contact électrique n'est pas synonyme de bon contact mécanique. En effet,

comme nous le verrons à la fin de ce chapitre, les bras de contact en graphène peuvent se rompre dans le cas d'un refroidissement trop rapide de l'échantillon. De plus, les systèmes métalliques généralement utilisés pour les contacts sur graphène sont constitués d'une couche fine d'un métal tel que le titane puis d'une couche plus épaisse d'or. La première est dite couche d'accroche car elle permet d'avoir adhésion de l'or qui a tendance à ne pas mouiller sur d'autres matériaux. Pour obtenir des couches métalliques homogènes, nous avons été amenés à augmenter les épaisseurs déposées. Au départ, les épaisseurs typiques étaient de 5 nm de titane et de 50 nm d'or. Sur les derniers échantillons, elles étaient de 10 nm de titane et de 100 nm d'or. Un échantillon (monocouche ML002) a été connecté en utilisant une couche unique de 60 nm d'épaisseur de palladium. En parallèle aux observations d'inhomogénéité des couches métalliques, les épaisseurs ont été augmentées suite à la perte de contacts après des essais de recuits à 400 °C sous argon hydrogéné. En effet, nous avons constaté que les couches métalliques pouvaient se décoller du feuillet lorsque les épaisseurs étaient faibles.

Par ailleurs, la présence d'or ou de palladium permet d'éviter tout phénomène d'oxydation, et donc la présence d'un isolant, sur la piste métallique. Ainsi, même au bout de quelques jours, on peut souder ou coller les minces fils d'or.

Nous parlerons des résistances de contact que nous avons pu estimer dans nos échantillons au Chapitre 10.

7.5 Dispositif à effet de champ

La couche d'oxyde qui permet d'observer les feuillets de graphène en microscopie optique offre dans le même temps une isolation électrique vis-à-vis du substrat de silicium qui peut être dopé. Lorsque l'on applique une tension électrique entre le substrat et un système semi-conducteur déposé sur sa surface, on crée un effet capacitif électrostatique. Toute variation de la tension permet de déplacer le niveau de Fermi (*c.f.* figure 7.15) dans le semi-conducteur. En appliquant le théorème de Gauss, on obtient que la densité de porteurs est directement proportionnelle à la tension V_G appliquée entre le substrat et l'échantillon :

$$n_S = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r}{ed} V_G = \alpha V_G \quad (7.3)$$

où $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{ m}^{-3} \text{ kg}^{-1} \text{ s}^4 \text{ A}^2$ est la permittivité diélectrique du vide, $\epsilon_r = 3.9$ est la permittivité relative de l'oxyde de silicium et d son épaisseur.

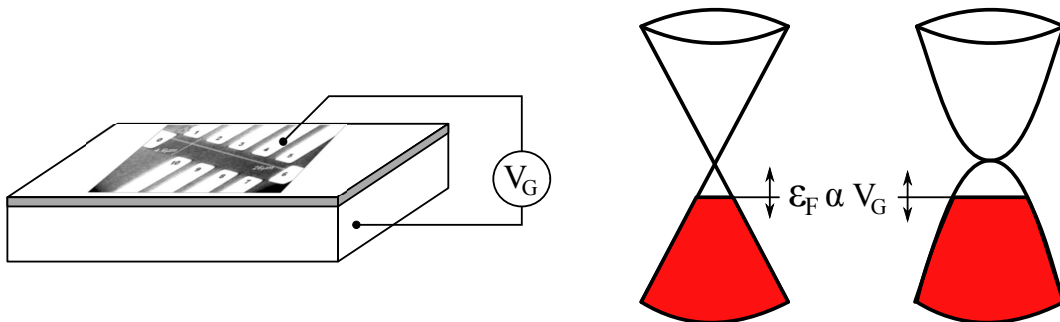


FIGURE 7.15 – Principe de l'effet de champ : l'application d'une tension électrique entre le silicium dopé et le feuillet permet de déplacer le niveau de Fermi dans celui-ci.

α est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche d'oxyde. Nous avons été amené à utiliser trois épaisseurs d'oxyde différentes ;

– sur 90 nm d'oxyde :

$$n_S = 2.4 \times 10^{11} \times V_G \quad \text{cm}^{-2} \quad (7.4)$$

– sur 300 nm d'oxyde :

$$n_S = 7.2 \times 10^{10} \times V_G \quad \text{cm}^{-2} \quad (7.5)$$

– sur 500 nm d'oxyde :

$$n_S = 4.3 \times 10^{10} \times V_G \quad \text{cm}^{-2} \quad (7.6)$$

Les épaisseurs d'oxyde étant relativement faibles, les tensions que l'on applique entre le feuillet de graphène et le silicium dopé ne doivent pas être trop élevées. En effet, au delà d'une certaine tension, l'effet capacitif peut être détruit : un courant circule au travers de l'oxyde. Il s'agit du phénomène de claquage de l'oxyde. Par exemple, dans le cas de 285 nm d'oxyde, la tension maximale est de 100 V. D'un point de vue général, nous nous sommes limités à des petites variations de la tension grille autour de 0 V pour éviter tout risque de dégradation de nos échantillons.

7.6 Nettoyage *in situ*

En fin de fabrication, l'échantillon de graphène peut présenter un dopage résiduel élevé ayant pour conséquence de déplacer le point de neutralité de charge loin de la tension de grille nulle. Nous avons donc procédé à un nettoyage de nos échantillons de graphène. Ce nettoyage *in situ* se fait par chauffage à basse pression (typiquement quelques 10^{-5} mbar). Le chauffage est réalisé à l'aide d'une résistance de puissance (CMR de 50 Ω supportant 1 W) collée sur la face inférieure du porte-échantillon. En outre, une seconde résistance est collée afin de mesurer la température au cours du recuit (sonde Pt100).

Une fois l'échantillon mis en place sur la canne de mesure, cette dernière est placée dans le cryostat tout en exposant l'échantillon de graphène à un flux d'hélium gazeux. L'échantillon est alors mis sous vide et une tension électrique est appliquée sur la CMR. Cette tension est augmentée de manière progressive pour obtenir une augmentation graduelle de la température. Les puissances dissipées par effet Joule sont typiquement de l'ordre du Watt pour des tensions comprises entre 5 et 10 volts. Un suivi en temps réel de la résistance de la Pt100 permet d'estimer la température de l'échantillon.

Dans le cas où il est possible d'appliquer un champ magnétique, nous avons mesurer la résistance transverse en fonction de la tension grille pour connaître la position du point de Dirac, c'est à dire la tension de grille pour laquelle la tension transverse change de signe. La figure 7.16 montre l'évolution de la résistance transverse au cours du recuit de l'échantillon ML001. Ces mesures ont été réalisées sous un champ de 0.5 T à une température de 120 °C. On remarque que le point de changement de signe de R_H se déplace vers les faibles tensions au cours du temps indiquant que le dopage résiduel diminue.

Pour l'échantillon ML002, nous avons décidé de faire varier l'induction magnétique sans appliquer de tension de grille (*i.e.* en laissant la grille à la masse). Toutes les 30 minutes, nous avons mesuré la résistance longitudinale et la variation de résistance transverse pour une variation 1 T de l'induction magnétique . On extrait alors de ces deux mesures la densité de porteurs $n_{S,0}$ à tension de grille nulle et leur mobilité μ :

$$n_{S,0} = \frac{\Delta B}{\Delta R_H e} \quad \text{et} \quad \mu = \frac{\sigma}{en_{S,0}} = \frac{W/L}{en_{S,0} R_{xx}} \quad (7.7)$$

La figure 7.17-a) montre un faisceau de droites correspondant à la variation de la résistance transverse en fonction de l'induction magnétique pour l'échantillon ML002 au cours du recuit à 120 °C. En combinant avec la valeur de la résistance longitudinale, on extrait la densité à grille

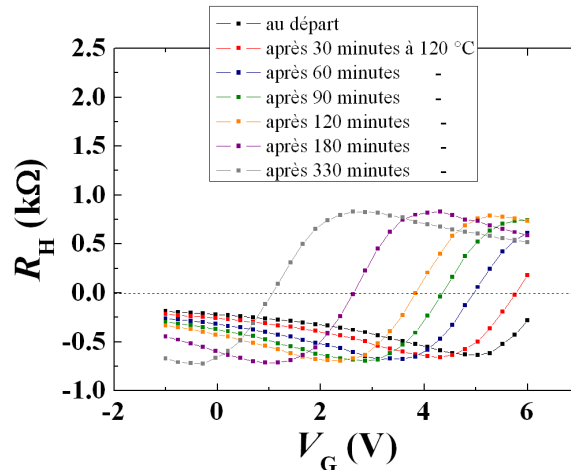


FIGURE 7.16 – Evolution de la résistance transverse au cours du recuit de l'échantillon ML001. L'induction magnétique est égale à 0.5 T et la température à 120 °C.

nulle ainsi que la mobilité. L'évolution de ces deux grandeurs pendant le recuit est représentée sur la figure 7.17-b). On constate que le dopage résiduel chute rapidement après 200 minutes à 120 °C. En parallèle, la mobilité augmente d'un facteur 2 dans le même intervalle de temps (entre 200 et 400 minutes). Ensuite les deux grandeurs saturent et l'on peut considérer que le recuit est terminé ; nous n'avons pas réussi à diminuer le dopage résiduel ou augmenter la mobilité en maintenant l'échantillon plus longtemps à 120 °C ou en augmentant la température.

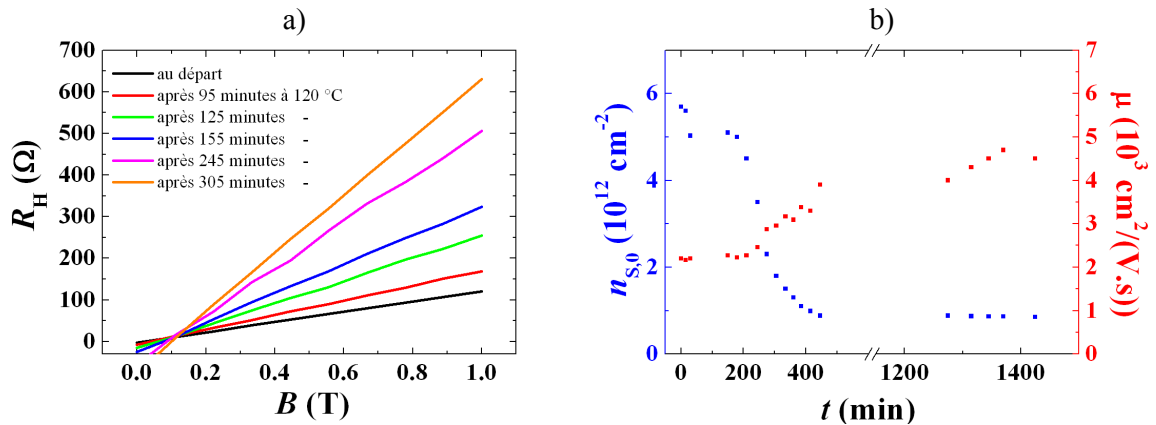


FIGURE 7.17 – En a), évolution de la résistance transverse en fonction de l'induction magnétique au cours du recuit à 120 °C de l'échantillon ML002. En b), densité à grille nulle et mobilité en fonction du temps pendant le recuit.

Une fois le recuit terminé, de grandes précautions doivent être prises pour refroidir l'échantillon. En effet, nous avons pu constater à notre grand regret qu'un refroidissement trop brutal a des conséquences dramatiques : les bras de contact en graphène entre le canal et les électrodes métalliques peuvent rompre. La figure 7.18 montre une image MEB d'une barre de Hall à nu (*i.e.* non recouverte de PMMA en fin de fabrication) pour laquelle tous les bras de contact ont rompu lors d'un refroidissement trop rapide après le recuit. Afin d'éviter que les bras ne rompent, la vitesse de

refroidissement ne doit pas excéder 1 K.min^{-1} . Ce critère est arbitraire et résulte des observations faites sur les différents échantillons détruits.

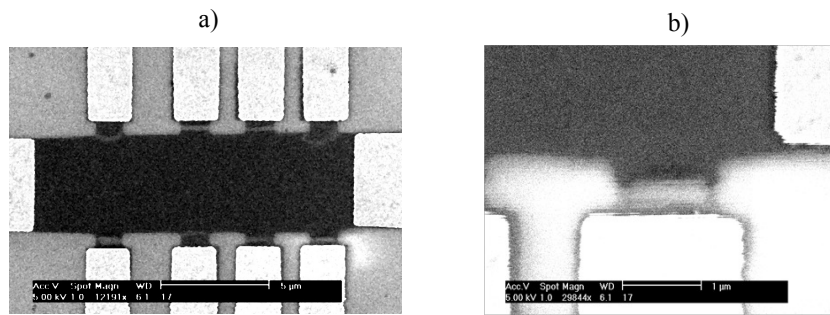


FIGURE 7.18 – En a), image MEB d'une feuille après rupture des bras de contacts. En b), détail du bras de contact situé en bas à droite de la barre de Hall.

Chapitre 8

Dispositif expérimental

8.1 Cryostats

Au LNE, nous avons utilisé deux cryostats différents pour refroidir les hétérostructure GaAs/AlGaAs ou les échantillons de graphène.

Le premier est un cryostat à insert ^4He dont l'espace expérimental est relié au bain d'hélium par un tube de piquage pouvant être fermé à l'aide d'une vanne pointeau. Dans notre cas, nous avons utilisé l'espace expérimental comme pot à 1 K en pompant sur l'hélium liquide.

Le second cryostat que nous avons mis en place et utilisé est un cryostat muni d'un insert à ^3He avec une pompe à sorption (« sorb »). L'insert comporte un calorimètre mis sous vide pour isoler du bain d'hélium liquide. La calorimètre contient un pot à 1 K, le sorb et les porte-échantillons. Le sorb est situé au-dessus du pot à 1 K ; il est thermiquement mal connecté avec lui. L'intérieur de l'ensemble pot à 1 K + sorb baigne dans une atmosphère d' ^3He gazeux. Enfin, le sorb est équipé d'un système de chauffage.

Le fonctionnement de cet insert est le suivant : en l'absence de chauffage sur le sorb, celui-ci est refroidi par le pot à 1K. Les vapeurs d' ^3He viennent s'adsorber sur le sorb qui est le point froid du système. Lorsque le chauffage du sorb est activé, les atomes d' ^3He se désorbent et sont refroidis par le pot à 1K. On a alors condensation des vapeurs en bas de l'insert. On poursuit le chauffage du sorb jusqu'à une température proche de 40 K. Le chauffage est alors diminué. L'hélium liquide (^3He) est à une température voisine de 1.2 K qui est la température de la boîte à 1 K. Lorsque la température du sorb est proche de 15 K, le chauffage est complètement coupé. La température du sorb continuant de baisser, il va agir comme une pompe cryogénique qui pompe sur l'hélium liquide : en abaissant la pression résiduelle du gaz, la température du liquide diminue. La température de ce dernier descend jusqu'à une température proche de 0.35 K mesurée par une sonde RuO_2 placée en bas de la canne câblée. Une fois que l'hélium liquide aura été complètement pompé et piégé par le sorb, il sera nécessaire de réactiver le chauffage du sorb pour entamer un nouveau cycle. Il est possible de conserver une température de 0.35 K pendant une durée de 8 heures selon la quantité d' ^3He . Entre deux journées de mesure, le chauffage du sorb est réactivé afin de forcer la recondensation de l'hélium liquide. Ceci a pour rôle de limiter les variations de température de l'échantillon puisqu'en faisant ainsi, la température de l'échantillon oscille entre 0.35 K pendant les journées de mesure et 1.2 K la nuit. Dans le cas où on laisserait le sorb froid, la température pourrait varier de manière plus importante la nuit car les fils de mesure apportent de la chaleur aux échantillons. La présence de vapeurs d' ^3He agit comme un gaz d'échange ; elles absorbent la chaleur amenée par les fils.

8.2 Bobines magnétiques

Pour observer l'effet Hall quantique, il est nécessaire de placer les échantillons à basse température et de les soumettre à un fort champ magnétique. Dans le cryostat à insert ^4He que nous avons utilisé, la source de champ magnétique est une bobine supraconductrice 12 – 14 T : elle délivre une induction magnétique de 12 T en fonctionnement normal (*i.e.* à $T = 4.2$ K) et une induction de 14 T lorsque l'on refroidit le bain d'hélium liquide à 2 K, c'est à dire en dessous de la transition normal/superfluide. Cette bobine est constituée de fils en alliage niobium-titane qui est supraconducteur à 4.2 K.

Le cryostat à insert ^3He est équipé d'une bobine supraconductrice 18 – 20 T (*c.f.* Figure 8.1). Cette bobine est constituée de fils en alliage niobium-étain et niobium-titane (supraconducteurs à 4.2 K). D'une masse totale de 250 kg, cette bobine a une inductance de 180 H. La vitesse d'élévation du champ est de $1 \text{ T}\cdot\text{min}^{-1}$ jusqu'à $B = 18$ T.

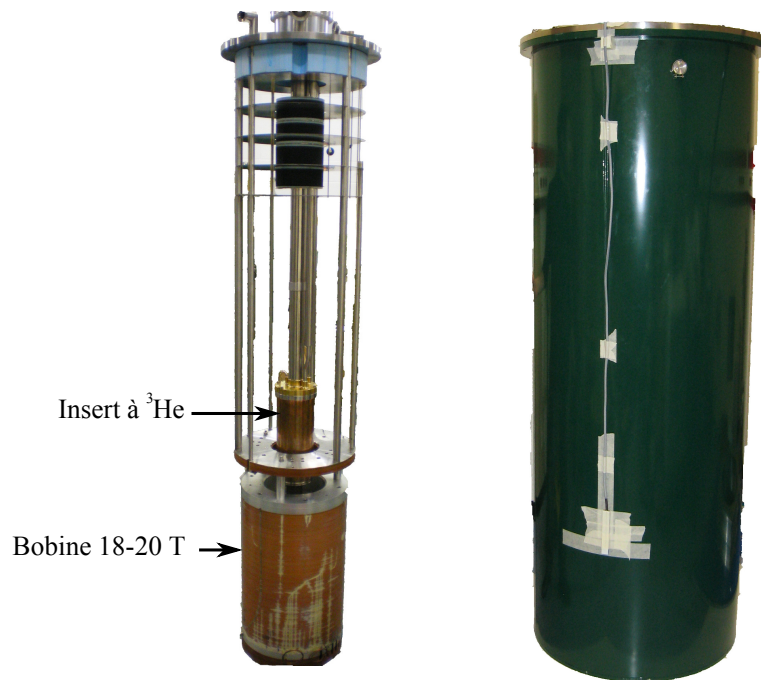


FIGURE 8.1 – Photographies de la bobine supraconductrice 18 – 20 T avec l'insert à ^3He (photo de gauche) et du cryostat (photo de droite).

8.3 Cannes de mesure et porte échantillons

Les cannes placées dans les cryostats permettent de placer les échantillons au centre de la bobine magnétique et de réaliser les mesures de transport électronique. Les câbles électriques sont placés le long de cette canne entre le porte échantillon placé à l'extrémité basse de la canne et le bornier de connexion situé en haut de la canne. Ces câbles sont thermalisés le long de la canne afin de minimiser l'apport de chaleur au niveau du porte échantillon. Les fils électriques sont des fils cuivre pour réaliser des mesures en courant continu. L'isolation électrique de ces câbles est réalisée avec du polytétrafluoroéthylène (PTFE) et est voisine de $1 \text{ T}\Omega = 10^{12} \Omega$.

Les échantillons sont placés sur des support TO8 en céramique Al_2O_3 . Ces supports sont enfichés dans des porte-échantillons à l'extrémité basse des cannes de mesure. Pour la canne du

cryostat ^3He , deux porte échantillons sont placés en vis à vis (*c.f.* Figure 8.2) ; il est possible de mettre un échantillon en feuillet de graphène et un LEP514 (hétérostructure GaAs/AlGaAs) en même temps à basse température. Une fois les deux échantillons chargés, le cylindre de laiton est coulissé pour obtenir un écrantage maximal des ondes électromagnétiques.

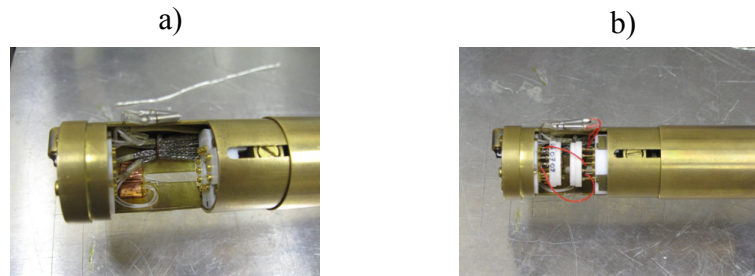


FIGURE 8.2 – Photographie des porte-échantillons sur la canne du cryostat à insert ^3He : en a), échantillons non chargés et en b), avec deux échantillons placés sur des support TO8.

Au niveau de la tête de la canne de mesure, les fils de mesures arrivent sur des connecteurs hermétiques qui offrent une grande isolation entre les pinoches de mesure mais aussi entre les pinoches et la masse électrique. Pour le cryostat ^4He , les connecteurs sont regroupés en un bornier de connexion sur une plaque de Teflon. Pour le cryostat ^3He , les connecteurs sont des connecteurs hermétiques Fischer en polytétrafluoroéthylène (PTFE) (*c.f.* Figure 8.3). En outre, le système de garde et d'écrantage entre les fils permet de réduire les couplages capacitifs et ainsi de réduire le bruit.

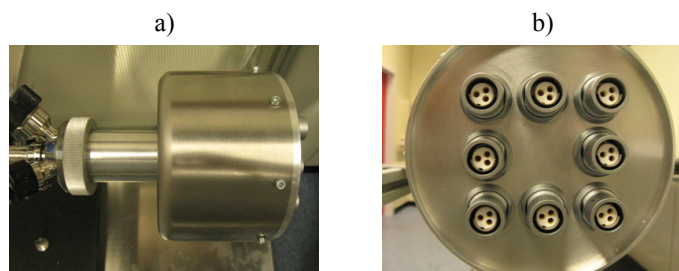


FIGURE 8.3 – a) Photographie de la tête de la canne de mesure vue de côté. b) Photographie des connecteurs Fischer.

Enfin, nous avons regroupé l'ensemble des fils de mesure issus des connecteurs sur un boîtier de mise à la masse (Figure 8.4). Ce boîtier nous offre la possibilité de laisser un ou des contacts de l'échantillon au potentiel électrique la masse. L'intérêt de ce boîtier est de pouvoir modifier la configuration de mesure, et donc le branchement des appareils de mesure, tout en protégeant l'échantillon de graphène de fluctuations de tension électrique en commutant manuellement la mise à la masse.

8.4 Caractérisations des feuillets de graphène

Avant d'utiliser le pont de comparaison pour mesurer des mesures précises de R_H , il est nécessaire de caractériser les feuillets de graphène. Ces caractérisations ont pour but de connaître l'évolution des magnétorésistances transverse et longitudinale (V_H/I et V_{xx}/I) du système mis à froid (*c.f.* Figure 8.5). De plus, dans le cas des échantillons de graphène, grâce à l'effet de champ (*c.f.*

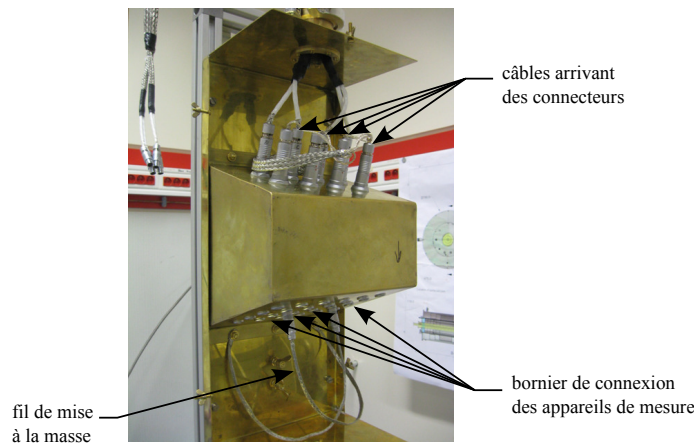


FIGURE 8.4 – Photographie du boîtier de mise à la masse avec les câbles issus des connecteurs, la zone de branchement des appareils de mesure et les fils de mise à la masse.

page 116), on peut faire varier la densité de porteurs. Deux caractérisations sont donc possibles : on peut faire varier la densité à induction magnétique constante ou on peut faire varier l'induction magnétique à densité constante.

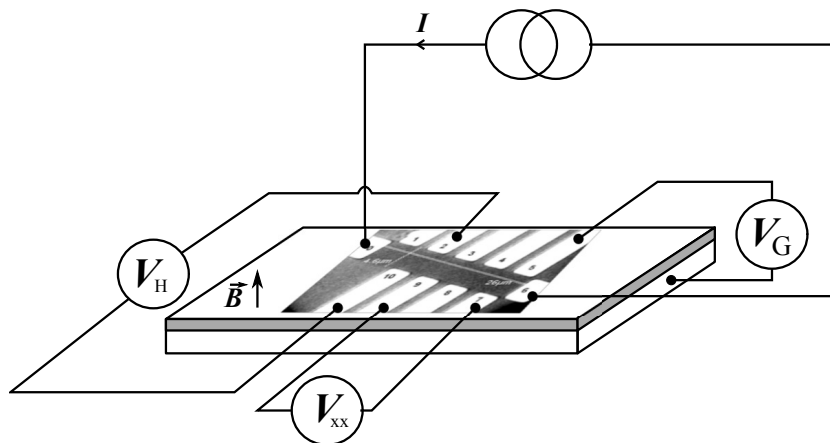


FIGURE 8.5 – Schéma du dispositif expérimental utilisé lors des caractérisations électriques des feuillets de graphène.

La polarisation de la tension de grille (V_G sur la figure) est réalisée à l'aide d'une source de tension Yokogawa délivrant des tensions comprises entre -30 V et $+30$ V. Dans le cas des échantillons de graphène ayant une épaisseur importante d'oxyde (500 nm) nous avons utilisé trois sources de tension disposées en série.

Pour les mesures électriques, nous avons utilisé une source de courant pilotée en tension. Cette source, de fabrication maison, permet de générer un courant isolé du réseau électrique. Dans le cas des caractérisations en courant continu, la source de courant est pilotée par une source de tension continue Keithley. La mesure des tensions transverse et longitudinale est faite grâce à des amplificateurs de tensions dont les sorties sont branchées aux entrées de deux voltmètres numériques Agilent : HP34420a pour le tension transverse et HP3458 pour la tension longitudinale. Ces voltmètres sont connectés via une liaison IEEE à un ordinateur pour enregistrer les valeurs de tension.

Dans le cas des mesures précises de la tension longitudinale en régime d'effet Hall quantique, on utilise un voltmètre de précision l'EMN11. Il s'agit d'un nanovoltmètre analogique qui présente une sortie 1V pleine échelle. Cette sortie est branchée en entrée d'un HP34420a pour enregistrer les valeurs sur ordinateur.

Enfin, pour les mesures de localisation faible, nous avons utilisé une détection synchrone pour piloter la source de courant. Pour la mesure de la tension, un amplificateur très bas bruit (EPC1) est placé avant la détection synchrone. Cette dernière est reliée à un ordinateur via une liaison IEEE pour enregistrer les valeurs de tensions.

8.5 Mesures au pont de comparaison

La Figure 8.6 représente de manière schématique le dispositif utilisé lors de la mesure de la résistance de Hall des feuillets de graphène à l'aide du pont de comparaison. La principale difficulté à laquelle nous avons été confrontée est la polarisation de la grille. Après plusieurs tentatives pour lesquelles on polarisait sur l'échantillon de graphène, nous avons constaté que la source de tension Yokogawa injectait du bruit qui était vu par le SQUID. Nous avons réussi à résoudre ce problème en polarisant la tension grille entre le feuillet de graphène (point haut du Yokogawa) et le point bas du détecteur de zéro (*i.e.* le nanovoltmètre EMN11). De cette manière, le bruit injecté par la source de tension n'est pas injecté dans le Comparateur de Courant.

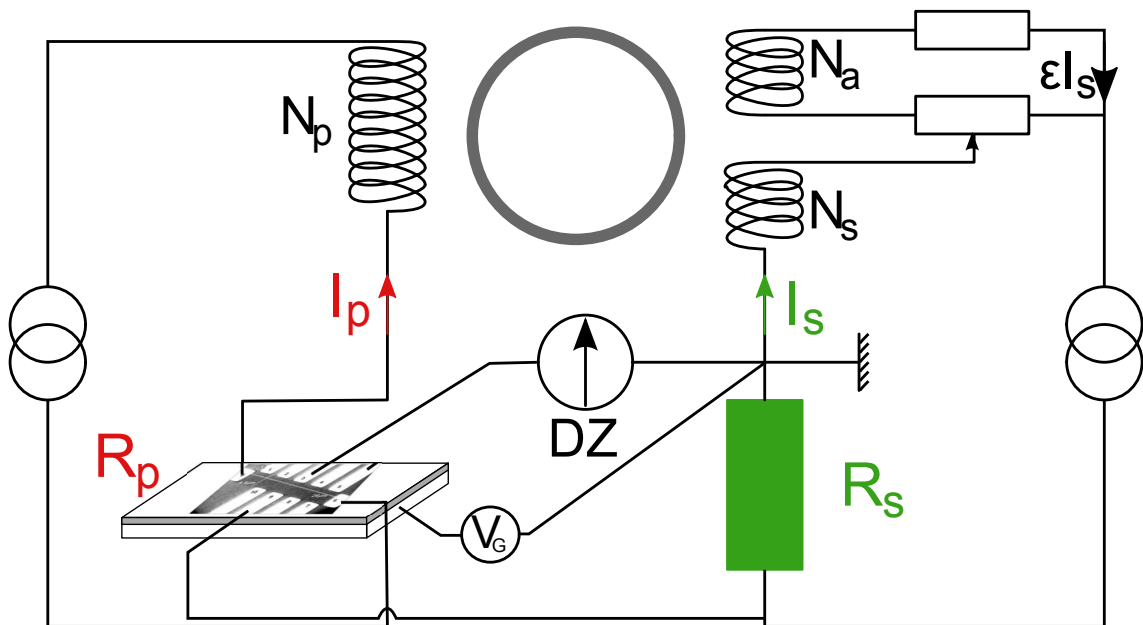


FIGURE 8.6 – Schéma du dispositif expérimental utilisé lors des mesures de la résistance transverse des feuillets de graphène au pont de comparaison.

Chapitre 9

Transport électronique dans des monocouches et des bicouches

En 2005, Novoselov *et al.* [45] ont pu caractériser la conductivité d'une monocouche de graphène en fonction du dopage de celle-ci. Cette équipe a pu mettre en évidence deux caractéristiques qui n'avaient jamais été observées dans des semi-conducteurs conventionnels. La première est la dépendance linéaire de la conductivité en fonction de la densité de porteurs et la seconde est l'existence d'une conductivité finie à dopage nul (*c.f.* figure 9.1). En d'autres termes, la mobilité des porteurs ne dépend pas de leur densité et à dopage nul, c'est à dire lorsque la densité de porteurs est proche de zéro, un feuillet de graphène reste conducteur. Les valeurs du minimum de conductivité reportées dans les premiers travaux étaient toujours proches de $4e^2/h$ suggérant l'existence d'une valeur universelle.

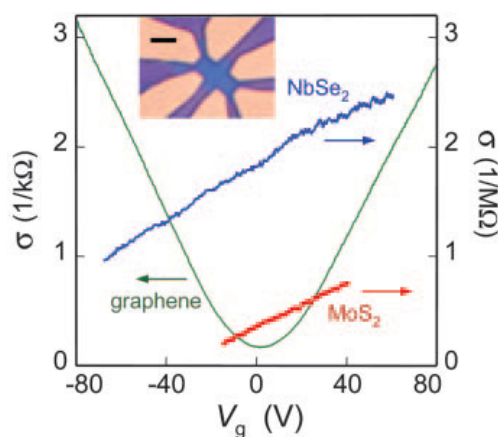


FIGURE 9.1 – Caractérisation par effet de champ de différents matériaux bidimensionnels dont un feuillet de graphène. La courbe est tirée de [68].

Les premiers calculs concernant le minimum de conductivité [58] en 2006 d'un ruban de graphène ballistique ($L, W \leq l$ où l est le libre parcours moyen) semblaient confirmer l'existence d'une valeur universelle. Pour ce calcul, l'approche de Landauer-Büttiker a été employée : la conductance d'un ruban court et large de graphène est vue comme la somme des transmissions de chaque mode de propagation électronique. Au niveau du point de Dirac, la transmission est finie et la

conductivité tend vers la valeur de $4e^2/\pi h$. Les travaux expérimentaux qui ont pu être publiés dans les années suivantes ont montré que cette valeur n'était pas systématiquement observée.

Dès 2007 [69], l'existence d'inhomogénéités de la densité à dopage nul a été évoquée pour expliquer l'existence d'une conductivité finie à dopage nul. Pour confirmer cette hypothèse, en 2008, Martin *et al.* [70] ont étudié la répartition des porteurs de charge dans une monocouche de graphène. Pour cela, ils ont utilisé un microscope à effet tunnel dont la pointe est constituée d'un transistor mono-électronique. En déplaçant la pointe au dessus d'une monocouche de graphène, ils ont pu mesurer la variation de potentiel électrostatique en surface du feuillet. De cette variation de potentiel, ils ont extrait une variation de densité de charge. Cette équipe a ainsi pu mettre en évidence l'existence de flaques de charges positives et de charges négatives (*c.f.* figure 9.2) lorsque le dopage est théoriquement nul. Ces flaques ont des dimensions voisines de 30 nm et les fluctuations de densité observées sont de l'ordre de $4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

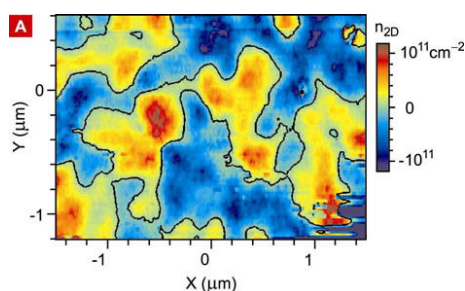


FIGURE 9.2 – Observation des flaques d'électrons et de trous; la figure, tirée de [70], représente la variation spatiale de densité de porteurs de charge mesurée à $T = 0.3 \text{ K}$ (en bleu les flaques de charges positives et en rouge celles de charges négatives).

Dans un contexte de travail exploratoire, il est nécessaire de comprendre les mécanismes de diffusion des porteurs de charge à l'origine d'une part de la dépendance de la conductivité vis à vis de la densité et d'autre part de l'existence d'une conductivité finie à dopage nul. Pour cela, nous donnerons successivement les mécanismes de diffusion des porteurs dans un feuillet de graphène qui ont été identifiés jusqu'à maintenant, puis nous présenterons les observations expérimentales du transport électronique au sein de deux monocouches ($T = 1.3 \text{ K}$) et d'une bicouche ($T = 0.35 \text{ K}$) de graphène faites au LNE.

9.1 Mécanismes possibles de diffusion

Depuis les premières mesures électriques sur des monocouches de graphène en 2005, de nombreux travaux théoriques ont vu le jour concernant les mécanismes possibles de diffusion dans les monocouches [71], [72], [73], [74], [75] et les bicouches [76], [77], [78]. En parallèle, plusieurs études expérimentales ont cherché à cibler ces mécanismes [79], [80], [81].

Les différents calculs théoriques de diffusion de porteurs utilisent la théorie de Drude-Boltzmann pour décrire le transport électronique. Cette diffusion des porteurs dans des feuillets de graphène peut avoir plusieurs origines : les impuretés chargées, les impuretés neutres, les phonons et la corrugation. Nous présenterons les conséquences théoriques ainsi que les travaux expérimentaux qui peuvent mettre en évidence les effets de chaque type d'impuretés sur le comportement de la conductivité.

9.1.1 Diffusion par des impuretés chargées

Lorsque des impuretés qui portent une charge électrique sont situées au voisinage d'un plan d'électrons, il existe des interactions coulombiennes entre ces impuretés et les électrons. Ces interactions à longue portée sont écrantées par l'environnement diélectrique. Les impuretés chargées sont situées dans l'oxyde de silicium au voisinage de la surface (distance typique voisine de 1 nm) et correspondent à des défauts de stœchiométrie dans l'oxyde. La présence et les effets de ces impuretés chargées ont été étudiés dans le cas des MOSFET silicium [82], [83], [84].

Les calculs théoriques de diffusion par des impuretés chargées, présentés dans [71] et [73] par exemple, amènent à deux résultats.

Le premier concerne la dépendance de la conductivité par rapport à la densité de porteur lorsque le niveau de Fermi est loin du point de Dirac. En ce qui concerne les monocouches de graphène, quelle que soit la modélisation de l'écrantage (« Random Phase Approximation » pour les travaux de Das Sarma *et al.* [71] et écrantage Thomas-Fermi pour les travaux de Guinea *et al.* [73]), la conductivité peut être mise sous la forme :

$$\sigma \approx A \frac{e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \quad \text{pour} \quad n_S \geq 5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2} \quad (9.1)$$

où n_i est la densité d'impuretés chargées et A une constante dont la valeur dépend de la modélisation. En outre, A dépend de l'environnement diélectrique de la monocouche (matériaux situés en dessous et éventuellement au-dessus). Nous expliciterons la valeur de A lors de la présentation de nos résultats. La dépendance linéaire de la conductivité en fonction de la densité est très fréquemment observée. Pour terminer, rappelons que la formule de Drude Eq. 2.2 relie la conductivité à la densité par l'intermédiaire de la mobilité : $\sigma = en_S\mu$. De fait, si la conductivité est linéaire en densité, la mobilité est constante de part et d'autre du point de Dirac.

Dans le cas de la bicouche de graphène, les travaux théoriques de Das Sarma *et al.* [77] (en utilisant l'écrantage Thomas-Fermi) envisagent une conductivité super-linéaire en densité lorsque l'on considère le hamiltonien quadratique :

$$\sigma \approx \frac{16e^2}{\pi h} \frac{n_S}{n_i} \left[1 + \frac{1216}{105\sqrt{\pi}} \sqrt{n_S}(d + 1/q_{TF}) \right] \quad \text{pour} \quad n_S \geq 5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2} \quad \text{et} \quad q_{TF} \ll 2k_F \quad (9.2)$$

où d est la distance entre la bicouche et les impuretés chargées (typiquement $d \simeq 1$ nm) et $q_{TF} = 4me^2/(4\pi\epsilon_0\epsilon_r\hbar^2)$ est l'inverse de la distance d'écrantage. Lorsque $d^{-1} \gg 2k_F$, le premier terme devient prépondérant ; la conductivité est alors linéaire en densité.

Le second résultat de l'existence d'impuretés chargées est la présence de fluctuations résiduelles de charges qui masquent le point de Dirac là où on s'attendrait à un dopage nul : on n'atteint jamais le régime de dopage nul. La conductivité décroît jusqu'à une valeur non-nulle, σ_0 , lorsque le niveau de Fermi est au voisinage du point de Dirac. Dès 2007 [69], l'existence d'inhomogénéités de la densité à dopage nul, c'est à dire des flaques d'électrons et de trous, a été envisagée. Cette intuition a été confortée par l'observation expérimentale de ces flaques en 2008 [70] représentées figure 9.2. Cette inhomogénéité de la densité a pour origine la présence de fluctuations du potentiel électrostatique créé par les impuretés chargées au voisinage du point de Dirac. Les porteurs de charge piégés dans ces flaques sont responsables du transport électronique. En particulier, il n'existe pas de transition métal-isolant : la conductivité reste finie au voisinage du point de Dirac. Dans un premier temps [58], une valeur universelle pour σ_0 a été envisagée. Toutefois, le potentiel électrostatique dépend de la densité d'impuretés et de l'environnement diélectrique qui sont des grandeurs dépendant de chaque échantillon. Enfin, comme nous le verrons par la suite, les impuretés chargées engendrent des fluctuations de densité qui subsistent même lorsque le dopage est fini, c'est à dire lorsque le niveau de Fermi est loin du point de Dirac. Ces fluctuations sont responsables d'inhomogénéités de la densité de porteurs.

