



**HAL**  
open science

# Spectroscopies locales sur des nanostructures hybrides hors équilibre

Thomas Quaglio

► **To cite this version:**

Thomas Quaglio. Spectroscopies locales sur des nanostructures hybrides hors équilibre. Autre [cond-mat.other]. Université de Grenoble, 2012. Français. NNT : 2012GRENY006 . tel-00684262

**HAL Id: tel-00684262**

**<https://theses.hal.science/tel-00684262>**

Submitted on 31 Mar 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.

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique/Nanophysique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

**Thomas Quaglio**

Thèse dirigée par **Hervé Courtois**

préparée au sein de l'**Institut Néel**  
et de l'**École doctorale de Physique**

# Spectroscopies locales sur des nanostructures supraconductrices hybrides hors équilibre

Thèse soutenue publiquement le **19 janvier 2012**,  
devant le jury composé de :

**Klaus Hasselbach**

CNRS, Institut Néel, Président

**Philippe Lafarge**

CNRS/Université Paris Diderot, MPQ, Rapporteur

**Tristan Cren**

CNRS, INSP, Rapporteur

**Anne Anthore**

CNRS/Université Paris Diderot, LPN, Examineur

**Clemens Winkelmann**

INPG/CNRS Institut, Néel, Examineur

**Hervé Courtois**

UJF/CNRS, Institut Néel, Directeur de thèse





# Remerciements

Je remercie sincèrement Tristan Cren et Philippe Lafarge d'avoir accepté d'être mes rapporteurs et d'avoir lu attentivement ce manuscrit. Merci aussi à Klaus Haselbach d'avoir été président de jury ainsi qu'à Anne Anthore et Clemens Winkelmann d'avoir participé à mon jury de thèse.

Je tiens évidemment à remercier Hervé Courtois, Franck Dalhem et Clemens Winkelmann sans qui cette thèse n'aurait pas été possible. Hervé pour avoir dirigé ma thèse, pour m'avoir soutenu tout au long de ce travail et pour être toujours resté très sympathique. Franck pour m'avoir formé au début de ma thèse et pour m'avoir presque tout appris sur la manip. Clemens avec qui j'ai aussi beaucoup échangé. Il a en particulier eu la bonne idée d'utiliser des pointes EFM qui ont permis les plus belles mesures de cette thèse. Je tiens également à les remercier de nouveau ainsi que les thésards et post-docs du deuxième étage pour toutes les discussions de physique enrichissantes que nous avons eues et qui resteront pour moi la grande satisfaction de ma thèse.

Je remercie les services techniques et administratifs et en particulier l'équipe de Nanofab, les nouveaux membres comme les anciens, pour leur disponibilité, leur efficacité et leur bonne humeur absolument exemplaires.

Je tiens à remercier toutes les personnes que j'ai rencontré à Grenoble en grande majorité à travers le travail avec qui j'ai découvert la région et partagé tant de bons moments. Sans ordre particulier et en essayant d'en oublier le moins possible, je pense entre autre à Franck, Sukumar, Aurélien, Laetitia, Sylvain, Camille, Ioan, Cristina, Loren, Iulian, Adela, Danny, Meryll, Oana, Peter, Sarah, Clemens, Hervé, Hung, Amélie, Émilie, Germain, Toru, Dominique, Olivier, Florence, Valentine, Géraldine, Hugo, Yohann, Gauthier, Justin, Fix, Arnaud, Julie...

Un grand merci aussi à ma famille et en particulier à Théo, Martine et Alice qui m'ont toujours soutenu et avec qui j'ai pu partager tout ce que j'ai découvert à Grenoble.

Enfin je voudrais remercier toutes les personnes du laboratoire avec qui je n'ai pas eu l'occasion d'être vraiment proche mais qui rendent la vie au laboratoire si sympathique et agréable.



# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>6</b>
<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>1 Microscopies en champ proche</b>	<b>11</b>
1.1 Introduction . . . . .	11
1.2 Microscopie à effet tunnel . . . . .	11
1.2.1 Effet tunnel . . . . .	11
1.2.2 Microscope à effet tunnel . . . . .	14
1.2.3 Spectroscopies tunnel . . . . .	14
1.3 Microscopie à force atomique . . . . .	16
1.3.1 Interaction pointe-surface . . . . .	16
1.3.2 La sonde . . . . .	17
1.3.3 Modes d'imagerie . . . . .	18
<b>2 Jonctions Josephson Hybrides</b>	<b>25</b>
2.1 Effet Josephson . . . . .	25
2.1.1 Modèle RCSJ . . . . .	26
2.2 Introduction à l'effet de proximité . . . . .	29
2.2.1 Réflexions d'Andreev . . . . .	29
2.2.2 Jonctions SNS . . . . .	30
2.3 Théorie des supraconducteurs hybrides . . . . .	30
2.3.1 Équations d'Usadel . . . . .	30
2.3.2 Courant critique en fonction de la température . . . . .	33
2.4 Phénoménologie des jonctions SNS . . . . .	34
<b>3 Nanofabrication</b>	<b>39</b>
3.1 Échantillons . . . . .	39
3.1.1 Lithographie électronique . . . . .	39
3.1.2 Dépôts métalliques . . . . .	40
3.1.3 Lift-off . . . . .	41
3.1.4 Tricouches PES/Si/PMMA . . . . .	43
3.2 Pointes AFM-STM . . . . .	44
3.2.1 Pointes métalliques . . . . .	45

3.2.2	Pointes en niobium . . . . .	46
<b>4</b>	<b>Microscope AFM/STM cryogénique</b>	<b>51</b>
4.1	Sionludi . . . . .	51
4.2	Microscope . . . . .	53
4.2.1	Tubes scanner . . . . .	55
4.2.2	Moteurs attocube . . . . .	55
4.2.3	Sondes . . . . .	56
4.3	Électronique . . . . .	61
4.3.1	Amplificateurs . . . . .	61
4.3.2	Nanonis . . . . .	62
4.3.3	Mesures en transport . . . . .	63
<b>5</b>	<b>Spectroscopies locales sur un échantillon unique</b>	<b>65</b>
5.1	Localisation de l'échantillon . . . . .	65
5.2	Mesures de transport . . . . .	67
5.2.1	Échantillon ❶ . . . . .	69
5.2.2	Échantillon ❷ . . . . .	69
5.2.3	Facteurs de réduction du courant critique . . . . .	71
5.2.4	Influence de la pointe . . . . .	73
5.3	Spectroscopies locales . . . . .	75
5.4	Spectroscopies sur des bicouches SN . . . . .	77
5.5	Spectroscopies hors équilibre . . . . .	79
5.6	Modèle thermique . . . . .	81
5.7	Spectroscopies sur l'îlot normal . . . . .	85
5.7.1	Microscope . . . . .	86
5.7.2	Mesures de transport . . . . .	87
5.7.3	Spectroscopies locales . . . . .	90
5.7.4	Spectroscopies hors équilibre . . . . .	91
5.7.5	Effet de chauffage . . . . .	93
5.8	Conclusion . . . . .	95
	<b>Conclusion</b>	<b>97</b>
	<b>A Routine de dérivation</b>	<b>99</b>
	<b>B Routine de déconvolution</b>	<b>100</b>
	<b>C Masque pour lithographie</b>	<b>102</b>
	<b>D Amplificateur Tunnel</b>	<b>103</b>
	<b>E Amplificateur AFM</b>	<b>104</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>112</b>

# Introduction

Une des références les plus connues marquant la naissance des nanotechnologies est le discours que Feynman prononça à Caltech en 1960 s'intitulant « There's plenty of room at the bottom » [1]. L'idée majeure est que la résolution minimale à laquelle on peut modeler la matière est de quelques dizaines ou quelques centaines d'atomes. Il propose alors de se lancer dans l'aventure qui consiste à développer les outils pour observer et manipuler des objets à l'échelle micro et nanométrique. Il entrevoit également l'idée de construire des objets dont le comportement serait principalement quantique et qui n'auraient donc pas d'équivalent à notre échelle. A cette époque, les microscopes électroniques à transmission étaient plus répandus que les microscopes à balayage (MEB) et les processus de lithographie étaient balbutiants. Un effort remarquable a été mis en oeuvre dans les décennies qui ont suivi pour développer les techniques d'imagerie et de manipulation à cette échelle.

En terme d'imagerie, la technique la plus utilisée actuellement est sûrement le MEB dont le développement eut surtout lieu à la fin des années 50 et dont la première version commerciale est apparue en 1965. Il permet d'imager les échantillons comme on le ferait avec un appareil photo avec une résolution qui atteint assez facilement 10 nm. L'autre invention majeure en microscopie fut celle du STM (microscope à effet tunnel) en 1982 [2, 3] puis de l'AFM (microscope à force atomique) en 1986 [4]. Ils permettent l'imagerie à l'échelle atomique et même la manipulation d'atomes individuels adsorbés ! Ce nouveau type de microscope ouvrit également la voie à tout le domaine de la microscopie à sonde locale qui permet d'observer localement (à l'échelle nanométrique) de très nombreuses grandeurs physiques : densité d'états, topographie, intensité lumineuse, fonction d'onde électronique, potentiel électrostatique, force magnétique, conductivité, température, raideur, viscosité...

Les procédés de fabrication firent également d'énormes progrès avec l'apparition entre autre de la lithographie électronique. Si la manipulation de particules, d'atomes ou de molécules uniques reste difficile, il est devenu possible de fabriquer des échantillons de l'ordre de grandeur de la longueur de cohérence des phénomènes étudiés (souvent autour du micron). On entre alors dans le domaine de la physique mésoscopique où l'on étudie un grand nombre de particules, les électrons dans notre cas, pour lesquels le comportement est néanmoins gouverné par la physique quantique.

La supraconductivité, découverte en 1911 par Onnes [5], est d'un très grand intérêt en physique mésoscopique. En dessous de la température critique, il devient énergétiquement favorable pour les électrons de s'apparier en échangeant des phonons, formant ainsi des paires de Cooper. Ces paires de Cooper forment un condensat à l'énergie de Fermi qui peut être décrit par une unique fonction d'onde macroscopique [6]. On peut alors réaliser des circuits à base de supraconducteurs et de jonctions tunnel qui sont des systèmes quantiques modèles [7, 8, 9, 10].

Lorsque l'on met un supraconducteur en contact avec autre conducteur, les paires de Cooper peuvent passer dans ce conducteur et deviennent alors deux électrons corrélés en phase. La cohérence de ce processus appelé réflexion d'Andreev permet la diffusion des propriétés supraconductrices dans un métal normal sur des longueurs pouvant atteindre 1  $\mu\text{m}$ . Il apparaît alors une physique très riche, combinant les propriétés cohérentes de la supraconductivité et les propriétés de transport du second conducteur. Le couplage avec un supraconducteur à déjà été étudiée pour de nombreux systèmes : métal normal, métal ferromagnétique, semiconducteur, graphène, nanotubes, molécules uniques, ...

Nous nous intéressons en particulier au cas où deux supraconducteurs sont couplés par un îlot de métal normal diffusif (jonction SNS). Les réflexions d'Andreev permettent de faire passer un super-courant dépendant de la différence de phase entre les condensats des deux supraconducteurs. La jonction se comporte alors comme une jonction Josephson [11, 12] dont les caractéristiques courant-tension deviennent hystérétiques à basse température ( $\sim 200$  mK dans notre cas). Au dessus du courant critique, les phénomènes deviennent beaucoup plus compliqués car il combinent des effets cohérents et des phénomènes de dissipation avec des fonctions de distribution hors équilibre dans le métal normal et éventuellement dans le supraconducteur. Ces systèmes sont encore l'objet d'études autant théoriques qu'expérimentales [13, 14, 15, 16, 17, 18].

De nombreuses expériences ont été faites sur différents systèmes mésoscopiques grâce à des jonctions tunnel lithographiées. Ces dernières sont faciles à réaliser en oxydant un dépôt d'aluminium de manière contrôlée. On peut alors obtenir une mesure de la densité d'états de l'échantillon avec une sonde normale ou une mesure de la fonction de la distribution électronique avec une pointe supraconductrice [19]. Il peut être intéressant d'effectuer ce type d'étude de façon locale afin de mieux comprendre la dynamique de ces systèmes. Pour cela, il faut utiliser un STM fonctionnant à très basse température pour entrer dans le domaine de la physique mésoscopique, mais aussi pour avoir une résolution suffisante pour pouvoir sonder des structures plus fines que le gap d'un supraconducteur comme l'aluminium. Le STM ne fonctionne que sur des surfaces conductrices et ne peut donc pas être utilisé seul pour des échantillon lithographiés sur un substrat isolant. Une solution consiste à combiner le STM à l'AFM avec la même pointe pour localiser l'échantillon. La faisabilité du procédé a été démontrée sur des échantillons polarisés en courant [20] et a déjà permis d'étudier des jonctions Josephson hybrides en dessous du courant critique [21].

Le but de notre travail est d'effectuer des spectroscopies locales sur une

jonction SNS polarisée en courant pour pouvoir explorer tout le domaine hors équilibre de ces systèmes. Cette étude est particulièrement intéressante car il y a une interdépendance entre la dynamique électronique et la dynamique thermique dans ces jonctions.

Nos expériences en champ proche ont été réalisées dans un réfrigérateur à dilution nommé Sionludi construit dans notre laboratoire. L'échantillon est connecté de telle sorte que l'on peut mesurer la caractéristique courant-tension à ses bornes en même temps que les spectroscopies locales. Pour utiliser l'AFM en mode non contact, nous utilisons des diapasons en quartz car ils dissipent très peu d'énergie et donnent une mesure électrique directe du déplacement de la pointe. Leur grand facteur de qualité permet de combiner une bonne sensibilité en mode AFM à une grande stabilité hors de la fréquence de résonance pour le mode STM. Le choix de la pointe est également important car il faut combiner un faible rayon de courbure et une solidité importante avec un bon état de surface pour les spectroscopies. Nous avons essayé plusieurs types de pointes normales et supraconductrices.