Afin de tester l'hypothèse de diffusion par des impuretés chargées, plusieurs équipes ont modifié l'environnement diélectrique des feuillets de graphène : soit en les déposant sur des matériaux situés eux mêmes au-dessus de l'oxyde de silicium soit en les recouvrant de matériaux ayant un coefficient diélectrique élevé. Dans les deux cas, l'utilisation d'un matériau « high κ » a pour conséquence d'augmenter l'écrantage du potentiel électrostatique des impuretés chargées. Par exemple, Williams *et al.* [85], Özyilmaz *et al.* [86] ou encore Meric *et al.* [87] ont utilisé de l'oxyde de hafnium (HfO_2 , $\epsilon_r \approx 25$) pour des grilles situées au-dessus du feuillet de graphène. L'augmentation de mobilité qu'ils ont pu observer concorde qualitativement avec les prédictions théoriques. Dean *et al.* [88] ont observé des valeurs de mobilité très élevées ainsi que des conductivités sous-linéaires en densité pour des monocouches de graphène déposées sur du nitrure de bore qui ne contient pas *a priori* d'impuretés chargées et donc pour lequel la diffusion par des impuretés chargées est fortement réduite. En déposant des monocouches sur du PMMA ($\epsilon_r \approx 4.5$), on s'attend à un écrantage plus important des impuretés chargées ; Ponomarenko *et al.* [89] ont ainsi pu mettre en évidence des augmentations d'un facteur deux de la mobilité pour des feuillets déposés sur PMMA par rapport à des feuillets déposés sur SiO_2 . Il est à noter que cette observation a été faite dans le cas des échantillons les plus sales, *i.e.* de faible mobilité. Cependant, dans le cas des échantillons propres, il y avait un certain désaccord entre l'augmentation de mobilité prédite lors de l'ajout d'un matériau ayant un coefficient diélectrique élevé et celle observée qui était plus faible. Jang *et al.* [90] ont recouvert *in situ* une monocouche par de la glace afin de réduire la poids des impuretés chargées dans les mécanismes de diffusion. Même si les épaisseurs déposées étaient très faibles (quelques couches monoatomiques), une augmentation de mobilité ainsi qu'une modification de la conductivité (d'une dépendance linéaire vers une dépendance sous-linéaire) ont été mises en évidence. Bien que les interprétations diffèrent entre les travaux précédents et les calculs théoriques de Adam *et al.* [71], ils mettent en évidence que la diffusion par les impuretés chargées jouent un rôle important dans le comportement de la conductivité et dans les valeurs de mobilités généralement observés. Pour finir, des monocouches [80] et des bicouches [91] ont été exposées *in situ* à un flux contrôlé d'ions potassium qui jouent alors le même rôle que les impuretés présentes dans l'oxyde de silicium. Au cours de cette exposition, ils ont pu constater des déplacements des positions du minimum de conductivité. En outre, la conductivité est devenue linéaire ou superlinéaire. Ces observations semblent confirmer que les impuretés chargées sont les principaux facteurs de diffusion dans les échantillons de graphène obtenus par exfoliation, déposés sur de l'oxyde de silicium et de faible mobilité.

Dans notre cas, il est à souligner que l'effet Hall quantique n'a pu être observé que pour dans des échantillons recouverts de PMMA en fin de fabrication, c'est à dire uniquement dans le cas où l'écrantage des impuretés chargées de l'oxyde était relativement important.

9.1.2 Diffuseurs neutres

Un deuxième type de diffusion envisagé est la diffusion par des diffuseurs neutres. Il s'agit alors d'interactions à courte portée (à l'inverse de la diffusion par impuretés chargées) générées par exemple par des lacunes en atomes de carbone dans le réseau. On représente les impuretés neutres par des barrière de potentiel de taille R et de hauteur V_0 . Selon la taille de ces centres diffuseurs, les différents calculs théoriques (Novikov [92], Katsnelson [76] ou Stauber *et al.* [73]) montrent que l'effet semble différent.

Pour des impuretés neutres, on peut écrire la conductivité sous la forme suivante :

$$\sigma \approx \frac{2 e^2 n_S \ln^2(R\sqrt{\pi n_S})}{\pi h n_i} \quad (9.3)$$

dans le cas des monocouches et des bicouches. Lorsque l'on s'approche du point de Dirac, la densité de porteurs est bornée par la concentration en impuretés [92] : $n_{S,min} \approx n_i$. Le valeur du minimum

de conductivité prend la forme suivante :

$$\sigma_0 \approx \frac{2e^2}{\pi h} \ln^2(R\sqrt{\pi n_i}) . \quad (9.4)$$

Les impuretés neutres sont appelées impuretés résonnantes et engendrent une conductivité en \ln^2 .

9.1.3 Diffuseurs ponctuels

Les diffuseurs ponctuels sont des diffuseurs neutres qui ont une extension spatiale R très petite devant la distance interatomique a : $R \ll a$. Ce sont des diffuseurs à courte portée.

Dans le cas de la monocouche, les diffuseurs ponctuels amènent à une conductivité [93] :

$$\sigma \approx \frac{e^2}{h} \frac{1}{n_i R^2} \quad (9.5)$$

où n_i est la concentration des diffuseurs ponctuels. La conductivité est donc constante dans le cas de diffuseurs ponctuels dans une monocouche de graphène : elle ne dépend pas de la densité de porteurs.

Dans le cas de la bicouche, la conductivité s'écrit [76] :

$$\sigma \approx \frac{4e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \ln^2(R\sqrt{\pi n_S}) . \quad (9.6)$$

Autrement dit, les impuretés ponctuelles sont plus efficaces pour diffuser les porteurs dans les monocouches que dans les bicouches.

9.1.4 Diffusions par les phonons et l'ondulation

Pour clore cette partie sur les diffuseurs possibles, il nous reste à évoquer les phonons ainsi que l'ondulation du feuillet de graphène.

Tout d'abord, lorsqu'un feuillet de graphène est déposé sur un substrat, il épouse la rugosité de celui-ci ; l'ondulation du feuillet correspond alors à la rugosité du substrat. Toutefois, des ondulations apparaissent de manière naturelle dans le cas des feuillets suspendus. En outre, des ondulations apparaissent après des cycles thermiques [94] : la contraction thermique opposée en signe du graphène et du substrat entraîne un plissage de la feuille. Ces ondulations ont pu être observées par microscopie électronique par transmission [95], [96] et par microscopie électronique par balayage [94] (*c.f.* figure 9.3). Concernant les effets de ces ondulations sur les propriétés de transport, Katsnelson et Geim [97] ont montré que sous certaines conditions (ondulations de flexion), les ondulations peuvent engendrer une conductivité qui se comporte de la même manière que dans le cas de diffuseurs chargés. Cependant, Adam *et al.* [98], après avoir étudié l'influence de la rugosité de surface, arrivent à la conclusion que les ondulations ne jouent qu'un rôle négligeable dans les propriétés de transport des échantillons actuels. Des théories plus développées sont nécessaires pour appréhender l'effet des ondulations sur les propriétés de transport dans les feuillets de graphène.

En ce qui concerne la diffusion par les phonons, intéressons-nous dans un premier temps aux phonons du graphène. Les mécanismes de diffusion électrons-phonons ont été étudiés d'un point de vue théorique notamment par Hwang *et al.* [99] et Stauber *et al.* [73]. Il faut souligner que seuls les phonons acoustiques longitudinaux sont considérés car les autres modes acoustiques sont trop faibles et les énergies typiques des modes optiques sont trop élevées pour avoir une influence dans la gamme de température 5 – 500 K [99]. Les phonons acoustiques donnent lieu à

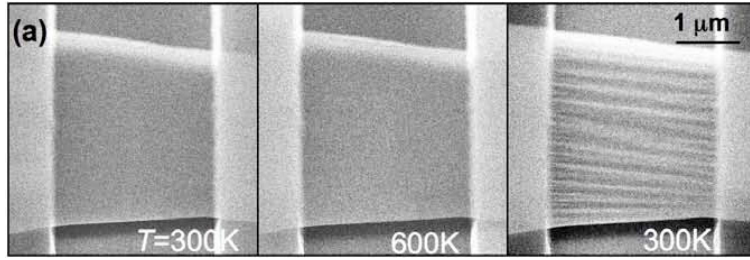


FIGURE 9.3 – Observation des ondulations d’un feuillet de graphène par MEB tirée de [94]; l’image de droite montre qu’après avoir chauffé *in situ* jusqu’à 600 K un feuillet de graphène suspendu, celui-ci devient ondulé.

une résistivité qui décroît en T^4 entre la température ambiante et une température proche de 100 K [99], [73]. Puis, entre 100 K et les températures cryogéniques, la résistivité due uniquement à la diffusion par les phonons du graphène décroît linéairement en température. Dans la pratique, des mesures de conductivité en fonction de la température [81], [79] ont montré une saturation de la mobilité en dessous de 200 K. Il semble donc que la diffusion par les modes de phonons ne joue un rôle majeur qu’à « haute » température, mais qu’une fois à basse température, elle influe peu. Chen *et al.* [79] ont mis en évidence une limite intrinsèque de mobilité dans le graphène due aux phonons acoustiques proche de $2 \times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ à température ambiante (cf figure 9.4). Il faut souligner que cette valeur est supérieure à la meilleure mobilité observée dans un semi-conducteur inorganique (InSb, $7.7 \times 10^4 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$) ou dans des nanotubes de carbone ($\sim 1 \times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$).

Pour finir, il nous reste à évoquer les phonons de surface du substrat. En effet, on sait depuis le début des années 70 que les modes polaires optiques de l’isolant peuvent se coupler au canal de conduction dans un MOSFET silicium [100], [101]. En particulier, les modes de phonons à l’interface entre un diélectrique et un semi-conducteur peuvent limiter la mobilité des porteurs dans le semi-conducteur. Ces phonons résiduels en surface de l’oxyde de silicium fixent une limite extrinsèque pour la mobilité de l’ordre de $4 \times 10^4 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ à température ambiante [79] (cf. figure 9.4).

Comment expliquer que les résultats expérimentaux obtenus par Morozov *et al.* [81], Chen *et al.* [79] et [80] montrent des valeurs de mobilités qui ne soient pas aussi élevées (typiquement $1 \times 10^4 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$) même à basse température? Il semble que les mécanismes de diffusion par impuretés chargées soient les principaux facteurs limitant la mobilité dans les feuillets de graphène exfoliés sur oxyde de silicium, à la fois à température ambiante, mais aussi à basse température. Il est dès lors impossible de prédire une limite stricte pour les valeurs de mobilité, puisque elle dépend de la concentration en impuretés [71] et donc de chaque échantillon.

9.1.5 Bilan

Nous venons de voir que deux des mécanismes de diffusion qui limitent la mobilité des porteurs dans un feuillet de graphène sont la diffusion par des impuretés chargées et les interactions avec les phonons. Pour s’affranchir de ces deux contraintes, une solution consiste à suspendre le graphène et ainsi s’affranchir des interactions avec le substrat. Par gravure de l’oxyde sous le feuillet, de telles structures ont pu être obtenues par Du *et al.* [102] et Bolotin *et al.* [103] par exemple. Ces équipes ont respectivement pu obtenir des valeurs de mobilités autour de $2.5 \times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ et $2 \times 10^5 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$. De plus, les conductivités observées présentent des dépendances sous-linéaires en densité confirmant une considérable réduction de la diffusion par des impuretés chargées. Enfin, de récents dépôts de graphène sur des substrats en nitrure de bore par Dean *et al.* [88] ont permis d’atteindre des mobilités de l’ordre de $7 \times 10^4 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$ confirmant ainsi que

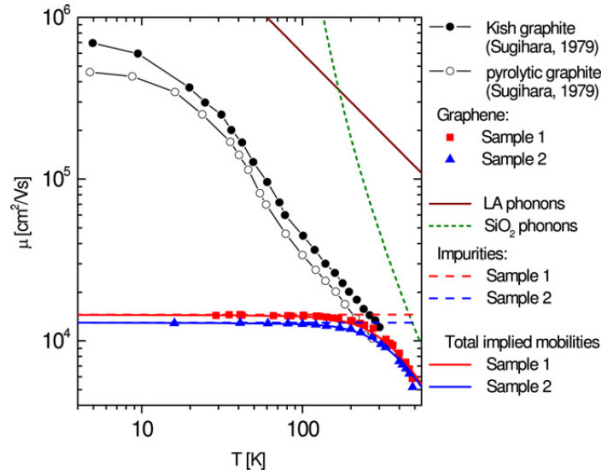


FIGURE 9.4 – Evolution de la mobilité de deux monocouches en fonction de la température, comparaison avec du graphite et les limites théoriques imposées par les phonons du graphène et ceux de surface de l'oxyde de silicium. Courbe tirée de [79].

les mobilités observées sur des feuillets déposés sur oxyde de silicium sont fortement limitées par ce substrat et les impuretés chargées qui y sont présentes.

Pour terminer cette partie dévolue au transport électronique dans des feuillets de graphène, il nous reste à évoquer une manière de discriminer les diffuseurs à longue portée de ceux à courte portée. Ce traitement phénoménologique est notamment utilisé par les équipes qui ont pu obtenir des échantillons de très haute mobilité [81], [102], [88] ou lorsque la conductivité devient sous-linéaire après avoir recouvert *in situ* une monocouche par de la glace [80] ou par du glycérol [89].

Le traitement phénoménologique repose sur la loi de Matthiessen qui permet de sommer les résistivités dues à des mécanismes différents pour obtenir la résistivité totale. La formule généralement employée pour des échantillons de graphène tient compte de tous les mécanismes possibles de diffusion évoqués précédemment [80] :

$$\sigma(n_S)^{-1} = \sigma_{CI}(n_S)^{-1} + \sigma_{SR}^{-1} + \sigma_{NI}^{-1} + \sigma_{Corrug.}^{-1} \quad \text{avec} \quad \sigma_{CI}(n_S) = n_S e \mu + \sigma_0 \quad (9.7)$$

où CI = Impuretés chargées, SR = Impuretés ponctuelles, NI = Impuretés neutres, $Corrug.$ = Corrugation.

σ_{CI} est la conductivité linéaire en densité due aux impuretés chargées et σ_{SR} est la conductivité constante due aux diffuseurs courte portée. Nous serons amenés à utiliser la formule suivante pour l'un de nos échantillons :

$$\sigma(n_S)^{-1} = \sigma_{CI}(n_S)^{-1} + \sigma_{SR}^{-1} \quad \text{avec} \quad \sigma_{CI}(n_S) = n_S e \mu + \sigma_0 \quad (9.8)$$

9.2 $\sigma(V_G)$

9.2.1 Conductivité à champ nul

D'un point de vue expérimental, une fois les différents échantillons refroidis, la première caractérisation électrique consiste à mesurer, sans champ magnétique, la résistance longitudinale en fonction de la tension de grille. Cette résistance est mesurée dans une géométrie « 4 fils ». La

figures 9.5 montrent les caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ obtenues sur les échantillons ML001 (ligne du haut), ML002 (ligne du milieu) et BL006 (ligne du bas) à basse température (1.3 K pour les deux monocouches et 0.35 T pour la bicouche). Pour les trois échantillons, on constate que la résistance marque un maximum fini pour une certaine tension de grille correspondant à la position du point de Dirac. En plus de la mesure du pic de $R_{xx}(V_G)$, on mesure la résistance de Hall pour confirmer la position du changement de signe de la résistance et donc de la nature des porteurs. On prend alors cette valeur de tension comme référence pour calculer la densité de porteurs libres n_S en utilisant les formules de l'effet de champ pour les épaisseurs d'oxyde concernées. A champ magnétique nul, la conductivité, σ , s'exprime comme l'inverse de la résistivité : $\sigma = 1/\rho$. A partir des caractéristiques $R_{xx}(V_G)$, on peut déterminer l'évolution de la conductivité en fonction de la densité $\sigma(n_S)$. Ces courbes sont représentées colonne de droite sur la figure 9.5. Les conductivités sont exprimées en e^2/h . Dans les gammes de densité étudiées, les propriétés de conduction ne sont pas identiques pour les trois échantillons. Pour l'échantillon ML001 la conductivité est sous-linéaire en densité et les mobilités respectives en dopage trous et électrons ($|n_S| = 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) sont $\mu_t \approx 8000 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ et $\mu_e \approx 5200 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Pour ML002, la conductivité est linéaire et on a : $\mu_t \approx 4000 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ et $\mu_e \approx 3300 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Enfin, pour BL006 la conductivité est super-linéaire et on a : $\mu_t \approx 2600 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ et $\mu_e \approx 2300 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Nous discuterons des asymétries observées plus loin.

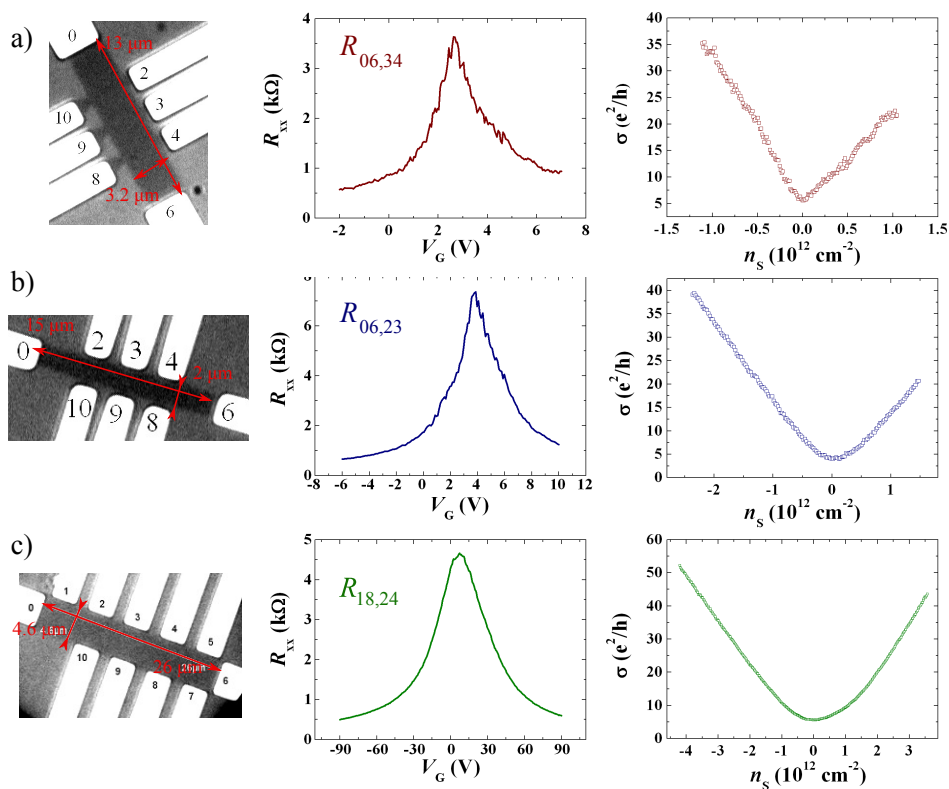


FIGURE 9.5 – Caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ de deux monocouches sur 90 nm d'oxyde et d'une bicouche sur 500 nm d'oxyde : a) image optique isolée sur les pixels verts, caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ et $\sigma(n_S)$ de l'échantillon ML001. b) image optique isolée sur les pixels verts, caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ et $\sigma(n_S)$ de l'échantillon ML002. c) image optique isolée sur les pixels verts et caractéristiques $R_{xx}(V_G)$ et $\sigma(n_S)$ de l'échantillon BL006

Nous allons interpréter le comportement de la conductivité de chaque échantillon à l'aide des mécanismes de diffusion évoqués plus haut.

Echantillon ML002

Du fait de la dépendance linéaire de la conductivité, on est amené à envisager en premier lieu des mécanismes de diffusion par des impuretés chargées. Dans la littérature, deux méthodes de calcul de l'écrantage sont utilisées : soit l'écrantage de type Thomas-Fermi [73] soit par l'approximation de la phase aléatoire (RPA pour « Random Phase Approximation ») [71]. Quel que soit le mode de calcul de l'écrantage, le résultat est que la conductivité s'écrit comme le produit du quantum de conductivité, e^2/h , du rapport de la densité de porteurs par la densité d'impuretés, n_S/n_i , et d'une constante sans dimension A :

$$\sigma = A \frac{e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \quad \text{pour} \quad n_S \geq n^* \quad (9.9)$$

où n^* est la densité de porteurs piégés dans les flaques, nous en discuterons plus loin.

Explicitons, pour chaque mode de calcul de l'écrantage, l'expression de A .

Pour l'écrantage de type Thomas-Fermi [73] :

$$A_{TF} = \frac{32\pi(\epsilon_0\epsilon_r\hbar v_F + e^2)}{Ze^2}, \quad (9.10)$$

où Z est la charge des diffuseurs. Dans la suite, on prendra $Z = 1$.

Pour le mode de calcul RPA [74] :

$$A_{RPA} = \frac{1}{r_s^2 I(2r_s)}, \quad (9.11)$$

avec $r_s = 2e^2/(4\pi\epsilon_0(\epsilon_{PMMA} + \epsilon_{SiO_2})\hbar v_F)$ le paramètre de l'interaction (rapport entre l'énergie coulombienne écrantée et l'énergie de bande de la monocouche) et :

$$I(x) = \frac{\pi}{2} + 4x - 3\pi x^2 - 2x\sqrt{1-x^2} \left(2 \ln \frac{1+\sqrt{1-x^2}}{x} - 1 \right) + 2x^3 \left(\frac{1}{1+\sqrt{1-x^2}} + \frac{1}{\sqrt{1-x^2}} \ln \frac{1+\sqrt{1-x^2}}{x} \right)$$

La constante diélectrique ϵ_r est une constante diélectrique moyenne qui tient compte de la présence ou non d'un matériau au-dessus du feuillet de graphène. Pour les trois échantillons que nous présentons ici, les feuillets sont recouverts de PMMA pour lequel on prend $\epsilon_r = 4.5$. En outre, nous avons vérifié que les épaisseurs étaient importantes, en particulier supérieures à quelques couches monoatomiques. Le calcul des constantes A pour chaque mode de calcul de l'écrantage donne :

$$\sigma_{TF} \simeq 23.75 \frac{e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \quad \text{et} \quad \sigma_{RPA} \simeq 28.5 \frac{e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \quad (9.12)$$

Les deux méthodes de calcul amènent à des estimations légèrement différentes de n_i à partir de la pente de $\sigma(n_S)$. La figure 9.6 montre l'ajustement linéaire pour la conductivité de l'échantillon ML002. Au vu des asymétries entre le dopage trous et le dopage électrons, cet ajustement est fait de manière indépendante pour le dopage trous et pour le dopage électrons. Les valeurs de n_i ensuite moyennées sur les deux régimes de dopage sont résumées dans le tableau 9.1.

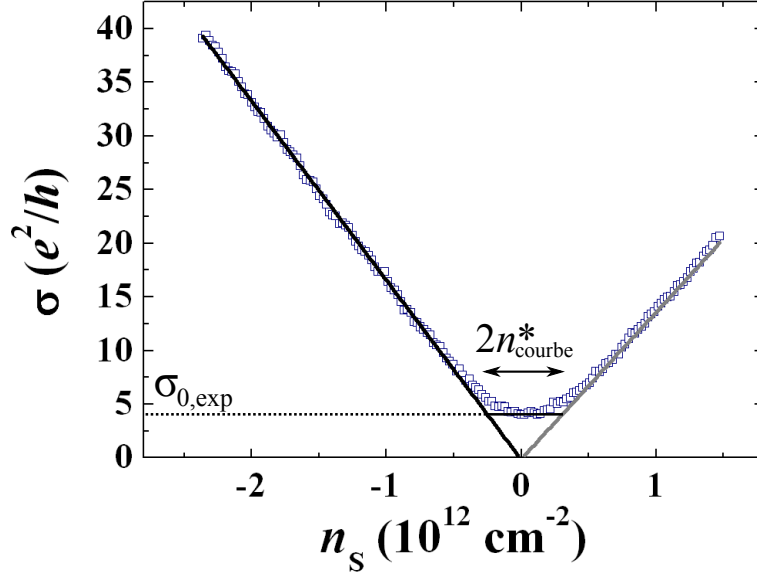


FIGURE 9.6 – Ajustement linéaire de $\sigma(n_S)$ pour l'échantillon ML002 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

n_i TF	n_i RPA
1.57×10^{12}	1.88×10^{12}

TABLE 9.1 – Comparaison des densités en impuretés, exprimées en cm^{-2} , en fonction de la méthode de calcul du potentiel écranté pour l'échantillon ML002.

On peut utiliser la valeur de n_i pour estimer la taille caractéristique, ξ_{flaques} , des flaques d'électrons et de trous [75] : $\xi_{\text{flaques}} \approx 1/(r_s^2 \sqrt{n_i})$ où r_s est la paramètre d'interaction. On obtient $\xi_{\text{flaques}} \approx 33$ nm ce qui est proche des valeurs observées dans [70].

Le calcul du temps de transport se fait grâce à la formule d'Einstein 2.8 page 34 :

$$\sigma = e^2 D g(\epsilon_F) \quad (9.13)$$

avec $D = 1/2v_F l = 1/2v_F^2 \tau_{tr}$ est le coefficient de diffusion, $g(\epsilon_F) = 2\epsilon_F/\pi\hbar^2 v_F^2$ est la densité d'états au niveau de Fermi et $\epsilon_F = \hbar v_F k_F = \hbar v_F \sqrt{\pi n_S}$. Au final, on a

$$\tau_{tr} = \sqrt{\frac{\pi}{n_S}} \frac{\hbar \sigma}{e^2 v_F} \quad (9.14)$$

La figure 9.7 montre le temps de transport à champ magnétique nul à $T=1.3$ K pour l'échantillon ML002. Les temps de transport expérimentaux sont extraits de la conductivité et les temps théoriques sont calculés de manière indépendante sur les deux régimes de dopage avec les concentrations en impuretés non moyennées. Le temps de transport pour $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ est égal à 25.9 fs. En ce qui concerne les libres parcours moyens de transport, notés l_{tr} , ils peuvent être rapidement déduits des valeurs de τ_{tr} grâce à la relation $l_{tr} = v_F \tau_{tr}$. Le libre parcours moyen pour $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ est égal à 28.5 nm. Le produit $k_F l_{tr}$ varie entre 4 et 19.6 en dopage

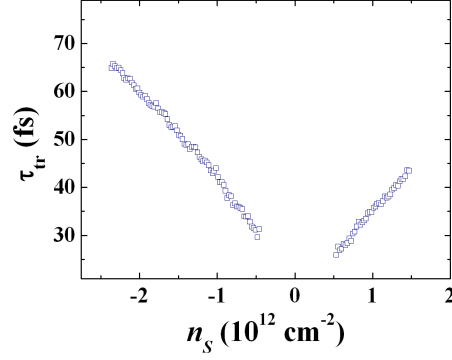


FIGURE 9.7 – Temps de transport expérimental pour l'échantillon ML002.

trous et entre 3.7 et 10.3 en dopage électrons ; l'approche de Drude-Boltzmann est donc justifiée pour décrire le transport dans nos échantillons.

Pour poursuivre cette étude de la monocouche ML002, on peut regarder la valeur du minimum de conductivité. On a : $\sigma_{0,exp} \approx 4e^2/h$ (c.f. figure 9.6). Dans le cadre de la diffusion par des impuretés chargées, cette valeur permet de déterminer la densité résiduelle de porteurs piégés dans les flaques, n^* . Dans l'approche RPA, on a [71] :

$$\sigma_0 \simeq 28.5 \frac{e^2}{h} \frac{n^*}{n_i} \quad (9.15)$$

Dans notre cas, on trouve : $n^* \approx 2.6 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$. La valeur de n^* est reliée à la distance d entre les impuretés chargées et le feuillet de graphène par l'équation : $n^*/n_i = 2r_s^2 C_0^{RPA}(r_s, 4d\sqrt{\pi n^*})$ où C_0^{RPA} la fonction donnant la fluctuation du potentiel électrostatique. En ajustant aux valeurs expérimentales, on trouve $d \approx 1.9 \text{ nm}$, correspondant aux valeurs typiques observées dans le cas des MOSFET silicium ([83], [84]).

En combinant les valeurs de ξ_{flaques} , taille des flaques, et n^* , concentrations en porteurs piégés dans celles-ci, on peut estimer que chaque flaque contient en moyenne 10 charges élémentaires. Avant de passer à l'étude de la bicouche, on peut regarder la largeur du plateau de conductivité ainsi que la position du minimum. Pour mesurer la largeur du plateau, on prend la tangente à la courbe de conductivité au niveau du minimum, $\sigma_{0,exp}$, et on mesure la distance en densité au niveau de l'intersection de cette tangente et des ajustements linéaires. Cette distance en densité est égale au double de la densité de porteurs piégés dans les flaques n_{courbe}^* . On a $2n_{\text{courbe}}^* \approx 5.5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$. Cette valeur est très proche de la valeur $2n^* = 5.2 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ déterminée par la valeur de σ_0 . Concernant le décalage en tension grille, on a $\bar{n} = n_i^2/(4n^*) = 3.3 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$. Cette valeur est trois fois plus élevée que la valeur déterminée expérimentalement : $n_{res} = \alpha\Delta V = 1 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$. On obtient un accord d'un facteur 3 entre les prédictions théoriques et nos observations ce qui est très satisfaisant. Il est possible que l'origine du décalage en tension grille ne s'explique pas entièrement par les impuretés chargées [104], [91].

On peut aussi essayer d'ajuster les données à l'aide des mécanismes de diffusion résonnantes. Un tel ajustement est représenté figure 9.8 où on a utilisé la formule 9.6. On constate qu'il est possible de rendre compte du comportement de la conductivité à haute densité grâce à la formule suivante :

$$\sigma \approx \frac{2}{\pi} \frac{e^2}{h} \frac{n_S}{n_i} \ln^2(R\sqrt{\pi n_S}) \quad \text{pour} \quad Rk_F \ll 1 \quad (9.16)$$

avec les paramètres ajustables n_i et R indépendants sur les régimes de trous et d'électrons. Pour les deux régimes de dopage on obtient la même concentration en impuretés : $n_i \approx 6 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$. Dans les deux régimes de dopage, on obtient des tailles d'impuretés légèrement différentes : $R = 0.05$

nm pour les trous et $R = 0.07$ nm pour les électrons. En utilisant la formule 9.4, on peut calculer la valeur prédite pour le minimum de conductivité dans le cas de la diffusion résonnante; pour $n_i \approx 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et $R = 0.06$ nm, on obtient $\sigma_0 \approx 14.7e^2/h$. Cette valeur est plus de trois fois plus grande que la valeur expérimentale $\sigma_{0,exp} \approx 4e^2/h$. Ce dernier calcul nous amène à exclure les mécanismes de diffusion à courte portée pour l'échantillon ML002.

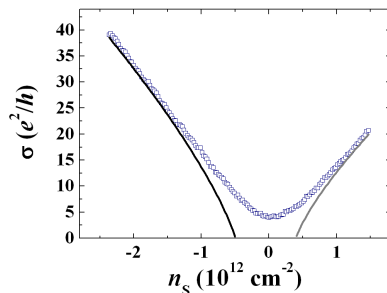


FIGURE 9.8 – Ajustement de $\sigma(n_S)$ par des mécanismes de diffusion résonnante pour l'échantillon ML002 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

Au final, concernant l'échantillon ML002, on a donc un très bon accord entre les données expérimentales (branches linéaires de la conductivité, valeur du minimum et largeur du plateau) et les prédictions théoriques dans le cadre de la diffusion par impuretés chargées.

Echantillon BL006

En ce qui concerne la bicouche (échantillon BL006), la conductivité présente une dépendance super-linéaire en densité. Seule la diffusion par des impuretés chargées prédit une telle dépendance. En considérant le hamiltonien quadratique, la conductivité se met sous la forme suivante [77] :

$$\sigma(n_S) \approx \frac{4e^2}{\pi h} \frac{n_S}{n_i} [1 + \sqrt{n_S}(d[nm] + 0.67 \times 10^{-9})] \text{ pour } q_{TF} \ll 2k_F \quad (9.17)$$

Au premier ordre, la conductivité est linéaire en densité. Nous avons cependant utilisé la formule complète pour ajuster aux données expérimentales et rendre compte de la légère super-linéarité observée. Pour cet ajustement, d et n_i sont les paramètres ajustables. Il est représenté figure 9.9. On obtient la valeur suivante pour la concentration en impuretés moyennée sur les dopages trous et électrons : $n_i \approx 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et pour la distance entre les impuretés et la bicouche : $d \approx 1$ nm. On trouve une valeur très proche de celle déterminée dans le cas de l'échantillon ML002. Le fait de trouver des valeurs de n_i similaires pour les deux échantillons conforte notre analyse sur les impuretés chargées étant donné que les substrats viennent du même fournisseur. Toutefois, les épaisseurs d'oxyde sont différentes (90 nm pour ML002 et 500 nm pour BL006). Le taux de défauts de stœchiométrie dans l'oxyde qui sont à l'origine des impuretés chargées semble être intrinsèque à l'oxydation d'un substrat de silicium, peu importe le temps d'exposition au flux d'oxygène.

La figure 9.10 représente le temps de transport extrait des données expérimentales de l'échantillon BL006. Le temps de transport pour $n_s = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ est égal à 50 fs. Comme dans la monocouche ML002, le temps de transport décroît lorsqu'on s'approche du CNP. Pour calculer les libres parcours moyens, on utilise la formule $l_{tr} = v_F \tau_{tr}$ en tenant compte du fait que pour la bicouche, v_F dépend de la densité : $v_F = \hbar \sqrt{\pi n_S} / m^*$. Le libre parcours moyen pour $n_s = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ est égal à 41.7 nm. Quant au produit $k_F l_{tr}$, il varie entre 7.3 et 26 en dopage trous et entre 7 et 21.7 en dopage électrons, ce qui justifie l'approche de Drude-Boltzmann (approche diffusive du transport électronique).

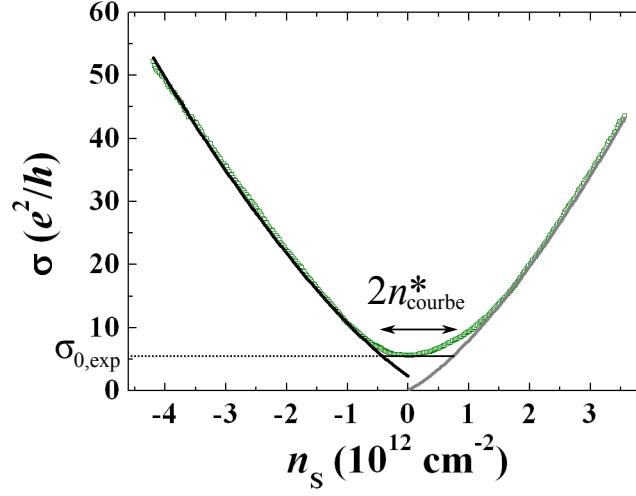


FIGURE 9.9 – Ajustement super-linéaire de $\sigma(n_S)$ pour l'échantillon BL006 en utilisant la formule 9.17 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

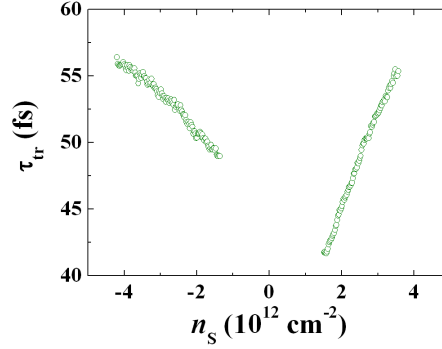


FIGURE 9.10 – Temps de transport expérimental calculé par la formule de Drude pour l'échantillon BL006.

Concernant la valeur du minimum de conductivité, on a : $\sigma_{0,exp} \approx 5.5e^2/h$. Cette valeur est légèrement écartée de la valeur théorique : $\sigma_{0,th} = 16/\pi e^2/hn^*/n_i \approx 3.4e^2/h$ avec

$$n^* = \sqrt{\tilde{n}n_i} = 1.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \quad \text{et} \quad \tilde{n} = \frac{1}{2\pi} q_{TF}^2 C_0^{TF} (2q_{TF}d) = 8.9 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \quad (9.18)$$

La fonction de fluctuation du potentiel est dans le cas de la bicouche : $C_0^{TF} (2q_{TF}d = 2 \times 1.3 \text{ nm}^{-1} \times 1 \text{ nm}) \approx 0.157$. On a toutefois un accord qualitatif relativement bon. En utilisant la valeur de \tilde{n} on peut calculer la taille typique des flaques : $\xi_{\text{flaques}} = 1/\sqrt{\tilde{n}} \approx 11 \text{ nm}$ et chaque flaque contient en moyenne 5 charges élémentaires. Ces deux valeurs sont plus faibles que dans le cas de la monocouche ML002.

Enfin, la largeur prédite du plateau de conductivité est $2n^* = 2.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ ce qui est très proche de la valeur observée expérimentalement ($2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). Par contre, et de manière analogue à la monocouche ML002, la position du minimum de conductance ne concorde pas avec le décalage en tension grille observé : $\tilde{n} = n_i \approx 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_{res} = \alpha \Delta V = 6.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$

respectivement. On a toutefois un accord d'un facteur 3 avec la théorie comme dans le cas de ML002.

Pour conclure, on peut dire que les mécanismes de diffusion par des impuretés chargées permettent de bien rendre compte du comportement de la conductivité observé sur l'échantillon BL006 : à la fois les dépendances en densité, les valeurs du minimum de conductivité mais aussi la largeur du plateau. On observe toutefois un écart concernant la position du minimum de conductivité. En outre, les mécanismes à courte portée ne permettent pas de rendre compte de la super-linéarité de la conductivité que l'on a observée.

Echantillon ML001

La courbe de conductivité de l'échantillon ML001 (*c.f.* figure 9.5-a)) met en évidence un dépendance sous-linéaire.

En premier lieu, nous avons essayé d'ajuster les données expérimentales à l'aide des mécanismes de diffusion résonnante (formule 9.6). Il ne nous a pas été possible de reproduire le comportement de la conductivité. La figure 9.11 représente un exemple d'ajustement pour $n_i \approx 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et $R = 0.02 \text{ nm}$ et $R = 0.09 \text{ nm}$ respectivement en dopage trous et en dopage électrons. En outre, pour une telle valeur de n_i , la valeur prédite théoriquement pour le minimum de conductivité est : $\sigma_0 \approx 15.2e^2/h$ (avec $R = 0.055 \text{ nm}$). Elle est trois fois plus élevée que la valeur expérimentale : $\sigma_{0,exp} \approx 5.8e^2/h$. Notre conclusion est que les impuretés résonnantes ne sont pas la principale source de diffusion des porteurs dans l'échantillon ML001.

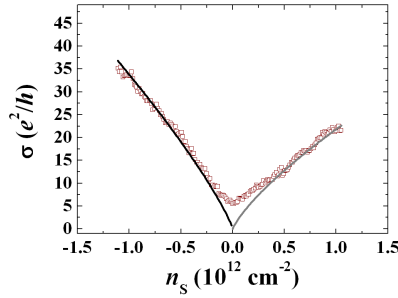


FIGURE 9.11 – Ajustement de $\sigma(n_S)$ par des mécanismes de diffusion résonnante pour l'échantillon ML001 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

Pour rendre compte de la sous-linéarité, on pourrait aussi utiliser la formule 9.7, qui introduit un terme de conductivité constant σ_{SR} dû à des diffuseurs ponctuels à courte portée. L'ajustement que l'on obtient est représenté sur la figure 9.12. On constate un très bon accord avec les données expérimentales en prenant les valeurs suivantes :

$$\rho_{SR,\text{trous}} = \frac{1}{\sigma_{SR,\text{trous}}} = 95 \Omega \quad \text{et} \quad \mu_{\text{trous}} = 8000 \text{ cm}^2/(\text{V.s}) \quad (9.19)$$

$$\rho_{SR,\text{électrons}} = \frac{1}{\sigma_{SR,\text{électrons}}} = 190 \Omega \quad \text{et} \quad \mu_{\text{électrons}} = 5000 \text{ cm}^2/(\text{V.s}) . \quad (9.20)$$

Les valeurs des ρ_{SR} sont comparables avec celle déterminées par d'autres groupes ([80], [81], [88]).

Une fois cet ajustement fait, on retranche ce terme constant ; on obtient alors une conductivité linéaire en densité (*c.f.* Figure 9.13). On ajuste alors la conductivité par des branches linéaires et on extrait des concentrations en impuretés chargées comme cela a été fait pour l'échantillon

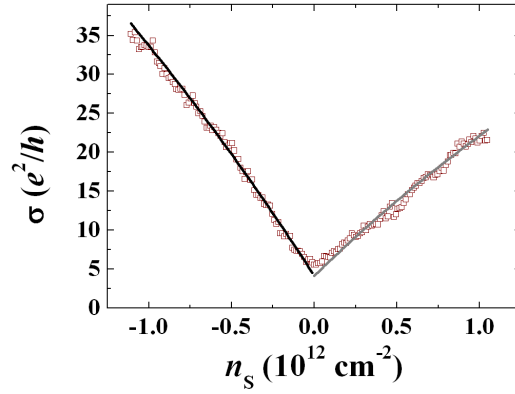


FIGURE 9.12 – Ajustement de $\sigma(n_S)$ en introduisant une conductivité constante due à des diffuseurs courte portée pour l'échantillon ML001 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

ML002 avec le modèle de Das Sarma. Les valeurs ainsi déterminées sont données dans le tableau 9.2. Elles sont du même ordre de grandeur que celles déterminées pour les échantillons ML002 et BL006 mais plus faibles d'un facteur 2. Nous discuterons de cela plus loin (page 140). Ensuite, en utilisant la valeur $\sigma_{0,exp} \approx 5.8e^2/h$ pour calculer la densité de porteurs piégés dans les flaques : $n^* \approx 2.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Cette valeur est très proche de celle déterminée pour l'échantillon ML002 et confirme que la distance entre le feuillet de graphène et les impuretés chargées est $d \approx 1 \text{ nm}$.

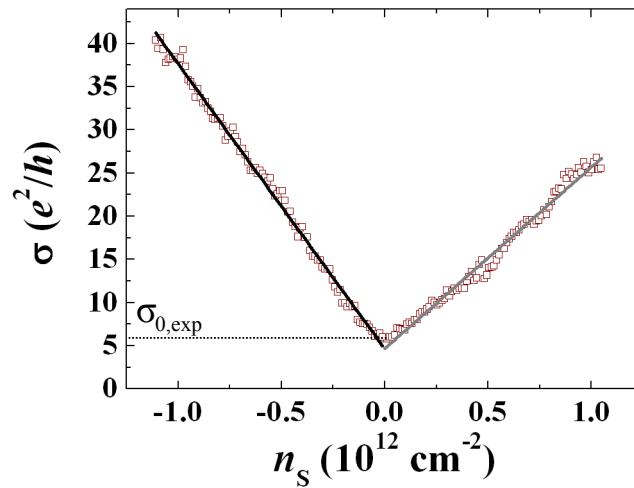


FIGURE 9.13 – Ajustement de $\sigma(n_S)$ linéaire par des diffuseurs chargés pour l'échantillon ML001 : en trait noir pour le régime de dopage trous et en trait gris pour le régime de dopage électrons.