Nos échantillons ont été développés à la plateforme Nanofab de l'Institut Néel par lithographie électronique et dépôts sous angles. Ils sont constitués de cuivre pour le métal normal et d'aluminium pour le supraconducteur, déposés sous ultra vide en une seule étape afin d'obtenir un très bon contact entre les deux métaux. Un soin particulier a été apporté à la propreté de l'échantillon afin de ne pas salir ni endommager la pointe pendant l'imagerie AFM.

Les mesures de transport montrent que nos jonctions SNS se comportent bien comme des jonctions Josephson et présentent un comportement hystérique à très basse température. Nous avons pu à plusieurs reprises localiser un échantillon unique et mesurer la densité d'états le long de l'échantillon. Nous avons effectué des spectroscopies hors équilibre le long des échantillons. En particulier, les spectroscopies sur les électrodes en aluminium nous ont permis de mesurer le chauffage dans nos jonctions. Nous avons pu expliquer qualitativement, grâce à un modèle thermique simple, la dissipation d'énergie dans ces échantillons. Nous avons aussi mis en évidence une influence de la pointe sur l'échantillon lorsqu'il y a un contact tunnel, au niveau de la dissipation thermique mais aussi dans les mesures en transport.

Ce manuscrit est composée d'une partie théorique décrivant les systèmes que nous avons utilisés puis d'une partie décrivant notre travail expérimental à proprement parler. Après une présentation générale de l'AFM et du STM, j'aborde la physique des jonctions Josephson hybrides. Ensuite je décris le travail de nanofabrication concernant les échantillons et les pointes puis le réfrigérateur à dilution et le microscope avec lesquels j'ai travaillé. Enfin dans un dernier chapitre j'expose et discute les résultats de mes expériences sur les jonctions Josephson hybrides.



# Chapitre 1

## Microscopies en champ proche

### 1.1 Introduction

En 1981, G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber et E. Weibel mettent au point le premier microscope à effet tunnel (STM) dans le laboratoire IBM de Zürich [3, 2]. G. Binnig et H. Rohrer reçoivent le prix Nobel cinq ans plus tard pour cette découverte.

Le principe consiste à approcher une pointe métallique d'un échantillon conducteur avec une différence de potentiel. Lorsque la distance devient inférieure au nanomètre, il devient possible de faire passer un courant de l'un à l'autre par effet tunnel. La pointe est montée sur des actionneurs piézoélectriques afin de pouvoir effectuer des mouvements précis à cette échelle. Un système d'amortisseurs est nécessaire pour isoler le microscope des vibrations du sol. En général on utilise une régulation en hauteur pour garder le courant constant. En balayant l'échantillon, on obtient alors des images de la densité électronique locale de l'échantillon.

Cette invention a rapidement ouvert la voie à toute la physique expérimentale en champ proche. Tout d'abord l'AFM (microscopie à force atomique) fut inventé en 1986 [4]. Elle est sensible aux forces à proximité de la surface et permet d'effectuer des images topographiques des échantillons. Quelques exemples remarquables de mesures avec différents microscopes à champ proche sont présentés figures 1.1, 1.2 et 1.3.

### 1.2 Microscopie à effet tunnel

#### 1.2.1 Effet tunnel

L'effet tunnel est un phénomène purement quantique qui permet à une particule de traverser une barrière de potentiel avec une probabilité non nulle même

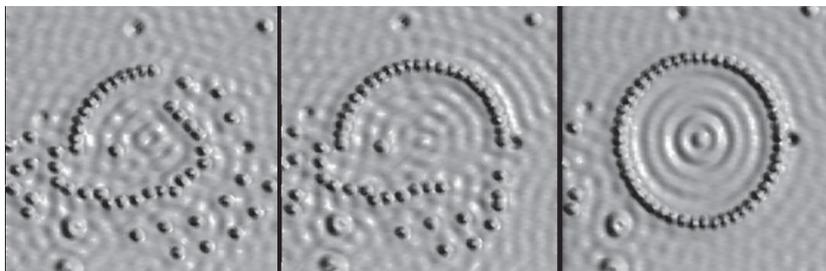


FIGURE 1.1 – Des atomes de fer adsorbés sur une surface de cuivre (111) ont été déplacés à l'aide de la pointe d'un STM pour former cet anneau [22]. Les oscillations au centre sont la figure d'interférence des électrons de surface confinés par l'anneau.

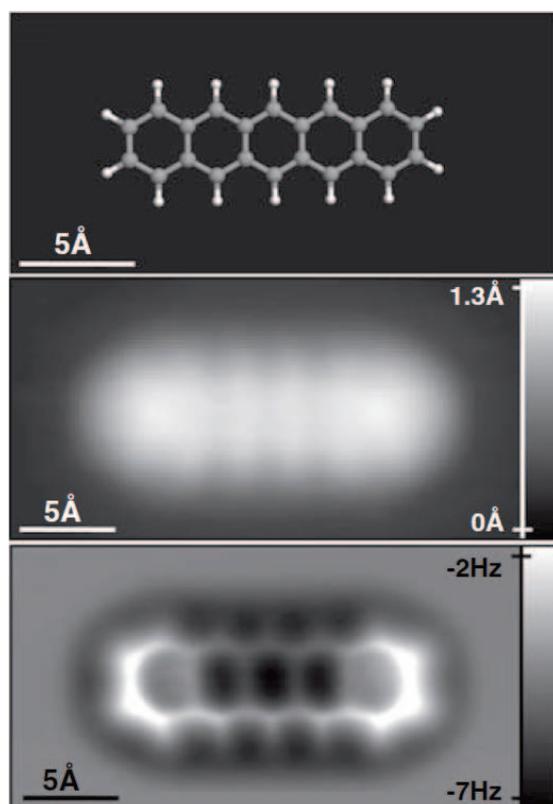


FIGURE 1.2 – Images STM (au centre) et AFM (en bas) réalisées avec la même pointe par L. Gross et al. [23]. Pour cette expérience, la pointe a été fonctionnalisée avec une molécule de CO ce qui permet de sonder en AFM les orbitales liantes de la molécule avec une précision exceptionnelle.

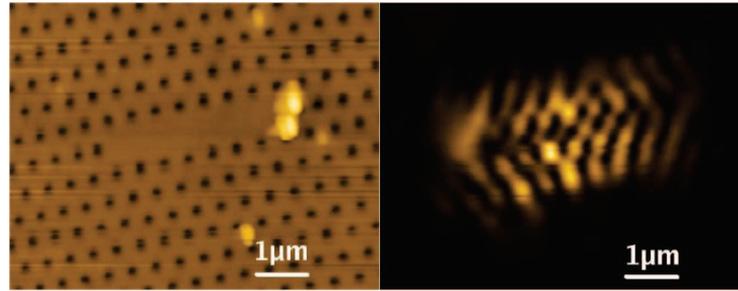


FIGURE 1.3 – Images réalisées à l'aide d'un SNOM (scanning near field optical microscope) qui est un AFM dont la pointe est une fibre optique taillée permettant de recueillir les composantes évanescentes de la lumière [24]. À gauche l'image AFM montre la structure de la cavité photonique et à droite on peut voir la lumière piégée dans la cavité.

lorsque son énergie est trop faible pour la franchir de façon classique.

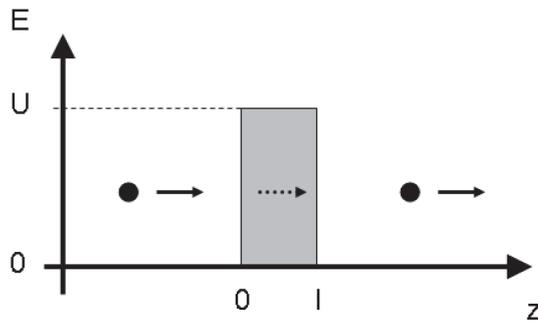


FIGURE 1.4 – Schéma de principe de l'effet tunnel

Le cas d'école permettant de comprendre le phénomène est celui d'une onde plane  $\Psi$  rencontrant une barrière de potentiel rectangulaire de hauteur  $U$  et de largeur  $l$  (Figure 1.4). Elle doit satisfaire l'équation de Schrödinger au niveau de la barrière :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \Psi(z) + U(z)\Psi(z) = E\Psi(z) \quad (1.1)$$

avec  $E$  l'énergie de la particule atteignant la barrière et  $m$  la masse de la particule. À l'intérieur de la barrière ( $0 < z < l$ ), dans le cas  $U > E$ , on trouve :

$$\Psi(z) = \Psi(0) \exp\left(-\frac{\sqrt{2m(U-E)}}{\hbar} z\right) \quad (1.2)$$

La particule a donc une probabilité  $p = \left|\frac{\Psi(l)}{\Psi(0)}\right|^2$  de traverser la barrière et une

probabilité  $1 - p$  d'être réfléchi. Dans le cas du STM, on a deux conducteurs séparés par du vide. Si l'on prend comme référence l'énergie de Fermi,  $E$  est l'énergie de Fermi plus la polarisation entre la pointe et l'échantillon  $E_F + eV$  et  $U$  est l'énergie de Fermi plus le travail de sortie des métaux  $E_F + \phi$ . Pour notre expérience,  $eV$  est de l'ordre de 1 meV alors que  $\phi$  est de l'ordre de 4-5 eV. On peut donc faire l'approximation :

$$p = \exp\left(-\frac{\sqrt{2m\phi}l}{\hbar}\right) \quad (1.3)$$

On remarque que le courant tunnel varie sur une distance caractéristique de  $\frac{\hbar}{\sqrt{2m\phi}} \simeq 1\text{\AA}$ . Grâce à cette dépendance exponentielle, il est relativement facile d'obtenir la résolution atomique en STM car il est très probable qu'un seul atome, le plus proche de la surface, conduise le courant. On obtient ainsi couramment la résolution atomique sur du graphite simplement en coupant un fil métallique, à l'aide d'une pince coupante, pour s'en servir comme pointe STM.

### 1.2.2 Microscope à effet tunnel

Ce phénomène a été utilisé comme principe de base du STM. On monte une pointe conductrice sur un tube piézoélectrique permettant un positionnement d'une précision bien inférieure à l'Angström entre la pointe et l'échantillon. On applique une différence de potentiel  $V$  entre la pointe et l'échantillon. Lorsque la pointe atteint une distance inférieure au nanomètre, un courant tunnel  $I$  est mesuré grâce à un amplificateur courant-tension. En prenant le logarithmique de cette tension, on obtient un signal proportionnel à la distance pointe-échantillon. Un contrôleur proportionnel intégral (PI) permet de réguler la tension appliquée sur le tube piézoélectrique pour obtenir un courant constant. Il suffit alors de balayer la surface pour obtenir une image de la densité d'états électronique de l'échantillon.

Pour obtenir des images rapides sur des échantillons atomiquement plans, il est aussi possible de choisir une vitesse de régulation très lente et de scanner l'échantillon très rapidement. La hauteur moyenne reste donc constante et on image le courant reçu par la pointe.

### 1.2.3 Spectroscopies tunnel

Pour des métaux réels, le courant tunnel spectral est proportionnel au nombre d'électrons  $n_p(E-eV)f_p(E-eV)$  dans la pointe et au nombre de trous  $n_e(E)(1-f_e(E))$  dans l'échantillon;  $n_e$  et  $n_p$  étant les densités d'états électroniques et  $f_e$  et  $f_p$  les fonctions de distribution des électrons respectivement de l'échantillon et de la pointe. On a donc le courant spectral de la pointe vers l'échantillon :

$$I_{s_p \rightarrow e} \propto p(1 - f_e(E))n_e(E)f_p(E - eV)n_p(E - eV) \quad (1.4)$$

À cela, il faut retrancher le courant spectral de l'échantillon vers la pointe.

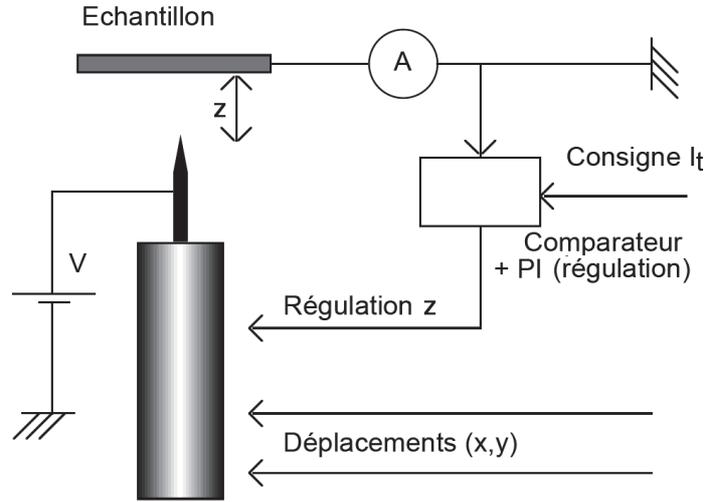


FIGURE 1.5 – Schéma de principe du STM

$$I_{s_{e \rightarrow p}} \propto p(1 - f_p(E - eV)) n_p(E - eV) f_e(E) n_e(E) \quad (1.5)$$

On obtient donc comme courant tunnel total [25, 19] :

$$I(V) \propto p \int_{-\infty}^{+\infty} (f_p(E - eV) - f_e(E)) n_p(E - eV) n_e(E) dE \quad (1.6)$$

Cette expression peut être comprise plus précisément en considérant des courbes tension-courant dans des cas particuliers. Si la pointe est un métal normal,  $n_p = \text{cste}$ . On a alors une conductance différentielle :

$$\frac{\partial I}{\partial V}(V) \propto - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial f_p}{\partial V}(E - eV) n_e(E) dE \quad (1.7)$$

À l'équilibre, les fonctions de distribution sont des fonctions de Fermi-Dirac :

$$f(E) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E - E_F}{k_B T}\right) + 1} \quad (1.8)$$

La dérivée est donc une fonction en cloche de largeur  $4k_B T$ . Si la température est suffisamment faible, la conductance différentielle est donc une image directe de la densité d'états de l'échantillon :

$$\frac{\partial I}{\partial V}(V) \propto n_e(E_F + eV) \quad (1.9)$$

À contrario, on peut sonder un échantillon normal hors équilibre, avec une pointe supraconductrice. La densité d'états du supraconducteur est décrite par

la densité d'états BCS :

$$n_p = \frac{n_0}{\sqrt{1 - \left(\frac{\Delta}{E - E_F}\right)^2}} \quad \text{pour } |E| > \Delta$$

$$n_p = 0 \quad \text{pour } |E| < \Delta$$
(1.10)

Cette densité d'états présente des pics importants de part et d'autre du gap. En mesurant  $n_p$  à l'équilibre, on peut ensuite déconvoluer numériquement (Annexe B) les courbes  $\frac{\partial I}{\partial V}$  hors équilibre pour en extraire  $\frac{\partial f_e}{\partial V}$ . On a donc une mesure de la fonction de distribution hors équilibre des électrons dans l'échantillon [26, 27].

## 1.3 Microscopie à force atomique

### 1.3.1 Interaction pointe-surface

La microscopie à force atomique est sensible aux forces d'interaction avec la surface. Les deux principales sont la force chimique et la force de van der Waals. À ces deux forces peuvent s'ajouter par exemple la force magnétique ou la force électrostatique qui peuvent être sondées dans différentes variantes de l'AFM classique.

#### Forces de van der Waals et force chimique

Les forces de van der Waals sont des forces de longue portée (plusieurs dizaines de nanomètres) dues aux interactions dipolaires entre les atomes, les molécules ou les ions. Elles comprennent les interactions entre dipôles permanents et les interactions de polarisation des nuages électroniques. Dans notre cas, elle est attractive et modélisée par une loi en  $r^{-6}$ . La force chimique est la force de contact que l'on ressent très bien à l'échelle macroscopique. Elle empêche l'interpénétration de la matière qui est pourtant constituée principalement de vide. Elle est due à l'apparition de liaisons électroniques lorsque les atomes de la pointe et de l'échantillon sont très proches. On peut décrire ces deux forces par le potentiel de Lennard-Jones [28, 29] représenté figure 1.6

$$U_{LJ} = \epsilon \left[ \left(\frac{r_m}{r}\right)^{12} - 2 \left(\frac{r_m}{r}\right)^6 \right]$$
(1.11)

où  $\epsilon$  est l'énergie de la liaison et  $r_m$  la distance pour laquelle  $U_{LJ}$  est minimum.

On peut noter deux régimes distincts : le régime attractif, pour  $r > r_m$ , dominé par les forces de van der Waals, et le régime répulsif, pour  $r < r_m$ , due aux forces chimiques.

#### Forces électrostatique et magnétique

Si une tension  $V$  est appliquée entre la pointe et l'échantillon, il s'ajoute la force électrostatique de très longue portée. Si l'on appelle  $C$  la capacité entre la pointe

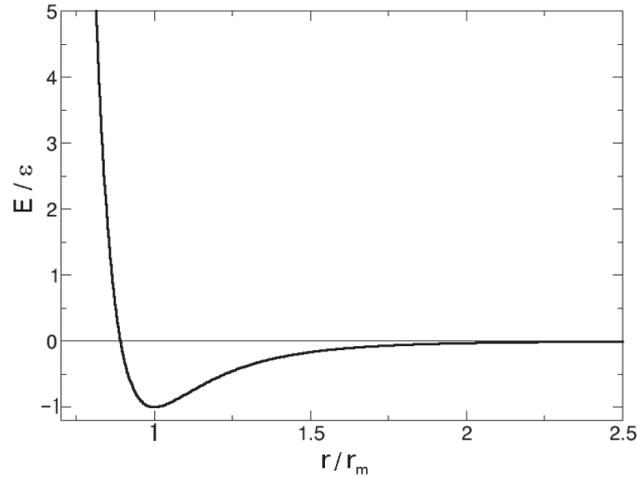


FIGURE 1.6 – *Potentiel de Lennard-Jones.  $\epsilon$  est donc l'énergie de liaison et  $r_m$  la distance de la liaison.*

et l'échantillon, on a comme potentiel

$$U_E = \frac{1}{2}CV^2 \quad (1.12)$$

À première approximation cette force varie en  $d^{-1}$ . Cette force permet, par exemple, de mesurer le potentiel électrique sur un échantillon mésoscopique. En faisant le rapport entre un balayage avec l'échantillon à l'équilibre et le même balayage en polarisant l'échantillon, on peut obtenir une image du potentiel électrique local [30].

Pour un échantillon magnétique, on peut le sonder en recouvrant la pointe d'un métal magnétique. Le potentiel dû au champ magnétique  $\vec{H}$  peut s'écrire

$$U_m = \mu_0 \int \vec{M} \cdot \vec{H} dV \quad (1.13)$$

où  $\vec{M}$  est l'aimantation de la pointe. En faisant une première image au contact ou presque, cette force est négligeable et on observe la topographie. Un second passage à plus grande distance de la surface permet ensuite de mesurer la force magnétique. L'interprétation peut par contre se révéler plus compliquée car l'image donne une information combinant la direction et le gradient du champ magnétique.

### 1.3.2 La sonde

Une sonde AFM est constituée d'une pointe nanométrique collée sur un oscillateur mécanique et un système permettant de convertir les déplacements de la pointe en signal électrique.

Les sondes AFM les plus courantes sont des pointes de silicium placées à l'extrémité de micro-leviers de silicium ou de nitrure de silicium. Un laser est réfléchi sur la face supérieure du levier vers une photodiode quatre quadrants [31] (figure 1.7). De nombreux micro-leviers existent avec des raideurs et des fréquences de vibration très variées en fonction du mode d'AFM utilisé (statique ou dynamique, contact ou non contact).

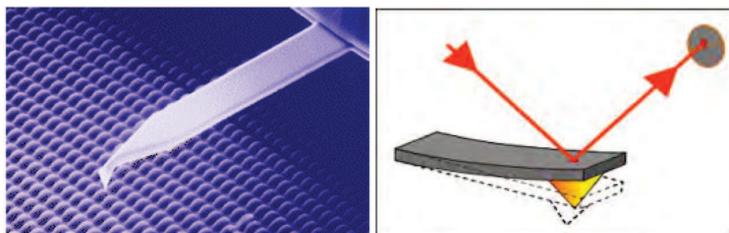


FIGURE 1.7 – Sonde AFM commercialisée par Olympus [32] et schéma de principe de la détection optique.

Pour des applications particulières, la pointe et les systèmes de détection peuvent être très différents. Les pointes utilisées peuvent aussi être des nanotubes, des fils métalliques attaqués chimiquement ou, dans le cas du SNOM, une fibre optique taillée chimiquement et en général métallisée [33]. La détection du mouvement de la pointe peut, elle aussi, être très variée. On peut noter la détection par interférométrie laser [34], par mesure de capacité, avec des oscillateurs piézorésistifs [35] ou piézoélectriques [36].

Dans notre cas, nous utilisons un diapason en quartz sur lequel sont déposées deux électrodes. Le quartz étant piézoélectrique, on peut mesurer directement le mouvement aux bornes des électrodes. Nous collons ensuite différentes pointes conductrices à l'extrémité du diapason. La rigidité du système donne une stabilité suffisante pour effectuer des spectroscopies tunnels correctes. Grâce à son grand facteur de qualité, il est aussi possible de le faire osciller avec une amplitude raisonnable proche de sa fréquence de résonance en mode AFM.

### 1.3.3 Modes d'imagerie

Différents modes d'imagerie sont utilisés en fonction des contraintes imposées par l'environnement dans lequel doit fonctionner l'AFM et par sa facilité de mise en oeuvre. Il sont brièvement résumés par la figure 1.8.

#### Mode contact

Le mode contact est le plus ancien car il est le plus intuitif et reste utilisé dans de nombreux cas pour obtenir des images topographiques. La pointe entre en contact avec la surface et on régule la hauteur afin d'obtenir une déflexion constante. Les images sont donc obtenues à force constante. Afin d'obtenir une bonne sensibilité, on utilise les leviers les plus souples possible. Cependant, la

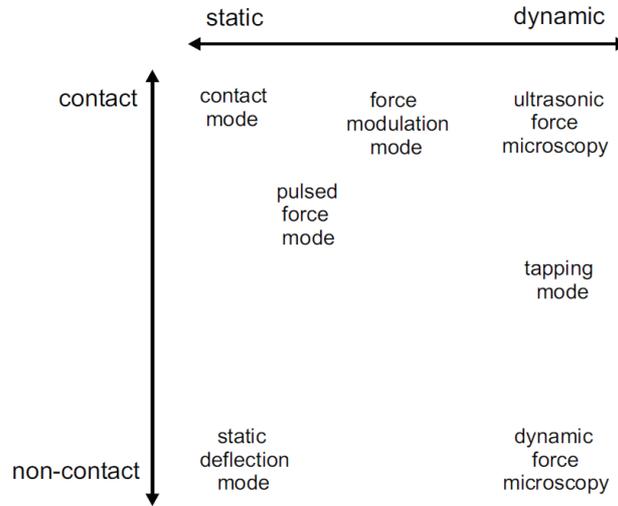


FIGURE 1.8 – Schéma non exhaustif résumant les principaux modes d'imagerie AFM adapté de [37]

mesure de la force au contact de la surface n'est pas évidente, car si l'extrémité de la pointe subit une force répulsive qui constitue la majorité de la force totale, il faut retrancher la force attractive subie par le reste de la pointe.

Dans notre cas, nous utilisons un diapason pour sa grande stabilité en mode STM et pour travailler facilement à très basse température. Du fait de sa grande raideur, les déplacements seraient minimes en mode contact. Il est donc impossible de travailler en mode statique. De plus, avec ce mode, les pointes AFM s'usent assez rapidement.

### Mode dynamique

Dans ce mode, on fait vibrer le levier à une fréquence connue et l'on mesure différentes propriétés de ce mode de vibration. On distingue deux principales méthodes de fonctionnement : le mode tapping où la pointe entre en contact avec la surface à chaque oscillation, et le mode non-contact où la pointe ne sonde que le domaine attractif des forces de van der Waals.

Pour modéliser ce mode, on assimile la sonde à un oscillateur mécanique modèle de masse effective  $m$  et de raideur effective  $k$  auquel on applique une force sinusoïdale  $F$  de fréquence  $\omega$ . Le principe fondamental de la dynamique donne :

$$m\ddot{z} + a\dot{z} + kz = F \exp(i\omega t) \quad (1.14)$$

où  $a$  décrit la dissipation du résonateur. En posant  $\gamma = \frac{a}{m}$  et  $\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}$ , on

obtient :

$$\ddot{z} + \gamma\dot{z} + \omega_0^2 z = \frac{F}{m} \exp(i\omega t) \quad (1.15)$$

On obtient alors pour solution  $z = A(\omega) \exp(i\omega t - i\Phi(\omega))$  avec :

$$A(\omega) = \frac{F}{m} \frac{1}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}} \quad (1.16)$$

$$\Phi(\omega) = \arctan\left(\frac{\gamma\omega}{\omega_0^2 - \omega^2}\right) \quad (1.17)$$

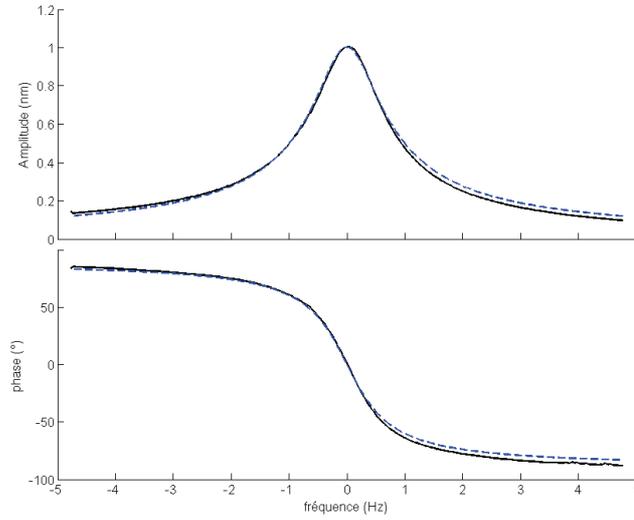


FIGURE 1.9 – *Caractéristiques d'amplitude et de phases d'une sonde en quartz à 140 mK. Ici le facteur de qualité est  $Q=28000$ . Les courbes pointillées sont les courbes théoriques.*

Les équations 1.16 et 1.17 sont représentées figure 1.9 et décrivent un mode de vibration. Pour caractériser ce genre de système, on utilise le facteur de qualité défini par  $Q = \frac{\omega_0}{\delta\omega}$  où  $\delta\omega$  est la largeur de la courbe d'amplitude à  $\frac{A(\omega_0)}{\sqrt{2}}$ . Un rapide calcul donne

$$Q = \frac{\omega_0}{\gamma} \quad (1.18)$$

On peut aussi comprendre le facteur de qualité comme le rapport entre l'énergie accumulée dans le résonateur et l'énergie dissipée pendant une période. Si on arrête d'exciter le résonateur, l'amplitude relaxera donc en un temps caractéristique  $\tau = Q/\omega_0$  de l'ordre de la seconde dans notre cas ( $Q \approx 10^4 - 10^5$  et  $\omega_0 \approx 32$  kHz).

On remarque aussi, d'après l'équation 1.16 que l'amplitude à la résonance s'écrit :

$$A(\omega_0) = \frac{F}{m\gamma\omega_0} = \frac{Q}{k}F \quad (1.19)$$

Un facteur de qualité élevé permet donc une grande sensibilité aux forces si l'on travaille à la résonance. Cet argument n'est à considérer que de façon qualitative car du fait du temps de réponse très lent en amplitude, nous travaillons avec la phase. Cette grande amplitude permet en fait de mesurer la phase avec précision ( $\sim 20$  mHz hors contact).