Enfin, les temps de transport pour $n_S = 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_S = -1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ sont respectivement égaux à 100 et 156 fs. Les libres parcours moyens pour ces mêmes valeurs de densité sont respectivement égaux à 110 et 172 nm. Au vue de ces valeurs, l'échantillon ML001 présente de meilleures propriétés de transport que les deux autres échantillons. Enfin, le produit

n_i TF	n_i RPA
0.93×10^{12}	1.11×10^{12}

TABLE 9.2 – Comparaison des densités en impuretés, exprimées en cm^{-2} , en fonction de la méthode de calcul du potentiel écranté pour l'échantillon ML001.

$k_F l_{tr}$ varie entre 3.6 et 17.6 en dopage trous et entre 3.8 et 11.2 en dopage électrons, ce qui justifie une fois de plus l'approche de Drude-Boltzmann (approche diffusive du transport électronique).

9.2.2 Mobilités

La figure 9.14 représente les mobilités extraites des données expérimentales (*c.f.* équation 2.2) des échantillons ML001, ML002 et BL006 (ML001 à gauche, ML002 et BL006 à droite sur le même graphe). On remarque que les mobilités divergent lorsque l'on s'approche des points de Dirac, *i.e.* lorsque la conductivité sature à très faible densité. Les valeurs de mobilité pour chaque régime de dopage sont données dans le tableau 9.3. D'un point de vue général, les valeurs de mobilité sur l'échantillon ML001 sont supérieures à celles de l'échantillon ML002 quel que soit le régime de dopage. Quant à l'échantillon BL006, les valeurs sont globalement inférieures à celles des deux monocouches. En particulier, on a vu que les mécanismes de diffusion des porteurs par des impuretés chargées sont identiques entre ML002 et BL006 ; leurs effets sont donc plus importants dans une bicouche que dans une monocouche [77].

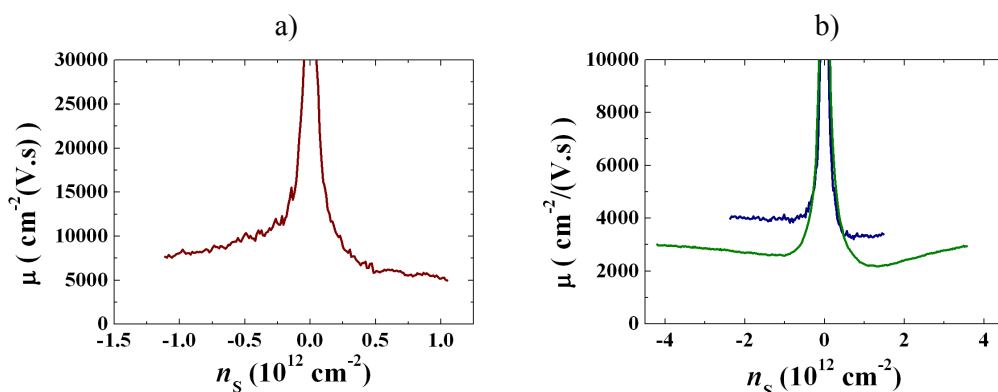


FIGURE 9.14 – Mobilités des porteurs extraites des courbes de conductivité pour l'échantillon ML001 (-a) et pour les échantillons ML002 et BL006 (-b). On a fait figurer en gris les zones où les conductivités saturent.

Porteurs	μ		
	ML001	ML002	BL006
trous	8080	4010	2600
électrons	5180	3315	2260

TABLE 9.3 – Mobilités moyennes, exprimées en $\text{cm}^2/(\text{V.s})$, à basse température pour $|n_S| = 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ pour les échantillons ML001, ML002 et BL006

De plus, on constate une asymétrie entre les valeurs de mobilité des trous et celles des électrons : les mobilités des électrons sont respectivement 46%, 16% et 15% plus faibles que celles

des trous pour les échantillons ML001, ML002 et BL006 (comparaison des valeurs à $n_S = \pm 1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). Ces écarts ne sont pas prédits dans une approche de coexistence de diffuseurs attractifs et de diffuseurs répulsifs [72]. Dans notre cas, on a vu que la tension de grille pour laquelle R_{xx} marque un maximum est positive; dans une approche de diffusion par des impuretés chargées, on aurait prédominance d'impuretés négativement chargées, autrement dit des accepteurs. On s'attendrait alors à avoir une mobilité plus élevée pour les électrons que pour les trous, ce qui n'est pas le cas. Comme cela a été évoqué précédemment, l'origine du décalage en tension grille n'est pas clairement identifiée. L'origine de l'asymétrie entre électrons et trous peut aussi être un effet dû aux contacts (*c.f.* [105]), bien que dans notre cas les contacts soient non invasifs. Des asymétries des propriétés de transport comparables aux nôtres ont été observées [106], [89]. Elles peuvent être due à des changements de configurations des impuretés chargées suite à des déplacements de celles-ci.

Les trois échantillons ont été obtenus par exfoliation du même graphite naturel sur des substrats identiques (hormis l'épaisseur d'oxyde). Le procédé de fabrication qui suit l'exfoliation (lithographie des contacts, dépôt des métaux, gravure du graphène) est aussi le même. La seule différence qui existe est la préparation du substrat juste avant l'application du ruban adhésif; pour l'échantillon ML001, la substrat a été nettoyé à l'aide d'une attaque chimique en phase aqueuse (solution « pirhana », $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}_2$) alors que pour les échantillons ML002 et BL006, le substrat a été nettoyé à l'aide d'une attaque au plasma d'oxygène. Il est possible que lors de cette dernière, les radicaux oxygène, en plus de dégrader des résidus organiques, créent des défauts de stœchiométrie dans l'oxyde et donc d'impuretés chargées. Ceci pourrait expliquer la différence des propriétés de transport électronique entre les trois échantillons.

9.2.3 Manifestation de l'inhomogénéité de la densité

On vient de voir que les impuretés chargées situées dans l'oxyde de silicium sont dominants dans les mécanismes de diffusion dans deux des trois échantillons que nous avons pu caractériser au LNE. Ces impuretés chargées sont responsables de fluctuations de la densité; il est impossible d'atteindre en pratique le point de Dirac. Lorsque le niveau de Fermi en est proche, il se forme des flaques d'électrons et de trou qui assurent une conductivité finie. Ces inhomogénéités de la densité n'existent pas seulement au voisinage du point de Dirac : elles subsistent aussi lorsque le niveau de Fermi est loin du point de Dirac [75]. On s'attend à ce que ces inhomogénéités se manifestent sur la taille des flaques. Par ailleurs, on a des inhomogénéités macroscopiques de la densité qui se manifestent sur des échelles beaucoup plus que grandes que leur longueur de corrélation ($\xi_{\text{flaques}} \approx 30 \text{ nm}$). Ces inhomogénéités macroscopiques peuvent être liées à des inhomogénéités des impuretés chargées dans l'oxyde.

Nous proposons ici trois exemples de manifestation de l'inhomogénéité de la densité.

Echantillon ML002

Lorsque plusieurs contacts sont disponibles, on peut comparer les propriétés de transport à champ magnétique nul en différentes zones de l'échantillon. Par exemple, sur l'échantillon ML002, il nous a été possible de comparer la conductivité entre les contacts 2 et 3 (conductivité étudiée dans la partie précédente) à celle entre les contacts 8 et 9. La figure 9.15 représente les conductivités ainsi obtenues en fonction de la tension de grille. On constate deux faits importants : tout d'abord, les deux courbes de conductivité atteignent leur minimum en des tensions de grille différentes et d'autre part la valeur des deux minima n'est pas la même. A-partir de l'écart en tension on peut estimer l'inhomogénéité de la densité : $\Delta n = 2.4 \times 10^{11} \Delta V_G \approx 3.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Il existe donc des fluctuations spatiales de la densité de l'ordre de $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ au sein de l'échantillon ML002.

De plus, en utilisant les branches linéaires de conductivité, on peut estimer la densité en impuretés entre les contacts 8 et 9. En raison du faible nombre de points dans la partie de dopage

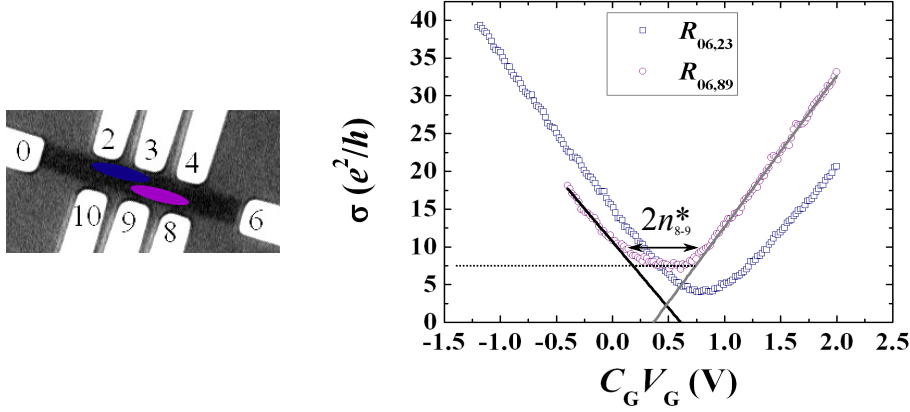


FIGURE 9.15 – Conductivités en deux zones différentes de l'échantillon ML002 à courant et configuration de polarisation de la grille identiques. A gauche la photographie du feuillet et à droite les courbes de conductivité en fonction de la tension de grille.

trous, nous n'avons considéré que la pente de la courbe dans la partie électrons. On trouve : $n_{i,8-9} \approx 1.95 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Cette valeur est très proche de celle déterminée entre les contacts 2 et 3 : $n_{i,2-3} = 2.05 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ pour le dopage en électrons. Dans toute la suite, lorsque nous parlerons de la configuration 2-3, nous considérerons uniquement les valeurs pour le dopage en électrons pour pouvoir comparer à ce même régime de dopage dans la configuration 8-9.

Ensuite, en utilisant les valeurs des minima de conductivité :

$$\sigma_{0,2-3} \approx 4 \frac{e^2}{h} \quad \text{et} \quad \sigma_{0,8-9} \approx 7 \frac{e^2}{h}, \quad (9.21)$$

on peut mettre en évidence des différences de densité de porteurs piégés dans les flaques près du point de Dirac :

$$n_{2-3}^* \approx 2.9 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \quad \text{et} \quad n_{8-9}^* \approx 4.8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}. \quad (9.22)$$

Enfin, on peut comparer les décalages en tension grille en fonction des deux zones de l'échantillon :

$$\bar{n}_{2-3} = \frac{n_{i,2-3}^2}{4n_{2-3}^*} \approx 3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \quad \text{et} \quad \bar{n}_{8-9} = \frac{n_{i,8-9}^2}{4n_{8-9}^*} \approx 2.1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}. \quad (9.23)$$

Ces valeurs sont inférieures aux décalages en tension grille réellement observés sur l'échantillon : $3.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Toutefois, d'un point de vue qualitatif, on constate que les décalages prédits concordent avec ce que l'on observe : $\bar{n}_{8-9} < \bar{n}_{2-3}$ et le minimum de conductivité dans la zone 8 – 9 est atteint pour une tension grille plus faible que pour la zone 2 – 3.

Dans tout le raisonnement que l'on vient de tenir on a supposé sans le mentionner que la distance d entre les impuretés chargées et le feuillet de graphène est la même pour les deux configurations de mesure. Or une différence de minimum de conductivité peut être due à une variation de d . Qualitativement, une distance d plus faible ($d \approx 0.5 \text{ nm}$) peut expliquer le comportement différent de la conductivité selon la configuration de mesure.

Cette analyse des inhomogénéités sur l'échantillon ML002 valide l'hypothèse de la diffusion des porteurs de charge par des impuretés chargées dans l'échantillon ML002.

Echantillon ML001

Après un second recuit *in situ* de l'échantillon ML001, une structure à double pic de Dirac a pu être observée : la résistance longitudinale possède deux maxima distincts (Figure 9.16). Chaque pic correspond à des points de Dirac différents, c'est à dire des états électrons-trous sous formes de flaques, en des zones distinctes de l'échantillon. Lorsqu'on mesure la résistance « aux bornes » des deux zones ($R_{06,24}$) en fonction de la tension de grille, les résistances de chaque zone ($R_{06,23}$ et $R_{06,34}$) vont s'additionner car disposées en série. A partir de l'écart en tension de grille des deux pics, on peut estimer l'inhomogénéité de la densité : $\Delta n = 2.4 \times 10^{11} \Delta V_G \approx 3.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

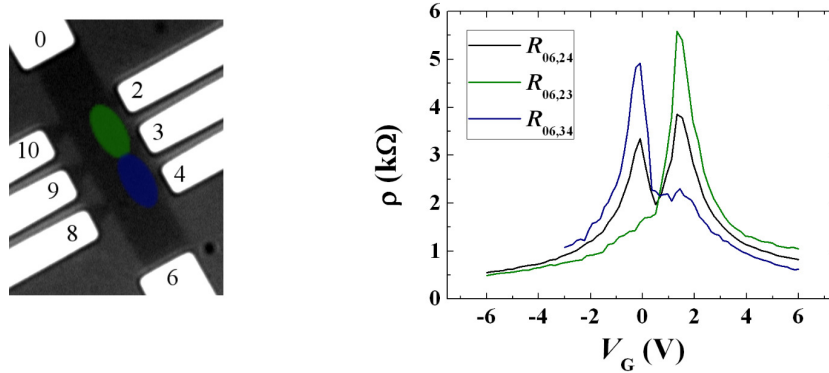


FIGURE 9.16 – Structure à double pic de Dirac observée dans une monocouche. À gauche on a fait figurer une photographie de l'échantillon ainsi que les zones physiques aux bornes desquelles les résistances ont été mesurées.

Echantillon BL006

La figure 9.17 permet de comparer la conductivité pour deux configurations d'injection du courant différentes : $R_{18,24}$ et $R_{17,34}$. La conductivité pour cette dernière marque un minimum plus étroit que dans le cas de la configuration $R_{18,24}$. La conductivité minimale pour la configuration $R_{17,34}$ est : $\sigma_0 \approx 4.86e^2/h$. Cette valeur est plus faible que dans la configuration $R_{18,24}$ ($\sigma_0 \approx 5.55e^2/h$) et est plus proche de la valeur prédite ($\sigma_{0,th} \approx 3.4e^2/h$). En outre, les positions des deux minima sont décalés en densité d'une quantité égale à $2.75 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Cette différence de comportement s'explique par les inhomogénéités de la densité engendrées par les impuretés chargées. Quant au comportement de la conductivité dans la configuration $R_{18,24}$ à $T = 300 \text{ K}$, elle marque un minimum avec $\sigma_0 \approx 7.59e^2/h$ décalé par rapport au minimum de conductivité à $T = 0.35 \text{ K}$ d'une quantité égale à $6.73 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Il est possible que pendant le refroidissement, des porteurs activés thermiquement sont piégés. Ceci peut expliquer pourquoi le minimum de conductivité diminue et se déplace en tension grille pendant le refroidissement.

Même si la variation en tension de grille est moins large dans le cas de $R_{17,34}$, il semble que la densité d'impuretés chargées dans la configuration $R_{17,34}$ (symboles bleus) soit plus faible que dans la configuration $R_{18,24}$ (symboles noirs) à $T = 0.35 \text{ K}$. Ceci concorde avec la position des minima de conductivités. De plus, la valeur du minimum de conductivité variait en $1/\sqrt{n_i}$. On pourrait donc s'attendre, en supposant que la distance d soit identique pour ces deux configurations, à : $\sigma_{0;17,34} < \sigma_{0;18,24}$, ce qui n'est pas le cas. Comme précédemment pour l'échantillon ML002, on peut envisager des variations de la distance d entre les impuretés chargées et le feuillet de graphène. Ces variations pourraient expliquer la différence de comportement de la conductivité d'un même feuillet selon la configuration de mesure.

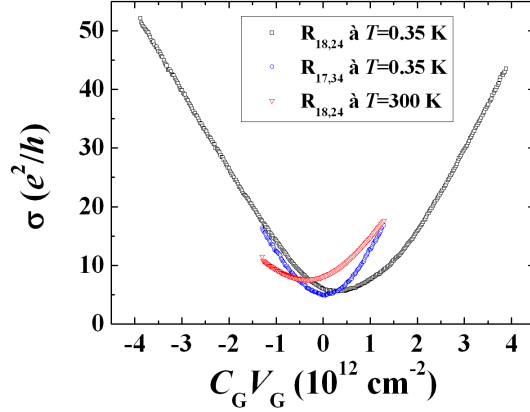


FIGURE 9.17 – Conductivité pour deux configurations de mesure différentes dans l'échantillon BL006 à courant ($I = 0.5 \mu\text{A}$ et configuration de polarisation de la grille identiques).

Une fois les caractérisations à champ nul effectuées, nous avons regardé le comportement de la résistance en fonction du champ magnétique à densité fixe dans la bicouche ($n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). La figure 9.18 représente la magnétorésistivité ($\Delta\rho(B) = W/L(R(B) - R(0))$) en fonction de l'induction magnétique. On constate plusieurs faits intéressants : la magnétorésistance est négative à faible B puis positive à B élevé ; elle dépend fortement du champ magnétique et elle fluctue. De plus, autour du champ nul, un pic de magnétorésistance négatif est présent. Nous reviendrons sur ces deux derniers faits dans la suite ; pour le moment essayons de comprendre l'origine de la magnétorésistance quadratique en champ. En effet, d'un point de vue classique, les relations du tenseur de résistivité (*c.f.* page 48) montrent que la résistivité longitudinale ne dépend pas du champ magnétique :

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \approx \frac{1}{\sigma_{xx}} = \frac{m^*}{n_S e^2 \tau_{tr}} \quad (9.24)$$

En comparant deux courbes de magnétorésistances obtenues aux températures de 0.35 K et 1.5 K, nous avons observé les mêmes dépendances avec l'induction magnétique. Cette magnétorésistance n'est donc pas un effet quantique ou, plus exactement, pas un effet d'interférence sensible à la température et à la longueur de cohérence de phase L_ϕ .

Les flaques de porteurs existant près du point de Dirac correspondent à des fluctuations de densité de l'ordre de $3 - 4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Les mécanismes de conduction sont assurés par des porteurs ayant une charge opposée mais des densités et des mobilités qui sont proches.

L'étude du transport sous champ magnétique dans des systèmes spatialement inhomogènes est compliquée [107]. Cependant, dans le cas d'une distribution inhomogène d'électrons et de trous ayant des mobilités et des densités égales, il existe une solution exacte [108]. L'expression analytique de la magnétoconductivité est la suivante [104] :

$$\sigma_{xx}(B) = \sigma_{xx,0}(1 + (\mu B)^2)^{-1/2} \quad \text{et} \quad \sigma_{xy}(B) = 0 \quad (9.25)$$

Ainsi, la résistivité s'écrit :

$$\rho_{xx}(B) \approx \frac{\sqrt{1 + (\mu B)^2}}{\sigma_{xx,0}} \quad (9.26)$$

Cette formule a pu être confrontée à des mesures de magnétotransport sur une monocouche de graphène [104]. Il a été montré un bon accord entre données expérimentales et prédictions

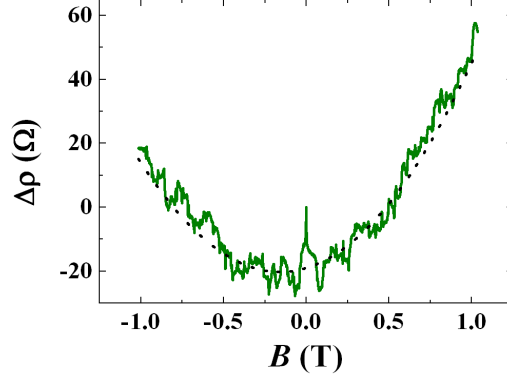


FIGURE 9.18 – Magnétorésistance mesurée à $T=350$ mK, $I=50$ nA et $n_S = -2 \times 10^{12}$ cm $^{-2}$ autour de $B=0$ T.

théoriques sur une variation d'induction magnétique égale à 0.4 T (de -0.2 T à 0.2 T). Toutefois, cet accord a été amélioré en utilisant la formule suivante :

$$\sigma_{xx}(B) = \sigma_{xx,1} + \sigma_{xx,0}(1 + (\mu B)^2)^{-1/2} \quad \text{avec} \quad \sigma_{xx}(0) = \sigma_{xx,1} + \sigma_{xx,0} \quad (9.27)$$

soit :

$$\rho_{xx}(B) \approx \frac{\sqrt{1 + (\mu B)^2}}{\sigma_{xx,0} + \sigma_{xx,1} \sqrt{1 + (\mu B)^2}} \quad (9.28)$$

On a représenté en traits pointillés noirs sur la figure 9.18 la courbe obtenue avec la formule 9.28 en prenant les valeurs suivantes :

$$\sigma_{xx,1} \approx \frac{e^2}{h}, \quad \sigma_{xx,0} \approx 17 \frac{e^2}{h} \quad \text{et} \quad \mu \approx 0.27 \text{ T}^{-1}, \quad (9.29)$$

et en introduisant un terme proportionnel à la résistance de Hall qui rend compte de la configuration de mesure diagonale et donc du couplage R_{xx}/R_H . On remarque qu'il est possible de rendre compte, au pic de localisation faible près, du comportement quadratique de la magnétorésistance à l'aide de la formule 9.27 avec une valeur de mobilité égale à celle déterminée grâce aux mesures sans champ. Toutefois, la valeur de $\sigma_{xx,1} + \sigma_{xx,0} \approx 18e^2/h$ ne coïncide pas avec $\sigma_{xx}(0) \approx 22e^2/h$ (*c.f.* figure 9.9). On peut imaginer que la formule 9.27 qui a été obtenue près du point de Dirac, c'est à dire lorsque des flaques d'électrons et de trous coexistent, soit différente lorsque le niveau de Fermi est loin du point de Dirac. Cependant, il semble bien que l'inhomogénéité de la densité due aux impuretés chargées soit responsable du comportement quadratique de la magnétorésistance que nous avons observé sur l'échantillon BL006 [107].

9.3 Corrections quantiques

9.3.1 Localisation faible

Présentation

Le phénomène de localisation faible correspond à des corrections quantiques à la conductance qui se manifestent dans une large gamme de conducteurs désordonnés [109]. Comme nous l'avons vu au Chapitre 1 page 45, ce phénomène est causé par les interférences entre des ondes

électroniques contrapropageantes sur des contours fermés. La figure 9.19 représente de manière schématique une telle boucle. A champ magnétique nul, les interférences sont constructives car les deux chemins \vec{p} et $-\vec{p}$ accumulent la même phase ; la probabilité de retour à l'origine (donnée par la formule 2.28 page 43) augmente. Il s'agit du phénomène de localisation faible. Lorsque l'on tient compte du couplage spin-orbite ou lorsque le matériau conducteur présente des règles de symétrie particulières (la chiralité des porteurs par exemple), les interférences peuvent être destructives ; la probabilité de retour à l'origine diminue, il s'agit du phénomène d'anti-localisation.

Quand le conducteur est soumis à un champ magnétique, les phases accumulées sur chaque chemin sont différentes dues à une circulation différente du potentiel vecteur selon le sens de parcours de la boucle. Le champ magnétique brise la symétrie d'invariance par renversement du temps. Chaque boucle (les petites, les moyennes et les grandes) donnent lieu à des oscillations de la résistance en fonction du champ magnétique. A flux magnétique nul, toutes les oscillations issues de toutes les boucles sont à leur maximum. Dans la pratique, on peut observer un pic de magnétorésistance autour du champ magnétique nul à basse température. Dans le cas de la localisation faible, la magnétorésistance est négative (diminution de la résistance pour $B \neq 0$) alors que dans le cas de l'anti-localisation, la magnétorésistance est positive (augmentation de la résistance pour $B \neq 0$).

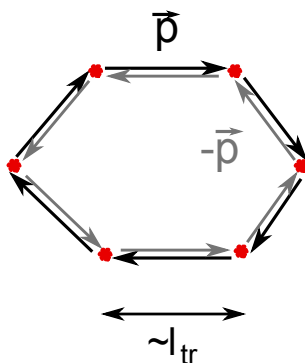


FIGURE 9.19 – Représentation schématique d'ondes électroniques contrapropageantes avec retour à l'origine. l_{tr} est le libre parcours moyen de transport : il s'agit de la distance entre deux chocs successifs sur des impuretés représentées en rouge.

Dans le cas d'une monocouche de graphène, on a vu au chapitre 7 page 89 que la structure de bande électronique est constituée de deux vallées inéquivalentes centrées sur les points \mathbf{K} et \mathbf{K}' situés aux coins de la zone de Brillouin qui est hexagonale. Au voisinage des ces deux points, la relation de dispersion est linéaire et isotrope. De plus, les particules ont une chiralité : dans la vallée \mathbf{K} , les électrons ont une quasi-impulsion \mathbf{p} telle que $\sigma\mathbf{p}/p = +1$ alors que dans cette même vallée, l'impulsion des trous vérifie $\sigma\mathbf{p}/p = -1$ (les matrices de Pauli σ jouent le rôle d'opérateurs d'isospin de sous-réseau). A l'inverse, dans la vallée \mathbf{K}' , la chiralité est inversée : $\sigma\mathbf{p}/p = -1$ pour les électrons et $\sigma\mathbf{p}/p = +1$ pour les trous. Dans les deux vallées, \mathbf{p} est colinéaire à σ . Quand la trajectoire fait un tour de 2π (cas d'un retour à l'origine) avec l'impulsion \mathbf{p} , les électrons accumulent une phase de Berry égale à π (rotation de 2π à σ). Lorsque l'on tient des comptes des termes de plus haute énergie dans le Hamiltonien d'une monocouche de graphène, il apparaît le terme de « trigonal warping ». Ce terme brise la symétrie $\mathbf{p} \rightarrow -\mathbf{p}$ des bandes d'énergie.

Dans une monocouche de graphène, la correction à la conductance se met sous la forme [110] :

$$\delta G \propto -(C_0^0 - C_0^z - C_0^x - C_0^y) \quad (9.30)$$

où C_0^x et C_0^y sont les Cooperons intravallées (Cooperons entre deux électrons situés dans la même vallée d'énergie) et C_0^0 et C_0^z sont les Cooperons intervalées (Cooperons entre deux électrons situés

dans l'une et l'autre des deux vallées d'énergie). Le terme de warping est à l'origine de la suppression des Cooperons intravallées [110]. En l'absence de diffusion intervallée, il n'y a pas de phénomène de localisation faible dans une monocouche de graphène. Les mécanismes de diffusion intervallée dus au désordre permettent de restaurer la localisation faible. Les deux Cooperons intervallées ont des valeurs très proches l'un de l'autre ; l'équation 9.30 permet de comprendre pourquoi le phénomène de localisation peut être difficilement observable dans une monocouche et qu'on a longtemps cru qu'il s'agissait d'un phénomène de localisation faible fortement supprimée [111].

La magnétorésistance dans une monocouche de graphène se met sous la forme [110] :

$$\Delta\rho(B) = -\frac{e^2\rho^2}{\pi h} \left[F\left(\frac{B}{B_\phi}\right) - F\left(\frac{B}{B_\phi+2B_{iv}}\right) - 2F\left(\frac{B}{B_\phi+B_{iv}+B_*}\right) \right] \quad (9.31)$$

$$F(z) = \ln z + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{z}\right) \quad \text{et} \quad B_{\phi,iv,*} = \frac{\hbar}{4De\tau_{\phi,iv,*}}$$

où $\psi(x)$ est la fonction digamma : $\psi(x) = \int_0^\infty (e^{-t}/t - e^{-xt}/(1 - e^{-t}))dt$. Les temps τ_ϕ , τ_{iv} et τ_* sont respectivement les temps de cohérence de phase, de diffusion intervallée et de diffusion mixte (combinaison des diffusions intravallée et due au warping).

On peut exprimer l'équation 9.31 en terme de longueurs caractéristiques grâce à la relation suivante : $\tau = L^2/D$ où D est le coefficient de diffusion. Les différentes inductions magnétiques effectives s'expriment alors sous la forme suivante :

$$B_{\phi,iv,*} = \frac{\hbar}{4eL_{\phi,iv,*}^2} \quad (9.32)$$

L'équation 9.31 a pu être confrontée à des observations expérimentales de localisation faible dans une monocouche de graphène [112]. Il a pu être observé un bon accord entre théorie et expérience. En particulier, les longueurs de cohérence de phase qui ont pu être extraites sont comprises en $0.5 \mu\text{m}$ et $1.25 \mu\text{m}$. Quant aux longueurs de diffusion intervallée et de diffusion mixte, elles sont de l'ordre de $0.1 \mu\text{m}$.

Pour une bicouche de graphène, la structure de bandes est composée de deux bandes d'énergie paraboliques qui se touchent en deux points inéquivalents \mathbf{K} et \mathbf{K}' de la première zone de Brillouin. Comme dans le cas de la monocouche, les particules sont chirales et la phase de Berry est égale à 2π . En outre, il apparaît un terme de warping dans le Hamiltonien, c'est à dire un terme qui brise la symétrie $\mathbf{p} \rightarrow -\mathbf{p}$. L'origine du warping n'est pas la même que dans le cas de la monocouche : il est dû au couplage direct faible entre les atomes A1 et B2 (*c.f.* page 91).

Dans une bicouche de graphène, la correction à la conductance se met sous la forme [113] :

$$\delta G \propto -(C_z^z - C_z^0 + C_z^x + C_z^y) \quad (9.33)$$

où C_z^x et C_z^y sont les Cooperons intravallées et C_z^z et C_z^0 les Cooperons intervallées. Le warping supprime les Cooperons intravallée. Les deux Cooperons sont du même ordre de grandeur ; en l'absence de diffusion intervallée, ils s'annulent l'un l'autre. De manière analogue à la monocouche, les mécanismes de diffusion intervallée brisent l'annulation des Cooperons intervallée et permettent de restaurer en partie la localisation faible [113].

La magnétorésistance dans une bicouche de graphène se met sous la forme :

$$\Delta\rho(B) = -\frac{e^2\rho^2}{\pi h} \left[F\left(\frac{B}{B_\phi}\right) - F\left(\frac{B}{B_\phi+2B_{iv}}\right) + 2F\left(\frac{B}{B_\phi+B_i+B_*}\right) \right] \quad (9.34)$$

$$F(z) = \ln z + \psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{z}\right) \quad \text{et} \quad B_{\phi,iv,*} = \frac{\hbar}{4De\tau_{\phi,iv,*}} = \frac{\hbar}{4eL_{\phi,iv,*}^2}$$

On constate en comparant les formules 9.31 et 9.34 que seul le signe du dernier terme diffère. Et, à lui seul, il explique pourquoi on s'attend, dans une monocouche, à un signal d'anti-localisation faible (pic de magnétorésistance positive) et dans une bicouche, à un signal de localisation faible (pic de magnétorésistance négative). La formule 9.34 a pu être confrontée à des

observations expérimentales de localisation faible dans des bicouches [114] et [115]. Ces différentes équipes ont pu obtenir un très bon accord entre théorie et expérience. Les longueurs de cohérence de phase qui ont pu être extraites sont proches de $0.5 \mu\text{m}$.

Observation expérimentale sur l'échantillon BL006

Une fois le premier pic de magnétorésistance observé sur de larges variations d'induction magnétique (2 T), nous avons optimisé notre montage pour caractériser les pics de magnétorésistance sur de petites gammes d'induction autour de 0 T à différentes densités. En effet, les variations de résistance dues à la localisation faible sont assez faibles (typiquement 20Ω par rapport à une résistance de $1.5 \text{ k}\Omega$). Il faut donc disposer d'une bonne résolution. L'ensemble des mesures de localisation faible ont été faites à l'aide d'un pré-amplificateur bas bruit qui a pour but d'amplifier (typiquement d'un facteur 1000) la tension mesurée au niveau de l'échantillon de graphène. La densité spectrale de bruit de ce pré-ampli a deux régimes : un premier régime situé à basse fréquence pour lequel le bruit varie en $1/f$ et un second, situé à plus haute fréquence, pour lequel on a un bruit constant (régime de bruit blanc). La fréquence délimitant les deux régimes vaut 9 Hz pour le pré-ampli que nous avons utilisé. C'est pourquoi nous avons réalisé nos mesures à la fréquence de 13 Hz en utilisant la source de tension de la détection synchrone pour piloter notre source de courant. La densité spectrale de bruit du pré-ampli vaut $0.5 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$. De plus, nous avons utilisé des courants faibles (typiquement 30 nA) pour ne pas trop chauffer les électrons. En effet, en utilisant la relation $eV = k_B T$, un courant de 30 nA sur un conducteur ayant une résistivité proche de $1.5 \text{ k}\Omega$ équivaut à une température électronique égale à 0.52 K alors que la température de l'échantillon est de 0.35 K.

Pour obtenir un niveau de résolution suffisant, nous avons utilisé un diviseur inductif alimenté par le même courant que l'échantillon. La tension en sortie du diviseur est choisie pour être très proche de la tension mesurée au niveau de l'échantillon de graphène. En opposant la tension du diviseur à la tension mesurée sur la bicouche, nous avons pu obtenir un bonne réserve de dynamique (*i.e.* un nombre de *digit* suffisant) pour mesurer précisément le pic de magnétorésistance due à la localisation faible dans l'échantillon.

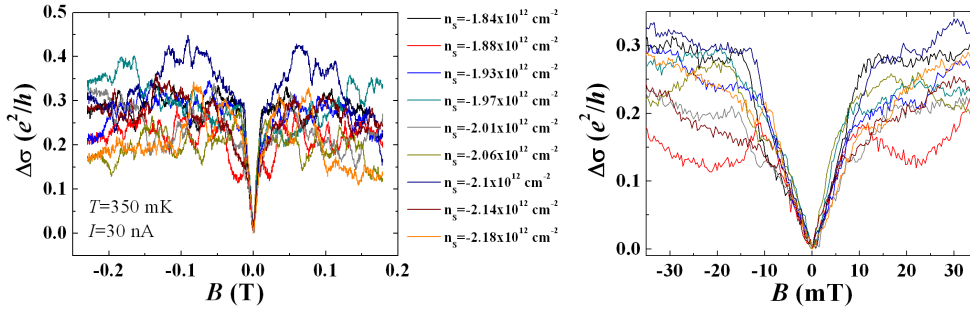


FIGURE 9.20 – Courbes de magnétoconductivités mesurées à $T = 350 \text{ mK}$, $I = 30 \text{ nA}$ et pour différentes valeurs de densité autour de $B = 0 \text{ T}$.

La figure 9.20 représente différentes courbes de magnétoconductivités exprimées en e^2/h obtenues en faisant varier l'induction magnétique autour de zéro pour différentes valeurs de tension grille, *i.e.* pour différentes densités n_s . On observe le pic de conductivité à champ nul. De part et d'autre de ce pic, d'importantes fluctuations de conductivité sont présentes pour chaque valeur de n_s . Ces fluctuations sont très reproductibles pour une tension grille donnée, mais ne le sont pas d'une tension grille à une autre. On les attribue à des fluctuations universelles de conductance et

nous allons en discuter dans la partie suivante. Afin de s'affranchir de ces fluctuations, on choisit de moyenniser les courbes de magnétoconductivité.

Cette procédure est justifiée en premier lieu par le fait que les pics de magnétoconductivité ont des largeurs très proches entre les différentes valeurs de densité (voir figure 9.20, courbe de droite). De plus, le coefficient de diffusion D varie peu et de manière linéaire entre les densités extrêmes : $D \approx 158.6 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ pour $n_S = -1.84 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $D \approx 190.2 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ pour $n_S = -2.18 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ soit environ 20% de variation. La résistivité ne change pas beaucoup entre les densités extrêmes.

Les courbes de magnétoconductivité moyenne obtenues à $T = 350 \text{ mK}$ et $T = 1.5 \text{ K}$ sont représentées figure 9.21. De plus, nous avons représenté l'ajustement théorique donné par la formule 9.34 exprimée en termes de longueurs, à l'aide de trois paramètres ajustables : L_ϕ , L_{iv} et L_* .

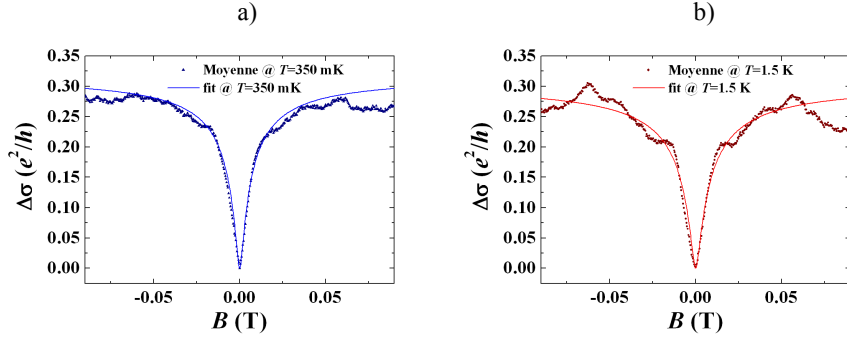


FIGURE 9.21 – Courbe de magnétoconductivités moyennes à $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et ajustement théorique : a) à $T = 350 \text{ mK}$ et b) à $T = 1.5 \text{ K}$.

On remarque un bon accord entre les données expérimentales et les calculs théoriques. Les valeurs de L_ϕ , L_{iv} et L_* obtenues pour les deux températures sont données dans le tableau 9.4. On constate que la longueur de cohérence de phase varie très peu entre 350 mK et 1.5 K. Ce résultat est en contradiction avec les prédictions théoriques concernant les interactions électrons-électrons en régime diffusif [116]. Toutefois, une saturation de la longueur de cohérence de phase a pu être observée dans la gamme 40 mK-1.2 K [114]. Dans ces travaux, même si le régime de transport n'est pas ballistique, la raison invoquée pour expliquer cette saturation était les dimensions de l'échantillon ($1.5 \mu\text{m} \times 1.8 \mu\text{m}$) bien que L_ϕ saturait vers 700 nm. Dans notre cas, la valeur de L_ϕ reste largement en-dessous des dimensions de notre échantillon ($4.6 \mu\text{m} \times 26 \mu\text{m}$).

Température	L_ϕ	L_{iv}	L_*
$T = 350 \text{ mK}$	$0.47 \mu\text{m}$	$0.51 \mu\text{m}$	$< 30 \text{ nm}$
$T = 1.5 \text{ K}$	$0.42 \mu\text{m}$	$0.47 \mu\text{m}$	$< 30 \text{ nm}$

TABLE 9.4 – Longueurs de cohérence de phase, de diffusion inter-vallée et diffusion mixte obtenues à $T=350 \text{ mK}$ et à $T=1.5 \text{ K}$ pour $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

On peut comparer la longueur de cohérence de phase à la longueur typique des interactions électron-électron donnée par [116] :

$$L_{e-e} = \sqrt{D\tau_{e-e}} \quad \text{avec} \quad \tau_{e-e} = \frac{1}{k_B T} \frac{2\pi\hbar^2}{\rho e^2 \ln \frac{\pi\hbar}{\rho e^2}} \quad (9.35)$$

On trouve $L_{e-e}(0.35 \text{ K}) \approx 1.73 \mu\text{m}$ et $L_{e-e}(1.5 \text{ K}) \approx 0.84 \mu\text{m}$. Les interactions électron-électron ne peuvent donc pas, à elles seules, rendre compte des phénomènes de déphasage dans notre

échantillon. En particulier, elles ne permettent pas de justifier la valeur à laquelle semble saturer L_ϕ . Il ne nous est pas possible d'expliquer à l'aide des théories actuelles pourquoi L_ϕ sature ni la valeur prise à saturation.

Le temps de diffusion intervallée ($\tau_{iv} \approx 13$ ps à 350 mK et $\tau_{iv} \approx 15$ ps à 1.5 K) est du même ordre de grandeur que le temps de cohérence de phase ($\tau_\phi \approx 10$ ps à 350 mK et $\tau_\phi \approx 13$ ps à 1.5 K) pour les deux températures de travail. Ce résultat est en accord avec d'autres observations de pics de localisation faible [114]. En outre, le temps de warping que l'on peut extraire est très faible pour les deux températures ($\tau_w \approx \tau_* < 52$ fs à 350 mK et à 1.5 K). Ce temps de warping est très proche du temps de transport déterminé précédemment : $\tau_{tr} \approx 50$ ps à $n_S = -2 \times 10^{12}$ cm⁻² ce qui confirme l'importance du warping dans les processus de diffusion au sein d'une bicouche de graphène [114] et qui est conforme à la prédiction théorique.

Enfin, on peut relier le temps de diffusion intervallée (τ_{iv}) et le temps de diffusion mixte (τ_*) aux temps de diffusion courte portée (τ_{SR}) et longue portée (τ_{LR}) respectivement. Du fait que $\tau_{iv} > \tau_*$, $\tau_{tr} = \tau_{CI}$ ce qui confirme ainsi que les processus à courte portée jouent un rôle négligeable dans les processus de diffusion au sein de l'échantillon BL006. Pour finir, on a vu que les libres parcours moyens (*c.f.* page 137) sont de l'ordre de 50 nm. On remarque donc qu'un électron dans une bicouche de graphène conserve sa phase sur plusieurs libre-parcours moyens.

Comme nous l'avons évoqué page 148, d'importantes fluctuations de conductance ont pu être observées de part et d'autre du pic de localisation faible. Nous allons maintenant nous intéresser à ces fluctuations.

9.3.2 Fluctuations de conductance

Présentation

La conductance d'un conducteur résulte des interférences entre toutes les ondes électroniques traversant le conducteur. La figure d'interférences est sensible aux variations des configurations du désordre, à l'énergie de Fermi ou aux champ magnétique. Si l'un de ces paramètres est modifié, il est possible d'observer des fluctuations reproductibles de conductance (UCF) qui correspondent à des corrections quantiques à la conductance classique. Les UCF constituent une véritable empreinte caractéristique du désordre au sein du conducteur. L'amplitude des fluctuations de conductance d'un conducteur cohérent (*i.e.* de taille L_ϕ) est de l'ordre de e^2/h [22].

Considérons dans la suite un conducteur dont au moins une des dimensions est supérieure à la longueur de cohérence de phase ; chaque « boîte » de taille L_ϕ donne lieu à des fluctuations de conductance. On note N_ϕ le nombre de ces boîtes. D'un point de vue expérimental, on va être sensible à une moyenne d'ensemble sur chaque boîte de taille L_ϕ . On note δG_{UCF} l'amplitude des fluctuations de conductance ; il s'agit de l'écart-type de la conductance :

$$\delta G_{UCF} = \sqrt{\langle G \rangle^2 - \langle G^2 \rangle} \quad (9.36)$$

Du fait de l'effet de moyennage des fluctuations, les fluctuations relatives, $\delta G/G$, sont :

$$\frac{\delta G_{UCF}}{G} \propto \frac{1}{N_\phi} \quad (9.37)$$

Prenons le cas d'un conducteur unidimensionnel de longueur L et de largeur W ($W < L_\phi < L$). Le nombre de systèmes cohérents est $N_\phi = L/L_\phi$. La conductance d'un tel conducteur varie comme $1/N_\phi \times e^2/h$. L'amplitude des UCF est [21],[24] :

$$\delta G_{UCF,1D} = N_\phi^{-1/2} \frac{L_\phi}{L} \frac{e^2}{h} = \left(\frac{L_\phi}{L} \right)^{3/2} \frac{e^2}{h} \quad (9.38)$$

Considérons maintenant un conducteur bidimensionnel de longueur L et de largeur W ($L_\phi < W, L$). On peut voir ce conducteur comme une association série de $N_\phi = LW/L_\phi^2$ carrés cohérents, *i.e.* de taille $L_\phi \times L_\phi$. L'amplitude des UCF d'un conducteur 2D diffusif s'écrit [112] :

$$\delta G_{UCF,2D} = \frac{1}{N_\phi^{1/2}} \frac{W}{L} \frac{e^2}{h} = \frac{L_\phi W^{1/2}}{L^{3/2}} \frac{e^2}{h} \quad (9.39)$$

Toutes ces considérations concernent des conducteurs non soumis à un champ magnétique, c'est à dire lorsqu'il y a symétrie par renversement du temps. Pour un conducteur placé sous un champ magnétique faible, la symétrie par renversement du temps est rompue ce qui a pour conséquence de supprimer le Cooperon. On a alors [109], [24] :

$$\delta G_{UCF}(B) = \frac{1}{\sqrt{2}} \delta G_{UCF}(0) \quad (9.40)$$

Observation expérimentale en induction magnétique

A-partir de la courbe de magnétoconductance (figure 9.18), on peut calculer l'évolution de la magnétoconductance par la formule :

$$\frac{\Delta G}{G} = -\frac{\Delta R}{R} \quad \text{soit} \quad \Delta G = -\frac{\Delta R}{R^2} \quad \text{avec} \quad \Delta R = R(B) - R(0) \quad (9.41)$$

On a vu que la dépendance quadratique en B est probablement due à l'inhomogénéité de la densité. En outre, il existe une dépendance linéaire en B . Celle-ci a pour origine un couplage relativement important avec la résistivité transverse car notre mesure est diagonale (la prise de tension n'est pas colinéaire au sens du courant). Pour étudier les fluctuations de conductance, on retranche de la courbe de magnétoconductance un ajustement du type $\alpha B^2 + \beta B$ et l'ajustement de localisation faible donné par l'équation 9.34. Cette procédure est représentée figure 9.22. Pour calculer l'amplitude des UCF, on calcule l'écart-type, δG , des différentes valeurs de ΔG sur toute la plage de variation de l'induction magnétique.

On peut estimer *a priori* l'amplitude des UCF à laquelle on peut s'attendre dans notre échantillon dont L_ϕ a pu être extraite à $T = 350$ mK grâce au pic de localisation faible. Avec $W = 4 \mu\text{m}$, $L = 8 \mu\text{m}$ et $L_\phi \approx 0.47 \mu\text{m}$ on a :

$$\delta G_{UCF,th} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{0.47 \times 4^{1/2}}{8^{3/2}} \frac{e^2}{h} \approx 0.029 \frac{e^2}{h} \quad (9.42)$$

Dans la pratique, l'amplitude des UCF tirée de la courbe 9.22-d) est :

$$\delta G_{UCF,th} \approx 0.019 \frac{e^2}{h} \quad (9.43)$$

L'amplitude des fluctuations réellement observée est plus faible que le valeur à laquelle on pourrait s'attendre dans le cas d'un conducteur bidimensionnel de longueur de cohérence de phase $L_\phi \approx 0.47 \mu\text{m}$. Pour expliquer cela, on peut comparer les longueurs typiques dans le cas d'un conducteur diffusif :

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} \quad \text{et} \quad L_V = \sqrt{\frac{\hbar D}{eV}} \quad (9.44)$$

A $T = 0.35$ K et avec un courant $I = 50$ nA, on a :

$$L_T \approx 0.61 \mu\text{m} \quad \text{et} \quad L_V \approx 0.39 \mu\text{m} \quad (9.45)$$

En particulier, $L_V < L_\phi$. On peut donc imaginer qu'il y a un effet non négligeable d'échauffement des électrons dans chaque domaine cohérent. Cet échauffement est une source supplémentaire de décohérence. Il se peut alors que les préfacteurs présents dans la formule 9.39 ne soient plus les mêmes.

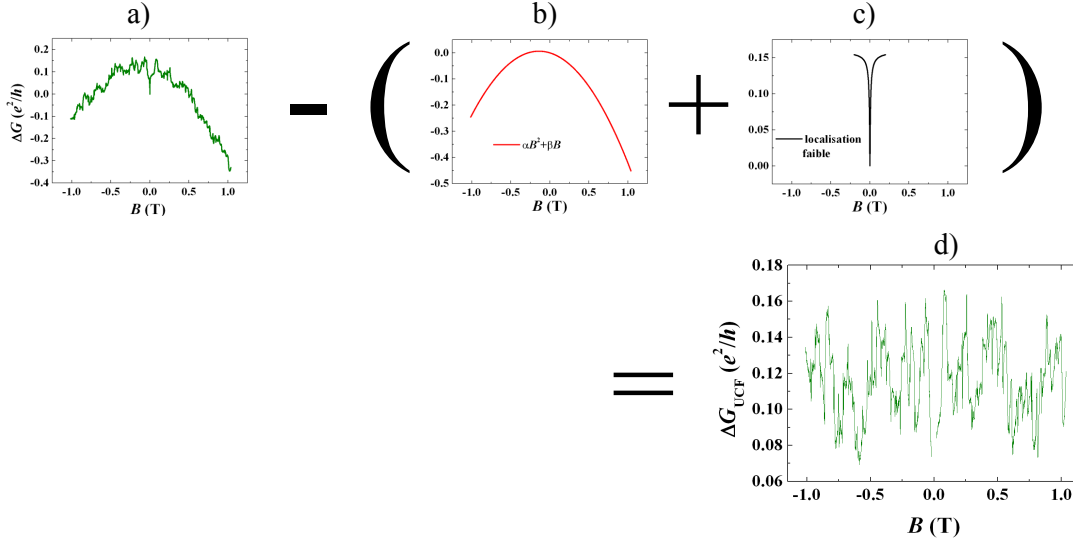


FIGURE 9.22 – Procédure d’extraction des UCF pour l’échantillon BL006 à $T = 350$ mK : on retranche de la courbe de magnétoconductance (a) une dépendance quadratique en B (b) puis on enlève le pic dû à la localisation faible (c). La courbe ainsi obtenue (d) montre des fluctuations de conductance exprimée en e^2/h .

Observation expérimentale en densité

Nous avons pu observer des fluctuations de conductance à induction magnétique fixe et en faisant varier la densité dans l’échantillon BL006. Les courbes obtenues à $B = 0$ T, $B = 0.08$ T et $B = 0.23$ T sont représentées sur la figure 9.23-a). Pour extraire l’amplitude des UCF, nous avons soustrait aux conductances brutes une composante linéaire en n_S (on a fait figurer en trait noir une telle composante). Les conductances ainsi obtenues sont représentées sur la figure 9.23-b).

Les amplitudes des UCF sont :

$$\delta G(B = 0 \text{ T}) \approx 0.034 \frac{e^2}{h} \quad (9.46)$$

$$\delta G(B = 0.08 \text{ T}) \approx 0.037 \frac{e^2}{h} \quad (9.47)$$

$$\delta G(B = 0.23 \text{ T}) \approx 0.034 \frac{e^2}{h} \quad (9.48)$$

Pour un tel courant de mesure ($I = 30$ nA), on a $L_V \approx 0.51 \mu\text{m}$. L’effet d’échauffement des électrons est donc moins important que pour les UCF observées en induction magnétique. Ceci peut expliquer pourquoi les amplitudes des UCF en densité est plus proche de la valeur attendue pour $L_\phi \approx 0.47 \mu\text{m}$.

Pour conclure, l’ordre de grandeur de L_ϕ déterminé par le pic de localisation faible est confirmé par l’amplitude des UCF que nous avons pu observer à la fois en induction magnétique et en densité. Dans notre échantillon BL006, L_ϕ est de l’ordre de $0.5 \mu\text{m}$. Ainsi, en dépit du fait que la concentration en impuretés chargées semblent importante dans cette échantillon ($n_i \approx 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$), les électrons conservent leur cohérence de phase sur plusieurs libres parcours moyens.

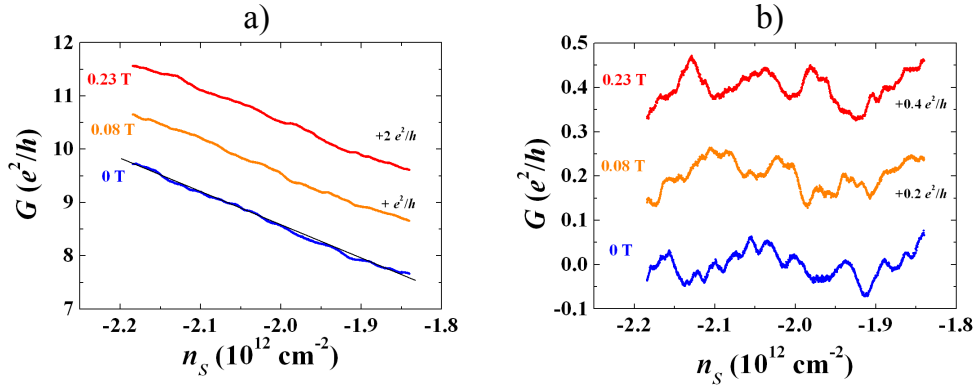


FIGURE 9.23 – En a), conductances brutes exprimées en e^2/h mesurées à $T = 350$ mK avec $I = 30$ nA pour différentes inductions magnétiques (les deux courbes supérieures ont volontairement été décalées de $+e^2/h$ et $+2e^2/h$ pour améliorer la lisibilité). En b), conductances obtenues après soustraction d'un terme linéaire en n_s (les deux courbes supérieures ont volontairement été décalées de $+0.2e^2/h$ et $+0.4e^2/h$ pour améliorer la lisibilité).

9.4 Effets Hall quantiques « anormaux »

9.4.1 Historique

Comme nous l'avons vu au chapitre 8, les valeurs des résistances quantifiées en régime d'effet Hall quantique sont caractéristiques du feuillet de graphène (*i.e.* monocouche ou bicouche). En outre, du fait de l'existence d'un niveau de Landau à énergie nulle, ces résistances quantifiées sont différentes de celles observées dans des semi-conducteurs conventionnels (GaAs ou MOSFET Si). Aussi, l'effet Hall quantique dans des feuillets de graphène a été rapidement qualifié d'anormal (« anomalous »). Plus simplement, on peut le qualifier d'effet Hall quantique demi-entier.

Les premières observations de l'effet Hall quantique dans des monocouches et des bicouches de graphène exfolié ont été faites par Novoselov *et al.* de l'Université de Manchester [68] (*c.f.* figure 9.24) et, de manière simultanée, par une équipe de l'Université de Columbia aux Etats-Unis [117] au début de l'année 2005. Quelques mois plus tard, l'équipe de Manchester a pu observer une quantification de la résistance transverse d'une monocouche à température ambiante [3] (*c.f.* figure 9.25). Bien que cette manifestation expérimentale de l'effet Hall quantique ait eu lieu sous une induction magnétique très élevée ($B = 29$ T), elle a pu confirmer l'intérêt des feuillets de graphène, en particulier pour la métrologie.

En 2009 et de manière quasi simultanée, deux équipes ont pu observer les premiers signes de l'effet Hall fractionnaire en mesure 2-fils dans des monocouches de graphène suspendues. Il s'agit des travaux de Du *et al.* [118] et de Bolotin *et al.* [119].

En parallèle aux travaux sur le graphène exfolié, la première observation de l'effet Hall quantique dans des monocouches de graphène obtenues par épitaxie sur SiC a été réalisée en 2009 par Wu *et al.* [120].

9.4.2 Effet Hall quantique dans une monocouche

Au LNE, sur les échantillons obtenus par exfoliation, nous avons pu observer l'effet Hall quantique dans deux monocouches. Les figures 9.26-a) et 9.27-a) représentent les résistances trans-

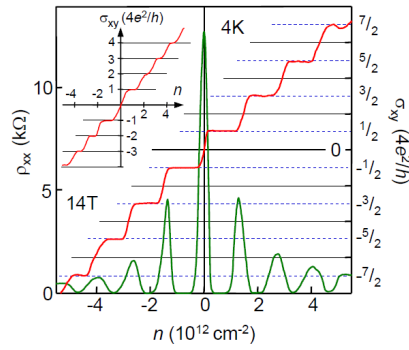


FIGURE 9.24 – Première observation en 2005 de l’effet Hall quantique dans des feuillets de graphène ; courbe principale : résistivités longitudinale et transverse dans une monocouche à 4 K et 14 T. Dans le coin supérieur gauche, résistivité transverse dans une bicouche placée dans les mêmes conditions. Courbe tirée de [68].

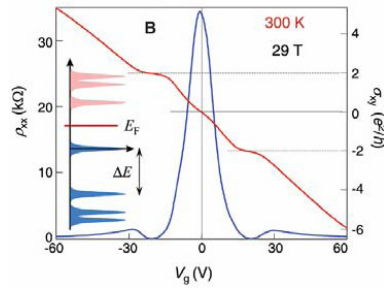


FIGURE 9.25 – Observation de l’effet Hall quantique à température ambiante dans une monocouche. La courbe tirée de [3] représente les résistivités longitudinale et transverse dans une monocouche à 300 K et 29 T.

verse et longitudinale mesurées à densité constante en faisant varier l’induction magnétique pour les échantillons ML001 et ML002. Toutefois, dans le cadre de ces mesures de magnétorésistance, nous n’avons pas pu observer d’oscillations de Schubnikov - de Haas sur la résistance longitudinale ce qui confirme la pauvre qualité de nos échantillons. Les figures 9.26-b) et 9.27-b) représentent les résistances transverse et longitudinale mesurées à induction magnétique constante en faisant varier la tension de grille pour les échantillon ML001 et ML002. On voit les plateaux de la résistance transverse correspondant aux facteurs de remplissage $\nu = \pm 2$ et $\nu = \pm 6$. En parallèle à ces plateaux, la résistance longitudinale chute à des valeurs proches de zéro. Les valeurs de la résistance sur les deux plateaux nous ont permis de confirmer que les feuillets étaient des monocouches.

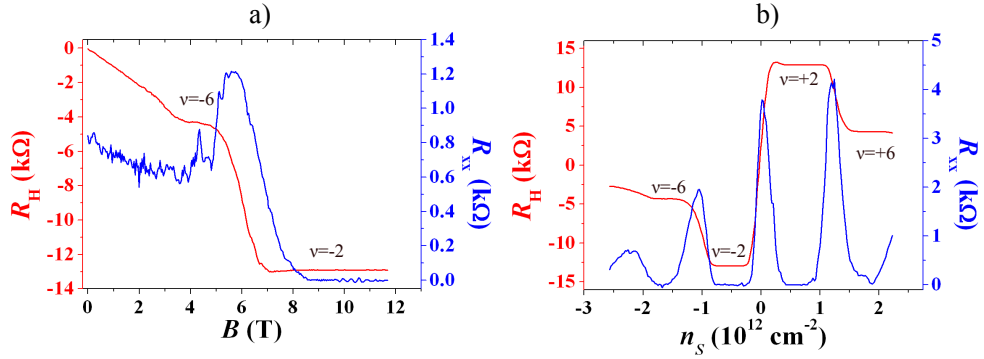


FIGURE 9.26 – Effet Hall quantique dans la monocouche ML001 observé : a) en faisant varier l'induction magnétique à densité constante $n_S \approx -5.7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et b) en faisant varier la densité à induction magnétique constante $B = 11.7 \text{ T}$. Les deux mesures ont été faites à $T = 1.3 \text{ K}$ et $I = 200 \text{ nA}$. En trait rouge on a fait figurer la résistance de Hall et en trait bleu la résistance longitudinale.

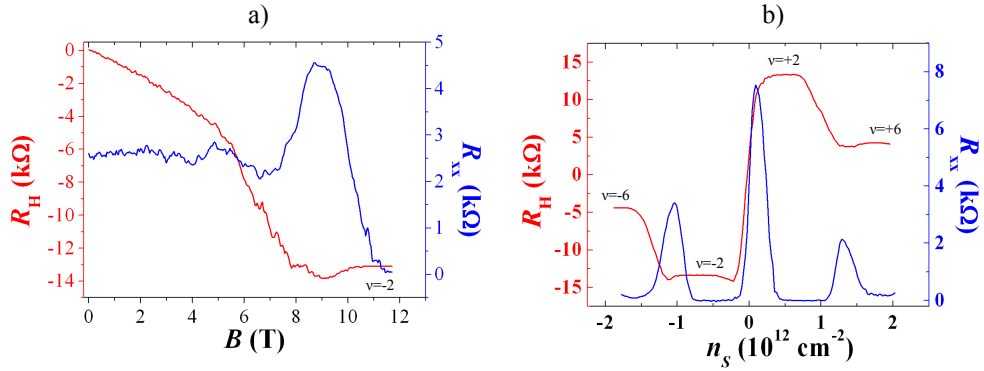


FIGURE 9.27 – Effet Hall quantique dans la monocouche ML002 observé : a) en faisant varier l'induction magnétique à densité constante $n_S \approx -8.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et b) en faisant varier la densité à induction magnétique constante $B = 11.7 \text{ T}$. Les deux mesures ont été faites à $T = 1.3 \text{ K}$ et $I = 200 \text{ nA}$. En trait rouge on a fait figurer la résistance de Hall et en trait bleu la résistance longitudinale.

9.4.3 Effet Hall quantique dans une bicouche

De la même manière, nous avons pu observer la quantification de la résistance transverse dans une bicouche à champ magnétique constant et en faisant varier la tension grille. La figure 9.28 représente la résistance transverse obtenue à différentes induction magnétique. De plus on a fait figurer la résistance longitudinale mesurée sous une induction de 18.5 T. Comme pour la monocouche, les valeurs prises par la résistances transverse sur les plateaux permet de confirmer que le feuillet est une bicouche.

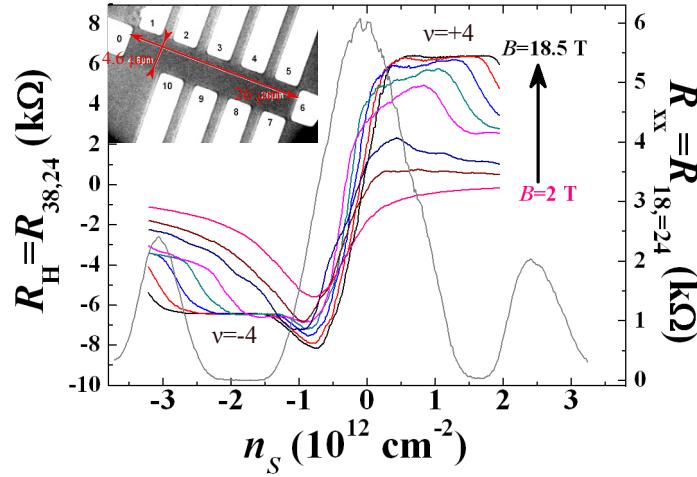


FIGURE 9.28 – Effet Hall quantique dans la bicouche BL006 observé à induction magnétique constante et en faisant varier la densité. En couleur, les différentes courbes de R_H à induction magnétique croissante ($B = 2$ T, 5 T, 7 T, 11 T, 13 T, 15 T, 17 T, 18.5 T). En tirets gris, la résistance longitudinale mesurée à $B = 18.5$ T.

Dans le chapitre suivant, nous allons essayer de caractériser ces effets Hall quantiques pour la métrologie des résistances.

Chapitre 10

Méetrologie de l'effet Hall quantique

10.1 Caractérisations des contacts Métal-Graphène

Nous avons vu au Chapitre 2 page 58 puis au Chapitre 4 page 69 que la présence d'un ou plusieurs contacts résistifs peut avoir des conséquences dramatiques non seulement sur la qualité de la mesure d'une résistance transverse en régime d'effet Hall quantique mais aussi sur sa quantification elle-même. Au cours de la fabrication des barres de Hall à partir de graphène exfolié, nous avons donc cherché à obtenir les plus faibles résistances de contact possibles.

10.1.1 Contacts électriques dans les hétérostructures de semi-conducteurs

Dans le cas des hétérostructures GaAs/AlGaAs, le contact électrique entre le métal et le 2DEG est obtenu à l'aide de la diffusion en profondeur de l'eutectique AuGe. On a un contact par la tranche au niveau de l'interface verticale entre le 2DEG et le métal ; lors de la fabrication, on cherche à obtenir la plus grande longueur en regard entre l'eutectique et le 2DEG. De plus, les contacts électriques ne doivent pas être invasifs (figure 10.1) afin de ne pas perturber les lignes de courant. A cette fin, on écarte les contacts du canal en utilisant des bras de contact. Dans le cas où les bras de contact sont de petites tailles, des précautions doivent être prises lors du refroidissement des hétérostructures pour éviter la déplétion des électrons. Le cas échéant, une résistance de contact apparaît et un réchauffage de l'échantillon jusqu'à température ambiante sera nécessaire pour restaurer la population électronique dans le bras.

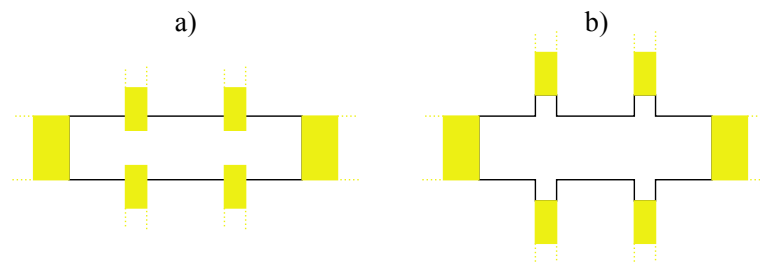


FIGURE 10.1 – Représentation schématique de deux barres de Hall : en a) avec des contacts de tension invasifs et en b) avec des contacts de tension non-invasifs.

A l'heure actuelle, dans les LEP514, barres de Hall en GaAs/AlGaAs utilisées comme étalons quantiques de résistances au LNE, la résistance des contacts est $< 0.1 \Omega$ pour des bras de contact ayant une largeur de $50 \mu\text{m}$ au niveau du canal et une longueur de $100 \mu\text{m}$ (distance entre le canal et l'électrode métallique). Ces résistances sont évaluées dans une configuration 3-fils en régime d'effet Hall quantique (*c.f.* page 158). En outre, les courants de mesure sont adaptés à la nature des contacts : on utilise un courant élevé pour les contacts de courant (typiquement $42 \mu\text{A}$, le courant utilisé lors de l'étalonnage de la résistance matérielle) alors qu'on utilise un courant beaucoup plus faible (seulement $1 \mu\text{A}$) pour les contacts de tension. Cette précaution permet d'éviter d'endommager les contacts de tension qui sont géométriquement plus petits que les contacts de courant. De plus, pendant la mesure, le courant circulant dans les contacts de tension est quasi nul.

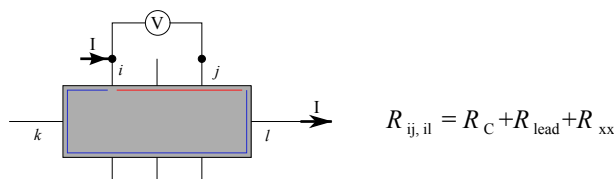


FIGURE 10.2 – Représentation d'une mesure de résistance de contact en configuration 3-fils sur le plateau $\nu = 1$.

10.1.2 Contacts électriques sur des feuillets de graphène

Après les premières caractérisations électriques de graphène exfolié, quelques travaux théoriques ont envisagé que la présence d'un métal avait des conséquences sur les propriétés de transport d'un feuillet de graphène. Ainsi, les travaux de Giovanetti *et al.* [121] et [122], ceux de Golizadeh-Mojarad *et al.* [123] et ceux de Khomyakov *et al.* [124] ont prédit des transferts de charge entre le métal et le feuillet de graphène. D'un point de vue expérimental, plusieurs équipes ont étudié l'effet de la présence d'un métal en contact direct sur un feuillet de graphène. En 2008, Huard *et al.* [105] ont pu montrer que la présence d'un métal a pour conséquence de fixer la densité de porteurs dans la zone du feuillet situé en-dessous. Ce transfert de charges a pour conséquence une asymétrie entre la conductivité en dopage trous et celle en dopage électrons. Il apparaît des jonctions $p - n$ ou $p - p$ au sein même du feuillet. En comparant les résultats de mesures électriques obtenues avec des contacts invasifs et non-invasifs en configurations 4-fils, ils ont pu mettre en évidence que des contacts invasifs influent énormément sur les propriétés de transport du feuillet, en particulier la conductivité devient sous-linéaire en densité. Leur conclusion est que les contacts électriques peuvent engendrer une conductivité sous-linéaire et asymétrique en fonction de la nature du dopage (électron ou trou). En 2009, Mueller *et al.* [125] et Blake *et al.* [126] ont confirmé l'existence de ce transfert de charges. A l'aide de mesures en champ proche optique, la première équipe a mis en évidence que ce transfert a lieu sur des distances importantes ($\sim 0.2 - 0.3 \mu\text{m}$) et pas seulement au-dessous du métal. Nous avons défini, dans la mesure du possible, des bras de contact ayant au moins une longueur de $0.5 \mu\text{m}$. La seconde équipe, à l'aide de mesures de résistivité, a montré qu'un métal peut provoquer une inhomogénéité de la densité.

Cependant, jusqu'à maintenant, peu d'équipe ont réellement mesuré la résistance d'un contact métal-graphène. Les travaux de Russo *et al.* [127] ont suggéré l'existence d'une limite inférieure pour ce type de contacts. En premier lieu, ces travaux ont confirmé l'existence d'un transfert de charge, et ce quelle que soit l'épaisseur du feuillet de graphène (monocouche, bicouche ou tricouche) et la densité. De plus, cette équipe a pu observer, sur leurs échantillons, une borne inférieure pour les résistances de contact entre un métal (en l'occurrence un système Ti/Au) et le graphène. Cette limite est voisine de 800Ω pour un contact de $1 \mu\text{m}$ de large. Nous pensons que

ce résultat est fortuit, car comme nous le verrons, les résistances de contact que nous avons pu mesurer ont révélé des valeurs inférieures à 100Ω comme celles mesurées par d'autres groupes.

Dans la littérature, deux méthodes sont utilisées pour extraire les résistances de contact. La première consiste à les extraire en comparant des mesures en configuration 2-fils et 4-fils. La seconde consiste à mesurer la résistance du conducteur avec des contacts de plus en plus rapprochés l'un de l'autre puis d'extrapoler à distance nulle. Ces deux méthodes restent soumises au fait qu'une partie de la chute de tension a lieu dans le conducteur ; il n'est pas possible d'avoir accès uniquement à la chute de potentiel dans un seul contact.

Une bonne méthode consiste à utiliser une configuration 3-fils en régime d'effet Hall quantique. On commence par mesurer R_{xx} sur le plateau dans une configuration 4-fils où les contacts de tension sont proches du contact que l'on cherche à connaître. On mesure ensuite la résistance en configuration 3-fils. Si celle-ci reflète le comportement de R_{xx} sur le plateau alors on peut estimer la résistance du contact. L'unique limite de cette méthode est qu'elle permet de mesurer la résistance d'un contact uniquement sur les plages de densité correspondant au régime d'effet Hall quantique.

10.1.3 Mesure des résistances de contact sur des feuillets de graphène

Pour les trois échantillons que nous allons présenter, les contacts sont non-invasifs. Les métaux et épaisseurs utilisés sont de 5 et 10 nm de titane et de 50 et 100 nm d'or respectivement pour les échantillons ML001 et BL006 et 60 nm de palladium pour l'échantillon ML002. Les épaisseurs ont été augmentées au cours de la thèse dans le but d'améliorer la tenue mécanique des contacts pendant les recuits et le refroidissement, ainsi que la continuité des couches métalliques en contact avec le feuillet de graphène. Pour les trois échantillons que nous allons présenter, les surfaces de recouvrement métal-graphène sont comprises en 1 et $3 \mu\text{m}^2$. Enfin, notant L_b la longueur du bras de contact (distance entre le canal et l'électrode métallique) et W_b la largeur du bras au niveau du canal, les dimensions des bras de contact sont :

$$\begin{aligned} \text{pour l'échantillon ML002 : } L_b &= 1 \mu\text{m} & \text{et} & & W_b &= 0.75 \mu\text{m} \\ \text{pour l'échantillon BL006 : } L_b &= 0.5 \mu\text{m} & \text{et} & & W_b &= 3 \mu\text{m} \end{aligned}$$

Différentes formes ont été utilisées pour les bras de contact : des rectangles (cas de l'échantillon BL006) ou des trapèzes (cas de l'échantillon ML002) par exemple. Au vu de ce que l'on a constaté, la géométrie présentant la meilleure résistance mécanique, notamment pendant les recuits, est la forme de trapèze dont la grande base est du côté canal et la petite base du côté de l'électrode métallique. Les contraintes élastiques entre le feuillet de graphène et la surface de l'oxyde qui apparaissent pendant le recuit et le refroidissement peuvent expliquer que la forme de trapèze soit plus robuste.

Les mesures des résistances de contact sur l'échantillon ML002 ont été réalisées à $T = 1.3 \text{ K}$ et $B = 11.7 \text{ T}$ et celles de l'échantillon BL006 à $T = 0.35 \text{ K}$ et $B = 18.5 \text{ T}$.

Les mesures de résistances de contact doivent nous permettre de connaître la valeur mais aussi le comportement du contact en fonction du courant. Les mesures sont faites pour les deux sens du courant, c'est à dire, dans une image de Büttiker, en passant par les états de bord différents en régime d'effet Hall quantique, et différentes valeurs de $|I|$. Le but est d'observer des asymétries éventuelles en courant qui seraient dues à un comportement non ohmique du contact ou à des inhomogénéités de la densité.

Résistance des contacts pour l'échantillon ML002

La figure 10.3 montre les résistances mesurées en configuration 3-fils sur le plateau $\nu = +2$ ainsi que le R_{xx} correspondant. Les courants continus utilisés pour ces mesures sont relativement

faibles afin de ne pas endommager les contacts (rupture du bras,...). On constate plusieurs comportements différents sur la même gamme de densité. La résistance du contact 6 diminue lorsque la tension de grille augmente, alors que celle du contact 0 augmente. De plus, la résistance du contact 0 sature à une valeur proche de 20 Ω tandis que celle du contact 6 ne fait que marquer un minimum à une valeur voisine de 230 Ω . Les contacts de tension ont eux aussi des comportements différents : la résistance du contact 3 est constante ($\sim 260 \Omega$), celle du contact 9 sature sur une portion du plateau ($\sim 20 \Omega$) puis augmente et enfin le contact 2 sature ($\sim 20 \Omega$), augmente, sature ($\sim 190 \Omega$) puis décroît. Les contacts 0 et 9 ont un comportement normal, dans le sens où la résistance 3-fils mesurée est semblable à une mesure 4-fils de R_{xx} avec un plateau proche de 0 ; R_c est donc faible. De plus, on voit se manifester les inhomogénéités de la densité car nos mesures montrent que les plateaux de Hall de différentes configurations n'ont pas tous le même comportement en fonction de la tension de grille. Le tableau 10.1 résume les valeurs minimales des résistances des contacts que nous avons pu relever pour l'échantillon ML002 ainsi que les valeurs pour la densité à laquelle nous avons réalisé les tests de quantification.

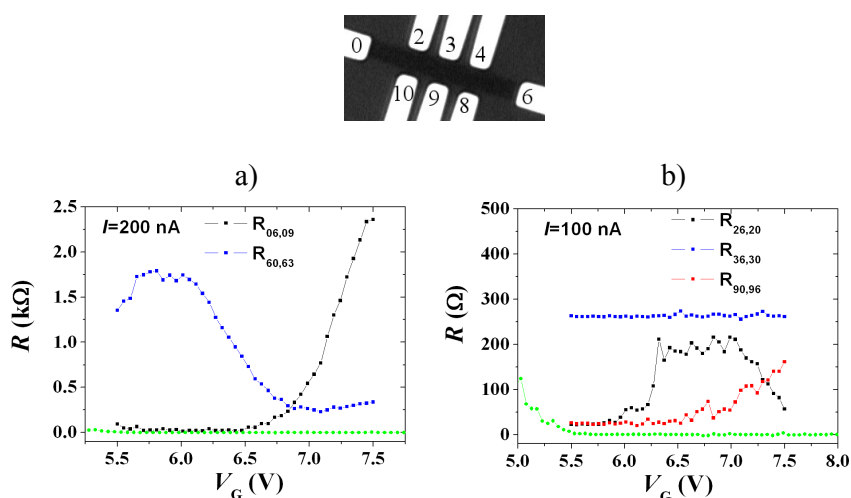


FIGURE 10.3 – Résistances mesurées en configuration 3-fils sur le plateau $\nu = +2$ pour l'échantillon ML002 : en a) les contacts utilisés sont les contacts de courant 0 et 6, en b) les contacts utilisés sont les contacts de tension. En vert on a fait figurer la résistance longitudinale $R_{06,23}$ pour pouvoir estimer les résistances des contacts.

Contacts	Valeur minimale de R_c	R_c à $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$
0	20	24
2	20	184
3	260	270
6	230	730
9	20	27

TABLE 10.1 – Résistances des contacts, exprimées en Ω , mesurées sur le plateau $\nu = +2$ pour l'échantillon ML002.

Résistance des contacts pour l'échantillon BL006

Les résistances des contacts sont évaluées sur le plateau $\nu = -4$. En raison d'inhomogénéités de la densité, les résistances mesurées sont présentées figure 10.4, entre $n_S \approx -3.2 \times 10^{12}$ et

$n_S \approx -0.6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, une par une avec la résistance longitudinale mesurée sur la zone la plus proche possible de celle utilisée lors de la mesure en 3-fils. On observe les caractéristiques suivantes :

- les contacts 1, 2 et 4 présentent des résistances très faibles (inférieures à 20Ω) et indépendantes de la densité dans la gamme étudiée, Les contacts 1, 2 et 4 ont un comportement normal dans le sens où la résistance 3-fils reproduit le comportement de R_{xx} ,
- le contact 3 marque un minimum vers $V_G = 50 \text{ V}$ qui vaut $\sim 430 \Omega$,
- le contact 8 est le seul contact très résistif sur cet échantillon ; la résistance marque un minimum voisin de $6 \text{ k}\Omega$ pour une tension de grille proche de 48 V .

De manière globale, tous les contacts présentent un comportement ohmique : leur résistance ne dépend pas du sens du courant les traversant ni de sa valeur.

En outre, comme on peut le voir sur la figure 10.4-f), la résistance du contact 8 dépend peu de la valeur du courant. Les valeurs des minima des résistances de contact et leur valeur à la densité pour laquelle nous avons fait les tests de quantification sont résumées dans le tableau 10.2. En particulier, on remarquera que la valeur du contact 8 ne correspond pas à la valeur visible sur la courbe figure 10.4-f. La valeur de $6 \text{ k}\Omega$ correspond à la valeur de la résistance du contact mesuré au début des mesures électriques sur cet échantillon alors que les courbes des figures 10.4-d) et -f) correspondent à des mesures après cinq mois de mesures sur cet échantillon. On observe donc un vieillissement du contact car sa résistance augmente au fil du temps.

Contacts	Valeur minimale de R_c	R_c à $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$
1	18	57
2	8	14
3	430	1960
4	4	25
8	6000	9800

TABLE 10.2 – Résistances des contacts, exprimées en Ω , mesurées sur le plateau $\nu = -4$ pour l'échantillon BL006.

Recuit en courant

Dans l'un des échantillons (monocouche ML003) que nous avons pu étudier, nous avons constaté d'énormes résistances de contact une fois l'échantillon mis sous vide. En effet, les contacts qui ont une épaisseur de 5 nm de titane sous la couche d'or, présentaient des résistances de l'ordre de $3 \text{ M}\Omega$. Pour voir s'il était possible de réduire ces résistances de contact, nous avons injecté des courants croissants, de $0.5 \mu\text{A}$ à $10 \mu\text{A}$ dans un premier temps, pendant quelques minutes (typiquement 3 minutes). Le recuit en courant est une méthode de nettoyage utilisée par d'autres groupes pour les contacts ou même pour nettoyer le feuillet de graphène [128]. Pour chaque courant, la résistance 2-fils est ensuite mesurée avec un courant de 100 nA . De cette manière nous avons pu observer une diminution de la résistance des contacts. Nous avons donc poursuivi cette opération jusqu'à des courants de recuit de l'ordre de $500 \mu\text{A}$. La figure 10.5 montre l'évolution de la résistance 2-fils R_{02} en fonction du courant injecté pour le recuit. En particulier, on voit que cette résistance initialement proche de $3 \text{ M}\Omega$, est de l'ordre de $15 \text{ k}\Omega$ à la fin du recuit. Nous avons donc pu, grâce à cette méthode, diminuer les résistances 2-fils, en différentes configurations, d'un facteur proche de 200. Il est possible que du fait de la faible épaisseur de titane, le mouillage de la couche soit imparfait. Par oxydation du titane, le contact électrique devient résistif. Le passage d'un courant élevé dans les contacts peut provoquer un recuit local de la couche de titane et aboutir à l'amélioration du contact électrique.

Comme nous l'avons évoqué au Chapitre 7 page 114, au cours de la thèse, nous avons essayé de réaliser des recuits à $400 \text{ }^\circ\text{C}$ sous atmosphère d'argon hydrogéné. Lorsque l'épaisseur de

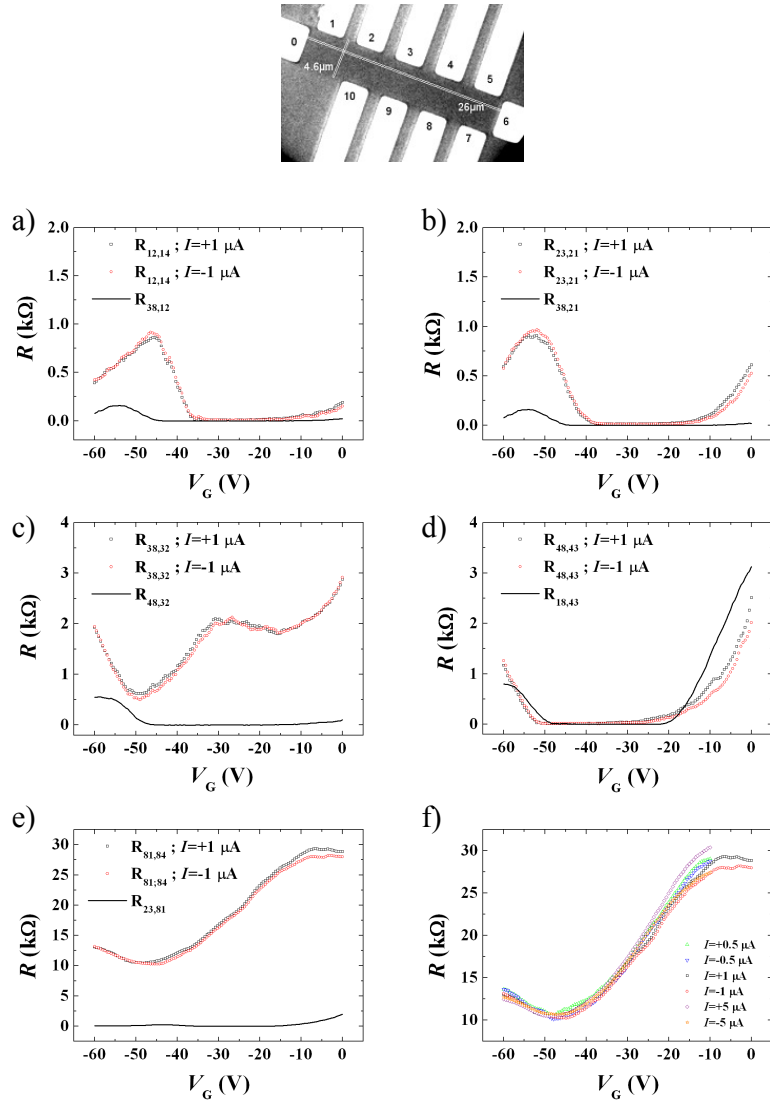


FIGURE 10.4 – Résistances mesurées pour deux sens du courant en configuration 3-fils sur le plateau $\nu = -4$ pour l'échantillon BL006 : en a) estimation de la résistance du contact 1, en b) celle du contact 2, en c) celle du contact 3, en d) celle du contact 4 et en e) celle du contact 8. En f), comparaison des mesures 3-fils $R_{81,84}$ pour trois valeurs du courant.

la couche de titane était de 5 nm, nous avons observé un décollage de la piste métallique du feuillet de graphène. Par contre, lorsque l'épaisseur de la couche d'accroche était de 10 nm, il n'y avait pas destruction du contact métal-graphène.