### Interaction avec la surface

La manière la plus simple de modéliser l'interaction avec la surface est de linéariser la force autour du point de fonctionnement. On développe donc la force

$$F_S(z) = F_S(z_0) + (z - z_0) \frac{\partial F_S}{\partial z}(z_0) \quad (1.20)$$

dans l'équation 1.15 :

$$\ddot{z} + \gamma\dot{z} + \left( \omega_0^2 - \frac{1}{m} \frac{\partial F_S}{\partial z}(z_0) \right) z = \frac{F}{m} \exp(i\omega t) + cste \quad (1.21)$$

On reconnaît alors un nouvel oscillateur de pulsation de résonance

$$\omega_1 = \sqrt{\omega_0^2 - \frac{1}{m} \frac{\partial F_S}{\partial z}(z_0)} \simeq \omega_0 \left( 1 - \frac{1}{2k} \frac{\partial F_S}{\partial z}(z_0) \right) \quad (1.22)$$

On introduit alors

$$\Delta\omega = \omega_1 - \omega_0 = -\frac{\omega_0}{2k} \frac{\partial F_S}{\partial z}(z_0) \quad (1.23)$$

qui est le décalage de fréquence lors de l'interaction avec la surface. Cette modification provient de la raideur effective de l'oscillateur, elle est donc instantanée. Contrairement à l'amplitude qui nécessite une modification de l'énergie stockée pour atteindre un nouvel équilibre, la phase de l'oscillateur est modifiée en une période.

Il faut noter que dans notre cas  $\frac{\Delta\omega}{\omega_0} \sim 10^{-6}$ , le nouveau facteur de qualité  $Q = \frac{\omega_0 + \Delta\omega}{\gamma}$  est donc quasiment inchangé. On observe expérimentalement que lorsque la pointe est à proximité de la surface, la dissipation augmente d'au moins 5%. Ce modèle simpliste ne décrit donc absolument pas la dissipation observée.

### AM-AFM

La solution la plus simple pour effectuer des images AFM est d'exciter l'oscillateur à une fréquence fixée et de réguler la distance pointe-échantillon afin d'obtenir une amplitude constante inférieure à l'amplitude mesurée hors contact (Figure 1.10). On peut alors enregistrer les images en hauteur et en phase. Dans

certains cas, l'image en phase montre un bien meilleur contraste. À proximité de la surface, l'amplitude diminue pour deux raisons. D'une part la fréquence propre du résonateur change, on excite donc plus loin de la résonance. D'autre part, la dissipation augmente ce qui va diminuer d'autant plus l'amplitude. En conséquence, on ne peut pas différencier les interactions élastiques des interactions inélastiques en mode AM-AFM.

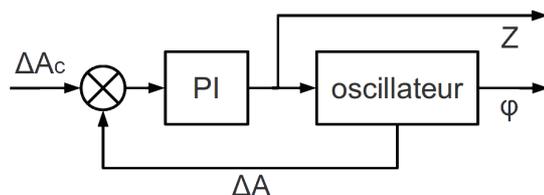


FIGURE 1.10 – Schéma de principe de l'AM-AFM.  $\Delta A_c$  est la différence entre l'amplitude hors contact et l'amplitude désirée. Le correcteur PI permet d'ajuster la distance  $z$  et l'oscillateur réagit en conséquence et fournit  $\phi$  et  $\Delta A$  en retour.

### FM-AFM

Comme il a été expliqué précédemment, pour de grands facteurs de qualité, la relaxation d'énergie est beaucoup trop lente pour pouvoir réguler avec le signal d'amplitude. L'idée la plus simple consiste à utiliser la phase à la place de l'amplitude pour réguler la hauteur [38]. Pour mesurer la phase, on utilise une détection homodyne ou lock-in qui consiste à multiplier le signal à mesurer par le signal excitateur. En filtrant les hautes fréquences, on obtient un signal continu proportionnel au signal à amplifier. En pratique, le temps de détection de la phase est fixé par la fréquence de coupure du lock-in ( $\sim 1$  kHz dans notre cas).

Malheureusement, lorsque l'on est hors résonance, la phase varie aussi avec les interactions inélastiques, on ne peut donc toujours pas différencier les forces élastiques des forces dissipatives. D'autre part, la phase ne varie de façon significative qu'autour de la fréquence de résonance (figure 1.9). On ne peut pas travailler avec des décalages de fréquence de résonance  $\Delta f$  supérieurs à la largeur de la résonance car la phase devient alors constante. Dans notre cas, la mesure deviendrait problématique pour des facteurs de qualité supérieurs à 100 000.

La solution consiste à utiliser une boucle à verrouillage de phase (PLL) qui ajuste la fréquence d'excitation pour conserver la phase égale à celle de la résonance [39]. L'oscillateur est ainsi toujours excité à sa fréquence de résonance. On peut alors utiliser le décalage de fréquence de résonance pour réguler la hauteur (figure 1.11). Ce décalage de fréquence de résonance fournit donc une mesure directe du gradient de force (équation 1.23). Une troisième boucle indépendante ajuste l'intensité de l'excitation pour garder l'amplitude constante. Ce dernier signal fournit une mesure de l'énergie dissipée.

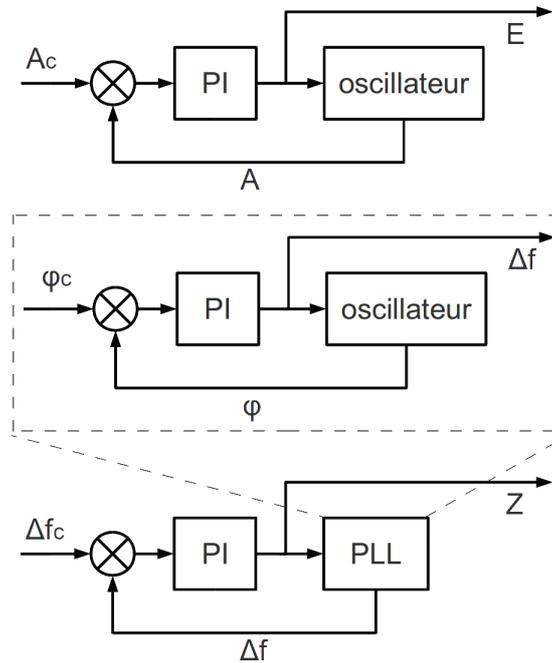


FIGURE 1.11 – Schéma de principe du FM-AFM. La première boucle est indépendante et permet de garder l'amplitude  $A$  constante. La PLL ajuste la fréquence afin que la phase  $\phi$  soit toujours égale à la phase à la résonance. Elle permet donc de maintenir l'oscillateur à sa fréquence de résonance. La dernière boucle ajuste la distance pointe échantillon pour travailler à décalage de fréquence de résonance  $\Delta f$  constant.

Cette plus grande complexité nous permet donc de choisir dans quel régime d'interaction avec la surface nous travaillons. Une mesure typique de fréquence de résonance en fonction de la distance est représentée figure 1.12. On peut distinguer trois domaines :

- Pour des consignes de décalage de fréquence négatives, on travaille dans le domaine (3). L'interaction est attractive ce qui permet de préserver la pointe. En pratique c'est relativement facile sur de l'oxyde de silicium car le minimum de la courbe ( $\sim 1$  Hz ici) est très inférieur à la consigne de travail ( $\sim 300$  mHz). Sur des métaux (or, cuivre, aluminium), cela se révèle plus difficile car le minimum est très proche de la consigne. On « saute » alors facilement dans les domaines (2) et (1).
- Le domaine (2) n'est pas stable, si l'on y travaille, on éloigne la pointe lorsque  $\Delta f$  diminue. On ne peut tout simplement pas y accéder lorsque la pointe est retirée.
- Le domaine (1) correspond au mode répulsif donc plus dangereux pour la pointe car on est très proche de la surface. Cependant nous travaillons

typiquement avec une amplitude d'un nanomètre ce qui permet de ne pas détruire la pointe.

Même s'il serait préférable d'utiliser le domaine (3), nous utilisons en général le domaine (1) pour imager car, compte tenu du bruit mécanique, c'est le seul qui est stable sur tout l'échantillon. En effet, le bruit est typique de 30 à 40 mHz rms dans le vide mais atteint 120 à 150 mHz rms lorsque l'on balaye la surface.

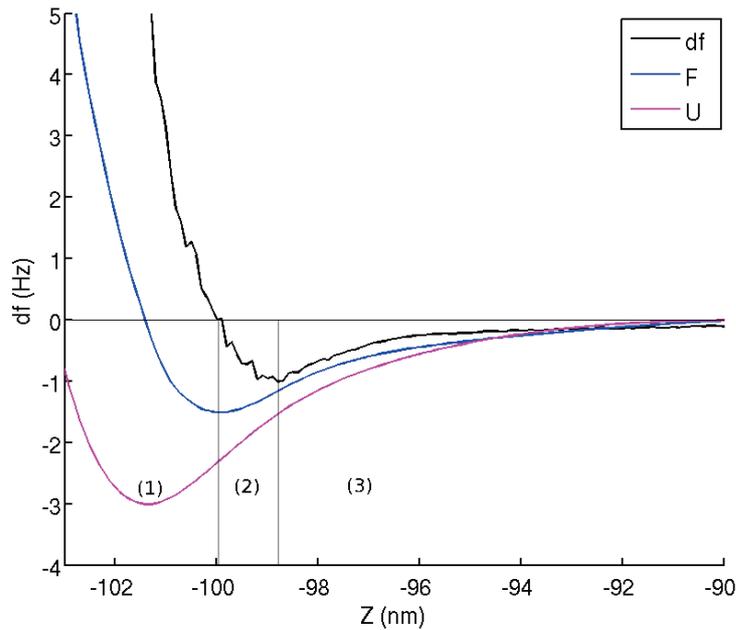


FIGURE 1.12 – Variations du décalage en fréquence en fonction de la distance mesurée sur une couche d'oxyde de silicium de 300 nm avec une pointe de tungstène à 180 mK. La force  $F$  et le potentiel  $U$  sont calculés en intégrant cette courbe. Ne connaissant pas les préfacteurs, ces deux dernières courbes ne sont pas quantitatives.

## Chapitre 2

# Jonctions Josephson Hybrides

Lorsque deux supraconducteurs sont faiblement couplés, ils forment une jonction Josephson. Cette jonction permet entre autre de faire passer un super-courant dépendant de la différence de phase entre les deux condensats supraconducteurs. Ce lien faible peut être une barrière tunnel, un micro-pont supraconducteur ou tout autre conducteur diffusif ou balistique. En particulier, dans notre cas, nous nous intéressons aux jonctions Josephson où la jonction est constituée d'une fine bande de métal normal d'une longueur de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ .

Malgré de nombreuses années d'étude de l'effet de proximité entre un métal normal et un supraconducteur, certains phénomènes sont toujours incompris quantitativement. En particulier, le comportement des jonctions Josephson supraconducteur-métal normal-supraconducteur (SNS) reste un sujet encore débattu [13, 14, 15]. L'objectif de ce chapitre est de donner un aperçu du comportement de ces jonctions.

Les deux premières sections seront consacrées à une description générale des jonctions Josephson et de l'effet de proximité entre un métal normal et un supraconducteur. Enfin nous aborderons le comportement en transport des Jonctions Josephson SNS en particulier, leurs caractéristiques courant-tension, le courant critique, le courant de repiégeage et le phénomène d'hystérésis.

### 2.1 Effet Josephson

Dans les supraconducteurs, les électrons proches de l'énergie de Fermi se condensent en paires de Cooper [6] qui peuvent alors être décrites par une unique fonction d'onde  $\Psi = |\Psi| e^{i\Phi}$ . Cette fonction d'onde des paires de Cooper a été d'abord introduite en 1950 par Ginzburg et Landau [40] avec des considérations énergétiques. Elle s'étend dans tout le supraconducteur, ce qui lui confère un comportement quantique macroscopique. L'effet Josephson permet de s'en faire une idée très palpable. Il a été prédit par Josephson en 1962 [11, 12] et fut mesuré

très rapidement après [41, 42].

Lorsque deux supraconducteurs sont séparés par une barrière tunnel (jonction SIS), une différence de phase  $\Phi$  entre les deux fonctions d'onde permet la circulation d'un courant  $I_s$  d'un supraconducteur à l'autre suivant l'expression

$$I_S = I_c \sin \Phi \quad (2.1)$$

avec  $I_c$  le courant critique de la jonction. Ce courant circule à tension nulle. Le courant critique est le courant maximal qui peut traverser une jonction à tension nulle. L'expression ci-dessus du courant Josephson reste aussi valable à tension non nulle. Dans ce cas, le courant total sera  $I = I_S + I_N$  où  $I_N$  est le courant de quasiparticules.

À tension non nulle, la phase entre les deux supraconducteurs se met à osciller suivant l'équation

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \frac{2e}{\hbar} V \quad (2.2)$$

où  $e$  est la charge de l'électron et  $\hbar$  la constante de Planck réduite. Pour  $V = 2\Delta$ ,  $\Delta$  étant le gap du supraconducteur, la fréquence d'oscillation est d'environ 31 GHz pour l'aluminium ( $\Delta \approx 200 \mu\text{eV}$ ).

Ce qui importe pour observer l'effet Josephson est qu'il y ait un certain couplage entre les deux supraconducteurs. On peut remplacer la barrière tunnel par une simple constriction ou, dans notre cas, par une section de métal normal. Cependant, le comportement devient alors plus complexe que pour le cas tunnel. En particulier, la relation courant-phase n'est plus toujours sinusoïdale.

### 2.1.1 Modèle RCSJ

Les deux équations ci-dessus ne suffisent pas à décrire complètement les jonctions Josephson. En parallèle du canal Josephson, il faut ajouter une résistance pour modéliser la dissipation et souvent une capacité (Figure 2.1) d'où le nom de modèle RCSJ (resistively and capacitively shunted junction).

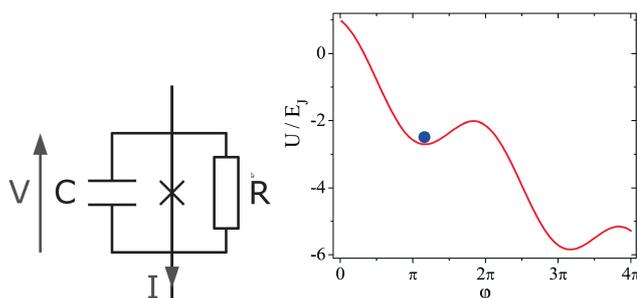


FIGURE 2.1 – Schéma électrique équivalent à une jonction Josephson réelle. A droite : modèle équivalent avec une particule piégée dans le puits de potentiel.

Si l'on nomme  $I$  le courant traversant la jonction et  $V$  la tension à ses bornes, les lois de Kirchhoff nous donnent

$$I = I_c \sin \Phi + \frac{V}{R} + C \frac{\partial V}{\partial t} \quad (2.3)$$

En utilisant la seconde équation Josephson (équation 2.2), on obtient facilement :

$$C \left( \frac{\hbar}{2e} \right)^2 \frac{\partial^2 \Phi}{\partial t^2} + \frac{1}{R} \left( \frac{\hbar}{2e} \right)^2 \frac{\partial \Phi}{\partial t} + E_J \sin \Phi = E_J \frac{I}{I_C} \quad (2.4)$$

où  $E_J = \frac{\hbar I_C}{2e}$  est l'énergie Josephson. Il est pratique de définir l'énergie de charge de la jonction  $E_C = \frac{e^2}{2C}$ . On reconnaît dans l'équation 2.4 l'équation d'évolution temporelle d'un oscillateur non linéaire. Ce système peut aussi être vu comme une particule de masse  $m = C \left( \frac{\hbar}{2e} \right)^2$  et de position  $\Phi$  évoluant dans un potentiel en tôle ondulée  $U(\Phi) = -E_J \left( \cos \Phi + \frac{I}{I_C} \Phi \right)$ . C'est un potentiel sinusoïdal dont la pente moyenne est déterminée par le courant d'injection  $I$  (figure 2.1). Si le système était classique, la particule s'échapperait lorsque  $I = I_C$ , c'est à dire lorsque la hauteur de la barrière s'annule. En réalité, la particule peut s'échapper un peu avant, soit grâce aux fluctuations thermiques, soit par effet tunnel. Le courant maximum mesuré que l'on appelle courant d'échappement est donc plus faible. On peut retrouver le courant critique d'une jonction Josephson en étudiant la statistique du courant d'échappement. À partir du moment où la particule se déplace, la phase varie et une tension apparaît. La jonction est alors dans l'état résistif ; la tension et le courant oscillent à la pulsation  $\frac{2e}{\hbar} V$ .

On peut définir comme pour les oscillateurs linéaires un facteur de qualité  $Q = \omega_p RC$  avec  $\omega_p = \frac{1}{\hbar} \sqrt{8E_J E_C}$  et différencier deux types de jonctions. Les jonctions sur-amorties pour lesquelles  $Q \ll 1$  et les jonctions sous-amorties lorsque  $Q \gg 1$  :

### Jonctions sous-amorties

Pour  $Q \gg 1$ , une fois que le courant critique a été franchi, la particule virtuelle dévale la pente à une vitesse relativement importante. La tension moyenne, qui est la grandeur que nous mesurons effectivement, est alors égale au gap  $\langle V \rangle = \Delta/e$ . Si ensuite on diminue le courant juste en dessous du courant critique, la dissipation n'est pas suffisante pour repiéger la particule. La jonction Josephson peut être vue comme une inductance fortement non linéaire, et ce phénomène se traduit par des oscillations de la répartition du courant entre la jonction Josephson et la capacité. La jonction est alors hystérétique. Elle revient dans l'état non dissipatif pour un courant de repiégeage  $I_r \approx 4I_c/\pi Q$  beaucoup plus faible que le courant critique.

### Jonctions sur-amorties

Lorsque  $Q \ll 1$ , l'expression 2.4 se simplifie en

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \frac{2eI_C R}{\hbar} \left( \frac{I}{I_C} - \sin \Phi \right) \quad (2.5)$$

Lorsque le courant critique est franchi, la répartition de courant se met, ici aussi, à osciller. On peut alors facilement calculer  $\Phi(t)$  et, en intégrant sur une période, on en déduit la tension moyenne  $\langle V \rangle = R_N \sqrt{I^2 - I_C^2}$  (figure 2.2). On constate qu'il n'y a pas d'hystérésis et que, juste au dessus du courant critique,  $V \ll \Delta$ .

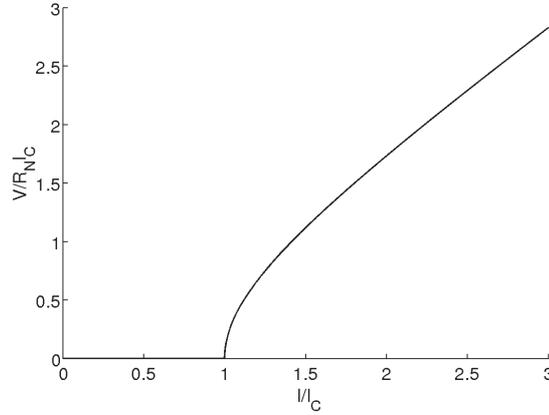


FIGURE 2.2 – Courbe idéale du modèle RSJ.

Ce cas offre un premier modèle pour la plupart des jonctions Josephson SNS où, comme dans notre cas, la capacité est négligeable. En effet si l'on utilise la formule du condensateur plan pour obtenir un ordre de grandeur de la capacité de nos échantillons, on obtient  $C \sim 10^{-19}$ F. En prenant  $R = 3 \Omega$  et  $I_C = 10 \mu\text{A}$ , on en déduit  $\omega_p \approx 2.10^{14}$  rad/s et un facteur de qualité  $Q \approx 10^{-4}$ . Si l'on compare aux expériences, le modèle RSJ peut fournir une description correcte des jonctions SNS à haute température. Mais il ne permet absolument pas de décrire les caractéristiques courant-tension à très basse température, en particulier pour des courants critiques importants.

Le modèle RCSJ peut être affiné en tenant compte du bruit dû aux fluctuations thermiques [43, 44, 45]. On observe alors des courbes plus arrondies pour les jonctions sur-amorties. Dans le cas des jonctions sous-amorties, cela se traduit par une diminution du courant critique et une augmentation du courant de repiégeage.

## 2.2 Introduction à l'effet de proximité

### 2.2.1 Réflexions d'Andreev

La richesse de la physique des jonctions Josephson hybrides vient du couplage entre les supraconducteurs, qui se fait par l'intermédiaire de réflexions d'Andreev, aux interfaces avec le métal normal. Ce phénomène, démontré en 1964 par Andreev [46] et Saint-James [47], décrit la réflexion d'un électron à l'interface entre un métal normal N et un supraconducteur S.

À cause du gap dans le supraconducteur, les électrons du métal normal compris dans cette bande d'énergie ne peuvent être transmis de façon standard. Par contre il peut y avoir une transmission à deux particules qui crée une paire de Cooper dans le supraconducteur. C'est ce mécanisme que l'on nomme réflexion d'Andreev. La description la plus courante est de considérer un électron dans N d'énergie  $E_F + \epsilon$  avec  $\epsilon < \Delta$  ( $\Delta$  étant le gap du supraconducteur et  $E_F$  l'énergie de Fermi), c'est-à-dire dans le gap du supraconducteur, de spin  $s$  et de vecteur d'onde  $k_F + \frac{\epsilon}{\hbar v_F}$  avec  $v_F$  la vitesse de Fermi. Lorsqu'il rencontre l'interface NS, il est réfléchi en trou d'énergie  $E_F - \epsilon$ , de vecteur d'onde  $-k_F + \frac{\epsilon}{\hbar v_F}$  et de spin  $-s$  en transmettant une paire de Cooper à l'énergie de Fermi dans le supraconducteur. Cette réflexion est cohérente et lors de la réflexion, la phase du trou est égale à celle de l'électron incident plus le déphasage  $\delta\phi = \Phi + \arccos(\epsilon/\Delta)$  où  $\Phi$  est la phase macroscopique du supraconducteur S.

Une description totalement équivalente est de considérer deux électrons d'énergie  $E_F + \epsilon$  et  $E_F - \epsilon$ , de vecteur d'onde  $k_F + \frac{\epsilon}{\hbar v_F}$  et  $k_F - \frac{\epsilon}{\hbar v_F}$  et de spin  $s$  et  $-s$  qui traversent l'interface pour donner naissance à une paire de Cooper dans S. Dans le métal normal, on peut alors parler de paires d'Andreev car les deux particules y sont présentes en même temps avec une condition de phase particulière. Il n'y a aucun potentiel attractif entre les deux électrons comme dans le supraconducteur, mais la cohérence des réflexions d'Andreev permet d'une certaine façon la "diffusion" des propriétés supraconductrices dans N : effet Meissner, apparition d'un gap dans la densité d'états, propagation d'un courant non dissipatif, augmentation de la conductance, etc... [48, 49, 50, 51, 52, 53].

Si le courant circule du supraconducteur vers le métal normal, on a alors les mêmes réflexions d'Andreev en renversant le sens du temps. On peut alors considérer un trou rétrodiffusé à l'interface en un électron en absorbant une paire de Cooper, ce qui est équivalent à considérer une paire de Cooper transmise dans le métal normal sous forme de deux électrons corrélés en phase.

Une description très pratique du transport à travers une jonction SN de transparence arbitraire à été faite par Blonder, Tinkham et Klapwijk (modèle BTK) [54]. Ce modèle permet de calculer la probabilité de réflexion spéculaire, de réflexion d'Andreev ou de transmission de quasiparticule en fonction de l'énergie de l'électron incident et de la tension entre N et S. On peut, avec ce modèle, déduire la caractéristique courant-tension de la barrière. Dans le modèle BTK, le métal normal est considéré comme balistique, il a donc une résistance nulle et les électrons ne heurtent la barrière qu'une fois.

### 2.2.2 Jonctions SNS

Lorsqu'un métal normal est placé entre deux supraconducteurs, les paires d'Andreev qui traversent le métal de façon cohérente absorbent des paires de Cooper à une interface pour les transmettre à l'autre. C'est de cette façon qu'il peut exister un couplage Josephson entre les deux supraconducteurs.

Dans un métal pur comme le cuivre que nous utilisons, le libre parcours moyen  $l_p$  est d'environ 30 nm, ce qui est bien inférieur aux autres longueurs caractéristiques dans nos échantillons. Les échantillons que nous étudions sont donc diffusifs, et une particule parcourt en un temps  $t$  une distance moyenne  $L = \sqrt{Dt}$  suivant l'axe de l'échantillon, avec  $D = v_F l_p / 3$  le coefficient de diffusion du métal normal. Lorsqu'une paire d'Andreev traverse l'échantillon, les deux électrons accumulent une différence de phase :

$$\Delta\phi = \frac{2e}{\hbar v_F} v_F t = \frac{2eL^2}{\hbar D} \quad (2.6)$$

Lorsque la différence de phase devient de l'ordre de  $\pi$ , on peut considérer que la diffusion des deux particules sur les impuretés est décorrélée. La cohérence de la paire est alors perdue et elle ne peut plus transporter de courant supraconducteur. On peut définir l'énergie de Thouless qui est la grandeur caractérisant les jonctions SNS longues :

$$E_{Th} = \frac{\hbar D}{L^2} \quad (2.7)$$

On peut voir cette quantité comme la bande d'énergie autour de l'énergie de Fermi dans laquelle les particules participent significativement au courant supraconducteur.

En termes de densité d'états, il apparaît un gap induit dans le métal normal de largeur  $3,12 E_{Th}$  à différence de phase nulle entre les deux condensats supraconducteurs. Les conditions aux limites dépendent de cette phase et la largeur du pseudogap diminue lorsque la différence de phase augmente pour s'annuler lorsque  $\Phi_1 - \Phi_2 = \frac{\pi}{2}$  [55, 21].

## 2.3 Théorie des supraconducteurs hybrides

### 2.3.1 Équations d'Usadel

La description ci-dessus permet de comprendre l'effet de proximité mais ne permet au mieux que d'extraire des ordres de grandeur. En se basant sur le formalisme de Keldysh des fonctions de Green hors équilibre [56], Usadel a dérivé des équations permettant de décrire correctement l'évolution de la supraconductivité dans les systèmes diffusifs [57]. Ce sont des équations dites quasiclassiques, c'est-à-dire pour lesquelles toutes les longueurs caractéristiques sont très supérieures à la longueur d'onde de Fermi et donc pour lesquelles les grandeurs peuvent être considérées comme locales. Dans le cas unidimensionnel en l'absence de champ magnétique, ces équations s'écrivent :

$$\frac{\hbar D}{2} \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} + \left[ iE - \frac{\hbar}{\tau_{in}} - \left( \frac{\hbar}{\tau_{sf}} + \frac{\hbar D}{2} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right)^2 \right) \cos \theta \right] \sin \theta + \Delta \cos \theta = 0 \quad (2.8)$$

$$\Delta = n_0 V_{eff} \int_0^{\hbar \omega_D} \tanh \left( \frac{E}{2k_B T} \right) \text{Im}(\sin^2 \theta) dE \quad (2.9)$$

avec  $\Phi$  la phase supraconductrice,  $\tau_{in}$  le temps moyen entre deux interactions inélastiques,  $\tau_{sf}$  le temps moyen entre deux renversements de spin d'un électron et  $D$  le coefficient de diffusion qui permet à travers les équations de diffusion de tenir compte des processus élastiques. L'angle d'appariement  $\theta(\epsilon, x)$  est un nombre complexe qui est la principale variable du problème [55]. Il vaut 0 dans un métal normal et  $\frac{\pi}{2}$  dans un supraconducteur massif. Le gap supraconducteur  $\Delta(x)$  est un nombre réel qui doit être calculé de façon autoconsistante.  $n_0$  est la densité d'état dans l'état normal et  $V_{eff}$  le potentiel responsable de la création des paires de Cooper. Celui-ci est nul dans le métal normal. On peut également utiliser l'équation de conservation du courant :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial x} \sin^2 \theta \right) = 0 \quad (2.10)$$

On peut alors calculer relativement facilement toutes les grandeurs qui nous intéressent, en particulier la densité d'états locale avec :

$$n(E, x) = n_0 \text{Re}(\cos \theta(\epsilon, x)) \quad (2.11)$$

De nombreux résultats pouvant être obtenus sont rassemblés dans l'article W. Belzig [58]. En particulier, les calculs de densité d'états peuvent être illustrés par le travail expérimental d'H. Le Sueur [21] dans ce type de jonction (figure 2.3).