Suite aux mesures de contact sur l'échantillon ML003 et ces observations lors du recuit sous argon hydrogéné, nous avons augmenté l'épaisseur de la couche d'accroche en titane de 5 à 10 nm. L'épaisseur de la couche d'or a elle aussi été augmentée de 50 à 100 nm.

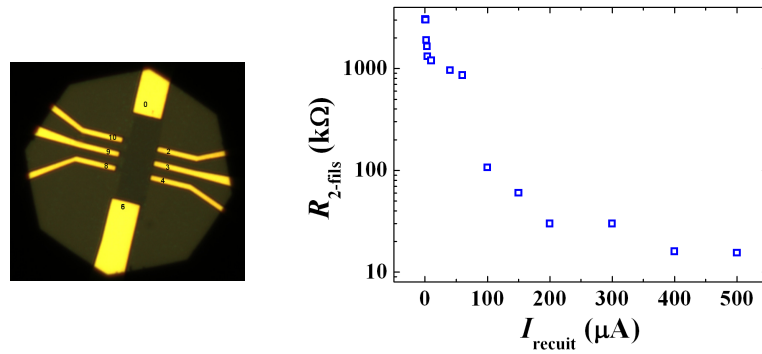


FIGURE 10.5 – Evolution de la résistance 2-fils $R_{02,02}$ en fonction du courant utilisé pour le recuit. La résistance 2-fils a été mesurée avec $I = 0.2 \mu\text{A}$ après avoir injecté le courant I_{recuit} dans la même configuration pendant 3 minutes.

Autre échantillon et bilan

En ce qui concerne l'échantillon ML001, les résistances de contact ont été évaluées de manière ponctuelle au centre des plateaux $\nu = -2$ et $\nu = +2$. Les valeurs sont données dans le tableau 10.3. On remarque que la résistance des contacts varie en fonction de la nature des porteurs de charge, ce qui peut confirmer l'existence d'un transfert de charges entre le métal et le feuillet de graphène. Au cours de ces mesures, nous avons pu vérifier que les contacts avaient un comportement ohmique en courant : leur résistance ne dépend ni du sens du courant, ni de sa valeur.

Contacts	R_c sur $\nu = -2$	R_c sur $\nu = +2$
0	100	10
3	20000	2000
4	35	90
6	8	5
8	20	3
10	-	20

TABLE 10.3 – Résistances des contacts, exprimées en Ω , mesurées au centre des plateaux $\nu = -2$ et $\nu = +2$ pour l'échantillon ML001.

Grâce à ces différentes mesures, on voit qu'il est possible d'obtenir des résistances de contact faibles et avec un comportement ohmique entre un métal et un feuillet de graphène. Toutefois, les disparités observées des résistances au sein d'un même échantillon ne peuvent être expliquées. Au cours de la fabrication, un soin particulier a été apporté pour que les surfaces en regard entre le métal et le graphène soient les mêmes pour chaque contact. Malgré cela, il est possible que la zone dégagée lors de la lithographie électronique des contacts ait été mal développée et/ou contaminée ; la présence de résidus de résine ou d'impuretés peut rendre un contact résistif. En outre, des micro-coupures des bras de contacts et/ou les inhomogénéités de la densité peuvent peut-être expliquer les disparités que nous avons constatées.

Pour conclure cette partie sur les contacts métal-graphène, on peut dire que les valeurs relativement faibles des résistances de contact ainsi que leur comportement ohmique rendent possible la caractérisation métrologique de l'effet Hall quantique dans des feuillets de graphène.

10.2 Etude de l'effet Hall quantique dans l'échantillon BL006

10.2.1 Effet Hall quantique dans la bicouche BL006

L'effet Hall quantique a été observé à différentes inductions magnétiques en faisant varier la densité de porteur. Comme on peut le voir sur la figure 10.6, la quantification sous une induction magnétique égale à 18.5 T n'est pas du tout de la même qualité sur les plateaux $\nu = +4$ et $\nu = -4$. Pour le premier, la résistance longitudinale reste finie et ne forme pas de plateau et le plateau de la résistance transverse n'est pas parfaitement plat. A l'inverse, pour le plateau $\nu = -4$, R_{xx} forme un plateau proche de zéro et R_H forme un plateau proche de la valeur attendue $-R_K/4$. C'est sur ce plateau que l'on va étudier la quantification dans cette partie, c'est à dire que l'on va regarder la valeur prise par la résistance de Hall sur ce plateau ainsi que la platitude de ce dernier.

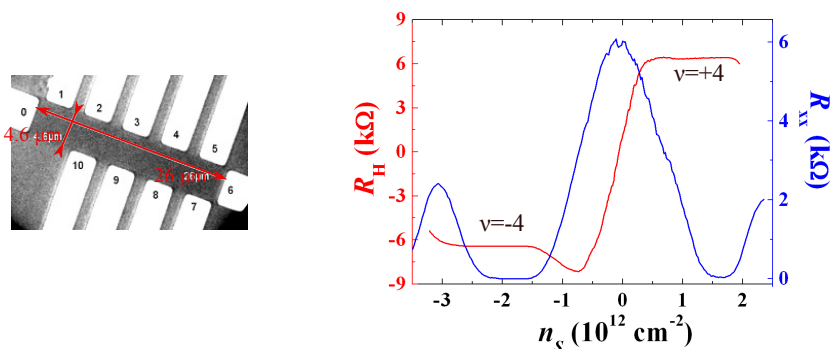


FIGURE 10.6 – Effet Hall quantique dans la bicouche BL006 observé en faisant varier la densité à induction magnétique constante $B = 18.5$ T, à $T = 0.35$ K et $I = 200$ nA. En trait rouge on a fait figurer la résistance de Hall $R_{38,24}$ et en trait bleu la résistance longitudinale $R_{28,34}$.

La figure 10.6 met en évidence un pic de R_{xx} très large autour de $n_S = 0$. La largeur totale à mi-hauteur est $1.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Supposons que l'énergie varie de manière linéaire avec ν : $\nu = -4$ correspond à une énergie de 45.7 meV c'est à dire la moitié de la distance en énergie entre le niveau de Landau $\nu = -6$ et les niveaux $\nu = 1$ et $\nu = 0$ qui sont confondus. Un facteur de remplissage $\nu = -4$ correspond, sous une induction magnétique de 18.5 T, à une densité $n_S \approx -1.79 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. En considérant la demi-largeur du pic central ($\approx 0.75 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$), on peut calculer l'énergie typique de la demi-largeur du pic central. On trouve $E \approx 19.3$ eV. On peut comparer cette énergie à l'élargissement typique donné par $\hbar\tau_{tr}$ avec $\tau_{tr} \approx 51.7$ fs à $-0.75 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Ainsi $\hbar\tau_{tr} \approx 12.7$ meV. La largeur du pic central sous fort champ magnétique est du même ordre de grandeur mais légèrement supérieur à l'élargissement typique donné par \hbar/τ_{tr} .

Le choix de l'origine pour calculer n_S à partir de V_G est tout aussi délicat que dans le chapitre précédent où la conductivité marquait un plateau en densité à champ nul. Nous avons choisi de conserver la même valeur de tension grille que pour l'analyse de la conductivité sans champ magnétique :

$$n_S[10^{12} \text{ cm}^{-2}] = 4.3 \times 10^{10}(V_G[V] - 14.8) \quad (10.1)$$

Manifestation de l'inhomogénéité de la densité

Lors des mesures des résistances des contacts métal/Graphène sur l'échantillon BL006, nous avons utilisé différentes configurations de mesure, c'est à dire différentes paires de contacts pour

faire circuler le courant et pour mesurer les chutes de tension. Au cours de ces mesures, nous avons constaté que la résistance longitudinale avait des comportements différents selon les paires de contacts utilisées. En particulier, les plateaux de résistance nulle n'ont pas nécessairement la même largeur en tension de grille et présentent des comportements en courant différents. La figure 10.7 représente la résistance longitudinale de l'échantillon BL006 mesurée selon deux configurations différentes ($R_{18,24}$ et $R_{28,34}$) en fonction de la densité pour trois courants différents ($0.5 \mu\text{A}$, $1 \mu\text{A}$ et $3 \mu\text{A}$) sur le plateau $\nu = -4$.

On constate que les résistances $R_{28,34}$ et $R_{18,24}$ ont des largeurs différentes en densité et que leur comportement en fonction du courant n'est pas identique : $R_{18,24}$ atteint des valeurs élevées (20Ω) pour un courant de $3 \mu\text{A}$ alors que la résistance $R_{28,34}$ reste proche de zéro pour un tel courant, tout du moins sur une certaine gamme de densité (de -1.8 à $-2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$). Ces deux observations nous permettent de dire que le désordre est différent entre les contacts 2 et 4 et les contacts 3 et 4. On attribue cette différence de comportements entre les deux résistances aux inhomogénéités de la densité dues aux impuretés chargées de l'oxyde.

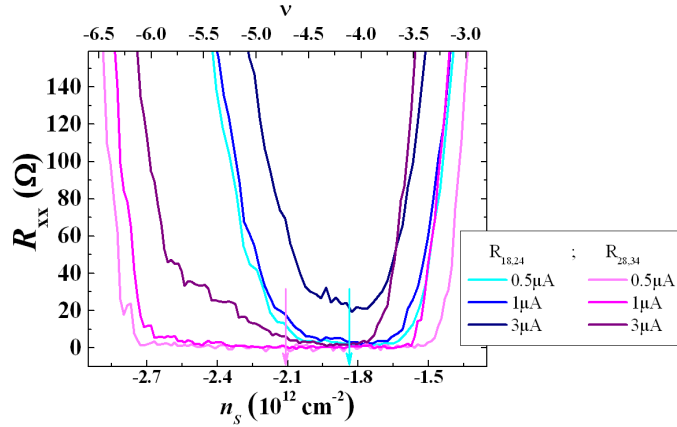


FIGURE 10.7 – Manifestation de l'inhomogénéité de la densité en régime d'effet Hall quantique pour l'échantillon BL006 : les courbes ont été obtenues sur le plateau $\nu = -4$ pour deux configurations différentes et à différents courants. On a indiqué sur l'échelle supérieure le facteur de remplissage calculé pour $B = 18.5 \text{ T}$.

En comparant les positions géométriques des centres des plateaux à bas courant déterminées graphiquement et indiquées par des flèches sur la figure 10.7, on peut estimer le taux d'inhomogénéité de la densité de l'ordre de $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. En régime d'effet Hall quantique, l'échantillon BL006 présente de très fortes inhomogénéités macroscopiques de densité. Il faut souligner que le milieu géométrique du plateau ne représente pas la position du minimum de dissipation. En effet, lorsque le courant augmente, la résistance $R_{28,34}$ a un comportement qui n'est pas symétrique par rapport au centre géométrique à bas courant. Il semble que l'état de dissipation minimale corresponde au centre géométrique du plateau de $R_{18,24}$. Le critère à bas courant n'est donc plus valable à courants plus élevés ; il est possible que les mécanismes à faibles courants et à forts courants ne soient pas les mêmes.

La sortie du plateau « à droite », c'est à dire à n_S faible, correspond à la base du pic $\nu = 0$ et la sortie du plateau « à gauche », à n_S élevée, correspond à la base du pic $\nu = -6$. Le comportement différent de chaque résistance « à gauche » et « à droite » provient de la différence de largeur de ces deux pics : la position des bords de mobilité par rapport aux centres de ces pics n'est pas la même pour $\nu = 0$ et $\nu = -6$. L'origine de cette différence de largeur est la différence de dégénérescence : pour le niveau $\nu = 0$, elle est de 8 (niveaux 0 et 1 confondus de dégénérescence

4 chacun) et pour le niveau $\nu = -6$, elle est de 4, soit deux fois moins.

On a représenté figure 10.8 l'évolution de $R_{xx} = R_{18,24}$ en fonction du courant. On observe une forte augmentation de R_{xx} , c'est à dire la rupture de l'effet Hall quantique, dès les bas courants ($\sim 1 \mu\text{A}$). Cette courbe nous indique que le courant critique est de l'ordre de $1 \mu\text{A}$. Une analyse plus précise sera faite plus loin.

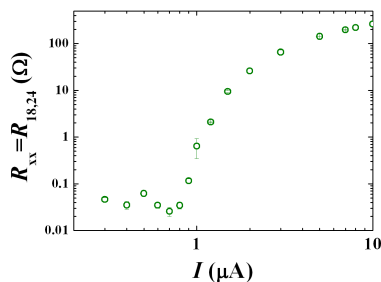


FIGURE 10.8 – $R_{18,24}$ en fonction du courant à $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $B = 18.5 \text{ T}$.

Mesures de précision de R_{xx}

Du fait des inhomogénéités spatiales de la densité engendrées par les impuretés chargées, des mesures de précision de R_{xx} dans différentes configurations sont nécessaires pour évaluer au mieux la dissipation dans l'échantillon. Les deux configurations dont nous allons parler sont $R_{xx} = R_{18,24}$ et $R_{xx} = R_{28,34}$. Ces mesures de précision sont réalisées à l'aide d'un nanovoltmètre analogique EMN11 dont le bruit est très faible : $7 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$. La sortie 1 V pleine échelle de l'EMN11 est branchée à un voltmètre numérique Agilent HP34420a. Ce voltmètre est raccordé à un ordinateur via une liaison IEEE qui permet d'enregistrer les valeurs de tensions. Les valeurs de tension sont ensuite transformées en valeurs de résistance. Les valeurs que nous allons présenter sont des moyennes sur les deux sens du courant.

Les valeurs typiques pour $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ sont résumées dans le tableau 10.4 : dans la configuration 18,24, la résistance longitudinale atteint des valeurs très élevées (26Ω) dès $2 \mu\text{A}$ alors que dans la configuration 28,34 elle reste à des valeurs faibles (moins de 1Ω à $2 \mu\text{A}$). Nous savons qu'il y a des inhomogénéités de la densité dues aux impuretés chargées et nous pensons que les mécanismes de rupture de l'effet Hall quantique sont eux-mêmes inhomogènes. Ces deux faits sont responsables de la différence de comportement entre les deux configurations ainsi que les valeurs élevées de R_{xx} . En comparant aux valeurs mesurées dans un étalon quantique GaAs ($< 100 \mu\Omega$), on constate que la résistance longitudinale est trois ordres de grandeur plus élevée dans la bicouche BL006 dès que $I = 1 \mu\text{A}$.

$I(\mu\text{A})$	$R_{xx} = R_{18,24} (\Omega)$	$R_{xx} = R_{28,34} (\Omega)$
0.5	0.088 ± 0.039	0.37 ± 0.051
1	0.638 ± 0.292	0.27 ± 0.024
2	26.08 ± 3.19	0.745 ± 0.026
3	65.46 ± 7.27	7.56 ± 0.01

TABLE 10.4 – Résistances longitudinales sur le plateau $\nu = -4$ pour l'échantillon BL006.

Utilisation du pont de comparaison

Après l'étude des plateaux de R_{xx} , nous allons présenter les tests de quantification que nous avons réalisés au LNE. Ces tests de quantification consistent à comparer l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène à l'effet Hall quantique d'un étalon de référence (hétérostructure GaAs/AlGaAs, *c.f.* page 63). A l'aide du pont de comparaison, nous avons déterminé la valeur d'une résistance matérielle de $100\ \Omega$ successivement en la comparant à la résistance de Hall sur le plateau $\nu = 2$ de l'étalon de référence puis en la comparant à la résistance de Hall sur le plateau $\nu = -4$ de la bicouche BL006. La résistance matérielle joue le rôle d'étalon de transfert : on compare indirectement l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène à celui de l'étalon de référence.

La première tâche à laquelle nous avons été confrontés est l'évaluation des erreurs du pont de comparaison. En effet, le dispositif utilisé au LNE n'est pas spécialement adapté aux mesures à faibles courants ($< 10\ \mu\text{A}$) ; en particulier la source primaire n'est pas conçue pour générer des courants de l'ordre du μA . L'ajout d'un diviseur de courant nous a permis de résoudre ce problème. Rappelons que l'on souhaite réaliser deux comparaisons successives (étalon de référence contre $100\ \Omega$ puis graphène contre $100\ \Omega$) avec les mêmes valeurs de courant pour ces deux comparaisons afin de s'affranchir des erreurs du pont de mesure aux faibles courants. C'est pourquoi, nous avons réalisé plusieurs déterminations de la valeur de la résistance de $100\ \Omega$ avec l'étalon de référence pour les courants utilisés lors des mesures avec l'échantillon de graphène ($0.5\ \mu\text{A}$, $1\ \mu\text{A}$, $2\ \mu\text{A}$ et $3\ \mu\text{A}$, *c.f.* figure 10.9). De cette manière, pour la comparaison graphène-étalon, on utilise la valeur intermédiaire de la $100\ \Omega$ déterminée avec le même courant.

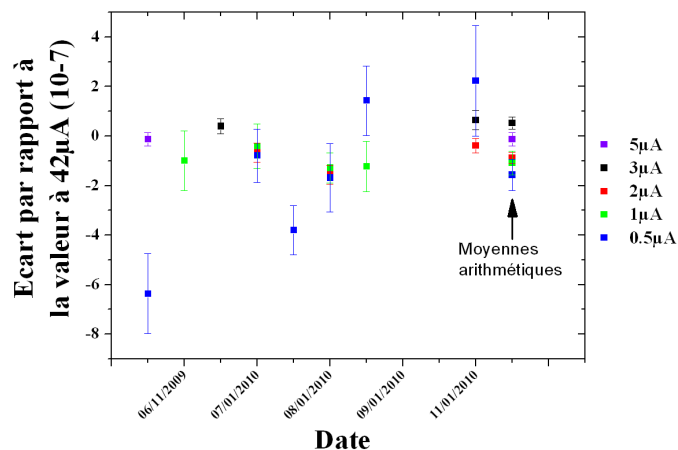


FIGURE 10.9 – Evaluation des écarts de la valeur de la résistance de $100\ \Omega$: on compare les valeurs de cette résistance mesurées avec des faibles courants par rapport à la valeur obtenue avec un courant de $42\ \mu\text{A}$ dans l'étalon. On a indiqué les moyennes arithmétiques utilisées pour les tests de quantification dans les feuillets de graphène.

Au total, la résistance de Hall n'a pu être mesurée précisément au pont que dans deux échantillons : la monocouche ML002 et la bicouche BL006. D'un point de vue pratique, pour chaque mesure, sont enregistrées les tensions de part et d'autre de l'équilibre du pont pour les deux sens du courant (*c.f.* page 78). Certaines mesures, en particulier sur la bicouche BL006, ont présenté de fortes asymétries $I+-I-$ (nous allons en discuter plus loin).

Dans la suite, nous parlerons d'écart relatif à la quantification, $\Delta R_H/R_H$. Il se calcule en faisant la différence entre les valeurs de la résistance de $100\ \Omega$ obtenues à courants identiques par

détermination avec l'effet Hall quantique dans l'étalon de référence et par détermination avec l'effet Hall quantique dans le feuillet de graphène. Dans la bicouche BL006 sur le plateau $\nu = -4$, nous adopterons la convention de signe suivante : R_H est positif et la valeur attendue est $R_K/4$. L'écart relatif est :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H} = \frac{R_{H, \text{graphène}} - R_{H, \text{étalon}}}{R_{H, \text{étalon}}} = \frac{R_{H, \text{graphène}} - R_K/4}{R_K/4} \quad (10.2)$$

Pour affiner les déterminations, nous avons tenu compte de la dérive temporelle de la résistance de 100Ω (6×10^{-10} par jour en valeur relative).

Pour finir cette rapide présentation, nous parlerons dans cette partie de R_{xx} (résistance longitudinale) alors qu'il s'agit de ρ_{xx} (résistivité longitudinale). On passe de l'un à l'autre en multipliant par le rapport d'aspect W/L où W est la largeur de l'échantillon et L la distance entre les deux contacts : $\rho_{xx} = R_{xx}W/L$.

10.2.2 Tests de quantification dans l'échantillon BL006

Asymétrie des mesures au pont de comparaison

Nous avons réalisés des mesures à l'aide du pont de comparaison de la résistance de Hall $R_H = R_{38,24}$ sur le plateau $\nu = -4$ à $T = 0.35$ K et $B = 18.5$ T.

Avant de discuter des asymétries des mesures, rappelons le principe d'une mesure au pont de comparaison (*c.f.* page 78). Pour une certaine compensation ϵ , le pont est équilibré : les tensions aux bornes des deux résistances sont égales. Dans la pratique, on choisit deux compensations, ϵ_+ et ϵ_- , de part et d'autre de cet équilibre et on mesure les tensions V_+ et V_- correspondantes pour chaque sens du courant. On détermine enfin une valeur de la résistance matérielle grâce aux valeurs de ϵ_+ , ϵ_- , V_+ et V_- . Une mesure complète n'est pas sensible aux valeurs à courant nul : seule compte la tension totale entre le déséquilibre à courant positif et le déséquilibre à courant négatif. Afin de caractériser les asymétries entre I_+ et I_- , nous avons extrait à partir des traces de chaque mesure les positions des zéro et les valeurs de tension pour chaque sens du courant. En utilisant ces valeurs de tension, on détermine une valeur de la résistance matérielle pour I_+ et pour I_- . La figure 10.10 représente les écarts relatifs à la quantification de $R_H = R_{38,24}$ dans le cas des mesures complètes (points verts), dans le cas où on ne considère que les mesures avec I_+ (points bleus) et dans le cas où on ne considère que les mesures avec I_- (points rouges). On entend par asymétrie le fait que les valeurs déterminées avec I_+ et avec I_- ne sont pas symétriques par rapport à la valeur issue de la mesure complète.

On peut séparer deux régimes différents ; le premier correspond aux bords du plateau. Dans ce régime là, on constate que les valeurs déterminées avec I_+ et avec I_- ne sont pas symétriques par rapport à la valeur issue de la mesure complète. On a donc des mesures asymétriques. Nous pensons que la chiralité des états de bord est responsable de ce comportement. Dans une description du type Landauer-Büttiker, selon le sens du courant dans le conducteur, les électrons vont parcourir un chemin différent. En raison de l'inhomogénéité de la densité, on peut imaginer que les états de dissipation associés à des chemins différents ne soient pas identiques. Autrement dit, on peut imaginer que le comportement de R_{xx} est asymétrique en courant. Du fait de la configuration de mesure diagonale, il existe un important couplage R_{xx}/R_H ; en particulier le comportement asymétrique est perçu dans la mesure de la résistance transverse.

Le second régime correspond au centre du plateau ; on remarque que les valeurs déterminées avec I_+ et avec I_- sont décalées de manière symétrique par rapport à la valeur issue de la mesure complète. On a donc à faire à des mécanismes qui sont indépendants du sens du courant ; il apparaît des décalages en tension qui sont indépendants du sens du courant (*c.f.* Figure 10.11-b)). Or, étant donnée que la mesure complète est insensible à des décallages identiques pour I_+ et pour I_- , la valeur issue de la mesure complète est peu écartée de la valeur attendue : l'écart relatif est faible. Il est possible que ce comportement soit dû à un effet thermoélectrique de type Peltier ou Seebeck.

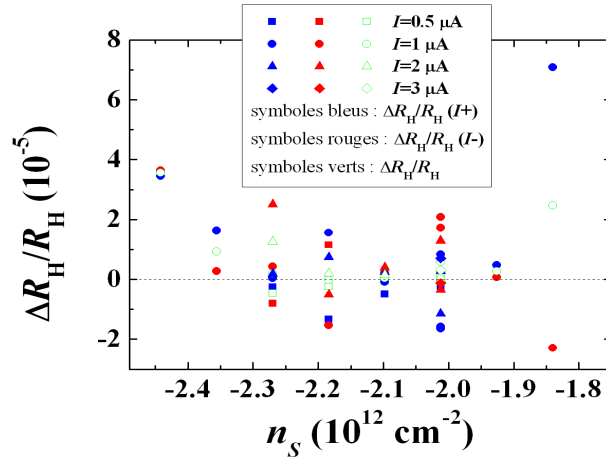


FIGURE 10.10 – Asymétrie $I+/I-$ au pont comparaison pour l'échantillon BL006 avec $|I| = 0.5 \mu\text{A}$; à partir des mesures complètes, nous avons extrait les valeurs uniquement avec le courant positif (symboles bleus) et avec le courant négatif (symboles rouges). Les symboles verts indiquent la valeur issue de la mesure complète.

Par exemple, à $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, avec $|I| = 1 \mu\text{A}$, on a une asymétrie proche de 5 ppm, toutefois, la moyenne sur $I+$ et $I-$ n'est pas écartée de la valeur attendue. Au travers de cet exemple, on voit qu'au centre du plateau il n'y a pas nécessairement de lien entre asymétrie et écart à la quantification : des mesures asymétriques ne donnent pas de valeurs écartées de la valeur attendue (en l'occurrence $R_K/4$).

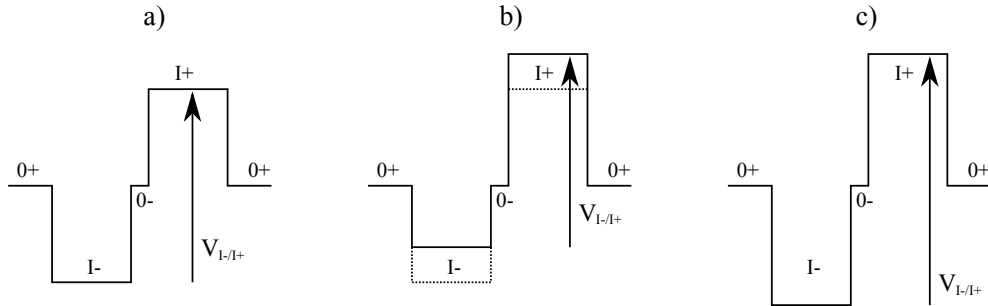


FIGURE 10.11 – Description qualitative de traces symétriques (-a)) et asymétriques (-b) et -c)). La tension $V_{I-/I+}$ reste identique lorsque l'on rajoute le même décalage pour chaque sens du courant (cas -b)). Par contre, quand les décalages ne sont pas les mêmes pour les deux sens du courant (cas -c)), le tension $V_{I-/I+}$ n'est plus la même.

Dans toute la suite, les valeurs de $\Delta R_H/R_H$ présentées sont les valeurs issues des mesures complètes.

Quantification en fonction de la densité

En ce qui concerne la bicouche BL006, nous avons réalisé de nombreuses mesures avec le pont de comparaison à différents courants et différentes densités de la résistance de Hall $R_H = R_{38,24}$.

L'ensemble de ces mesures est représenté sur la figure 10.12. La configuration de mesure est la suivante : le courant circule entre les contacts 3 et 8 et la tension est mesurée entre les contacts 2 et 4 (*c.f.* photo page 164). Quand plusieurs mesures de R_H et de R_{xx} ont été faites, nous avons calculé les moyennes arithmétiques. Rappelons enfin la convention signe que nous adoptée : on considère ici $|R_{H, \text{graphène}}|$ sur le plateau $\nu = -4$. La valeur attendue est $R_K/4$.

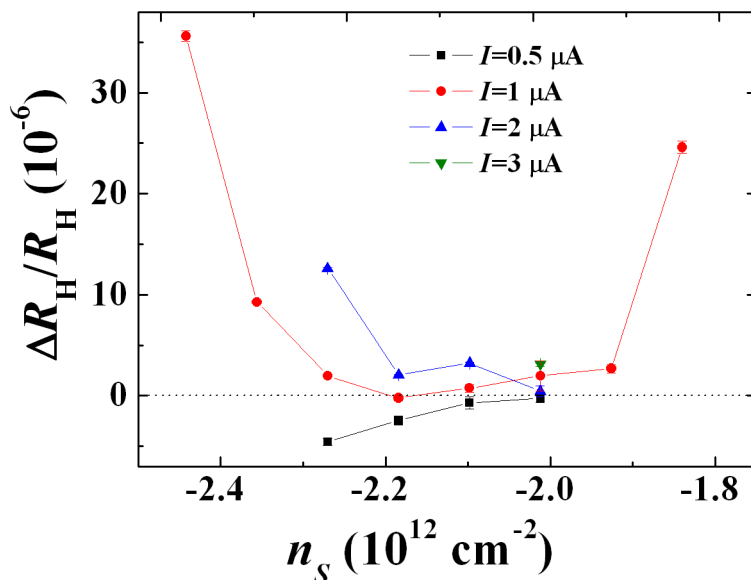


FIGURE 10.12 – Ecart relatif à la quantification de $R_H = R_{38,24}$ exprimé en 10^{-6} en fonction de la densité dans l'échantillon BL006. Les points noirs correspondent aux mesures faites avec $I = 0.5 \mu\text{A}$, ceux en rouge $I = 1 \mu\text{A}$, ceux en bleu $I = 2 \mu\text{A}$ et le point vert $I = 3 \mu\text{A}$.

En particulier, ces mesures mettent en évidence un plateau pour R_H sur une certaine plage de densité. Ce plateau est plat à 2×10^{-6} sur une variation de $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ de la densité de porteurs. De part et d'autre de ce plateau, la résistance de Hall dans l'échantillon de graphène s'écarte de la valeur attendue, en l'occurrence $R_K/4$. Plus précisément, sur les bords du plateau, l'écart est positif pour des courants de $1 \mu\text{A}$ et $2 \mu\text{A}$ et il est négatif pour un courant de $0.5 \mu\text{A}$. Une explication possible est le couplage géométrique R_{xx}/R_H étant donnée la configuration diagonale de la mesure. On mesure donc, en plus de la résistance transverse, une fraction de la résistance longitudinale. A bas courant ($I = 0.5 \mu\text{A}$), R_{xx} est très faible et la fraction que l'on mesure est négligeable. La résistance de Hall sur le plateau $\nu = -4$ entre à droite par des valeurs inférieures à $R_K/4$, et elle quitte le plateau à gauche par des valeurs inférieures à $R_K/4$. Par contre, à fort courant ($I \geq 1 \mu\text{A}$), la valeur R_{xx} devient importante et son poids grandit dans la mesure diagonale. Au fur et à mesure que ce poids grandit, il y a modification de la forme de la courbe de R_H en fonction de la densité (*c.f.* Figure 10.13). En particulier, quand le poids de R_{xx} est important, R_H entre et quitte le plateau par des valeurs supérieures à $R_K/4$. Enfin, du fait du couplage géométrique, les fluctuations de R_{xx} se manifestent aussi dans la mesure de la résistance de Hall en configuration diagonale ; ces fluctuations peuvent expliquer le caractère chaotique du plateau.

La figure 10.12 montre que tous les points se resserent, *i.e.* que les écarts relatifs deviennent très faibles, pour une densité proche de $-2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Cette densité correspond à $\nu = -4.5$ à 18.5 T. Le plateau de Hall observé n'est donc pas centré sur $\nu = -4$. En outre, en comparant le plateau de la résistance de Hall au plateau de R_{xx} (figure 10.7) on remarque que les plateaux ne coïncident pas en densité. Nous pensons que les inhomogénéités de la densité peuvent expliquer ces décalages ; le choix de l'origine des densités n'est pas aisé.

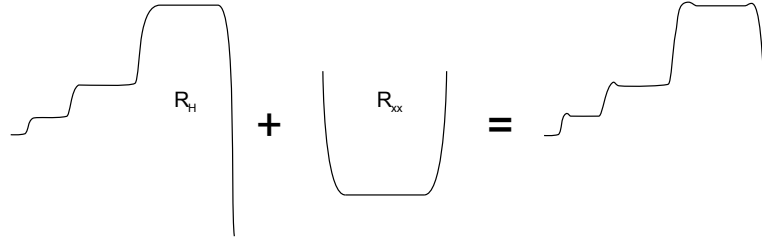


FIGURE 10.13 – Description qualitative du couplage R_{xx}/R_H lorsque le poids de R_{xx} est important : la quantité mesurée au pont de comparaison est un mélange de la résistance de Hall et d'une fraction de la résistance transverse.

Après cette présentation des mesures brutes de quantification, nous allons essayer d'extraire des écarts relatifs moyens.

Quantification en fonction du courant

Pour les deux densités où l'écart relatif est faible ($n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$), nous avons regardé l'évolution de l'écart relatif de $R_H = R_{38,24}$ avec le courant. Cette évolution est représentée sur la figure 10.14. Pour les deux densités considérées, les écarts relatifs restent inférieurs à 3.5×10^{-6} jusqu'à un courant de $3 \mu\text{A}$.

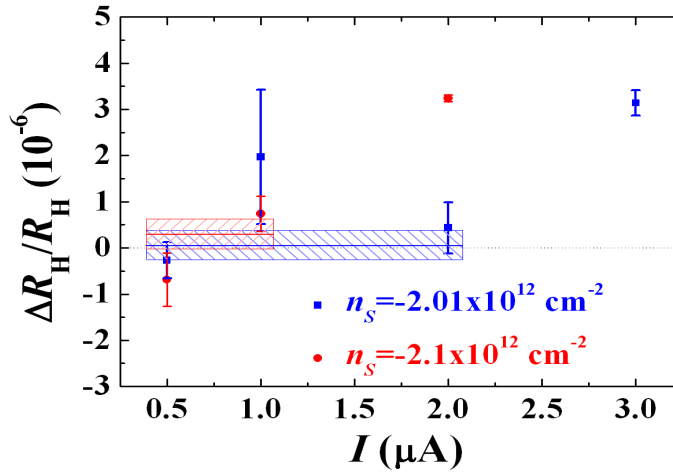


FIGURE 10.14 – Écart relatif à la quantification de $R_H = R_{38,24}$ exprimé en 10^{-6} en fonction du courant dans l'échantillon BL006. Les points bleus correspondent aux mesures à $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et ceux rouges à $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. On a fait figurer par les zones hachurées les écarts relatifs moyens et leurs incertitudes associées.

Pour les deux densités, nous avons calculé la moyenne pondérée des écarts relatifs de ces mesures à faible courant.

Pour $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, nous avons calculé la moyenne pondérée des points mesurés à $I = 0.5 \mu\text{A}$, $I = 1 \mu\text{A}$ et $I = 2 \mu\text{A}$. L'écart relatif moyen est :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H}_{\text{moyen}} (n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}) = (0.57 \pm 3.1) \times 10^{-7} \quad (10.3)$$

Pour $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, nous avons calculé la moyenne pondérée des points mesurés à $I = 0.5 \mu\text{A}$ et $I = 1 \mu\text{A}$. L'écart relatif moyen est :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H}_{\text{moyen}} (n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}) = (3 \pm 3.2) \times 10^{-7} \quad (10.4)$$

Grâce à ces moyennes en courant, on démontre un accord à 3.2×10^{-7} pour les deux densités à bas courant.

Extrapolation à dissipation nulle

On peut reporter les valeurs de $\Delta R_H/R_H$ pour $R_H = R_{38,24}$ en fonction des valeurs de R_{xx} mesurées à la même densité et avec le même courant. Pour chacun des courants, on place les points d'abscisse R_{xx} et d'ordonnée $\Delta R_H/R_H$ ainsi que leurs incertitudes associées. Etant données les inhomogénéités de la densité, nous avons mesuré R_{xx} selon deux configurations : en faisant circuler le courant entre les contacts 1 et 8, on mesure la tension entre les contacts 2 et 4 ($R_{18,24}$), puis en faisant circuler le courant entre les contacts 2 et 8, on mesure la tension entre les contacts 3 et 4 ($R_{28,34}$). Pour ces deux configurations, nous avons obtenu des R_{xx} très différents à densités identiques ; les résistances longitudinales sont 10 à 20 fois plus élevées dans la configuration $R_{28,34}$ que dans la configuration $R_{18,24}$. La figure 10.15 montre le comportement de l'écart relatif $\Delta R_H/R_H$ en fonction de l'état de dissipation pour les deux configurations de R_{xx} à $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$.

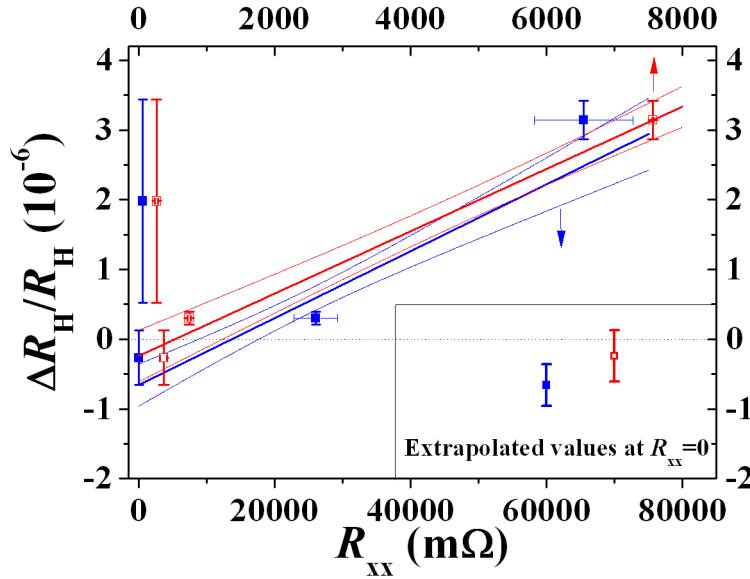


FIGURE 10.15 – Ecart relatif à la quantification de $R_H = R_{38,24}$ exprimé en 10^{-6} en fonction de R_{xx} dans l'échantillon BL006 pour deux configurations de mesure de R_{xx} à $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$: $R_{18,24}$ en bleu (échelle horizontale inférieure) et $R_{28,34}$ en rouge (échelle horizontale supérieure). On a fait figurer en traits épais les extrapolations à $R_{xx} = 0$ et en traits fins les incertitudes associées.

Soulignons au passage que l'écart relatif à $I = 1 \mu\text{A}$ est relativement important mais possède une incertitude élevée ($\Delta R_H/R_H = (1.98 \pm 1.46) \times 10^{-6}$). Rappelons que plusieurs mesures identiques ont été effectuées et le résultat présenté correspond à la moyenne arithmétique de ces mesures. L'incertitude calculée rend compte de la dispersion observée des points de mesure.

La véritable quantification est attendue lorsque la dissipation est nulle dans l'échantillon ; on extrapole donc l'écart à la quantification à R_{xx} nul en tenant compte des incertitudes, à la fois sur $\Delta R_H/R_H$ mais aussi sur R_{xx} . La principe d'extrapolation utilise la méthode des moindres carrés avec pondérations par les incertitudes. Les valeurs extrapolées sont :

$$\text{pour } R_{xx} = R_{28,34}, \quad \frac{\Delta R_H}{R_H}_{R_{xx} \rightarrow 0} = (-2.43 \pm 3.7) \times 10^{-7} \quad (10.5)$$

$$\text{et pour } R_{xx} = R_{18,24}, \quad \frac{\Delta R_H}{R_H}_{R_{xx} \rightarrow 0} = (-6.61 \pm 3) \times 10^{-7} \quad (10.6)$$

Dans le cas où la résistance longitudinale est mesurée entre les contacts 3 et 4, il n'est pas observé d'écart relatif à la quantification avec une incertitude relative de 3.7×10^{-7} . Par contre, dans le cas où la résistance longitudinale est mesurée entre les contacts 2 et 4, l'écart relatif reste couvert par deux fois l'incertitude standard.

Le coefficient de couplage R_{xx}/R_H , s , est défini par [36] : $\Delta \rho_{xy} = -s \rho_{xx}$. Ce couplage est d'origine géométrique et s est de l'ordre de l'unité [36]. Avec la pente de la droite d'extrapolation on peut extraire le coefficient de couplage. Les coefficients de couplage que l'on extrait à $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ sont :

$$\text{pour } R_{xx} = R_{28,34}, \quad s = -2.9 \times 10^{-3} \quad (10.7)$$

$$\text{et pour } R_{xx} = R_{18,24}, \quad s = -3.1 \times 10^{-4} \quad (10.8)$$

Ces valeurs du coefficient s apparaissent très faibles au regard de ce qui est attendu étant donné la configuration géométrique de la mesure. En effet, on pourrait s'attendre à $s \approx 1$ du fait de la configuration de mesure diagonale. Nous pensons que du fait des inhomogénéités de la densité, la valeur de R_{xx} mesurée ne reflète pas la dissipation réelle qui existe dans la configuration de mesure de R_H . En l'occurrence, le R_{xx} réel doit être plusieurs ordres de grandeur plus faible que le R_{xx} mesuré. Toutefois le R_{xx} mesuré reflète qualitativement bien le comportement dissipatif du système.

La dernière analyse que nous proposons ici consiste à combiner les valeurs $\Delta R_H/R_H$ et de R_{xx} pour une même configuration mais pour deux densités différentes. La figure 10.16 représente l'écart relatif $\Delta R_H/R_H$ en fonction de $R_{xx} = R_{18,24}$ pour deux densités différentes : $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ en bleu et $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ en vert.

Les valeurs extrapolées sont les suivantes :

$$\text{pour } n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}, \quad \frac{\Delta R_H}{R_H}_{R_{xx} \rightarrow 0} = (-6.61 \pm 3) \times 10^{-7} \quad (10.9)$$

$$\text{et pour } n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}, \quad \frac{\Delta R_H}{R_H}_{R_{xx} \rightarrow 0} = (-0.1 \pm 3.8) \times 10^{-7} \quad (10.10)$$

Les écarts relatifs restent couverts par le double des incertitudes standards (*c.f.* Annexe). On peut extraire le coefficient de couplage à partir de la pente de la droite d'extrapolation à $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$:

$$s \approx -1 \times 10^{-2} \quad (10.11)$$

Encore une fois ce coefficient de couplage paraît très faible.

Du fait des fortes inhomogénéités de la densité et des très faibles courants critiques, il ne nous a pas été possible de réaliser des tests de quantification montrant un accord entre $R_H = R_{38,24}$ et $R_K/4$ avec une incertitude inférieure à quelques 10^{-7} dans la bicouche BL006. Afin de mieux comprendre l'effet Hall quantique dans cet échantillon et l'origine des faibles courants critiques, nous avons étudié la conductivité en régime d'effet Hall quantique en fonction du courant à deux températures différentes.

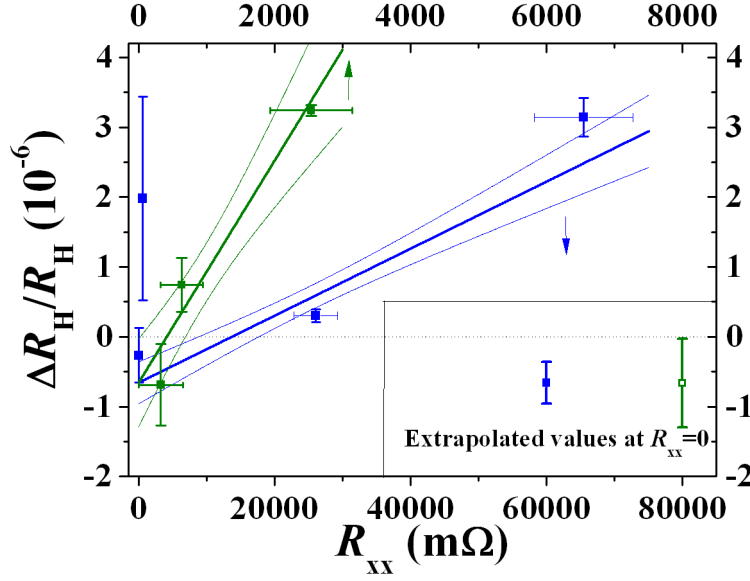


FIGURE 10.16 – Ecart relatif à la quantification de $R_H = R_{38,24}$ exprimé en 10^{-6} en fonction de $R_{xx} = R_{18,24}$ dans l'échantillon BL006 pour deux densités différentes : $n_S = -2.01 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ en bleu (échelle horizontale inférieure) et $n_S = -2.1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ en vert (échelle horizontale supérieure). On a fait figurer en traits épais les extrapolations à $R_{xx} = 0$ et en traits fins les incertitudes associées.

10.3 Etude de la dissipation en régime d'effet Hall quantique dans BL006

10.3.1 Rappels

Mécanisme de saut à portée variable

Comme nous l'avons rapidement évoqué au Chapitre 2, à basse température et à bas courant, les mécanismes de conduction en régime d'effet Hall quantique sont assez bien décrits par le VRH (Variable Range Hopping) [34]. De plus, Giesbers *et al.* [129] ont observé le mécanisme de VRH du type Efros-Shklovskii en régime d'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène et Bennaceur *et al.* [130] ont mis en évidence une transition entre le type Efros-Shklovskii et le type Mott du régime de VRH dans des feuillets monocouches de graphène. Il s'agit d'un mécanisme de conduction par saut qui assure une conduction finie à température finie et qui intervient notamment dans la description de la conductivité des isolants désordonnés. La probabilité de sauter d'un site i à un site j distants de r est donnée par :

$$P \propto \exp \left[- \left(\frac{r}{\xi_{\text{loc}}} + \frac{\Delta E}{k_B T} \right) \right] \quad (10.12)$$

où $\Delta E = 1/(\rho(E_F)r^d)$ est l'écart énergétique typique pour un électron dans une boîte cohérente de taille r^d (d est la dimension et $\rho(E_F)$ est la densité d'état au niveau de Fermi) et ξ_{loc} est la longueur de localisation. La résistance est proportionnelle à la probabilité donnée par la relation

10.12. Pour calculer la résistance, on cherche la portée variable du saut qui minimise la résistance :

$$\frac{\delta}{\delta r} \left(\frac{r}{\xi_{\text{loc}}} + \frac{\Delta E}{k_{\text{B}}T} \right) = 0 \quad (10.13)$$

ce qui nous donne le rayon de Mott :

$$r_{\text{Mott}} = \left(\frac{d\xi_{\text{loc}}}{g(\epsilon_F)k_{\text{B}}T} \right)^{1/(d+1)} \quad (10.14)$$

où $g(\epsilon_F)$ est la densité d'états au niveau de Fermi.

Ainsi, pour $d = 2$, lorsque l'interaction entre électrons est écrantée, la résistance se met sous la forme :

$$R \propto \exp \left[- \left(\frac{T_0(\nu)}{T} \right)^{1/3} \right] \quad \text{avec} \quad T_0(\nu) = \frac{d}{k_{\text{B}}g(\epsilon_F)\xi_{\text{loc}}(\nu)^d} \quad (10.15)$$

ce qui a été observé expérimentalement dans un feuillet monocouche de graphène [130].

Une fois le saut réalisé, l'électron laisse un trou en 0. L'énergie d'interaction coulombienne entre l'électron situé en r et le trou situé en 0 est :

$$\Delta E \sim \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r r} \quad (10.16)$$

Lorsque l'on tient compte de cette interaction coulombienne, la densité d'états au voisinage du niveau de Fermi est : $g(\epsilon) \propto |\epsilon - \epsilon_F|$. En introduisant ce résultat dans l'équation 10.13, on obtient la dépendance en température de la résistance pour un conducteur bidimensionnel en régime de VRH [30] :

$$R \propto \exp \left[- \left(\frac{T_0(\nu)}{T} \right)^{1/2} \right] \quad \text{avec} \quad T_0(\nu) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\xi_{\text{loc}}(\nu)} \quad (10.17)$$

La dépendance en courant est quant à elle de la forme [34] :

$$R \propto \exp \left[- \left(\frac{I_0(\nu)}{I} \right)^{1/2} \right] \quad \text{avec} \quad I_0(\nu) = \frac{2k_{\text{B}}T_0(\nu)W}{e\xi_{\text{loc}}(\nu)R_{\text{H}}} \quad (10.18)$$

On vient de voir que dans le cadre du VRH la résistance dépend entre autres de la longueur de localisation. Dans le cas d'un milieu désordonné, la longueur de localisation varie aléatoirement autour d'une valeur moyenne lorsque le niveau de Fermi change. Cette variation aléatoire engendre de fortes fluctuations de la conductivité. Dans le cas d'un conducteur désordonné et inhomogène en densité, on peut donc s'attendre à un renforcement des fluctuations de la conductivité.

Autres mécanismes

Lorsque l'on approche le courant critique, il y a rupture de l'effet Hall quantique : la conductivité augmente de manière brutale et le système devient dissipatif. Plusieurs modèles théoriques permettent d'appréhender ce phénomène. Un premier mécanisme, proposé par Komiyama *et al.* [131], est un modèle d'échauffement basé sur une instabilité thermodynamique : le champ électrique dû à la tension de Hall provoque un effet d'avalanche de paires électrons-trous ([132], [133]).

Un deuxième mécanisme a été proposé par Thouless [134]. En régime d'effet Hall quantique, du fait de l'interaction coulombienne, le conducteur est constitué d'îlots électroniques compressibles entourés d'une mer incompressible. Au sein des îlots, les électrons peuvent écranter le champ

électrique et, plus ils écrantent, plus ils peuvent se déplacer. A la rupture de l'effet Hall quantique, le champ électrique fait fusionner les îlots et les électrons percolent au travers de ce réseau d'îlots entre les deux bords de l'échantillon.

Un troisième mécanisme est la diffusion quasi élastique entre niveaux de Landau (QUILLS) proposé par Girvin *et al.* [135]. De manière générale, dans l'hypothèse d'un champ électrique moyen uniforme, lorsqu'on augmente le courant dans un système 2D soumis à un champ magnétique, on incline de plus en plus les niveaux de Landau dans la direction transverse au courant électrique. Du fait de cette inclinaison, des fonctions d'onde d'états électroniques situés sur des niveaux de Landau différents ont un recouvrement non-nul : des transitions inter niveaux de Landau peuvent avoir lieu. On a un couplage entre des états par un potentiel d'interaction (phonons ou impuretés) [136] (*c.f.* figure 10.17). Plus le champ électrique E_H est important, plus les niveaux de Landau sont inclinés et donc plus la probabilité de transition inter niveaux de Landau est élevée. Autrement dit, dans le modèle QUILLS, le champ électrique agit directement.

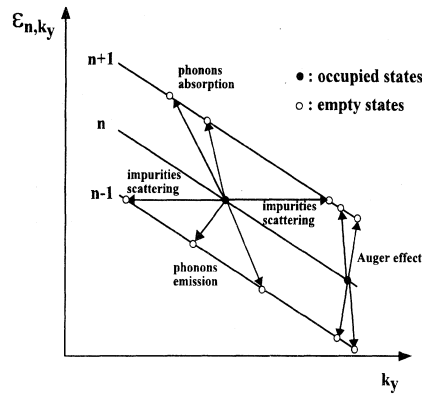


FIGURE 10.17 – Représentation schématique des transitions inter niveaux de Landau possibles (schéma tiré de [136]).

Une caractérisation de l'effet Hall quantique dans un matériau passe par l'étude de la rupture de l'effet en fonction du courant.

10.3.2 Expériences

La figure 10.18 représente l'évolution de la résistance longitudinale mesurée à trois densités différentes (-1.8 , -2 et $-2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) dans le plateau $\nu = -4$ en fonction du courant et aux deux températures d'étude : $T = 0.35 \text{ K}$ et $T = 1.5 \text{ K}$. Nous n'avons pas utilisé de courants supérieurs à $300 \mu\text{A}$ afin de ne pas endommager l'échantillon. On remarque l'augmentation abrupte de R_{xx} pour des courants de l'ordre du microampère ; la conductivité longitudinale augmente de façon exponentielle. En se donnant un critère sur la valeur de R_{xx} , on peut déterminer la valeur du courant critique, c'est à dire la valeur du courant au delà duquel on a rupture de l'effet Hall quantique. Les valeurs déterminées graphiquement avec le critère $R = 1 \Omega$ sont données dans le tableau 10.5 et représentées sur la figure 10.19 en fonction du facteur de remplissage. La première remarque que l'on peut faire est que les courants critiques à $T = 0.35 \text{ K}$ sont un peu plus élevés qu'à $T = 1.5 \text{ K}$. Ensuite, à chaque température, le courant critique évolue linéairement avec ν : plus on s'éloigne du centre du plateau plus la rupture de l'effet Hall quantique est atteinte rapidement. On retrouve ici le résultat observé dans des hétérostructures GaAs/AlGaAs ([137] et Figure 10.19-b)) en ce qui concerne l'évolution du courant critique en fonction du facteur de remplissage. Toutefois, nos observations ne comportant que des points à $\nu < -4$, nous ne pouvons dire si la dépendance

est symétrique de part et d'autre de $\nu = -4$. Enfin, les pentes aux deux températures semblent identiques sur la figure 10.5-a). Avec la largeur de l'échantillon ($4.6 \mu\text{m}$), on peut calculer la densité de courant critique; elle est de l'ordre de 0.2 A/m ce qui est du même ordre de grandeur mais légèrement plus faible que les valeurs observées dans des hétérostructures GaAs/AlGaAs beaucoup plus larges (*c.f.* Figure 10.5-b)) [137].

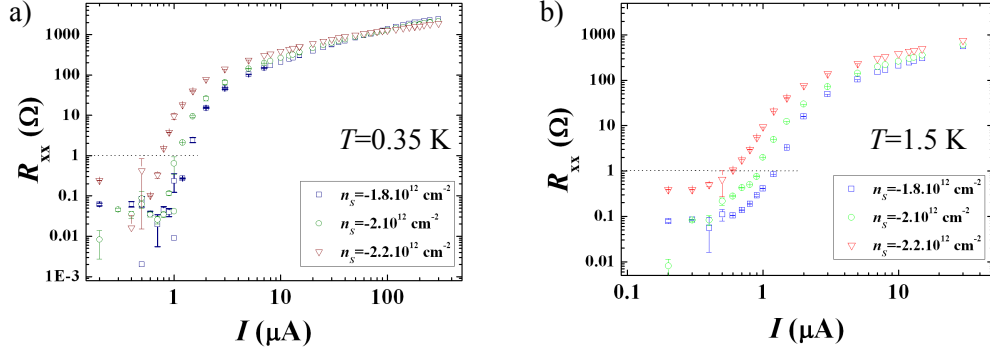


FIGURE 10.18 – Résistance longitudinale pour trois densités sur le plateau $\nu = -4$ en fonction du courant dans l'échantillon BL006 ($B = 18.5 \text{ T}$) : en a), à $T = 0.35 \text{ K}$ et en b), à $T = 1.5 \text{ K}$. Les échelles sont logarithmiques pour favoriser la lecture.

$n_S (10^{12} \text{ cm}^{-2})$	$T = 0.35 \text{ K}$	$T = 1.5 \text{ K}$
-1.8	$1.35 \mu\text{A}$	$1.24 \mu\text{A}$
-2	$1.06 \mu\text{A}$	$0.93 \mu\text{A}$
-2.2	$0.76 \mu\text{A}$	$0.59 \mu\text{A}$

TABLE 10.5 – Courants critiques aux deux températures de l'étude.

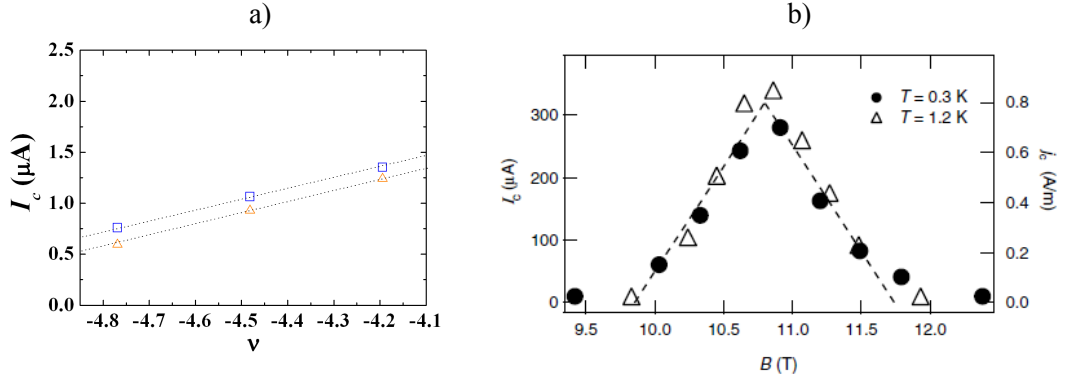


FIGURE 10.19 – En a), évolution du courant critique en fonction du facteur de remplissage dans l'échantillon BL006; en bleu les valeurs à $T = 0.35 \text{ K}$ et en orange les valeurs à $T = 1.5 \text{ K}$. En b), courant critique en fonction de l'induction magnétique dans un semi-conducteur conventionnel (courbe tirée de [137]).

La figure 10.20 représente la résistance transverse $R_{28,14}$ dans la même gamme de courant (de 200 nA à $300 \mu\text{A}$) à $T = 0.35 \text{ K}$. Ce n'est pas la même résistance de Hall que celle que nous avons mesuré à l'aide du pont de comparaison. Connaissant les valeurs de R_{xx} et de R_H aux

différents courants, on peut calculer la conductivité longitudinale en fonction du courant pour les densités $n_S = -1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_S = -2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. L'évolution de la conductivité longitudinale en fonction du courant aux deux températures est représentée sur la figure 10.21.

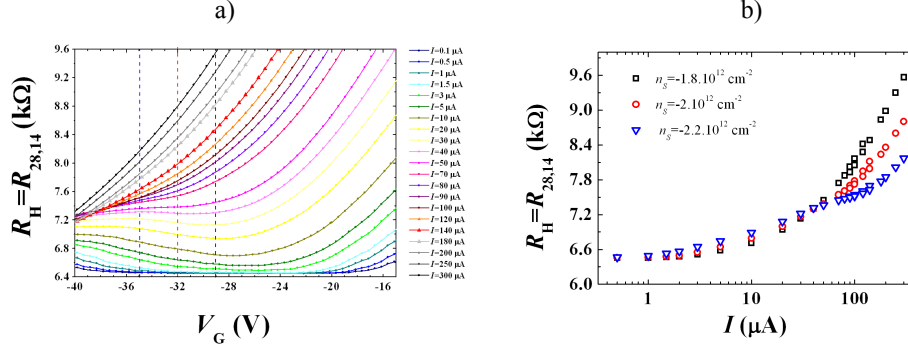


FIGURE 10.20 – Résistance de Hall sur le plateau $\nu = -4$ en fonction de la tension grille à différents courants dans l'échantillon BL006 ($T = 0.35 \text{ K}$ et $B = 18.5 \text{ T}$).

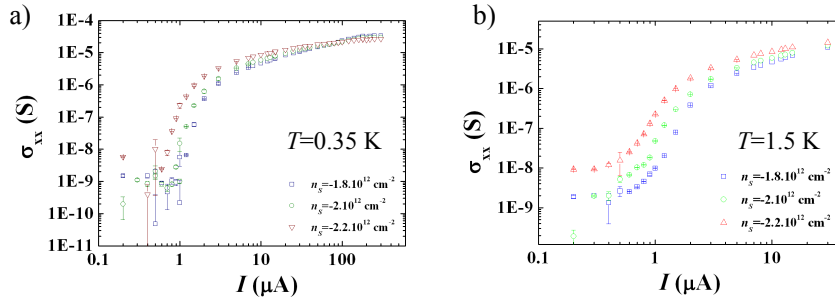


FIGURE 10.21 – Conductivité longitudinale pour trois densités sur le plateau $\nu = -4$ en fonction du courant dans l'échantillon BL006 ($B = 18.5 \text{ T}$) : en a), à $T = 0.35 \text{ K}$ et en b), à $T = 1.5 \text{ K}$. Les échelles sont logarithmiques pour favoriser la lecture.

Ces observations faites à deux températures différentes mettent en évidence pour les trois densités un changement de comportement illustré figure 10.22. Au voisinage du courant critique, on a un changement de la pente qui est différent pour les deux températures.

Il n'est pas possible d'ajuster la conductivité par des mécanismes VRH car la dépendance n'est pas en $\exp(-(I_0/I)^{1/2})$. Par contre, nous avons pu ajuster, à $T = 1.5 \text{ K}$, le comportement de la conductivité en fonction du courant à l'aide de la formule suivante :

$$\sigma = \sigma_0 + \sigma'_0 \exp \left[- \left(\frac{I_0}{I} \right) \right] \quad (10.19)$$

Les valeurs issues des ajustements sont données dans le tableau 10.6.

Un terme du type I_0/I peut être mis sous la forme :

$$\frac{I_0}{I} = \frac{eR_H I_0}{eR_H I} = \frac{eR_H I_0}{eV_H} \quad (10.20)$$

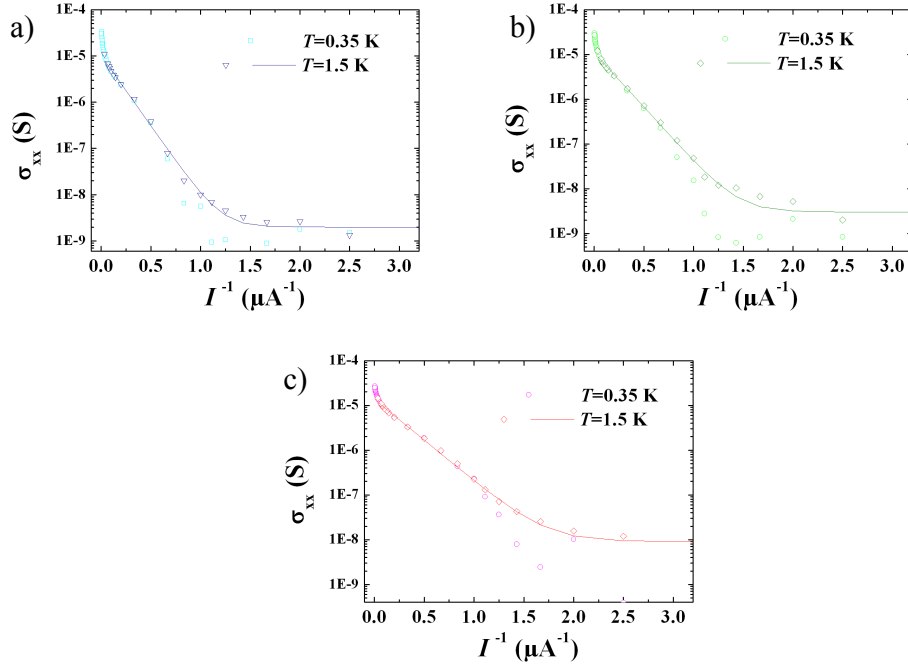


FIGURE 10.22 – Comparaison des conductivités longitudinales aux deux températures en fonction de l'inverse du courant dans l'échantillon BL006 à $B = 18.5$ T : en a), à $n_S = -1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, en b), à $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et en c), à $n_S = -2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Les échelles sont logarithmiques pour favoriser la lecture et la partie faible courant est à droite.

n_S (10^{12} cm^{-2})	σ_0 (e^2/h)	σ'_0 (e^2/h)	I_0 (μA)
-1.8	5.2×10^{-5}	0.26	7
-2	7.8×10^{-5}	0.28	5.6
-2.2	2.3×10^{-4}	0.35	4.2

TABLE 10.6 – Valeurs des paramètres pour les ajustements de la conductivité à $T = 1.5$ K.

c'est à dire sous la forme d'un rapport entre deux énergies caractéristiques ; le dénominateur, eV_H , est l'énergie d'une particule de charge e dans un potentiel électrique V_H . Nous allons comparer le numérateur, $eR_H I_0$, à l'énergie caractéristique correspondant à la différence d'énergie entre le niveau de Fermi au facteur de remplissage ν et le niveau de Landau d'indice supérieur $E_{g,th}(\nu)$.

Pour le cas qui nous concerne dans la bicouche BL006, rappelons que l'on étudie la transition entre :

- les niveaux 0 et 1 qui sont confondus, d'énergie nulle et de dégénérescence 8 ;
- et le niveau d'indice -2 , d'énergie $\sqrt{2}\hbar\omega_c$ (*c.f.* page 99) et de dégénérescence 4.

Ainsi, dans l'hypothèse simple où l'énergie varie de manière linéaire avec ν sur le plateau, cette énergie caractéristique est :

$$E_{g,th}(\nu) = \frac{\sqrt{2}\hbar\omega_c}{2} \left(1 + \frac{\nu + 4}{2}\right) = \frac{\sqrt{2}\hbar eB}{2m^*} \left(1 + \frac{\nu + 4}{2}\right) \quad \text{pour } -6 < \nu < -4 \quad (10.21)$$

Pour une bicouche ($m^* = 0.033m_e$) sous une induction magnétique de 18.5 T, on a : $E_{g,th}(\nu)[\text{meV}] \approx$

$91.4/2(1 + (\nu + 4)/2)$.

$E_{g,th}$ et $eR_H I_0 = E_{g,exp}(\nu)$ sont représentés en fonction de ν sur la figure 10.23. Les valeurs extraites des ajustements sont très proches des valeurs théoriques. En outre, on remarque que les valeurs de $\sigma'_0 \approx 0.3e^2/h$ pour les trois densités. Cette valeur proche de e^2/h est attendue dans l'hypothèse d'un mécanisme d'activation [30].

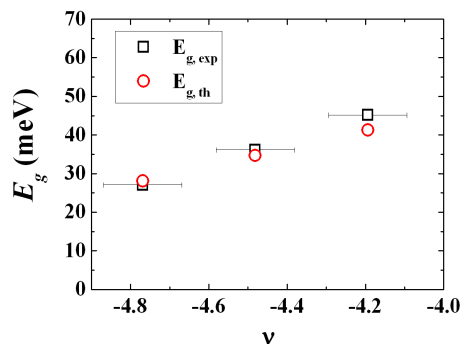


FIGURE 10.23 – Ecarts en énergie extraits des fits de la conductivité en fonction du facteur de remplissage à $T = 0.35$ K. En traits pointillés, on a fait figurer les ajustements linéaires et on a introduit des barres d'incertitude sur ν .

Pour expliquer le comportement de la conductivité, on peut envisager un effet de chauffage des électrons du type $\exp(-E_{g,th}/k_B T)$. A $T = 1.5$ K et $n_S = -1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, on aurait $\exp(-E_{g,th}/k_B T) \approx 2.8 \times 10^{-139}$ ce qui n'est pas en accord avec ce que l'on observe. De plus, un effet de chauffage signifierait que la température électronique effective est $k_B T_{eff} = eV_H$. Cette relation impliquerait des températures électroniques très importantes, par exemple 9600 K pour un courant de $10 \mu\text{A}$. En particulier, ces températures très élevées seraient à l'origine de mécanismes électrons/phonons qui modifieraient la relation linéaire entre température et tension. Enfin, un dernier argument permettant de rejeter l'effet de chauffage est le suivant : s'il y avait un fort effet de chauffage expliquant toute la conductivité, on n'observerait pas de différence entre les deux températures, ce qui n'est pas le cas.

Pour terminer cette analyse de la conductivité, nous allons aborder le sujet des valeurs à faible courant. Les valeurs à faible courant à $T = 0.35$ K sont corrompues par des effets de charge hystériques ce qui explique la dispersion des points. A $T = 1.5$ K, il n'y a pas de dispersion et les valeurs de conductivité sont plus élevées : on peut raisonnablement penser que l'on mesure correctement R_{xx} . Ces effets de charge ne permettent pas de comparer, au travers d'une théorie VRH, les valeurs à $T = 0.35$ K et $T = 1.5$ K. Par exemple, on ne peut pas déterminer de valeur pour T_0 sauf, peut être sur les bords du plateau. Toutefois, nous pensons que c'est bien le mécanisme de VRH qui donne la conductivité à bas courant mais il est masqué par ces effets de charge.

En conclusion de cette partie, rappelons les éléments importants :

- l'énergie caractéristique que l'on extrait des ajustements de la conductivité à $T = 1.5$ K est en accord avec la différence d'énergie théorique entre le niveau de Fermi et le niveau de Landau d'indice supérieur
- la conductivité limite σ_0 semble la même pour les trois densités
- à $T = 0.35$ K, la conductivité change de comportement

Ces observations nous amènent à penser que le mécanisme central est du type QUILLS.

10.3.3 Modèle de champ électrique local

Dans l'approche QUILLS, les transitions inter niveaux de Landau sont accompagnées d'échanges de phonons au réseau ou par interaction avec des impuretés [136] (*c.f.* figure 10.17). Plus le champ électrique E_H est important, plus les niveaux de Landau sont inclinés et donc plus la probabilité de transition inter niveaux de Landau est élevée. Autrement dit, dans le modèle QUILLS, le champ électrique agit directement. Après cette transition inter niveaux de Landau, des mécanismes de diffusion intra niveaux de Landau rendent compte de la conductivité longitudinale finie. Ces mécanismes sont assistés par échange de phonons acoustiques [138].

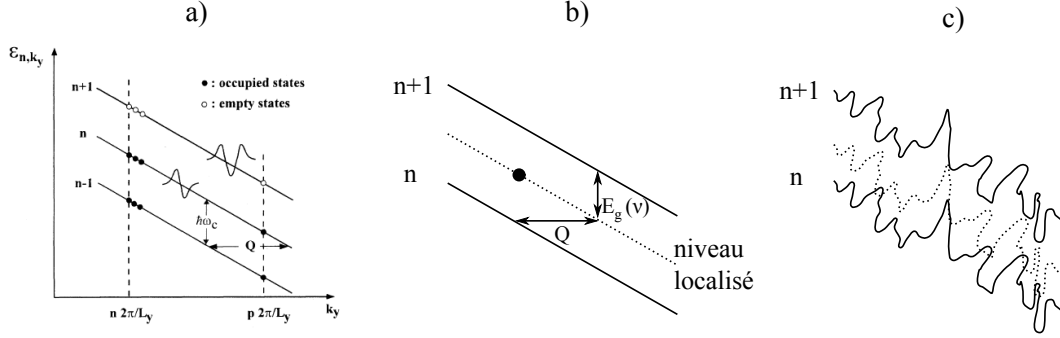


FIGURE 10.24 – En a), représentation schématique des transitions inter niveaux de Landau possibles (schéma tiré de [136]). En b), schéma en tenant compte du désordre et en c), même situation dans le cas d'un conducteur fortement désordonné.

Dans l'hypothèse d'un semi-conducteur conventionnel non désordonné sous champ magnétique, on a vu au chapitre 2 que les fonctions d'onde sont du type oscillateur harmonique : $\Psi \propto \exp(-x^2/l_B^2)$. La probabilité de transition entre deux niveaux de Landau va donc s'écrire $P \propto \exp(-Q^2 l_B^2)$ où Q est échangé soit par absorption d'un phonon ou par interaction avec des impuretés chargées. Q dépend géométriquement de l'inclinaison des niveaux de Landau et donc du champ électrique (*c.f.* figure 10.24-a)). Par conséquent, la probabilité de transition inter niveaux de Landau dépend directement du champ électrique [138] :

$$P \propto \exp\left[-\frac{\hbar e B^3}{2(m^*)^2 E_H^2}\right] \propto \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{x}{l_B}\right)^2\right] \quad \text{avec} \quad x = \frac{\hbar \omega_c}{e E_H} \quad (10.22)$$

Avec quelques manipulations on peut mettre la probabilité de transition inter niveaux de Landau sous la forme :

$$P_{\text{homogène}} \propto \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\hbar \omega_c W}{e V_H l_B}\right)^2\right] \quad (10.23)$$

où l'on a supposé que le champ électrique était homogène :

$$E_H = \frac{V_H}{W} \quad (10.24)$$

Pour les hétérostructures de semi-conducteurs conventionnels, les impuretés chargées sont les atomes donneurs ou accepteurs situés à proximité du plan d'électrons. Des calculs numériques ont été faits concernant la probabilité de transition inter niveaux de Landau pour l'absorption ou l'émission de phonons et par interaction avec des impuretés chargées [136], [138]. En particulier, dans des hétérostructures de semi-conducteurs conventionnels, le front de transition dû aux phonons survient à plus faible champ électrique que le front de transition dû aux impuretés chargées. Lorsque

les impuretés chargées sont loin du 2DEG, le front de probabilité est situé à une valeur élevée du champ électrique. Au fur et à mesure que la distance entre impuretés chargées et 2DEG diminue, le front se déplace vers les plus faibles champs électriques. Lorsque les impuretés chargées sont très proches du 2DEG, on peut s'attendre à ce que l'augmentation abrupte de la probabilité de transition liée à leur présence puisse avoir lieu avant celle due à l'absorption de phonons.

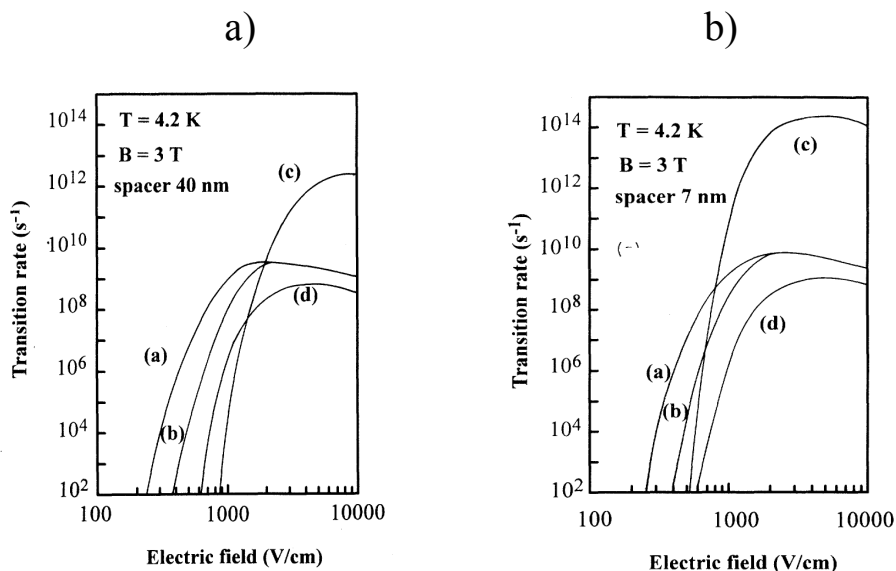


FIGURE 10.25 – Calculs des probabilités de transition inter niveaux de Landau dans le cas d'émission de phonons (courbe (a)), d'absorption de phonons (courbe (b)), d'interaction avec des impuretés chargées dans le puits de potentiel (courbe (c)) et d'interaction avec des impuretés chargées résiduelles dans le canal (courbe (d)); en a), lorsque la distance entre les impuretés chargées et le 2DEG est de 40 nm et en b) lorsque la distance entre les impuretés chargées et le 2DEG est de 7 nm. Les courbes sont tirées de [136].

En outre, quel que soit le mécanisme de transition inter niveaux de Landau, le porteur de charge subit des transitions intra niveaux de Landau une fois arrivé sur le niveau d'indice supérieur ou inférieur. Les transitions intra sont inélastiques et se font avec échange de phonons au réseau. Ce sont elles qui assurent la conductivité d'un point de vue effectif. Toutefois, on peut voir la conductivité comme la succession de deux processus différents ; dans un premier temps le porteur de charge transite vers un niveau de Landau étendu différent sous l'effet du champ électrique puis, dans un second temps, il « dégringole » le long du niveau de Landau en échangeant des phonons au réseau. Le vecteur premier de la conductivité dans l'approche QUILLS reste les transitions inter niveaux de Landau assistées par le champ électrique.

En introduisant du désordre dans le matériau, on autorise en quelque sorte le niveau de Fermi à être situé sur un niveau localisé entre les deux niveaux de Landau (*c.f.* figure 10.24-b)). On va donc considérer des transitions entre des états localisés au niveau de Fermi et des états étendus au niveau de Landau d'indice supérieur. Dans l'hypothèse simple où l'énergie varie de manière linéaire avec ν sur le plateau, l'écart en énergie entre le niveau de Fermi au facteur de remplissage ν et le centre du niveau de Landau d'indice -2 dans le graphène se met sous la forme :

$$E_g(\nu) = \frac{\hbar\omega_c}{2} \left(1 + \frac{\nu + 4}{2}\right) \quad (10.25)$$

et la probabilité de transition :

$$P_{\text{faible désordre}} \propto \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{E_g(\nu) W}{eV_H l_B} \right)^2 \right]. \quad (10.26)$$

Même si cette expression fait apparaître le rapport $E_g(\nu)/eV_H$, elle ne rend pas compte de nos observations expérimentales du fait du rapport W/l_B et de l'exposant carré.

Considérons maintenant un système fortement désordonné (*c.f.* figure 10.24). Les fonctions d'onde sont localisées au niveau des impuretés. Il a été montré que les fonctions d'onde évolue, à longue distance, selon : $\Psi \propto \exp(-x/\xi_{\text{loc}})$ où ξ_{loc} est la longueur de localisation. Avec cette considération, la probabilité de transition s'écrit :

$$P_{\text{fort désordre}} \propto \exp \left[-\frac{E_g(\nu) W}{eV_H \xi_{\text{loc}}} \right]. \quad (10.27)$$

Comme précédemment, cette expression fait intervenir le rapport $E_g(\nu)/eV_H$ en accord avec nos observations. Mais il reste un facteur géométrique, W/ξ_{loc} , qui n'est pas observé.

Dans un système fortement désordonné, le champ électrique varie de manière irrégulière sur la largeur de l'échantillon. Par exemple, on peut s'attendre à une forte variation du champ électrique près des bords. En reprenant l'image de Thouless [134], le champ électrique varie de manière brutale dans la zone incompressible aux bornes des zones compressibles qui sont de taille typique ξ_{loc} . Le courant qui circule en régime d'effet Hall quantique doit d'une certaine manière trouver son chemin dans une vallée de potentiel ; c'est à dire au sein de la mer incompressible, entre les zones compressibles (*c.f.* Figure 10.26). C'est ce champ électrique local qui peut provoquer des transitions inter niveaux de Landau en couplant un état situé sur le niveau de Fermi et un état du niveau de Landau d'indice supérieur.

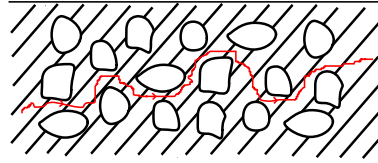


FIGURE 10.26 – Circulation du courant (trait rouge) dans la mer incompressible (zone hachurée) entre les zones compressibles (zones blanches) dans une image de type Thouless.

Le modèle QUILLS va nous permettre de décrire nos observations si on suppose que le champ électrique local est donné par $E_H = V_H/\xi_{\text{loc}}$. En effet, la probabilité de transition va maintenant se mettre sous la forme :

$$P_{\text{fort désordre, champ local}} \propto \exp \left[-\frac{E_g(\nu)}{eV_H} \right]. \quad (10.28)$$

En utilisant la relation $V_H = R_H I$, on peut écrire, avec nos hypothèses simples, les probabilités de transition inter niveaux de Landau dans les cas de faible et de fort désordre sous la forme :

$$P_{\text{fort désordre, champ local}} \propto \exp \left[-\frac{I_0}{I} \right] \quad \text{avec} \quad I_0 = \frac{E_g(\nu)}{eR_H} \quad (10.29)$$

Rappelons que dans l'approche QUILLS, ce sont ces transitions qui conditionnent la conductivité.

On voit que la théorie QUILLS permet d'expliquer nos observations expérimentales si l'on considère un champ électrique local fort qui s'écrit : $E_H = V_H/\xi_{\text{loc}}$. Les impuretés chargées de

l'oxyde sont à l'origine du fort désordre qui lui-même engendre ce champ. En effet, les impuretés chargées provoquent des fluctuations de densités et donc du facteur de remplissage. Il existe un chemin percolant, correspondant à $\nu = -4$, très fin aux bornes duquel toute la chute de tension a lieu. Ce champ électrique élevé, assisté par les impuretés chargées, favorise les transitions inter niveaux de Landau de manière plus importante que les phonons.

On a vu au chapitre précédent que la taille typique des flaques d'électrons et de trou dans la bicouche BL006 est de 11 nm. Cette distance est proche de la longueur magnétique sous une induction de 18.5 T : $l_B \approx 6$ nm. On va considérer pour la calcul du champ électrique critique que $\xi_{\text{loc}} = \xi_{\text{flaques}}$. Avec un courant critique de l'ordre de 1 μA , on peut estimer le champ électrique critique dans l'échantillon BL006 :

$$E_{H,c} = \frac{R_H I_c}{\xi_{\text{loc}}} \approx 5.64 \times 10^4 \text{ kV.cm}^{-1} \quad (10.30)$$

Ce champ électrique est très élevé mais il est du même ordre de grandeur que ce que l'on peut calculer avec la formule 10.22 pour un semi conducteur conventionnel qui aurait une masse effective $m^* = 0.033m_e$ et qui serait soumis à une induction magnétique $B = 18.5$ T [138], [139]. C'est ce champ électrique local qui explique le comportement de la conductivité à 1.5 K, en particulier la rupture de l'effet Hall quantique au voisinage de $I = 1 \mu\text{A}$.

Toutefois, comme on peut le voir sur les courbes de la Figure 10.22, il existe une différence de comportement entre les deux températures. Au niveau de la rupture de l'effet Hall quantique, le logarithme de la conductivité à 1.5 K est quasi linéaire en fonction de l'inverse du courant : $\ln \sigma \propto -1/I$. A 0.35 K, la conductivité a un comportement différent. Dans le cadre du modèle QUIILS avec un champ électrique local, il n'est pas possible d'expliquer cette différence de comportement. Nous allons maintenant essayer d'expliquer cet effet de température par un second mécanisme de blocage.