Dans le cas des jonctions Josephson SNS (d'une longueur typique  $L < 2 \mu\text{m}$ ), le temps de relaxation des électrons  $\tau_{in} \simeq 2.10^{-10}\text{s}$  [59] est très supérieur au temps de diffusion à travers la partie normale  $L^2/D$  [26, 27]. Les électrons n'ont pas le temps de relaxer et leur comportement à chaque énergie peut donc être considéré comme indépendant. Le courant spectral est alors indépendant de la position et s'écrit :

$$j(\epsilon, \Phi) = \text{Im} \left( \frac{\partial \Phi}{\partial x} \sin^2 \theta(\epsilon, x) \right) \quad (2.12)$$

A l'équilibre la fonction de distribution est une simple fonction de Fermi  $f$  [60]. On peut exprimer le courant total

$$I_S(\Phi) = \frac{L}{2R_N} \int (1 - 2f(\epsilon)) j(\epsilon, \Phi) d\epsilon \quad (2.13)$$

où  $L$  désigne la longueur et  $R_N$  la résistance du métal normal N. Pour les jonctions SNS longues ( $E_{th} < \Delta$ ) à haute température ( $k_B T > E_{th}$ ), cette expression aboutit à une relation courant-phase sinusoïdale (équation 2.1). A basse

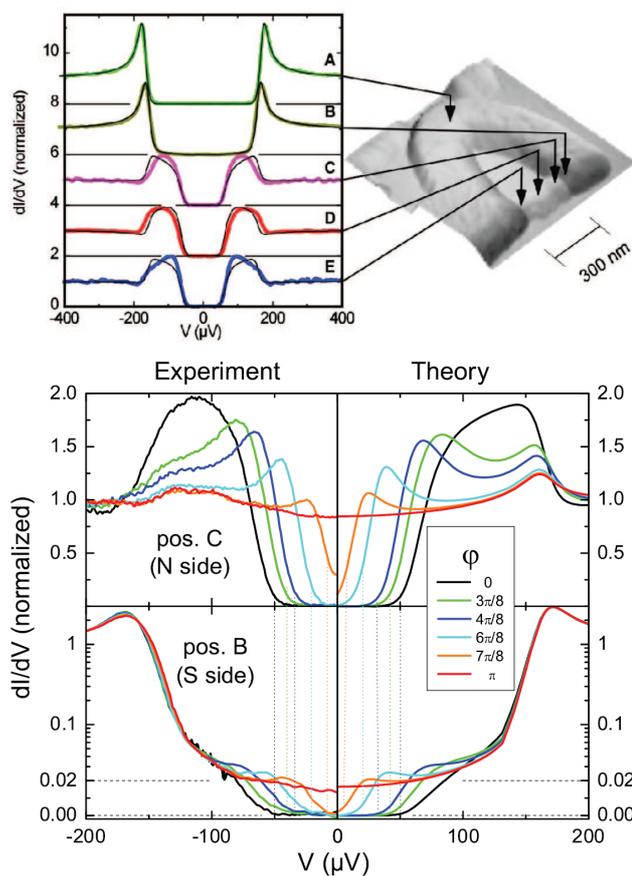


FIGURE 2.3 – Spectroscopies locales effectuées sur des anneaux d'aluminium avec un lien en argent de 300 nm à 35 mK. En bas, densités d'état expérimentales et théoriques mesurées de part et d'autre d'une interface SN lorsque la phase varie. Il faut noter que l'échelle de la densité d'états du supraconducteur est linéaire jusqu'à 0,02 et logarithmique au delà. Source : [21].

température, la relation courant-phase n'est plus sinusoïdale et le maximum de courant est atteint pour une différence de phase  $\Delta\Phi$  supérieure à  $\frac{\pi}{2}$  [61].

Ces équations ne décrivent que le comportement à l'équilibre, c'est-à-dire pour des courants inférieurs au courant critique. Pour des courants supérieurs, la phase varie avec le temps (équation 2.2) et il faudrait utiliser des équations d'Usadel dépendantes du temps. À cela s'ajoute des distributions électroniques hors équilibre ce qui fait que, dans le cas des jonctions SNS longues, il n'existe pas de théorie pour décrire complètement la dynamique de ces systèmes [16, 17, 18].

### 2.3.2 Courant critique en fonction de la température

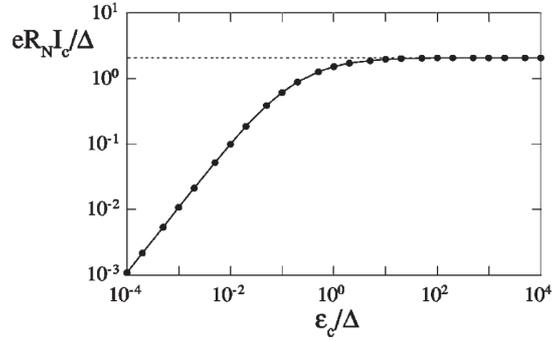


FIGURE 2.4 – Courant critique théorique d'une jonction SNS diffusives à température nulle.  $\epsilon_c$  désigne l'énergie de Thouless notée  $E_{Th}$  dans cette thèse. Source : [62]

Les équations 2.12 et 2.13 permettent de calculer numériquement le courant critique des jonctions SNS diffusives présentées par P. Dubos et al. dans [62]. Le courant critique à température nulle en fonction de l'énergie de Thouless est présenté figure 2.4. On distingue très clairement deux régimes : pour  $E_{th} \gg \Delta$  (jonctions courtes où  $L \ll \xi_S$  avec  $\xi_S$  la longueur de cohérence du supraconducteur), tous les électrons du métal normal contenus dans le gap participent au courant supraconducteur. Le produit  $R_N I_c$  est alors indépendant de la jonction et, à basse température, on peut l'approximer par

$$eR_N I_c = 2.08\Delta \quad (2.14)$$

À contrario, si  $E_{th} \ll \Delta$  (jonctions longues où  $L \gg \xi_S$ ), seuls les électrons les plus proches de l'énergie de Fermi peuvent transporter un courant supraconducteur et, à température nulle, on a environ :

$$eR_N I_{c0} = 10.82E_{Th} \quad (2.15)$$

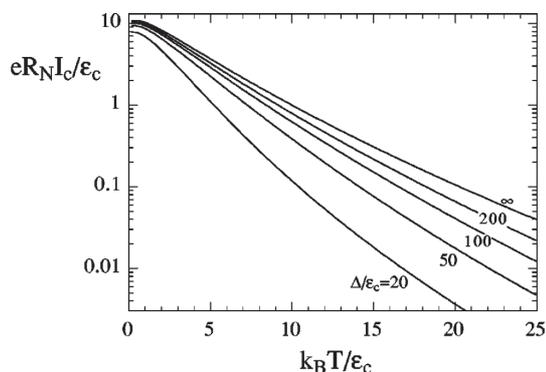


FIGURE 2.5 – Courant critique théorique d’une jonction SNS longue en fonction de la température.  $\epsilon_c$  désigne l’énergie de Thouless notée  $E_{Th}$  dans cette thèse. Source : [62]

Dans le cas des jonctions longues qui nous intéressent, il est important d’étudier la dépendance en température. On peut distinguer le cas où  $k_B T < E_{Th}$  pour lequel le courant critique est environ égal au courant critique à température nulle, et le cas où  $k_B T > E_{Th}$  pour lequel le courant critique décroît exponentiellement avec la température (figure 2.5).

Ce modèle offre un accord remarquable avec l’expérience [62, 13, 14]. Si le courant critique mesuré est trop faible, ce qui est le cas dès que les interfaces entre le supraconducteur et le métal normal ne sont pas parfaites, il est possible d’introduire un coefficient ad hoc correspondant au rapport entre le courant critique mesuré et sa valeur théorique.

## 2.4 Phénoménologie des jonctions SNS

Au cours de cette thèse, j’ai fabriqué des SQUID (superconducting quantum interference device) composés de jonctions SNS. Ces échantillons ont été mesurés dans un réfrigérateur à dilution avec l’aide de Philippe Gandit. Ces SQUID sont composés de deux jonctions de cuivre de 200 nm de largeur, 30 nm d’épaisseur et 1200 nm de long, ce qui donne une énergie de Thouless d’environ 9  $\mu$ eV. Le reste du SQUID est composé de motifs d’aluminium de 200 nm d’épaisseur afin de conserver une supraconductivité robuste, même aux endroits où l’aluminium recouvre le cuivre. Toutes les mesures présentées dans cette partie sont réalisées avec un flux magnétique nul à travers le SQUID. Le système est donc identique aux jonctions SNS simples mesurées par de nombreux groupes [51, 62, 63, 14, 15].

Si l’on observe les courbes courant-tension, présentées figure 2.6, on remarque trois régimes distincts :

- A très basse température ( $T < 140$  mK), les courbes sont hystérétiques. Le courant critique diminue lorsque la température augmente comme dé-

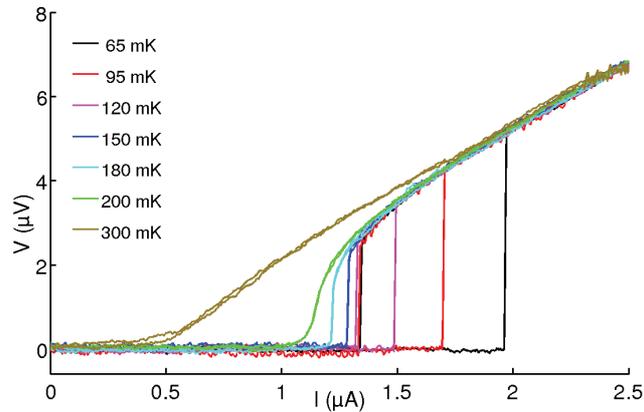


FIGURE 2.6 – Exemples de courbes courant-tension typiques pour différentes températures de la dilution. Le courant critique à basse température fluctue de façon aléatoire autour d'une valeur moyenne. En effet, lorsque la jonction est hystérétique, le basculement dans l'état normal dépend, comme pour les jonctions SIS sous-amorties, des fluctuations quantiques ou thermiques et du bruit électromagnétique environnant.

crit dans le paragraphe précédent. Cependant le courant repiégeage reste quasiment inchangé.

- Lorsque le courant critique devient égal au courant de repiégeage, les courbes deviennent non hystérétiques et présentent une transition abrupte entre l'état supraconducteur et l'état résistif, comme pour la courbe à 150 mK.
- A plus haute température ( $T > 180$  mK) pour laquelle on passe continûment de l'état supraconducteur à l'état résistif. On peut ajuster ces courbes grâce au modèle RSJ en tenant compte de la température.

Cette dépendance du courant critique et du courant de repiégeage en fonction de la température a été mesurée sur une large gamme de température par de nombreux groupes [51, 62, 13]. Les résultats de P. Dubos et al. et L. Angers et al., présentés figure 2.7, sont très ressemblants et montrent le même phénomène. Le courant de repiégeage sature à une certaine température alors que le courant critique continue à suivre la même loi. Expliquer cette saturation du courant de repiégeage revient à expliquer l'hystérésis dans les jonction SNS et ce sujet est encore débattu.

La question est de savoir si l'hystérésis est plutôt un phénomène dynamique comme dans le cas des jonctions SIS sous-amorties ou un phénomène dû à la dissipation électronique dans la partie normale qui diminue le courant critique. Dans le premier cas, le temps  $RC$  dans le modèle RCSJ serait remplacé par le temps de diffusion des paires  $\hbar/E_{Th}$  [13] et l'on observerait des effets comparables à ceux décrits par le modèle RCSJ pour les jonctions sous-amorties

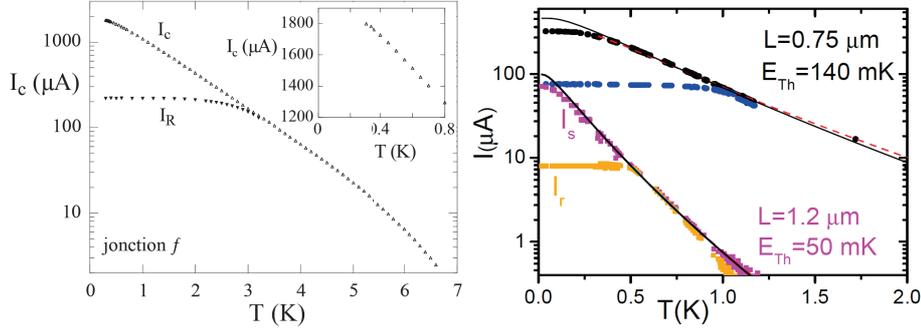


FIGURE 2.7 – *Dépendance du courant critique et du courant de repiégeage en fonction de la température mesurée par P. Dubos et al. à gauche [62] et L. Angers et al. [13] à droite.*

[64, 65, 45]. On en déduit alors un courant de repiégeage  $I_r \approx \frac{4}{\pi} \sqrt{\frac{E_{Th}}{2eR}} \sqrt{I_c}$  ce qui ne correspond pas à la forme des courbes ci-dessus.

Cette explication est similaire à celle de Y. Song dans son étude de l'hystérésis dans les micro-ponts supraconducteurs [66]. Il introduit le temps  $\tau_p \sim h/\Delta$  correspondant au temps de relaxation des paires de Cooper. Ce temps expliquerait l'hystérésis de ces jonctions lorsqu'il devient inférieur au temps Josephson  $\tau_J \sim h/2eV$ . Cependant, si ce temps permet d'interpréter relativement bien les courbes courant-tension de cet article, il ne suffit pas à expliquer la dépendance en température. Pour ces deux expériences, les temps invoqués sont construits a posteriori et ne permettent d'expliquer le comportement des jonctions Josephson considérées que de façon incomplète.