10.3.4 Effet de la température

La rupture de l'effet Hall quantique présente une dépendance en température entre 0.35 K et 1.5 K (*c.f.* Figure 10.27). Nous avons vu précédemment qu'un effet de chauffage ne pouvait à lui seul expliquer la différence de comportement de la conductivité entre $T = 0.35$ K et $T = 1.5$ K. Pour expliquer cette différence de comportement, nous allons introduire un effet qui est débloqué par la température et par un faible effet de chauffage dû au courant. Pour modéliser ce mécanisme, nous avons écrit la conductivité sous la forme suivante :

$$\sigma_{xx} = \sigma_0 + \sigma_1 \exp\left(-\frac{E_g(\nu)}{eV_H}\right) \times \exp\left(-\frac{E_c}{k_B(T + \gamma\sigma_{xx}V_H^2)}\right) \quad (10.31)$$

Dans l'équation 10.31, le premier terme en exponentiel correspond au mécanisme QUIILS avec un fort champ électrique local que nous venons d'étudier (terme en $\ll I_0/I \gg$); le second terme en exponentiel modélise le mécanisme de blocage à faible énergie. E_c est l'énergie critique qui va nous permettre de traduire phénoménologiquement la différence de comportement entre les deux températures; E_c est une énergie de blocage en dessous de laquelle des processus ne sont pas activés. Dans ce second terme, le dénominateur est formé de l'énergie thermique $k_B T$ et d'un second terme qui traduit la dissipation d'énergie : il s'agit d'un terme du type « Komiyama » qui consiste à écrire l'augmentation de température due à un effet de dissipation : $P_{\text{dissipée}} = \sigma_{xx} V_H^2$.

Grâce à l'équation 10.31, nous avons pu ajuster (*c.f.* Figure 10.28) toutes les courbes avec un nombre très limité de paramètres ajustables : les valeurs obtenues pour E_c et γ sont identiques pour les deux températures et les trois densités. Les seuls paramètres sont : σ_0 (quand il est possible de voir la saturation de la conductivité à très bas courant, donc uniquement à $T = 1.5$ K), σ_1 et $E_g(\nu)$. De plus il s'agit d'un calcul auto-consistant (σ_{xx} est une fonctionnelle de σ_{xx}). La valeur initiale de

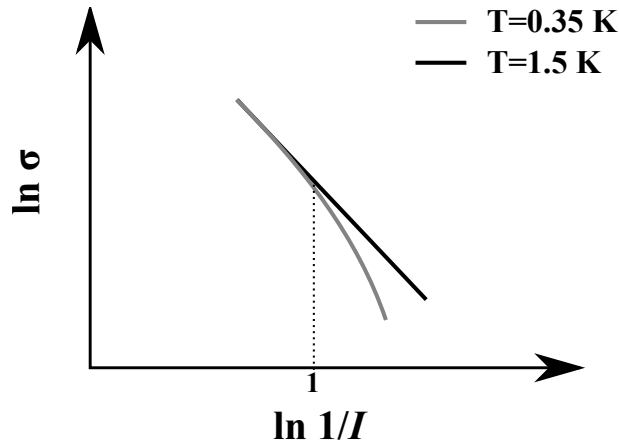


FIGURE 10.27 – Evolution typique des conductivités en fonction du courant à $T = 0.35$ K (trait gris) et $T = 1.5$ K (trait noir).

$E_g(\nu)$ est donnée par l'ajustement simple de la conductivité à $T = 1.5$ K (équation 10.19 page 178). On calcule ensuite le rapport des conductivités $\sigma(T = 1.5 \text{ K})/\sigma(T = 0.35 \text{ K})$ que l'on ajuste par le second exponentiel de l'équation 10.31 avec les températures correspondantes. Ce premier ajustement permet de déterminer les valeurs initiales de E_c et γ . On ajuste ensuite, indépendamment pour chaque température et chaque densité, la conductivité par la formule complète 10.31. La valeur de E_c que l'on obtient est faible : $E_c \approx 95 \mu\text{eV}$ et correspond à une température de 1.1 K. Le paramètre γ qui couple la température à la puissance dissipée vaut : $\gamma \approx 4.8 \text{ K/pW}$. Les valeurs des paramètres issues de l'ajustement sont données dans le tableau 10.7. On constate grâce à la figure 10.28 que cet ajustement, qui intègre un effet de température, permet de mieux décrire le comportement de la conductivité à $T = 1.5$ K par rapport au premier ajustement, montrant notamment que $\ln \sigma$ n'est pas tout fait linéaire avec $-1/I$. De plus, l'effet de dissipation permet de reproduire le changement de comportement de la conductivité à $T = 0.35$ K.

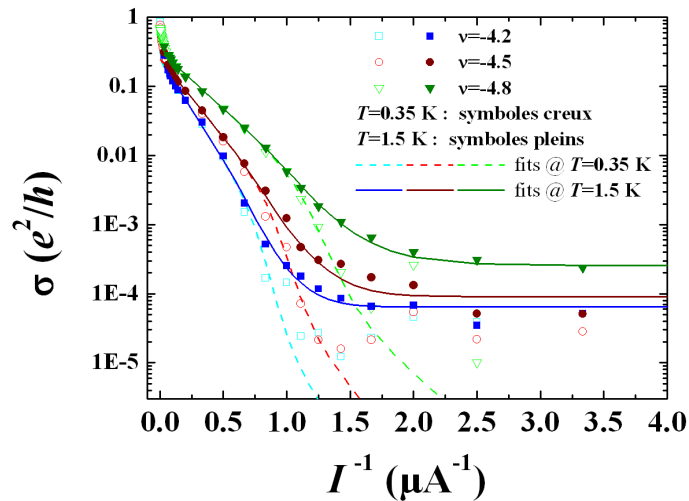


FIGURE 10.28 – Ajustement des conductivités par l'équation 10.31 pour les trois densités et aux deux températures.

On peut comparer les nouvelles valeurs de $E_g(\nu)$ aux valeurs théoriques. La figure 10.29 représente les données expérimentales et théoriques ; on constate un meilleur accord qu'avec l'ajus-

Paramètre	$n_S = -1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$	$n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$	$n_S = -2.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$
σ_0	$6.5 \cdot 10^{-5} e^2/h$	$9 \cdot 10^{-5} e^2/h$	$2.6 \cdot 10^{-4} e^2/h$
σ_1	$0.24 e^2/h$	$0.25 e^2/h$	$0.32 e^2/h$
$\Delta E(\nu)$	42.6 meV	33.6 meV	24.5 meV

TABLE 10.7 – Valeurs des paramètres issues des ajustements phénoménologiques de la conductivité aux deux températures et pour les trois densités.

tement simple que nous avons fait au début de cette partie. De plus, en extrapolant à $E_{g,\text{exp}} = 0$, on peut estimer la position du bord de mobilité à $\nu \approx -5.55$. On peut calculer la différence d'énergie, E_{bord} , entre le centre du niveau de Landau $\nu = -6$ et le bord de mobilité grâce à la formule 10.21. On obtient : $E_{\text{bord}} \approx 10.3$ meV. Cette énergie est la moitié de la largeur du niveau de Landau $\nu = -6$. D'autre part, rappelons qu'à $n_S = -2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, on a $\tau_{tr} \approx 50.3$ fs. La largeur totale du niveau de Landau $\nu = -6$, $E_{\nu=-6} \approx 20.57$ meV, est légèrement supérieure, mais du même ordre de grandeur, à l'élargissement typique $\hbar/\tau_{tr} \approx 13$ meV.

En considérant les droites des points expérimentaux et des points théoriques, on remarque qu'il existe une différence d'énergie à $\nu = -6$ entre ces deux droites. Enfin, les deux droites se croisent en un certain facteur de remplissage ν_0 . Grâce aux ajustements des deux droites, on a :

$$\Delta E \approx -14.15 \text{ meV} \quad \text{et} \quad \nu_0 \approx -4.65 \quad (10.32)$$

La différence d'énergie à $\nu = -6$ est très proche de $\hbar/\tau_{tr} \approx 13$ meV.

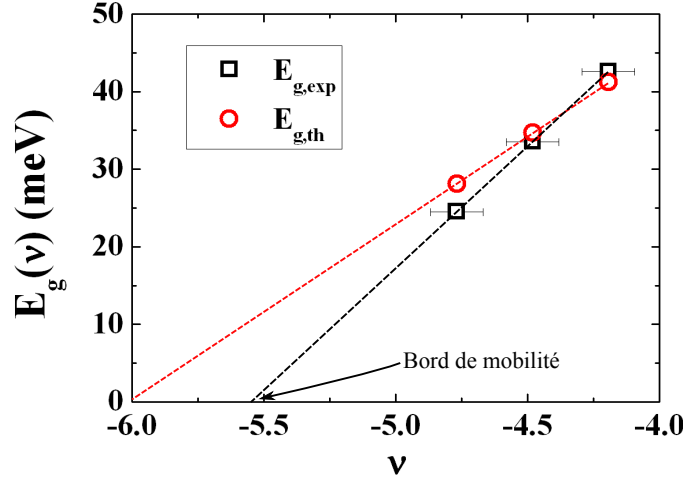


FIGURE 10.29 – Energies de gap théoriques et expérimentales en fonction du facteur de remplissage. On a introduit des barres d'incertitude sur ν .

Avant de discuter des origines possibles de cet effet de température, revenons rapidement sur le couplage entre la température et la puissance dissipée. Ce couplage est donné par $\gamma = 4.8$ K/pW; la valeur obtenue est très importante et semble traduire la mauvais couplage entre le feuillet de graphène et le substrat. La seule possibilité pour évacuer la chaleur est l'évacuation par les contacts ce qui peut expliquer pourquoi la valeur de γ est aussi élevée. Autrement dit, si la température du réseau est inférieure à E_c (ce qui est le cas pour les mesures à $T = 0.35$ K) les processus d'évacuation de la chaleur des électrons sont bloqués; du fait du mauvais couplage au substrat, la température électronique augmente.

Quels peuvent être les mécanismes possibles à l'origine de cet effet de température ? Le premier mécanisme auquel on peut penser de manière raisonnable est l'échange de phonons. Rappelons que dans le cadre du modèle QUILLS, l'énergie minimale impliquée dans un processus d'absorption de phonon vérifie : $E > \hbar c_s / l_B$ où c_s est la vitesse du son. Avec les valeurs de c_s des matériaux environnant le feuillet de graphène, on peut calculer les énergies typiques. Celles-ci sont données dans le tableau 10.8. On voit que l'échange de phonons avec le PMMA pourrait expliquer l'ordre de grandeur de la valeur de E_c que nous avons obtenue.

Matériau	Graphite	SiO ₂	PMMA
c_s	20000 m.s ⁻¹	6000 m.s ⁻¹	1600 m.s ⁻¹
E	2.2 meV \approx 25.6 K	0.66 meV \approx 7.7 K	0.13 meV \approx 1.53 K

TABLE 10.8 – Energies typiques pour des processus d'échanges de phonons.

Le second mécanisme qu'on peut envisager est le blocage de Coulomb dans les îlots compressibles. L'énergie de ces îlots est donnée par $E = e^2 / 2C_\Sigma$ où C_Σ est la capacité électrostatique de l'îlot dû au couplage avec l'environnement. Avec $E_c = 95 \mu\text{eV}$, on obtient $C_\Sigma \approx 8.4 \times 10^{-16}$ F. Cette valeur très forte de la capacité entraîne des tailles d'îlots de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. Conjuguée aux inhomogénéités macroscopiques de la densité, l'hypothèse du blocage de Coulomb pourrait expliquer l'effet de température observé. Toutefois, la manifestation du phénomène de blocage sur des échelles typiques de $1 \mu\text{m}$ paraît peu probable.

Cependant, en l'absence de données supplémentaires, il n'est pas possible d'avoir une explication définitive à l'effet de température que nous observé expérimentalement.

On vient de voir que le modèle de champ électrique local permet d'expliquer la rupture de l'effet Hall quantique à $T = 1.5$ K. De plus, en introduisant un mécanisme de blocage avec une énergie caractéristique $E_c \approx 95 \mu\text{eV}$, on peut rendre compte de la différence de comportement entre les deux températures auxquelles nous avons étudié cette rupture. A plus bas courant, le système obéit probablement au mécanisme de VRH pour lequel nous avons pu observer des fluctuations de résistance.

10.3.5 Fluctuations de R_{xx}

Le nanovoltmètre analogique nous offre la possibilité de mesurer avec une grande précision la résistance longitudinale en régime d'effet Hall quantique. Nous avons ainsi pu mettre en évidence des fluctuations reproductibles de R_{xx} sur le plateau $\nu = -4$ pour l'échantillon BL006 (figure 10.30-a)); on retrouve le même spectre de fluctuations aux deux températures et aux deux courants. On sait que pour $I \geq 1 \mu\text{A}$, le régime QUILLS prédomine et qu'à $T = 0.35$ K c'est sans doute le régime VRH qui domine. L'idée la plus raisonnable consiste à écrire la conductivité sous la forme : $\sigma = \sigma_{VRH} + \sigma_{QUILLS}$. On a donc :

$$\delta\sigma = \delta\sigma_{VRH} + \delta\sigma_{QUILLS} \quad \text{avec} \quad \delta\sigma_{VRH} \ll \delta\sigma_{QUILLS} \quad (10.33)$$

où $\delta\sigma_{VRH}$ est lié aux fluctuations de la longueur de localisation ξ avec le niveau de Fermi. Le mécanisme QUILLS étudié précédemment n'introduit pas de fluctuations en densité. Nous pensons donc que les fluctuations observées sont des fluctuations de conductivité engendrées par le VRH.

Du fait que $\xi_{loc} \approx l_B \ll d$ (d est l'épaisseur de l'oxyde), l'interaction coulombienne n'est

pas écrantée par la grille au centre du plateau. Donc, en utilisant l'équation 10.17 :

$$\begin{aligned}\ln R &\propto -\left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/2} \\ \delta \ln R &\propto -\frac{1}{2T^{1/2}}T_0^{-1/2}\delta T_0 \\ \delta \ln R &\propto \frac{1}{2T^{1/2}}T_0^{1/2}\frac{\delta \xi_{loc}}{\xi_{loc}} \\ \delta \ln R &\propto \frac{1}{2T^{1/2}}\left(\frac{e^2}{4k_B\epsilon_r\epsilon_0}\right)^{1/2}\frac{\delta \xi_{loc}}{\xi_{loc}^{3/2}}.\end{aligned}$$

Autrement dit, les fluctuations de R_{xx} sont liées aux fluctuations de la variable gaussienne ξ_{loc} ; elles s'atténuent en température en $T^{-1/2}$ et sur les bords du plateau car ξ_{loc} devient grand. Qualitativement, le VRH permet d'expliquer nos observations de fluctuations de résistance.

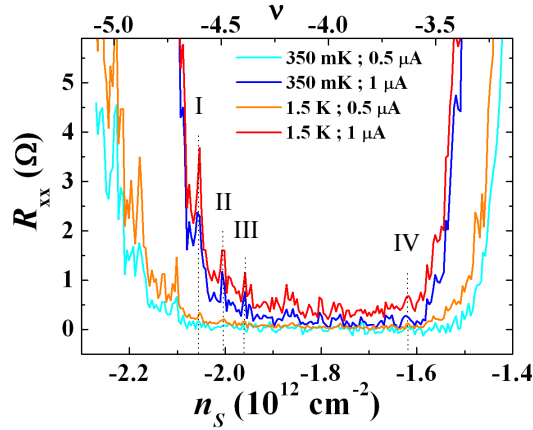


FIGURE 10.30 – Fluctuations de la résistance longitudinale ($R_{18,24}$) en régime d'effet Hall quantique pour l'échantillon BL006. La résistance a été mesurée à deux températures différentes et deux courants différents. On a indiqué par des traits en pointillés quelques unes des fluctuations reproductibles à la fois en courant et en température.

Si on fait l'hypothèse d'un phénomène de blocage de Coulomb dans les îlots compressibles dans cette gamme de température, alors on peut considérer qu'une fluctuation en densité correspond à l'ajout d'un électron dans un îlot compressible taille ξ_{loc} [140], [141]. On a alors :

$$\Delta n_S \xi_{loc} = 1 \quad (10.34)$$

où Δn_S est la largeur de la fluctuation.

La largeur en densité peut donc nous indiquer les tailles approximatives des îlots compressibles : $\xi_{loc} \approx 1/\sqrt{|n_{s1} - n_{s2}|}$. Pour les fluctuations notées I, II, III et IV sur la figure 10.30, on a :

$$\begin{aligned}\xi_I &\approx 70.5 \text{ nm} \\ \xi_{II} &\approx 76 \text{ nm} \\ \xi_{III} &\approx 87.7 \text{ nm} \\ \xi_{IV} &\approx 57.8 \text{ nm}\end{aligned}$$

Ces valeurs sont supérieures mais du même ordre de grandeur que la taille des flaques de porteurs à champ nul déterminée dans le chapitre précédent. Toutefois, ces tailles caractéristiques sont en accord avec les observations d'autres groupes par des mesures de spectroscopie tunnel [142] ou par des mesures à l'aide d'une pointe STM munie d'un transistor mono-électronique [70].

Pour finir, à titre de comparaison, la figure 10.31 montre la résistance longitudinale sur le plateau $\nu = 2$ pour un LEP514 (hétérostructure GaAs/AlGaAs) en fonction de l'induction magnétique. On peut observer que les valeurs de R_{xx} sont au moins trois ordres de grandeurs plus faibles que dans le cas des échantillons de graphène et que les fluctuations en champ magnétique sont presque inexistantes dans ces hétérostructures qui sont beaucoup plus larges que nos échantillons de graphène.

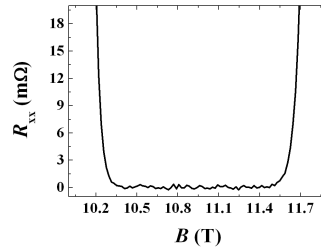


FIGURE 10.31 – Résistance longitudinale sur le plateau $\nu = 2$ dans un LEP514 en fonction de l'induction magnétique ($T = 1.3$ K et $I = 42$ μ A).

10.4 Test de quantification dans l'échantillon ML002

10.4.1 Résistance longitudinale en régime d'effet Hall quantique

L'échantillon ML002 a été le premier échantillon sur lequel nous avons pu observer et entamer une caractérisation de l'effet Hall quantique (figure 10.32). Nous allons, dans cette partie, présenter l'étude de la quantification de la résistance transverse sur le plateau $\nu = +2$ à $T = 1.3$ K et sous une induction magnétique $B = 11.7$ T.

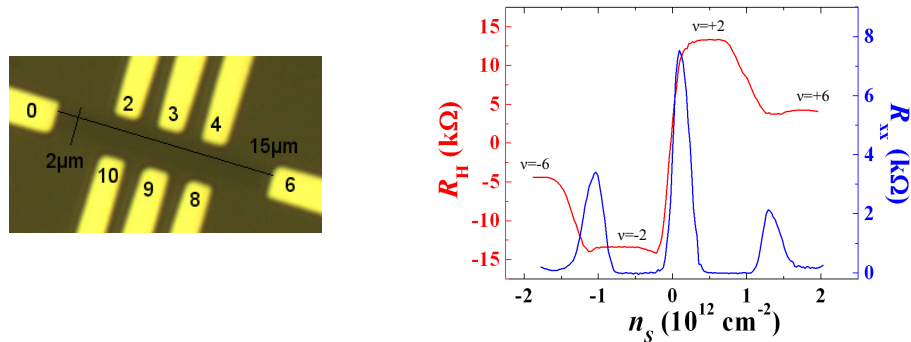


FIGURE 10.32 – Effet Hall quantique dans la monocouche ML002 observé en faisant varier la densité à induction magnétique constante $B = 11.7$ T. Les deux mesures ont été faites à $T = 1.3$ K et $I = 200$ nA. En trait rouge on a fait figurer la résistance de Hall $R_{06,39}$ et en trait bleu la résistance longitudinale $R_{06,23}$.

L'évolution en détail de la résistance longitudinale sur le plateau $\nu = +2$ est représentée figure 10.33-a). On remarque que R_{xx} est symétrique de part et d'autre de $\nu = +2$ et, d'autre part, qu'avec un courant de $1.5 \mu\text{A}$, R_{xx} atteint des valeurs déjà élevées (3Ω en moyenne entre 4 et $6.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$). Avec le critère $R_{xx} = 1 \Omega$ pour déterminer le courant critique, on a $I_C \approx 1.15 \mu\text{A}$ (*c.f.* figure 10.33-b)). La densité de courant critique correspondante est de 0.575 A/m . Le courant de rupture de l'effet Hall quantique est faible comme dans le cas de la bicouche BL006. Toutefois la densité de courant critique est plus élevée dans la monocouche ML002 que dans la bicouche BL006. Dans les deux cas (monocouche et bicouche), la densité de courant est du même ordre de grandeur que les densités observées dans des hétérostructure GaAs/AlGaAs qui ont des largeurs beaucoup plus importantes [137].

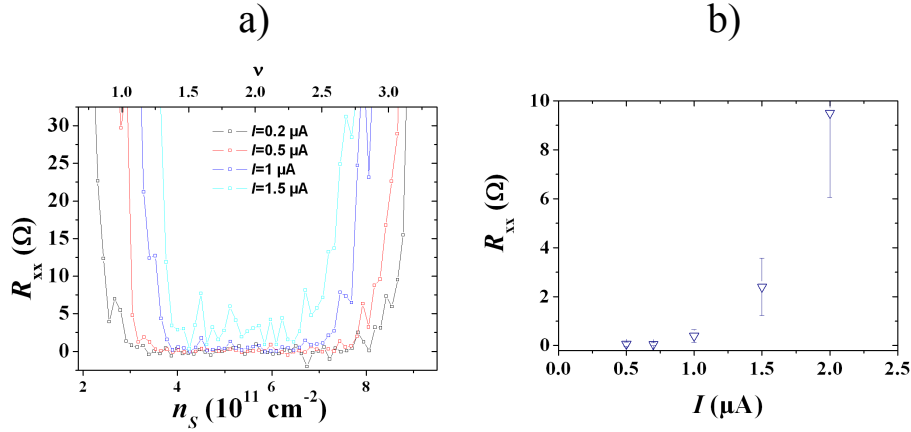


FIGURE 10.33 – En a), R_{xx} en fonction de la densité à différents courants sur le plateau $\nu = +2$. On a indiqué sur l'échelle supérieure le facteur de remplissage calculé pour $B = 11.7 \text{ T}$. En b), R_{xx} en fonction du courant à $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

Les mesures de précision de R_{xx} sont réalisées à l'aide d'un nanovoltmètre analogique à densité et induction magnétiques constantes. Les valeurs typiquement mesurées à $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ pour l'échantillon ML002 sont :

$$\text{pour } I = 0.5 \mu\text{A}, R_{xx} \approx 50 \text{ m}\Omega \quad (10.35)$$

$$\text{pour } I = 1 \mu\text{A}, R_{xx} \approx 400 \text{ m}\Omega \quad (10.36)$$

Par rapport à une hétérostructure GaAs dans laquelle R_{xx} descend à quelques $10 \mu\Omega$ avec un courant de $40 \mu\text{A}$, ces valeurs sont élevées.

10.4.2 Test de quantification dans la monocouche ML002

Nous avons étudié la quantification de la résistance de Hall $R_H = R_{29,03}$ sur le plateau $\nu = 2$ à $T = 1.3 \text{ K}$ et $B = 10.7 \text{ T}$. L'écart relatif à la quantification est :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H} = \frac{R_{H, \text{graphène}} - R_{H, \text{étalon}}}{R_{H, \text{étalon}}} = \frac{R_{H, \text{graphène}} - R_K/2}{R_K/2} \quad (10.37)$$

Deux mesures au pont de comparaison ont été réalisées avec l'échantillon ML002 à $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$: l'une avec un courant de 500 nA et l'autre avec un courant de $1 \mu\text{A}$. Ces deux mesures ont révélé les écarts relatifs suivants :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H}(I = 0.5 \mu\text{A}) = (-1.1 \pm 2.5) \times 10^{-7} \quad \text{et} \quad \frac{\Delta R_H}{R_H}(I = 1 \mu\text{A}) = (2 \pm 0.15) \times 10^{-6} \quad (10.38)$$

où la mesure de la résistance de Hall se fait en faisant circuler le courant entre les contacts 2 et 9 et la prise de tension est entre les contacts 0 et 3 (*c.f.* photo sur la figure 10.34). On pouvait craindre que du fait de cette configuration de mesure diagonale, le couplage R_H/R_{xx} soit trop grand. Cependant, pour un courant de $0.5 \mu\text{A}$, l'écart observé est couvert par l'incertitude de mesure.

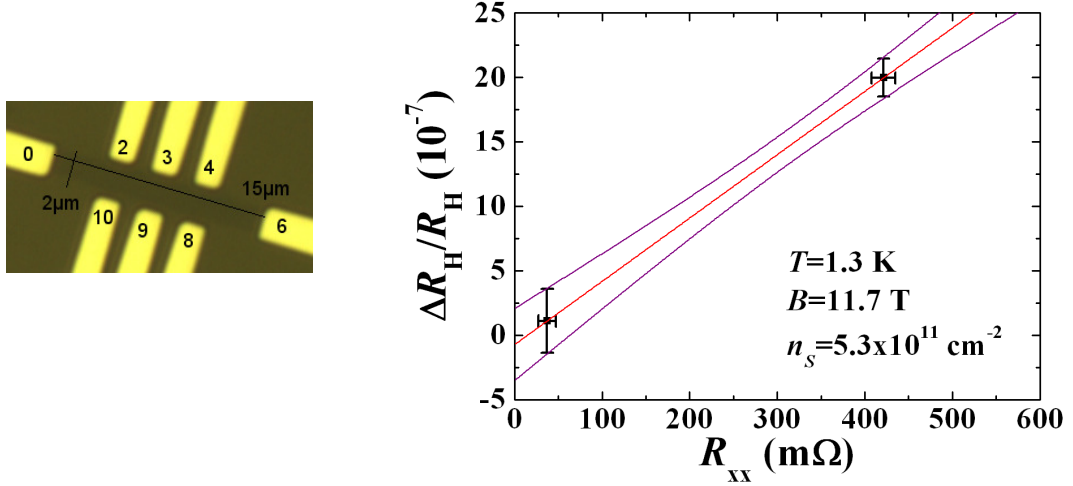


FIGURE 10.34 – Ecart relatif à la quantification ($\Delta R_H/R_H$) exprimé en 10^{-7} en fonction de l'état de dissipation (R_{xx}) dans l'échantillon ML002, mesures faites à $T = 1.3 \text{ K}$ et $n_S = 5.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et sous $B = 11.7 \text{ T}$. La droite en trait rouge correspond à l'extrapolation à $R_{xx} = 0$ et les traits violet représentent l'incertitude sur la droite.

On peut associer les mesures de $\Delta R_H/R_H$ avec les mesures précises de $R_{xx} = R_{06,23}$ pour obtenir la courbe d'écart à la quantification en fonction de l'état de dissipation dans la monocouche (figure 10.34). En utilisant une procédure d'extrapolation similaire à celle utilisée pour BL006, la valeur extrapolée est :

$$\frac{\Delta R_H}{R_H}_{R_{xx} \rightarrow 0} = (-0.68 \pm 2.8) \times 10^{-7} \quad (10.39)$$

L'écart relatif à dissipation nulle entre l'effet Hall quantique dans une monocouche de graphène et l'effet Hall quantique dans l'étalon de référence est couvert par l'incertitude de mesure ; on observe un accord avec une incertitude de 2.8×10^{-7} .

Le coefficient de couplage R_{xx}/R_H peut être extrait de la pente de la droite d'extrapolation : $s \approx -6.3 \times 10^{-2}$. Ce coefficient de couplage apparaît très faible au vu des valeurs de R_{xx} . Nous pensons que, comme dans le cas de la bicouche BL006, les valeurs élevées de R_{xx} ne reflètent pas le réel état de dissipation sur le plateau en raison des inhomogénéités de la densité de porteur. Il est très probable que le R_{xx} qui caractérise réellement la dissipation soit deux ou trois ordres de grandeur plus faible que le R_{xx} que nous avons mesuré.

Au travers de l'étude d'une monocouche et d'une bicouche, nous avons observé un accord relatif entre l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène et l'effet Hall quantique dans un semi conducteur avec une incertitude relative de quelques 10^{-7} . Nous pensons que ce sont les inhomogénéités de la densité créées par les impuretés chargées de l'oxyde qui limitent notre incertitude de mesure. En effet, ces impuretés sont à l'origine d'un fort champ électrique local qui engendre d'importantes transitions inter niveaux de Landau par le mécanisme QUILLS. Ce champ électrique local est donc à l'origine de la rupture de l'effet Hall quantique qui a lieu pour à très

bas courants ($I \sim 1 \mu\text{A}$). Les nombreux comportements hystérétiques et les asymétries que nous avons observés ont été sources d'erreurs lors de l'utilisation du pont de comparaison. Enfin, dans le cas de la bicouche, l'utilisation d'un contact relativement résistif ($6 \text{ k}\Omega$) a eu des répercussions sur les mesures de précision, que ce soit les mesures fines de R_{xx} mais aussi celles au pont de comparaison. Malgré tout, nous avons pu démontrer un accord entre deux effets Hall quantiques avec une incertitude relative de 4×10^{-7} .

10.5 Autres travaux métrologiques sur le graphène

A l'heure actuelle, seuls deux résultats de travaux métrologiques sur l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène ont été publiés.

Dans l'ordre chronologique, la première équipe à avoir publié en 2008 des résultats est néerlandaise [143]. Leurs mesures à $T = 0.35 \text{ K}$ et $B = 14 \text{ T}$ ont été réalisées sur un échantillon monocouche de graphène exfolié (*c.f.* figure 10.35-a) de largeur $1 \mu\text{m}$ et de mobilité $\mu = 8000 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$. Le courant critique du plateau $\nu = +2$ est égal à $3 \mu\text{A}$ et les résistances des contacts qu'ils ont pu évaluer en régime d'effet Hall quantique sont comprises entre 30Ω et $6.3 \text{ k}\Omega$. En utilisant un pont de comparaison basé sur un comparateur cryogénique de courant, cette équipe a mis en évidence un écart relatif égal à $(-5 \pm 15) \times 10^{-6}$ avec un courant de $1.5 \mu\text{A}$. Cette valeur a été obtenue en moyennant les écarts relatifs mesurés avec différentes configurations de mesure de la résistance de Hall dans l'échantillon. Les deux principales limitations pour atteindre des niveaux d'incertitude inférieurs sont les résistances élevées de leur contact métal/graphène et les faibles courants critiques.

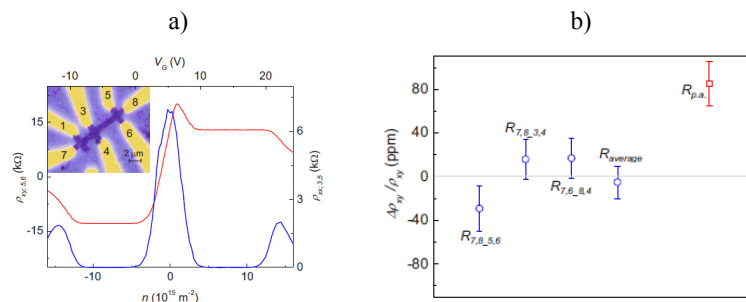


FIGURE 10.35 – Observation et caractérisations métrologiques de l'effet Hall quantique d'une monocouche exfoliée en 2008 tirées de [143]; en a) photographie du feuillet et observation de l'effet Hall quantique dans une monocouche de graphène exfolié à $T = 0.35 \text{ K}$ et $B = 14 \text{ T}$ et en b) écart relatif à la quantification pour différentes configurations de mesure.

La seconde équipe à avoir publié des caractérisations métrologiques en 2010 est anglaise [144]. Les échantillons utilisés sont des feuillets monocouches de graphène épitaxié (*c.f.* figure 10.36-a)) sous une induction magnétique maximale de 15 T . Le plus grand de leurs échantillons est une barre de $160 \mu\text{m}$ de long et $35 \mu\text{m}$ de large. Pour un tel échantillon, le courant critique est de $5 \mu\text{A}$ à $T = 4.2 \text{ K}$ et de $13 \mu\text{A}$ à $T = 0.3 \text{ K}$. En outre, les résistances des contacts sont de l'ordre de 1.5Ω . A l'aide d'un pont de comparaison basé sur un CCC, cette équipe a montré un écart relatif égal à $(0.4 \pm 3) \times 10^{-9}$, ce qui constitue à ce jour le meilleur test de quantification jamais réalisé dans un échantillon de graphène.

Pour conclure, à titre de comparaison, le tableau 10.9 permet de se rendre compte que le graphène épitaxié constitue l'avenir pour une application en métrologie. En effet, son atout

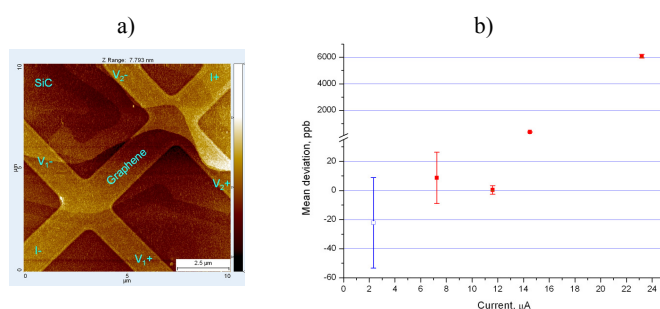


FIGURE 10.36 – Observation et caractérisations métrologiques de l’effet Hall quantique dans plusieurs monocouches épitaxiées en 2010 tirées de [144] ; en a) image AFM d’un feuillet et en b) écart relatif à la quantification en fonction du courant.

principal est qu’il est possible d’obtenir de plus grands échantillons et de ce fait des courants de rupture de l’effet Hall quantique plus élevé. De plus, il semble que les résistances de contact soient plus faible et présentent moins de dispersion dans un même échantillon. Enfin, le fait de pouvoir générer des feuillets sur de grandes surfaces laisse imaginer qu’il sera possible, lorsque les procédés de fabrication seront pleinement maîtrisés, de réaliser des réseaux de barres de Hall en graphène épitaxié.

Matériau	Graphène exfolié		Graphène épitaxié
Institut de Métrologie	NMi, Netherlands	LNE, France	NPL, United Kingdom
Nature du feuillet	Monocouche	Bicouche	Monocouche
Dimensions (LxW) (μm)	8x1	26x4.6	160x35
Courant de rupture (μA)	3.5	1	13
Résistances de contact (Ω)	de 30 à 6300	de 4 à 6000	de l’ordre de 1.5
Accord	$(-5 \pm 15) \times 10^{-6}$	$(-2.43 \pm 3.7) \times 10^{-7}$	$(0.4 \pm 3) \times 10^{-9}$

TABLE 10.9 – Comparaison des tests de quantification de l’effet Hall quantique dans des feuillets de graphène.

Conclusion

L'objectif des travaux de thèse dont nous venons de présenter les résultats majeurs était d'explorer la voie du graphène pour une application en métrologie électrique, en l'occurrence la métrologie des résistances. Cette exploration a commencé par la fabrication d'échantillons à partir de graphène exfolié. Pour cela, un protocole a été établi afin de fabriquer des barres de Hall de manière répétable. Toutefois, la fragilité, tant mécanique que électrique, des feuillets de graphène obtenus par exfoliation s'est révélée être un frein. Malgré tout, nous avons pu réaliser d'intéressantes mesures de transport électronique à basse température, ce qui constitue la deuxième phase de l'exploration.

Nous avons pu constater aux travers de l'étude de deux monocouches et d'une bicouche que l'environnement d'un feuillet influence fortement ses propriétés de transport sans champ magnétique. Dans l'oxyde de silicium situé sous le feuillet, les impuretés chargées formées par des défauts de stœchiométrie sont responsables de la diffusion des porteurs de charge. Le champ électrostatique de ces impuretés chargées est écranté par la résine située au dessus du feuillet. L'interaction coulombienne écrantée permet de rendre compte de nos mesures de conductivité à champ nul. Plus précisément, sur les monocouches de graphène, la conductivité est linéaire avec la densité de porteurs et, lorsque celle-ci avoisine zéro, la conductivité reste finie. Dans le cas de la bicouche, le comportement légèrement superlinéaire observé de la conductivité en fonction de la densité est bien décrit par des mécanismes coulombiens. Les impuretés chargées sont à l'origine d'importantes inhomogénéités de la densité de porteurs dont les manifestations peuvent être importantes. Globalement, en raison des impuretés chargées, nos échantillons ne sont pas de très bonne qualité : les mobilités sont assez faibles.

Pour poursuivre l'exploration, nous avons étudié les propriétés de transport électronique des feuillets sous champ magnétique. Ces caractérisations ont conforté la prédominance des la effets des impuretés chargées sur les propriétés de transport dans nos échantillons de graphène. A faible champ magnétique, l'étude de la magnétorésistance de la bicouche nous a permis d'observer un signal de localisation faible. La valeur de la longueur de cohérence de phase que nous avons pu extraire est $L_\phi = 0.47 \mu\text{m}$ à $T = 0.35 \text{ K}$. L'ordre de grandeur de cette longueur cohérence de phase a pu être confirmée par des mesures de fluctuations de conductance. En outre, nous avons observé une certaine non-ergodicité des fluctuations de conductance.

A plus fort champ magnétique, la troisième phase de l'exploration a été l'étude de l'effet Hall quantique ou plutôt des effets Hall quantiques. Les mesures de résistance de contact en régime d'effet Hall quantique ont révélé qu'il était possible d'obtenir des contacts métal-monocouche et métal-bicouche peu résistifs ($< 10 \Omega$) et ayant un comportement ohmique. Dans nos échantillons de quelques μm^2 , les courants critiques sont de l'ordre de $1 \mu\text{A}$. La rupture de l'effet Hall quantique en fonction du courant dans notre échantillon bicouche s'explique par le modèle de transitions entre niveaux de Landau associées à un fort champ électrique local. En raison des fortes inhomogénéités, le champ électrique varie de manière brutale dans le feuillet. En outre, nous avons constaté un effet de température entre $T = 0.35 \text{ K}$ et $T = 1.5 \text{ K}$ qui peut s'expliquer par l'existence d'un mécanisme d'activation par la température. L'énergie typique de ce mécanisme est de $95 \mu\text{eV}$; il peut être

imposé par l'environnement du feuillet (par exemple la résine située au-dessus) ou par un effet de chauffage par le courant.

Pour terminer, nous avons réalisé les premiers tests de quantification dans une bicouche de graphène exfolié sur le plateau $\nu = -4$. Ces tests ont révélé un accord entre R_H et $R_K/4$ avec une incertitude relative égale à 4×10^{-7} . Nous avons mis en évidence l'existence d'un plateau formé par la résistance de Hall en fonction du facteur de remplissage; ce plateau est plat à 2×10^{-6} sur une variation de densité égale à $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Un test de quantification dans une monocouche confirme l'ordre de grandeur de l'incertitude. Les principaux éléments limitant la qualité de nos tests sont les inhomogénéités de la densité et les faibles valeurs des courants de rupture de l'effet Hall quantique.

Suite à l'observation de l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène épitaxié, des tests de quantification ont été réalisés avec une incertitude de 3×10^{-9} , soit deux ordres de grandeur inférieure à nos tests. La possibilité d'obtenir de très grands échantillons, et donc des courants critiques plus élevés que dans le cas du graphène exfolié, ainsi que des résistances de contact très faibles font du graphène épitaxié le meilleur candidat pour devenir un jour un étalon de résistance.

En effet, avec ce niveau d'incertitude, les métrologues peuvent envisager la réalisation de tests d'universalité. Ces tests nécessitent la comparaison directe entre l'effet Hall quantique dans un feuillet de graphène épitaxié et l'effet Hall quantique dans une hétérostructure GaAs. Cette comparaison directe est possible dans un montage de type pont de Wheatstone (*c.f.* figure 10.5). Le principe de ce pont est de polariser en tension et de mesurer le courant de déséquilibre du pont. Qualitativement, si la valeur de la résistance de Hall de l'une des barres de Hall est différente de la valeur des autres alors le courant de déséquilibre est non nul. Des mesures de ce type ont été réalisées avec quatre barres de Hall en GaAs et ont révélé une reproductibilité de l'effet Hall quantique avec une incertitude relative de 4×10^{-11} .

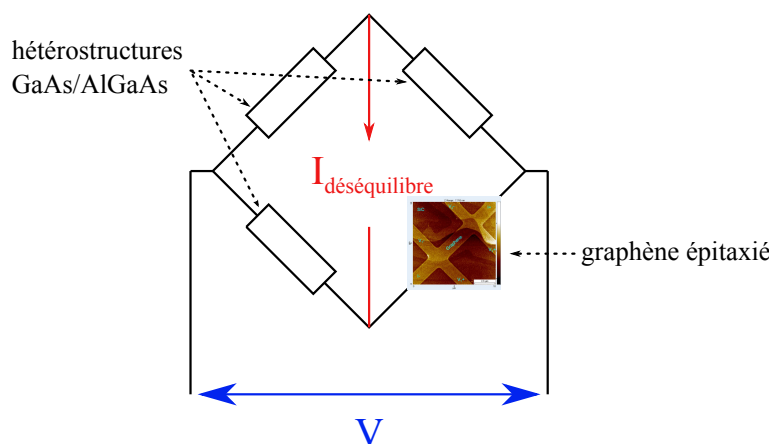


Schéma de principe d'un pont de wheatstone à résistances de Hall constitué de trois barres de Hall en GaAs et d'une barre de Hall en graphène épitaxié.

La comparaison directe entre des effets Hall quantiques différents qui ont lieu simultanément dans des matériaux différents constituerait un test d'universalité de l'effet Hall quantique. Ce test est nécessaire afin d'améliorer la compréhension de l'effet et participerait à la redéfinition du Système International d'unités.

En outre, nous n'avons parlé dans ce manuscrit que des propriétés de transport d'échantillons de graphène exfolié et rapidement évoqué celles d'échantillons de graphène épitaxié. A l'heure actuelle, de nombreux procédés de fabrication différents offrent de nouvelles pistes pour obtenir des feuillets de plus grandes tailles et présentant de meilleures propriétés de transport. On

Conclusion

peut facilement imaginer que les progrès de la fabrication feront du graphène un nouvel étalon de résistance électrique. Et au vu des propriétés de ce matériau, il pourrait bien entrer dans le quotidien dans de nombreuses applications.

Annexe : Incertitude et Valeur Moyenne

La métrologie a pour mission de mesurer toutes les grandeurs physiques et chimiques avec la plus grande précision possible. La notion de précision est directement liée à l'incertitude associée au résultat de cette mesure. C'est pourquoi l'incertitude joue un rôle clef en métrologie. La grandeur que l'on souhaite mesurer est appelée mesurande. L'incertitude d'un résultat de mesure comprend plusieurs composantes que l'on peut regrouper en deux catégories selon le moyen d'estimation de leur valeur numérique :

- Les incertitudes de type A qui sont évaluées par une méthode statistique,
- Les incertitudes de type B qui sont évaluées par d'autres méthodes.

Selon le VIM (Vocabulaire International des termes fondamentaux et généraux de Métrologie), l'incertitude était jusqu'en 1984 l'*erreur probable* réalisée lors d'une mesure. Depuis 2007, elle définit comme un *paramètre non négatif qui caractérise la dispersion des valeurs attribuées à un mesurande à partir des informations utilisées*. Pour attribuer une incertitude à un résultat de mesure, il est nécessaire de faire un calcul d'incertitude. Celui-ci est une démarche structurée qui permet d'estimer l'erreur faite sur un résultat numérique, en utilisant des incertitudes faites sur les mesures qui ont conduit à ce résultat. Un calcul d'incertitude nécessite donc d'estimer la propagation des incertitudes.

Un calcul d'incertitude est composé de quatre étapes :

- 1^{ère} étape : Calcul du résultat de mesure. Cette étape nécessite de définir le mesurande, d'analyser le processus de mesure et d'en réaliser la modélisation mathématique,
- 2^{ème} étape : Calcul des incertitudes-types de chaque paramètre de la mesure. Cette étape consiste à évaluer les incertitudes de type A et de type B ainsi qu'à calculer les covariances,
- 3^{ème} étape : Détermination de l'incertitude composée associée au résultat. L'incertitude composée s'obtient à partir des incertitudes individuelles associées aux grandeurs d'entrée dans le modèle de mesure. Il s'agit donc de déterminer la loi de propagation des incertitudes,
- 4^{ème} étape : Détermination de l'incertitude élargie associée au résultat. L'incertitude élargie est le produit de l'incertitude composée par un facteur supérieur à 1. Cette étape finale permet d'exprimer le résultat numérique et son incertitude.

La figure 10.37 représente le diagramme d'Ishikawa qui permet l'analyse du processus de mesure lors de la première étape. Ce diagramme regroupe toutes les grandeurs d'entrée du modèle. Pour la deuxième étape, il est nécessaire de déterminer les incertitudes associées à chacune de ces grandeurs car elles contribuent à l'incertitude du résultat. Pour évaluer ces incertitudes, on introduit des outils statistiques tels que les lois de probabilité et les expérimentations. L'évaluation des incertitudes de type A implique de réaliser un ensemble de séries de mesure et d'observations pour estimer les tendances centrales (*i.e.* les moyennes) et les dispersions (*i.e.* l'écart type) des grandeurs d'entrée. L'évaluation des incertitudes de type B repose quant à elle sur l'utilisation de

données expérimentales antérieures, des données constructeur pour les appareils de mesure ou de certificats d'étalonnage. La deuxième étape du calcul d'incertitude vise à connaître la dispersion et la position de la distribution de résultats.

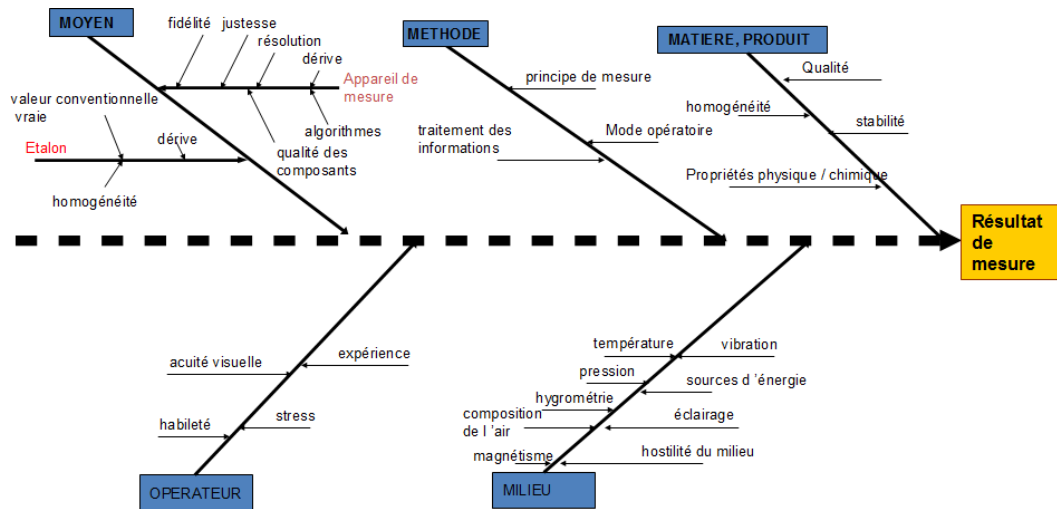


FIGURE 10.37 – Diagramme d'Ishikawa pour l'analyse du processus de mesure. Ce diagramme est aussi appelé méthode des 5 M : Moyen, Méthode, Matière, Opérateur et Milieu.

Dans le but d'estimer les paramètres de position et de dispersion d'une population x_i dont est issu l'échantillon, on calcule respectivement la moyenne arithmétique \bar{x} et la variance σ :

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad \text{et} \quad \sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 \quad (10.40)$$

L'incertitude-type sur le résultat $u_{\bar{x}}$ est donné par :

$$u_{\bar{x}} = \sqrt{\sigma} \quad (10.41)$$

Le résultat d'une mesure dépend de tous les paramètres d'entrée du processus de mesure et des incertitudes associées. Par exemple, si on note Y le résultat et x_i les valeurs des paramètres d'entrée, le résultat se met sous la forme : $Y = f(x_1, x_2, \dots, x_N)$. La variance u_Y^2 de Y est :

$$u_Y^2 = \sum_{i=1}^N c_i^2 u(x_i)^2 + 2 \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N c_i c_j u(x_i, x_j) \quad (10.42)$$

où $c_i = \partial f / \partial x_i$ sont les coefficients de sensibilité, $u(x_i)^2$ sont les variances et $u(x_i, x_j)$ sont les covariances. La formule 10.42 est la loi de propagation des incertitudes. Dans le cas où toutes les grandeurs d'entrée sont indépendantes les covariances sont toutes nulles.

L'expression du résultat final peut faire intervenir un facteur d'élargissement k : $U = k u_Y$ où U est l'incertitude du résultat final et u_Y est l'incertitude composée. Par exemple, pour une loi de distribution normale, $k = 2$ donne à l'intervalle dans lequel 95.45% des valeurs de Y sont comprises.

Au cours de la thèse, nous avons calculé les valeurs moyennes arithmétiques pondérées. La méthode que nous avons choisie pour calculer le poids consiste à écrire ce dernier comme l'inverse de l'incertitude associée à une mesure : les points de mesure ayant une incertitude élevée ont un poids faible et jouent donc peu dans la valeur moyenne. L'incertitude sur la valeur moyenne se calcule en prenant la racine carré de la somme des poids. Notant x_i les points de mesure, $u(x_i)$ leurs incertitudes associées, \bar{x} la moyenne pondérée et $u_{\bar{x}}$ son incertitude, on a :

$$\bar{x} = \sum_i x_i \frac{(\frac{1}{u_{x_i}})^2}{\sum_j (\frac{1}{u_{x_j}})^2} \quad \text{et} \quad u_{\bar{x}} = \frac{1}{\sqrt{\sum_i (\frac{1}{u_{x_i}})^2}} \quad (10.43)$$

Bibliographie

- [1] K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper. New method for High-Accuracy determination of the Fine-Structure constant based on quantized hall resistance. *Physical Review Letters*, 45(6) :494, 1980.
- [2] K. S. Novoselov, E. McCann, S. V. Morozov, V. I. Fal'ko, M. I. Katsnelson, U. Zeitler, D. Jiang, F. Schedin, and A. K. Geim. Unconventional quantum hall effect and berry's phase of $2[\pi]$ in bilayer graphene. *Nat Phys*, 2(3) :177–180, March 2006.
- [3] K. S. Novoselov, Z. Jiang, Y. Zhang, S. V. Morozov, H. L. Stormer, U. Zeitler, J. C. Maan, G. S. Boebinger, P. Kim, and A. K. Geim. Room-Temperature quantum hall effect in graphene. *Science*, 315(5817) :1379, March 2007.
- [4] B. D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Physics Letters*, 1(7) :251–253, July 1962.
- [5] S. Shapiro. Josephson currents in superconducting tunneling : The effect of microwaves and other observations. *Physical Review Letters*, 11(2) :80, July 1963.
- [6] R. Pöpel. The josephson effect and voltage standards. *Metrologia*, 29(2) :153, 1992.
- [7] T. J. Quinn. News from the BIPM. *Metrologia*, 26(1) :69, 1989.
- [8] J. Lambe and R. C. Jaklevic. Charge-Quantization studies using a tunnel capacitor. *Physical Review Letters*, 22(25) :1371, June 1969.
- [9] T. A. Fulton and G. J. Dolan. Observation of single-electron charging effects in small tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 59(1) :109, July 1987.
- [10] H. Pothier, P. Lafarge, C. Urbina, D. Esteve, and M. H. Devoret. Single-Electron pump based on charging effects. *EPL (Europhysics Letters)*, 17(3) :249, 1992.
- [11] N. Feltin and F. Piquemal. Determination of the elementary charge and the quantum metrological triangle experiment. *The European Physical Journal Special Topics*, 172(1) :267–296, 2009.
- [12] J. H. Sanders. *Atomic masses and fundamental constants*, 5. Plenum Press, March 1976.
- [13] A. Eichenberger, G. Genevès, and P. Gournay. Determination of the planck constant by means of a watt balance. *Eur. Phys. J. Special Topics*, 172 :363–383, 2009.
- [14] H. Bachmair. Determination of the unit of resistance and the von klitzing constant r_k based on a calculable capacitor. *The European Physical Journal Special Topics*, 172(1) :257–266, 2009.
- [15] P. J. Mohr, B. N. Taylor, and D. B. Newell. CODATA recommended values of the fundamental physical constants : 2006. *Reviews of Modern Physics*, 80(2) :633–730, 2008.
- [16] G. Gabrielse, D. Hanneke, T. Kinoshita, M. Nio, and B. Odom. New determination of the fine structure constant from the electron g value and QED. *Physical Review Letters*, 97(3) :030802, July 2006.
- [17] F. Schopfer and W. Poirier. Testing universality of the quantum hall effect by means of the wheatstone bridge. *Journal of Applied Physics*, 102(5) :054903, 2007.

-
- [18] F. Schopfer and W. Poirier. Reproducibility of the quantum hall effect in GaAs/AlGaAs two dimensional electron gas. pages 22–23, June 2008.
- [19] F. Delahaye, D. Dominguez, F. Alexandre, J. P. Andre, J. P. Hirtz, and M. Razeghi. Precise quantized hall resistance measurements in GaAs/Al_xGa_{1-x}As and In_xGa_{1-x}As/InP heterostructures. *Metrologia*, 22(2) :103–110, 1986.
- [20] A. Hartland, K. Jones, J. M. Williams, B. L. Gallagher, and T. Galloway. Direct comparison of the quantized hall resistance in gallium arsenide and silicon. *Physical Review Letters*, 66(8) :969, February 1991.
- [21] S. Datta. *Electronic transport in mesoscopic systems*. Cambridge University Press, 1997.
- [22] Y. Imry. *Introduction to mesoscopic physics*. Oxford University Press, 1997.
- [23] E. Akkermans and G. Montambaux. *Physique mésoscopique des électrons et des photons*. L’Editeur : EDP Sciences, 2004.
- [24] C.W.J. Beenakker, H. van Houten, H. Ehrenreich, and D. Turnbull. Quantum transport in semiconductor nanostructures. In *Semiconductor Heterostructures and Nanostructures*, volume Volume 44, pages 1–228. Academic Press, 1991.
- [25] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique quantique*. Hermann, 1988.
- [26] M. Büttiker. Four-Terminal Phase-Coherent conductance. *Physical Review Letters*, 57(14) :1761, October 1986.
- [27] R. E. Prange and S. M. Girvin. *The Quantum Hall effect*. Springer-Verlag, 1987.
- [28] D. Yoshioka. *The quantum Hall effect*. Springer, April 2002.
- [29] W. Poirier and F. Schopfer. Resistance metrology based on the quantum hall effect. *The European Physical Journal Special Topics*, 172 :39, 2009.
- [30] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Variable range hopping as the mechanism of the conductivity peak broadening in the quantum hall regime. *Physical Review Letters*, 70(24) :3796, June 1993.
- [31] D. B. Chklovskii, B. I. Shklovskii, and L. I. Glazman. Electrostatics of edge channels. *Physical Review B*, 46(7) :4026, 1992.
- [32] Y. Y. Wei, J. Weis, K. v. Klitzing, and K. Eberl. Edge strips in the quantum hall regime imaged by a Single-Electron transistor. *Physical Review Letters*, 81(8) :1674, 1998.
- [33] E. Ahlswede, P. Weitz, J. Weis, K. von Klitzing, and K. Eberl. Hall potential profiles in the quantum hall regime measured by a scanning force microscope. *Physica B : Condensed Matter*, 298(1-4) :562–566, April 2001.
- [34] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Conductivity-peak broadening in the quantum hall regime. *Physical Review B*, 48(15) :11167, October 1993.
- [35] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Activated conductivity in the quantum hall effect. *Physical Review Letters*, 73(8) :1150, 1994.
- [36] M. Furlan. Electronic transport and the localization length in the quantum hall effect. *Physical Review B*, 57(23) :14818, June 1998.
- [37] R. B. Laughlin. Quantized hall conductivity in two dimensions. *Physical Review B*, 23(10) :5632, May 1981.
- [38] Q. Niu, D. J. Thouless, and Y.-S. Wu. Quantized hall conductance as a topological invariant. *Physical Review B*, 31(6) :3372, March 1985.
- [39] F. W. Hehl, Y. N. Obukhov, and B. Rosenow. Is the quantum hall effect influenced by the gravitational field? *Physical Review Letters*, 93(9) :096804, 2004.
- [40] M. E. Cage, R. F. Dziuba, B. F. Field, E. R. Williams, S. M. Girvin, A. C. Gossard, D. C. Tsui, and R. J. Wagner. Dissipation and dynamic nonlinear behavior in the quantum hall regime. *Physical Review Letters*, 51(15) :1374, October 1983.

- [41] B. Jeckelmann, A. Rufenacht, B. Jeanneret, F. Overney, K. Pierz, A. von Campenhausen, and G. Hein. Optimization of QHE-devices for metrological applications. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 50(2) :218–222, 2001.
- [42] Y. M. Meziani, C. Chaubet, S. Bonifacie, A. Raymond, W. Poirier, and F. Piquemal. Behavior of the contacts of quantum hall effect devices at high currents. *Journal of Applied Physics*, 96(1) :404, 2004.
- [43] B. Jeckelmann, B. Jeanneret, and D. Inglis. High-precision measurements of the quantized hall resistance :Experimental conditions for universality. *Physical Review B*, 55(19) :13124, May 1997.
- [44] F. Delahaye and B. Jeckelmann. Revised technical guidelines for reliable dc measurements of the quantized hall resistance. *Metrologia*, 40(5) :217–223, 2003.
- [45] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov, and A. K. Geim. Two-dimensional atomic crystals. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 102(30) :10451–10453, July 2005.
- [46] P. Blake, P. D. Brimicombe, R. R. Nair, T. J. Booth, D. Jiang, F. Schedin, L. A. Ponomarenko, S. V. Morozov, H. F. Gleeson, E. W. Hill, A. K. Geim, and K. S. Novoselov. Graphene-Based liquid crystal device. *Nano Letters*, 8(6) :1704–1708, June 2008.
- [47] S. Stankovich, D. A. Dikin, R. D. Piner, K. A. Kohlhaas, A. Kleinhammes, Y. Jia, Y. Wu, SonBinh T. Nguyen, and R. S. Ruoff. Synthesis of graphene-based nanosheets via chemical reduction of exfoliated graphite oxide. *Carbon*, 45(7) :1558–1565, June 2007.
- [48] G. Eda, G. Fanchini, and M. Chhowalla. Large-area ultrathin films of reduced graphene oxide as a transparent and flexible electronic material. *Nature Nanotechnology*, 3(5) :270–274, May 2008. PMID : 18654522.
- [49] D. Li, M. B. Muller, S. Gilje, R. B. Kaner, and G. G. Wallace. Processable aqueous dispersions of graphene nanosheets. *Nat Nano*, 3(2) :101–105, February 2008.
- [50] C. Berger, Z. Song, T. Li, X. Li, A. Y. Ogbazghi, R. Feng, Z. Dai, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First, and W. A. de Heer. Ultrathin epitaxial graphite : 2D electron gas properties and a route toward graphene-based nanoelectronics. *The Journal of Physical Chemistry B*, 108(52) :19912–19916, December 2004.
- [51] C. Berger, Z. Song, X. Li, X. Wu, N. Brown, C. Naud, D. Mayou, T. Li, J. Hass, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First, and W. A. de Heer. Electronic confinement and coherence in patterned epitaxial graphene. *Science*, page 1125925, April 2006.
- [52] P. W. Sutter, J.-I. Flege, and E. A. Sutter. Epitaxial graphene on ruthenium. *Nat Mater*, 7(5) :406–411, May 2008.
- [53] A. Reina, X. Jia, J. Ho, D. Nezich, H. Son, V. Bulovic, M. S. Dresselhaus, and J. Kong. Large area, Few-Layer graphene films on arbitrary substrates by chemical vapor deposition. *Nano Letters*, 9(1) :30–35, January 2009.
- [54] A. Dato, V. Radmilovic, Z. Lee, J. Phillips, and M. Frenklach. Substrate-Free Gas-Phase synthesis of graphene sheets. *Nano Letters*, 8(7) :2012–2016, July 2008.
- [55] R. C. Tatar and S. Rabii. Electronic properties of graphite : A unified theoretical study. *Physical Review B*, 25(6) :4126, March 1982.
- [56] M. S. Dresselhaus and G. Dresselhaus. Intercalation compounds of graphite. *Advances in Physics*, 51(1) :1–186, 2002.
- [57] T. Ando, T. Nakanishi, and R. Saito. Berry’s phase and absence of back scattering in carbon nanotubes. *Journal of the Physical Society of Japan*, 67 :2857–2862, 1998.
- [58] J. Tworzydłstoko, B. Trauzettel, M. Titov, A. Rycerz, and C. W. J. Beenakker. Sub-Poissonian shot noise in graphene. *Physical Review Letters*, 96(24) :246802, June 2006.

-
- [59] M. I. Katsnelson, K. S. Novoselov, and A. K. Geim. Chiral tunnelling and the Klein paradox in graphene. *Nat Phys*, 2(9) :620–625, 2006.
- [60] E. McCann and V. I. Fal’ko. Landau-Level degeneracy and quantum hall effect in a graphite bilayer. *Physical Review Letters*, 96(8) :086805, March 2006.
- [61] J. Nilsson, A. H. Castro Neto, F. Guinea, and N. M. R. Peres. Electronic properties of bilayer and multilayer graphene. *Physical Review B*, 78(4) :045405, July 2008.
- [62] E. McCann, D. S.L. Abergel, and V. I. Fal’ko. Electrons in bilayer graphene. *Solid State Communications*, 143(1-2) :110–115, July 2007.
- [63] P. Blake, E. W. Hill, A. H. Castro Neto, K. S. Novoselov, D. Jiang, R. Yang, T. J. Booth, and A. K. Geim. Making graphene visible. *Applied Physics Letters*, 91(6) :063124, 2007.
- [64] M. Bruna and S. Borini. Optical constants of graphene layers in the visible range. *Applied Physics Letters*, 94(3) :031901, 2009.
- [65] R. R. Nair, P. Blake, A. N. Grigorenko, K. S. Novoselov, T. J. Booth, T. Stauber, N. M. R. Peres, and A. K. Geim. Fine structure constant defines visual transparency of graphene. *Science*, 320(5881) :1308, June 2008.
- [66] C. Thomsen and S. Reich. Double resonant Raman scattering in graphite. *Physical Review Letters*, 85(24) :5214, December 2000.
- [67] A. C. Ferrari, J. C. Meyer, V. Scardaci, C. Casiraghi, M. Lazzeri, F. Mauri, S. Piscanec, D. Jiang, K. S. Novoselov, S. Roth, and A. K. Geim. Raman spectrum of graphene and graphene layers. *Physical Review Letters*, 97(18) :187401, October 2006.
- [68] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, and A. A. Firsov. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene. *Nature*, 438(7065) :197–200, November 2005.
- [69] E. H. Hwang, S. Adam, and S. Das Sarma. Carrier transport in Two-Dimensional graphene layers. *Physical Review Letters*, 98(18) :186806, May 2007.
- [70] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J. H. Smet, K. von Klitzing, and A. Yacoby. Observation of electron-hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor. *Nat Phys*, 4(2) :144–148, February 2008.
- [71] S. Adam, E. H. Hwang, V. Galitski, and S. Das Sarma. A self-consistent theory for graphene transport. *0705.1540*, May 2007. Proc. Natl. Acad. Sci. USA 104, 18392 (2007).
- [72] D. S. Novikov. Numbers of donors and acceptors from transport measurements in graphene. *Applied Physics Letters*, 91(10) :102102, 2007.
- [73] T. Stauber, N. M. R. Peres, and F. Guinea. Electronic transport in graphene : A semiclassical approach including midgap states. *Physical Review B*, 76(20) :205423, November 2007.
- [74] E. H. Hwang and S. Das Sarma. Single-particle relaxation time versus transport scattering time in a two-dimensional graphene layer. *Physical Review B*, 77(19) :195412, May 2008.
- [75] E. Rossi and S. Das Sarma. Ground state of graphene in the presence of random charged impurities. *Physical Review Letters*, 101(16) :166803, October 2008.
- [76] M. I. Katsnelson. Scattering of charge carriers by point defects in bilayer graphene. *Physical Review B*, 76(7) :073411, 2007.
- [77] S. Adam and S. Das Sarma. Boltzmann transport and residual conductivity in bilayer graphene. *Physical Review B*, 77(11) :115436, March 2008.
- [78] S. Das Sarma, E. H. Hwang, and E. Rossi. Theory of carrier transport in bilayer graphene. *Physical Review B*, 81(16) :161407, April 2010.
- [79] J.-H. Chen, C. Jang, S. Xiao, M. Ishigami, and M. S. Fuhrer. Intrinsic and extrinsic performance limits of graphene devices on SiO₂. *Nat Nano*, 3(4) :206–209, April 2008.

- [80] J.-H. Chen, C. Jang, M. Ishigami, S. Xiao, W.G. Cullen, E.D. Williams, and M.S. Fuhrer. Diffusive charge transport in graphene on SiO₂. *Solid State Communications*, 149(27-28) :1080–1086, July 2009.
- [81] S. V. Morozov, K. S. Novoselov, M. I. Katsnelson, F. Schedin, D. C. Elias, J. A. Jaszczak, and A. K. Geim. Giant intrinsic carrier mobilities in graphene and its bilayer. *Physical Review Letters*, 100(1) :016602, January 2008.
- [82] D. V. McCaughan. Low-energy ion bombardment of silicon dioxide films on silicon. *Journal of Applied Physics*, 44(5) :2008, 1973.
- [83] T. Ando, A. B. Fowler, and F. Stern. Electronic properties of two-dimensional systems. *Reviews of Modern Physics*, 54(2) :437, April 1982.
- [84] S. Das Sarma and E. H. Hwang. Metallicity and its low-temperature behavior in dilute two-dimensional carrier systems. *Physical Review B*, 69(19) :195305, May 2004.
- [85] J. R. Williams, L. DiCarlo, and C. M. Marcus. Quantum hall effect in a Gate-Controlled p-n junction of graphene. *Science*, 317(5838) :638–641, 2007.
- [86] B. Özyilmaz, P. Jarillo-Herrero, D. Efetov, and P. Kim. Electronic transport in locally gated graphene nanoconstrictions. *Applied Physics Letters*, 91(19) :192107, 2007.
- [87] I. Meric, M. Y. Han, A. F. Young, B. Özyilmaz, P. Kim, and K. L. Shepard. Current saturation in zero-bandgap, top-gated graphene field-effect transistors. *Nat Nano*, 3(11) :654–659, November 2008.
- [88] C. R. Dean, A. F. Young, I. Meric, C. Lee, L. Wang, S. Sorgenfrei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, K. L. Shepard, and J. Hone. Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics. *Nat Nano*, 5(10) :722–726, October 2010.
- [89] L. A. Ponomarenko, R. Yang, T. M. Mohiuddin, M. I. Katsnelson, K. S. Novoselov, S. V. Morozov, A. A. Zhukov, F. Schedin, E. W. Hill, and A. K. Geim. Effect of a high- κ environment on charge carrier mobility in graphene. *Physical Review Letters*, 102(20) :206603, May 2009.
- [90] C. Jang, S. Adam, J.-H. Chen, E. D. Williams, S. Das Sarma, and M. S. Fuhrer. Tuning the effective fine structure constant in graphene : Opposing effects of dielectric screening on short- and Long-Range potential scattering. *Physical Review Letters*, 101(14) :146805, October 2008.
- [91] S. Xiao, J.-H. Chen, S. Adam, E. D. Williams, and M. S. Fuhrer. Charged impurity scattering in bilayer graphene. *Physical Review B*, 82(4) :041406, July 2010.
- [92] D. S. Novikov. Elastic scattering theory and transport in graphene. *Physical Review B*, 76(24) :245435, December 2007.
- [93] M. Monteverde, C. Ojeda-Aristizabal, R. Weil, K. Bennaceur, M. Ferrier, S. Guéron, C. Glatli, H. Bouchiat, J. N. Fuchs, and D. L. Maslov. Transport and elastic scattering times as probes of the nature of impurity scattering in Single-Layer and bilayer graphene. *Physical Review Letters*, 104(12) :126801, March 2010.
- [94] W. Bao, F. Miao, Z. Chen, H. Zhang, W. Jang, C. Dames, and C. Ning Lau. Controlled ripple texturing of suspended graphene and ultrathin graphite membranes. *Nat Nano*, 4(9) :562–566, 2009.
- [95] J. C. Meyer, A. K. Geim, M. I. Katsnelson, K. S. Novoselov, T. J. Booth, and S. Roth. The structure of suspended graphene sheets. *Nature*, 446(7131) :60–63, March 2007.
- [96] J.C. Meyer, A.K. Geim, M.I. Katsnelson, K.S. Novoselov, D. Obergfell, S. Roth, C. Girit, and A. Zettl. On the roughness of single- and bi-layer graphene membranes. *Solid State Communications*, 143(1-2) :101–109, July 2007.
- [97] M.I Katsnelson and A.K Geim. Electron scattering on microscopic corrugations in graphene. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 366(1863) :195–204, January 2008.

-
- [98] S. Adam, E. H. Hwang, and S. Das Sarma. Scattering mechanisms and boltzmann transport in graphene. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 40(5) :10221025, 2008.
- [99] E. H. Hwang and S. Das Sarma. Acoustic phonon scattering limited carrier mobility in two-dimensional extrinsic graphene. *Physical Review B*, 77(11) :115449, March 2008.
- [100] S. Q. Wang and G. D. Mahan. Electron scattering from surface excitations. *Physical Review B*, 6(12) :4517, December 1972.
- [101] K. Hess and P. Vogl. Remote polar phonon scattering in silicon inversion layers. *Solid State Communications*, 30(12) :797–799, June 1979.
- [102] X. Du, I. Skachko, A. Barker, and E. Y. Andrei. Approaching ballistic transport in suspended graphene. *Nat Nano*, 3(8) :491–495, 2008.
- [103] K.I. Bolotin, K.J. Sikes, Z. Jiang, M. Klima, G. Fudenberg, J. Hone, P. Kim, and H.L. Stormer. Ultrahigh electron mobility in suspended graphene. *Solid State Communications*, 146(9-10) :351–355, June 2008.
- [104] S. Cho and M. S. Fuhrer. Charge transport and inhomogeneity near the minimum conductivity point in graphene. *Physical Review B*, 77(8) :081402, February 2008.
- [105] B. Huard, N. Stander, J. A. Sulpizio, and D. Goldhaber-Gordon. Evidence of the role of contacts on the observed electron-hole asymmetry in graphene. *Physical Review B*, 78(12) :121402, 2008.
- [106] Y.-W. Tan, Y. Zhang, K. Bolotin, Y. Zhao, S. Adam, E. H. Hwang, S. Das Sarma, H. L. Stormer, and P. Kim. Measurement of scattering rate and minimum conductivity in graphene. *Physical Review Letters*, 99(24) :246803, December 2007.
- [107] R. Magier and D. J. Bergman. Strong-field magnetotransport of two-phase disordered media in two and three dimensions : Exact and approximate results. *Physical Review B*, 74(9) :094423, 2006.
- [108] V. Guttal and D. Stroud. Model for a macroscopically disordered conductor with an exactly linear high-field magnetoresistance. *Physical Review B*, 71(20) :201304, May 2005.
- [109] B. L. Altshuler, D. Khmel'nitzkii, A. I. Larkin, and P. A. Lee. Magnetoresistance and hall effect in a disordered two-dimensional electron gas. *Physical Review B*, 22(11) :5142, December 1980.
- [110] E. McCann, K. Kechedzhi, Vladimir I. Fal'ko, H. Suzuura, T. Ando, and B. L. Altshuler. Weak-Localization magnetoresistance and valley symmetry in graphene. *Physical Review Letters*, 97(14) :146805, October 2006.
- [111] S. Morozov. Strong suppression of weak localization in graphene. *Physical Review Letters*, 97(1), 2006.
- [112] Y.-F. Chen, M.-H. Bae, C. Chialvo, T. Dirks, A. Bezryadin, and N. Mason. Magnetoresistance in single-layer graphene : weak localization and universal conductance fluctuation studies. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 22(20) :205301, 2010.
- [113] K. Kechedzhi, V. I. Fal'ko, E. McCann, and B. L. Altshuler. Influence of trigonal warping on interference effects in bilayer graphene. *Physical Review Letters*, 98(17) :176806, April 2007.
- [114] R. V. Gorbachev, F. V. Tikhonenko, A. S. Mayorov, D. W. Horsell, and A. K. Savchenko. Weak localization in bilayer graphene. *Physical Review Letters*, 98(17) :176805, April 2007.
- [115] Y.-F. Chen, M.-H. Bae, C. Chialvo, T. Dirks, A. Bezryadin, and N. Mason. Negative and positive magnetoresistance in bilayer graphene : Effects of weak localization and charge inhomogeneity. *0906.5090*, June 2009.
- [116] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and D. E. Khmel'nitsky. Effects of electron-electron collisions with small energy transfers on quantum localisation. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 15(36) :7367, 1982.

- [117] Y. Zhang, Y.-W. Tan, H. L. Stormer, and P. Kim. Experimental observation of the quantum hall effect and berry's phase in graphene. *Nature*, 438(7065) :201–204, November 2005.
- [118] X. Du, I. Skachko, F. Duerr, A. Luican, and E. Y. Andrei. Fractional quantum hall effect and insulating phase of dirac electrons in graphene. *Nature*, 462(7270) :192–195, November 2009.
- [119] K. I. Bolotin, F. Ghahari, M. D. Shulman, H. L. Stormer, and P. Kim. Observation of the fractional quantum hall effect in graphene. *Nature*, 462(7270) :196–199, November 2009.
- [120] X. Wu, Y. Hu, M. Ruan, N. K Madiomanana, J. Hankinson, M. Sprinkle, C. Berger, and W. A. de Heer. Half integer quantum hall effect in high mobility single layer epitaxial graphene. *Applied Physics Letters*, 95(22) :223108, 2009.
- [121] G. Giovannetti, P. A. Khomyakov, G. Brocks, P. J. Kelly, and J. van den Brink. Substrate-induced band gap in graphene on hexagonal boron nitride : Ab initio density functional calculations. *Physical Review B*, 76(7) :073103, 2007.
- [122] G. Giovannetti, P. A. Khomyakov, G. Brocks, V. M. Karpan, J. van den Brink, and P. J. Kelly. Doping graphene with metal contacts. *Physical Review Letters*, 101(2) :026803, July 2008.
- [123] R. Golizadeh-Mojarad and S. Datta. Effect of contact induced states on minimum conductivity in graphene. *Physical Review B*, 79(8) :085410, February 2009.
- [124] P. A. Khomyakov, A. A. Starikov, G. Brocks, and P. J. Kelly. Nonlinear screening of charges induced in graphene by metal contacts. *Physical Review B*, 82(11) :115437, 2010.
- [125] T. Mueller, F. Xia, M. Freitag, J. Tsang, and Ph. Avouris. Role of contacts in graphene transistors : A scanning photocurrent study. *Physical Review B*, 79(24) :245430, June 2009.
- [126] P. Blake, R. Yang, S.V. Morozov, F. Schedin, L.A. Ponomarenko, A.A. Zhukov, R.R. Nair, I.V. Grigorieva, K.S. Novoselov, and A.K. Geim. Influence of metal contacts and charge inhomogeneity on transport properties of graphene near the neutrality point. *Solid State Communications*, 149(27-28) :1068–1071, July 2009.
- [127] S. Russo, M.F. Craciun, M. Yamamoto, A.F. Morpurgo, and S. Tarucha. Contact resistance in graphene-based devices. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 42(4) :677–679, February 2010.
- [128] J. Moser, A. Barreiro, and A. Bachtold. Current-induced cleaning of graphene. *Applied Physics Letters*, 91(16) :163513, 2007.
- [129] A. J. M. Giesbers, U. Zeitler, L. A. Ponomarenko, R. Yang, K. S. Novoselov, A. K. Geim, and J. C. Maan. Scaling of the quantum hall plateau-plateau transition in graphene. *Physical Review B*, 80(24) :241411, December 2009.
- [130] K. Bennaceur, P. Jacques, F. Portier, P. Roche, and D. C Glattli. Unveiling quantum hall transport by Efros-Shklovskii to mott variable range hopping transition with graphene. *1009.1795*, September 2010.
- [131] S. Komiyama, T. Takamasu, S. Hiyamizu, and S. Sasa. Breakdown of the quantum hall effect due to electron heating. *Solid State Communications*, 54(6) :479 – 484, 1985.
- [132] F. J. Ahlers, G. Hein, H. Scherer, L. Bilek, H. Nickel, R. Losch, and W. Schlapp. Bistability in the current-induced breakdown of the quantum hall effect. *Semiconductor Science and Technology*, 8(12) :2062, 1993.
- [133] S. Komiyama, Y. Kawaguchi, T. Osada, and Y. Shiraki. Evidence of nonlocal breakdown of the integer quantum hall effect. *Physical Review Letters*, 77(3) :558, July 1996.
- [134] D. J. Thouless. Field distribution in a quantum hall device. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 18(33) :6211, 1985.
- [135] O. Heinonen, P. L. Taylor, and S. M. Girvin. Electron-phonon interactions and the breakdown of the dissipationless quantum hall effect. *Physical Review B*, 30(6) :3016, 1984.

-
- [136] C. Chaubet, A. Raymond, and D. Dur. Heating of two-dimensional electrons by a high electric field in a quantizing magnetic field : Consequences in Landau emission and in the quantum Hall effect. *Physical Review B*, 52(15) :11178, October 1995.
- [137] B. Jeckelmann and B. Jeanneret. The quantum Hall effect as an electrical resistance standard. *Reports on Progress in Physics*, 64(12) :1603, 2001.
- [138] C. Chaubet and F. Geniet. Nonequilibrium occupation of Landau levels and universal critical field in the quantum-Hall-effect breakdown. *Physical Review B*, 58(19) :13015, November 1998.
- [139] V. Singh and M. M. Deshmukh. Nonequilibrium breakdown of quantum Hall state in graphene. *Physical Review B*, 80(8) :081404, 2009.
- [140] D. H. Cobden, N. K. Patel, M. Pepper, D. A. Ritchie, J. E. F. Frost, and G. A. C. Jones. Noise and reproducible structure in a GaAs/Al_xGa_{1-x}As one-dimensional channel. *Physical Review B*, 44(4) :1938, July 1991.
- [141] D. H. Cobden, C. H. W. Barnes, and C. J. B. Ford. Fluctuations and evidence for charging in the quantum Hall effect. *Physical Review Letters*, 82(23) :4695, June 1999.
- [142] S. Jung, G. M. Rutter, N. N. Klimov, D. B. Newell, I. Calizo, A. R. Hight-Walker, N. B. Zhitenev, and J. A. Stroscio. Evolution of microscopic localization in graphene in a magnetic field from scattering resonances to quantum dots. *Nat Phys*, 7(3) :245–251, March 2011.
- [143] A. J. M. Giesbers, G. Rietveld, E. Houtzager, U. Zeitler, R. Yang, K. S. Novoselov, A. K. Geim, and J. C. Maan. Quantum resistance metrology in graphene. *Applied Physics Letters*, 93(22) :222109, 2008.
- [144] A. Tzalenchuk, S. Lara-Avila, A. Kalaboukhov, S. Paolillo, M. Syvajarvi, R. Yakimova, O. Kazakova, T. J. B. M. Janssen, V. Fal'ko, and S. Kubatkin. Towards a quantum resistance standard based on epitaxial graphene. *Nat Nano*, 5(3) :186–189, March 2010.

Résumé : Depuis 1990, l'Effet Hall Quantique (EHQ) observé dans un gaz bidimension-

nel d'électrons (2DEG) à basse température (1.3 K) et sous fort champ magnétique (10 T) a révolutionné la métrologie des résistances car il permet d'obtenir un étalon quantique de résistance qui ne dépend que de e (charge de l'électron) and h (constante de Planck). A l'heure actuelle, les étalons primaires sont des 2DEGS réalisés dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs. Dans ce contexte, la physique du graphène intéresse fortement les métrologues. La monocouche de graphène est un feuillet, d'un seul atome d'épaisseur, d'atomes de carbone arrangés dans un réseau en nid d'abeille. Dans ce matériau, les électrons reproduisent le comportement de particules relativistes sans masse. Sous fort champ magnétique, le spectre des niveaux de Landau est : $\epsilon_n = \pm v_F \sqrt{2\hbar m_e B}$. La bicouche de graphène correspond à l'empilement de deux monocouches l'une sur l'autre ; les électrons retrouvent alors une masse effective ($m^* \approx 0.035m_e$). Sous fort champ magnétique, le spectre des niveaux de Landau est : $\epsilon_n = \pm \hbar e B / m^* \sqrt{n(n-1)}$. De plus grands écarts en énergie entre les premiers niveaux de Landau permettent d'envisager la réalisation d'étalons primaires plus pratiques en graphène.

Pendant la thèse, nous avons mis au point un protocole pour fabriquer des barres de Hall à base de graphène exfolié au CEA/Saclay. La localisation des feuillets est faite par microscopie optique et spectroscopie Raman. Les plus grands feuillets sont choisis et électriquement connectés en faisant une lithographie électronique suivie d'une évaporation. Une seconde lithographie électronique nous permet de graver le feuillet avec un plasma Ar :O₂ afin que la barre de Hall remplisse au mieux les critères métrologiques (canal de conduction large, géométrie des contacts bien définies,...).

Une fois que l'E HQ a pu être observé au LNE/Trappes, nous avons évalué les résistances des contacts dans une configuration à 3 terminaux (souvent moins de 50 Ω) et nous avons réalisé des mesures de précision de la résistance de Hall (R_H) grâce à un pont de comparaison de résistance basé sur un Comparateur Cryogénique de Courant. Cet outil de mesure permet de comparer indirectement la résistance de Hall dans un feuillet de graphène à la résistance de Hall dans un étalon primaire. Nos mesures dans une bicouche mettent en évidence un plateau de résistance plat à 3×10^{-6} sur une gamme de densité de porteurs égale à $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. En combinant les mesures de précision de la résistance longitudinale (R_{xx}), nous avons montré un accord avec une incertitude relative de 5×10^{-7} à zéro dissipation ($R_{xx} \rightarrow 0$) entre l'E HQ dans la bicouche et l'E HQ dans l'étalon primaire. Il s'agit là des premiers tests de quantification réalisés dans une bicouche de graphène exfolié. Des mesures dans une monocouche nous ont permis d'obtenir le même ordre de grandeur. L'étude de la rupture de l'E HQ en fonction du courant dans la bicouche nous permettra de comprendre pourquoi nous n'avons pas pu réaliser de tests plus précis.

Mots-clefs : Métrologie quantique, Effet Hall quantique, Graphène monocouche et bicouche,

Tests d'universalité, Pont de Comparaison de résistances, Rupture de l'effet Hall quantique.