On remarque aussi que juste après avoir atteint le courant critique, la tension  $V$  reste bien inférieure au gap  $\Delta$ . Le comportement est donc très différent de celui des jonctions SIS sous-amorties pour lesquelles  $V = \Delta$ . Même avec de nombreuses réflexions d'Andreev multiples, la probabilité pour un électron d'atteindre une énergie supérieure au gap et de s'échapper du métal normal sans subir de choc inélastique est faible : dans nos échantillons, le temps entre deux chocs inélastiques est de l'ordre de  $\tau_{in} = 2.10^{-10}$ s [59] et le temps de diffusion  $L^2/D$  est compris entre  $5.10^{-11}$ s et  $10^{-11}$ s. Pour les tensions les plus importantes mesurées,  $V \simeq 50$   $\mu$ eV, un électron à l'énergie de Fermi doit effectuer au moins 5 réflexions d'Andreev pour s'échapper dans le supraconducteur. Il doit donc parcourir une distance  $5L$  dans un métal diffusif ce qui lui prend un temps  $(5L)^2/D > \tau_{in}$ . La quasi-totalité de la puissance  $IV$  est donc transformée en chaleur dans le métal normal par les collisions inélastiques. Il s'y établit donc un quasi-équilibre thermique et l'on peut y définir une température électronique effective  $T_e$ .

La relaxation de l'énergie se fait d'une part par l'interaction électron-phonon dans le métal normal et d'autre part par conduction dans le supraconducteur [67, 14]. Comme nous l'avons vu, le courant critique dépend fortement de la

température et de façon générale de la distribution électronique dans le métal normal [62, 16, 68]. La puissance évacuée par le couplage électron-phonon,  $P_{e-ph} \propto T_e^5 - T_{ph}^5$  pour un matériau massif, diminue avec la température. Il en va de même pour la conductivité thermique du supraconducteur  $\lambda_S$  qui dépend du nombre de quasi-particules, dont l'énergie est supérieure au gap. Pour  $k_B T_e \ll \Delta$  on a donc :  $\lambda_S \propto \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T_e}\right)$ . À très basse température, lorsque le courant critique est franchi, la température électronique dans le métal normal s'élève jusqu'à ce que la puissance  $IV$  puisse être évacuée grâce au couplage électron-phonon et par conduction à travers le supraconducteur. La température électronique augmente donc avec le courant de polarisation. Le courant de repiégeage serait alors le courant critique attendu à la température  $T_e(I_T)$ , qui est différente de celle du cryostat pour les températures les plus basses. Ce phénomène explique également la saturation du courant de repiégeage [14].

Les mesures haute fréquence récentes de Chiodi et al. [15] tendent à confirmer cette hypothèse. Leur expérience consiste à mesurer une jonction SNS polarisée avec un courant  $I(t) = I_{DC} + I_{AC} \sin(\omega t)$ . Dans le domaine où l'échantillon est hystérétique, pour le courant de repiégeage, on observe deux domaines. Lorsque les variations de  $I_{AC}$  sont suffisamment lentes, le comportement est le même qu'en régime continu : l'échantillon transite dans l'état normal lorsque  $I(t) > I_c$  et redevient supraconducteur lorsque  $I(t) < I_T$ . Il existe alors un régime où l'échantillon oscille entre l'état supraconducteur et l'état normal avec le courant. Lorsque la fréquence augmente, ce régime disparaît et lorsque le courant critique est franchi, l'échantillon reste dans l'état normal même si le courant devient inférieur au courant de repiégeage pendant une fraction de période. La transition a lieu lorsque la fréquence  $\omega$  devient supérieure temps d'interaction électron-phonon  $\tau_{e-ph}^{-1} = AT^3$ , où  $A$  est une constante. Il semble donc que la dépendance du courant de repiégeage avec la température soit bien liée à la dissipation thermique dans l'échantillon.

La compréhension du courant de repiégeage est donc plus difficile que pour le courant critique car elle met en oeuvre des effets dynamiques et des phénomènes hors équilibre pour lesquels la dissipation de l'énergie joue un rôle important. Lorsque l'on peut faire l'hypothèse du quasi-équilibre thermique (pour  $(\Delta/V)^2 L^2/D \gg \tau_{in}$ ), le phénomène semble compréhensible, au moins qualitativement. Cependant, pour des jonctions légèrement plus courtes que les nôtres, cette approximation n'est plus vraie et il n'existe pas de modèle permettant de les décrire complètement. La mesure de la fonction de distribution hors équilibre dans de telles jonctions permettrait alors de beaucoup mieux comprendre le phénomène.



## Chapitre 3

# Nanofabrication

Dans ce chapitre seront présentées les méthodes de fabrication des échantillons et des pointes AFM/STM. Bien que certaines procédures soient devenues standard au cours des dernières décennies, ces étapes doivent être réalisées avec le plus grand soin afin d'obtenir des échantillons utilisables pour le transport et présentant des états de surface suffisamment propres pour la microscopie en champ proche. Pour les pointes, la difficulté est d'associer un faible rayon de courbure et une certaine solidité pour l'AFM à un bon état de surface pour le STM.

Toute la nanofabrication effectuée pendant cette thèse a été réalisée à la plateforme Nanofab de l'Institut Néel.

### 3.1 Échantillons

La méthode utilisée pour réaliser les échantillons est utilisée par de nombreux groupes en physique mésoscopique. Elle consiste à étaler des bicouches de résine, la résine inférieure étant beaucoup plus sensible aux électrons que la résine supérieure. On dessine ensuite le motif de l'échantillon par lithographie électronique. Lors du développement, la résine inférieure disparaît autour des zones insolées. On obtient alors un masque de résine suspendu à une distance de l'ordre du micron au dessus du substrat. Les dépôts métalliques sont ensuite réalisés suivants différents angles. On peut éventuellement effectuer des étapes d'oxydation intermédiaires. Cette méthode est assez simple, ne nécessite qu'une étape de lithographie et permet, avec quelques astuces, de réaliser des échantillons relativement complexes.

#### 3.1.1 Lithographie électronique

Nos échantillons sont réalisés sur des wafers de silicium dopés recouverts d'une couche de 300 nm ou 500 nm de  $\text{SiO}_2$ . La réalisation des masques comprend :

- Un nettoyage avec un plasma d'oxygène pendant quelques minutes. La machine utilisée est une RIE (reactive ion etching) Plassys permettant d'effectuer des gravures avec les gaz  $O_2$ ,  $SF_6$  et  $CHF_3$  (programme RES,  $P_{O_2} = 0.2$  mbar,  $P=20$  W).
- Un étalement de PMMA-MA 33% (AR-P 617-09 [69]). Pour une vitesse de 2000 tr/min pendant 60 secondes, on obtient une épaisseur d'environ 800 nm d'épaisseur. On effectue ensuite un recuit à  $180^\circ C$  pendant 5 minutes.
- Un étalement de PMMA 4% (AR-P 679-04 [70]). Une vitesse de 5000 tr/min pendant 60 secondes donne 200 nm d'épaisseur. On effectue un recuit à  $160^\circ C$  pendant 30 minutes.
- Une lithographie électronique réalisée sur un microscope électronique Léo 1530 accélérant les électrons à 20 kV et piloté par un système RAITH Elphy. La dose utilisée doit être ajustée en fonction des motifs. Dans notre cas, les motifs sont relativement simples (Figure 3.2c, Annexe C) et une dose de  $270 \mu C.cm^{-2}$  fonctionne à chaque insolation.
- Le développement est ensuite effectué dans un mélange de methyl-isobutylketone (MIBK) et d'isopropanol (IPA) (1 :3) pendant 35 secondes.
- Un second plasma oxygène permet une meilleure adhésion au substrat, mais surtout évite que des restes de résine se dissolvent dans les métaux que l'on évapore. (programme descum3,  $P_{O_2} = 0.3$  mbar,  $P=10$  W, temps=30s).

### 3.1.2 Dépôts métalliques



FIGURE 3.1 – *Bâti d'évaporation ultra vide avec à gauche le sas et à droite la chambre de dépôt ultra vide*

Au cours de cette thèse, j'ai utilisé trois bâtis d'évaporation pour réaliser mes échantillons. La quasi totalité des échantillons présentés dans cette thèse ont été réalisés dans le bâti ultra vide (UHV) qui est représenté Figure 3.1.

Ce bâti est composé d'un sas dans lequel on peut oxyder l'échantillon et le nettoyer avec un plasma d'argon. Cet outil est utile dans certains cas pour nettoyer le substrat ou enlever une couche d'oxyde ou un masque protecteur pour des échantillons fabriqués en plusieurs étapes. La chambre à ultra vide possède une pression inférieure à  $10^{-9}$  mbar. Elle est équipée d'un sublimateur de titane refroidi à l'azote qui permet d'atteindre un vide de  $3.10^{-10}$  mbar. L'évaporateur en lui même est constitué d'un canon à électron et de quatre creusets contenant habituellement du silicium, du cuivre, de l'aluminium et du niobium. Si l'on utilise le sublimateur de titane, la pression pendant l'évaporation ne dépasse pas  $4.10^{-9}$  mbar.

Le porte substrat permet d'incliner l'échantillon à une fraction de degré près. Avec un masque de résine suspendu, chaque dépôt sur l'échantillon est décalé de  $h \tan \alpha$  où  $h$  est l'épaisseur de résine et  $\alpha$  l'angle du dépôt. Il faut ajouter à cela que, pour des angles importants ( $40^\circ$  ou plus), l'épaisseur de la résine supérieure fait une ombre qui affine et parfois efface les motifs les plus fins. On peut aussi jouer sur le fait que si un dépôt touche le mur de résine, le métal évaporé n'atteint pas le substrat. Si au contraire c'est un problème, il suffit d'insoler la bicouche de résine avec un tiers de la dose nominale pour éviter la partie inférieure aux endroits désirés sans percer la couche supérieure de résine.

Il existe aussi des masqueurs dédiés uniquement à la lithographie électronique pour lesquels la tension d'accélération des électrons atteint 100 kV. Les électrons traversent alors la résine en ligne droite, il devient alors tout à fait possible de décider quelles zones seront évidées et quelles zones ne le seront pas du tout [71]. Quelques exemples d'échantillons réalisés pendant cette thèse sont présentés figure 3.2.

### 3.1.3 Lift-off

Après le dépôt, nous dissolvons la résine dans du N-méthyl-2-pyrrolidone (NMP) chauffé à  $80^\circ\text{C}$  environ 30 minutes. Pour une raison inconnue, les murs de résine qui ont subi un léger plasma oxygène et une exposition prolongée à l'atmosphère sont plus solides que le reste et ne se dissolvent pas (Figure 3.3). Afin de les décoller, nous appliquons des ultra sons à faible puissance pendant environ 30 secondes. Si la puissance est suffisante, on peut voir la couche de métal qui flotte dans le solvant se désagréger lentement (en plusieurs secondes). On transfère alors l'échantillon dans un bain d'isopropanol (IPA) en veillant à ce que le NMP n'ait pas le temps de sécher. Après quelques minutes, on peut sécher l'échantillon à l'azote et effectuer un dernier plasma oxygène d'une minute pour détruire les résidus de résine. Ce point est relativement important car si l'on fait du FM-AFM sur du PMMA, l'excitation sature avant que la fréquence de résonance ne varie. En d'autres termes, pour une fine couche de polymère, l'interaction avec la pointe n'est quasiment pas attractive ni répulsive, mais uniquement visqueuse. Ce phénomène a lieu à température ambiante comme à basse température. S'il

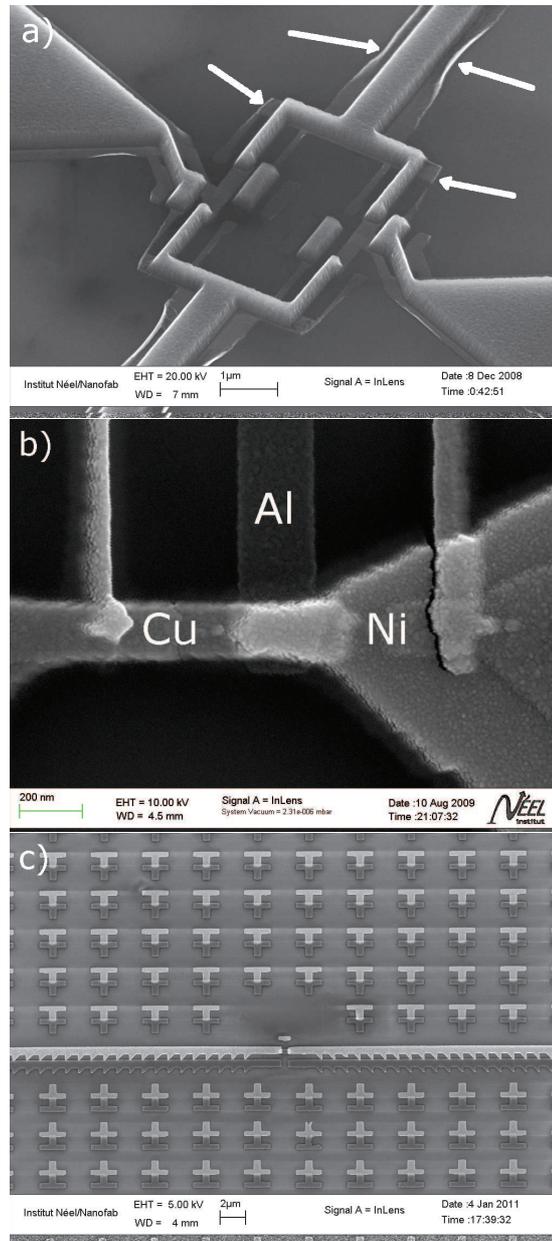


FIGURE 3.2 – a) SQUID réalisé par deux dépôts de cuivre sous angle et d'un dépôt d'aluminium (200 nm) à angle nul. On reconnaît les endroits où le cuivre a heurté les murs de résine (flèches).

b) Jonction cuivre-nickel avec une sonde tunnel en aluminium sous la jonction. Les ombres de cuivre et de nickel sont coupées quelques microns au dessus.

c) Jonction aluminium-cuivre-aluminium utilisée pour nos expériences de champ proche. Les motifs qui l'entourent permettent de la localiser à froid.

y a des petits résidus de résine, la pointe imagera donc le silicium à travers la résine, ce qui salira la pointe.

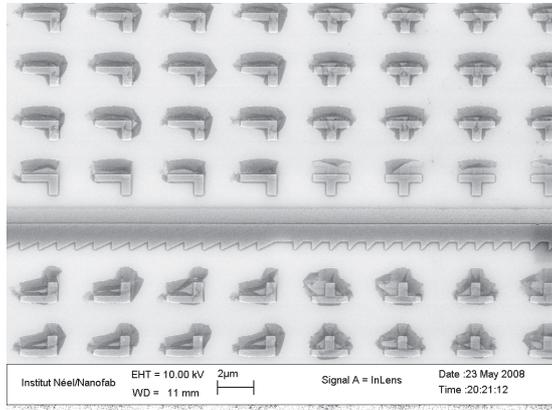


FIGURE 3.3 – Les parties sombres sont des murs de résine qui ont d’autant plus tendance à rester que le mur est court. Ils ne se déposent de façon définitive qu’au séchage de l’échantillon.

### 3.1.4 Tricouches PES/Si/PMMA

Utiliser du niobium comme supraconducteur est beaucoup plus difficile que l’aluminium. Alors que la supraconductivité de l’aluminium a plutôt tendance à s’améliorer pour certains types d’impuretés [72], la supraconductivité du niobium est très vite altérée par la moindre pollution. C’est aussi un matériau réfractaire dont la température d’ébullition est d’environ 5000 K. Si l’on utilise la méthode de bicouche avec du PMMA décrite précédemment, le PMMA dégage pendant l’évaporation et détruit la supraconductivité du niobium. Nous avons donc essayé d’utiliser le process développé à Grenoble par Pascal Dubos et al. [73] et qui est maintenant utilisé dans plusieurs laboratoires [74, 75]. Il consiste à utiliser un polymère, le polyéther sulfone (PES), dont la température de transition vitreuse ( $\sim 240^\circ\text{C}$ ) est bien supérieure à celle du PMMA ( $\sim 120^\circ\text{C}$ ) ce qui réduit le dégazage. Le procédé peut se résumer de la façon suivante :

- Étalement de PES 6020P sous atmosphère sèche puis recuit avec une rampe de  $20^\circ\text{C}$  à  $275^\circ\text{C}$  puis un maintien à  $275^\circ\text{C}$  pendant 1 minute.
- Dépôt de 40 nm de silicium.
- Étalement de PMMA.
- Insolation électronique.
- Développement du PMMA.
- Gravure du masque de silicium dans la RIE avec un plasma  $SF_6$  (programme NBT,  $P_{SF_6} = 0.2$  mbar,  $P=20$  W, temps=30s).
- Développement du PES soit grâce à du DMSO puis un plasma oxygène, soit seulement avec un plasma oxygène. Pendant cette étape, le PMMA

disparaît.

- Dépôt métallique sous angle.
- Lift-off dans du NMP à 100°C pendant 5 minutes puis des ultra-sons pour tout décoller.

Après développement, il reste des fils connectant le masque de silicium au substrat (figure 3.4). Lors des dépôts sous angle, ces fils coupent tous les motifs. Nous n'avons pas réussi à en déterminer l'origine ni à résoudre le problème. Ce polymère étant très sensible à l'humidité [76, 73], il faudrait peut être mieux maîtriser le processus de fabrication et d'étalement du PES ou mieux filtrer la résine au moment de l'étalement.

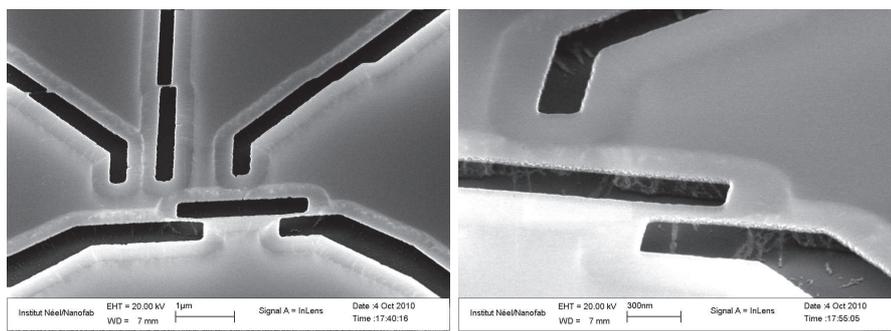


FIGURE 3.4 – *Tricouche après développement observé au MEB sous angle. On peut distinguer les fils de résine sous la couche de résine qui empêchent de faire des dépôts métalliques corrects.*

## 3.2 Pointes AFM-STM

Pour du STM « classique », on utilise couramment des pointes de platine-iridium coupées avec une pince. Le platine permet d'avoir une pointe inoxydable et 10% d'iridium permettent d'augmenter grandement la dureté de l'alliage. Pour avoir un rayon de courbure plus reproductible et sonder des échantillons qui ne sont pas toujours atomiquement plans, on utilise des pointes gravées par électrochimie. La réalisation de pointes en tungstène gravées est très facile, la gravure de pointes en platine-iridium est également possible [77].

Pour l'AFM, il est important d'avoir un bon rayon de courbure qui détermine directement la résolution que l'on peut obtenir. En général, les plus petites structures observable sont 5 à 10 fois plus petites que le rayon de courbure. Il faut aussi que la pointe soit relativement solide et que, lorsqu'elle s'abîme, le rayon de courbure ne se dégrade pas trop vite. Pour simplifier, mieux vaut une pointe qui se casse qu'une pointe qui se tord.

Dans notre cas nous voulons effectuer des images AFM pour localiser l'échantillon mais surtout pour savoir à quel endroit nous effectuons les spectroscopies. Une résolution de 100 nm paraît être un minimum pour nos expériences. A cela

il faudrait associer un bon état de surface pour obtenir des spectroscopies tunnel “propres”. Obtenir des pointes associant ces qualités de façon reproductible a été beaucoup plus difficile que ce que nous espérions.

### 3.2.1 Pointes métalliques

#### Pointes en tungstène

La gravure de pointe en tungstène est un procédé assez classique qui permet de réaliser rapidement et de façon reproductible des pointes avec un rayon de courbure inférieur à 50 nm. Dans notre cas nous utilisons la technique du double anneau [78] (Figure 3.5).

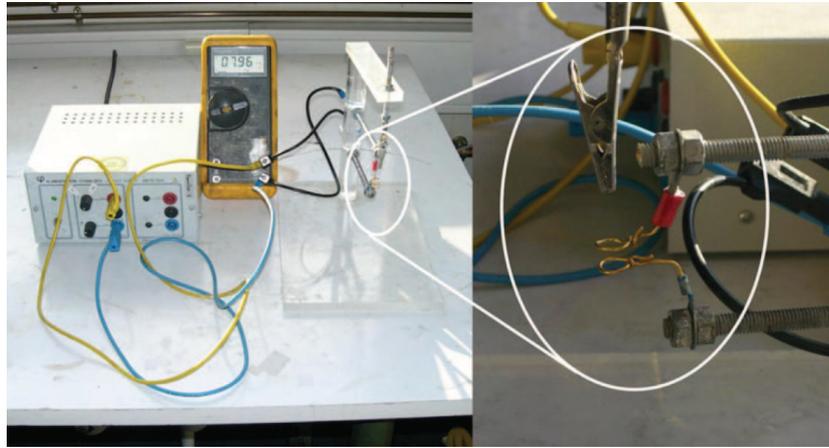
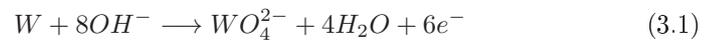


FIGURE 3.5 – Dispositif de double anneau permettant la fabrication de nos pointes en tungstène.

Une goutte de solution de KOH (4 mol/L + 20% IPA) est maintenue par capillarité dans chaque anneau. Les anneaux sont recouverts d’or afin d’assurer un bon contact électrique avec le liquide et pour ne pas subir d’oxydation. Un fil de tungstène de 100  $\mu\text{m}$  de diamètre traverse les deux anneaux. On applique alors une tension (7 V dans notre cas) afin de réaliser une oxydation sur l’électrode supérieure suivant la réaction 3.1.



À l’anode, on peut observer un dégagement de dihydrogène qui nous permet d’estimer la vitesse de la réaction. La réaction est favorisée au milieu du ménisque supérieur [79] grâce au mécanisme suivant : en haut du ménisque la concentration en ions  $OH^-$  est très faible, la réaction commence donc un peu plus bas. À partir de l’endroit où la réaction a lieu, la solution d’ions

$WO_4^{2-}$  s'écoule le long du fil et diminue la vitesse de réaction sur toute la partie inférieure. A la rupture du fil, la moitié inférieure tombe et coupe le contact électrique. On a donc une réaction très localisée qui dépend du mouillage de la solution sur la pointe. Pour cette raison, il est conseillé de nettoyer le fil avant de tailler la pointe. La petite quantité d'alcool ajoutée à la solution a aussi pour rôle d'améliorer le mouillage le long du fil.

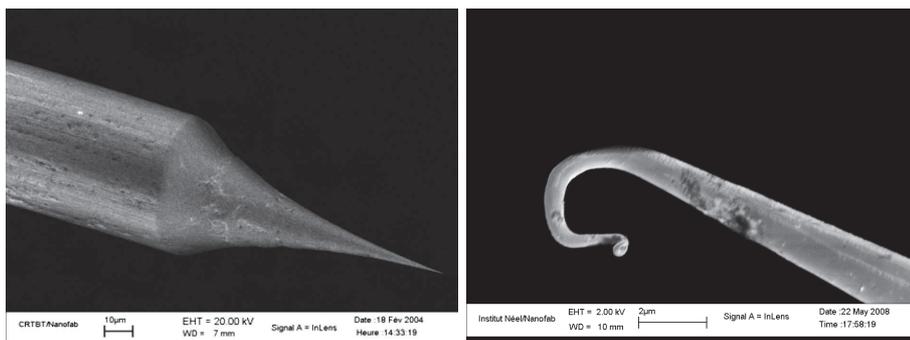


FIGURE 3.6 – *Pointe en tungstène typique réalisée avec notre système. A droite, extrémité d'une pointe après une expérience combinant AFM et STM. Le rayon de courbure avant l'expérience était d'environ 100 nm.*

On peut voir le profil typique d'une pointe STM en tungstène Figure 3.6. Ces pointes ont été utilisées avec succès pour effectuer des expériences d'AFM/STM [20, 21]. C'est aussi avec ce type de pointe que nous avons réalisé nos premières spectroscopies sur un échantillon polarisé en courant. Elles présentent cependant le désavantage de "s'enrouler" lorsqu'elles s'abîment contre la surface, ce qui augmente très rapidement le rayon de courbure dans une direction et empêche de travailler avec une résolution de l'ordre de 100 nm. Malgré la forte raideur du tungstène, elle sont donc assez fragiles.

### Pointes EFM

Nous avons également utilisé des pointes commerciales d'AFM recouvertes de 30 nm de platine-iridium [80]. A l'origine ces pointes sont vendues pour des expériences d'EFM ou de SGM (scanning gate microscopy). Elles présentent l'avantage de faire des images AFM avec une très bonne résolution (moins de 100 nm) tout au long de l'expérience. Si la pointe s'abîme, elle se casse de façon nette, ce qui permet de conserver une assez bonne résolution en AFM. De plus, même dans ce cas le dépôt reste très solidaire de la pointe. On peut donc réaliser des spectroscopies tunnel avec une pointe légèrement abîmée.

### 3.2.2 Pointes en niobium.

Nous avons aussi essayé d'utiliser des pointes supraconductrices pour pouvoir sonder les fonctions de distribution des électrons comme décrit au chapitre 1.2.3.

Nous avons essayé différentes méthodes dont aucune n'a véritablement permis de combiner AFM et STM.

### Pointes en niobium massif

Pour travailler avec une densité d'états de la pointe la plus proche possible de celle du matériau massif, nous avons travaillé avec des fils de niobium de 125  $\mu\text{m}$  de diamètre. Nous avons repris la méthode utilisée par L. Crétinon [81] qui consiste à plonger le fil dans une solution de HF(40%)/HNO<sub>3</sub>(65%) (les pourcentages sont les concentrations des solutions mères de chaque acide). Comme pour l'attaque électrochimique du tungstène, la réaction est plus rapide au niveau du ménisque. Si l'on mélange des volumes identiques des deux acides, la réaction est relativement violente et le fil se coupe en quelques secondes. Pour obtenir des pointes plus fines, j'ai donc choisi un mélange d'un volume d'acide fluorhydrique dilué dans dix volumes d'acide nitrique. On remarque que si l'acide nitrique est majoritaire, l'attaque est plus rapide dans les joints de grains et on obtient de très nombreuses pointes à l'extrémité (figure 3.7). A l'inverse, avec un excès d'acide fluorhydrique, on obtient dans 80% des cas des pointes coniques jusqu'à l'extrémité. Elles permettent donc de faire des images AFM plus facilement que les pointes en tungstène car elles sont plus solides et ne peuvent pas s'enrouler lorsqu'elles s'abîment. Nous avons pu localiser des échantillons uniques à plusieurs reprises avec ce type de pointe. D'autre part elles présentent une densité d'états BCS proche de celle du niobium massif [82] et de façon très reproductible. Par contre, nous nous sommes rendus compte en essayant de combiner AFM et STM que la pointe est recouverte d'une très épaisse couche d'oxyde. Nous sommes obligés d'écraser la pointe d'une dizaine de microns sur la surface avant de pouvoir observer un courant tunnel.

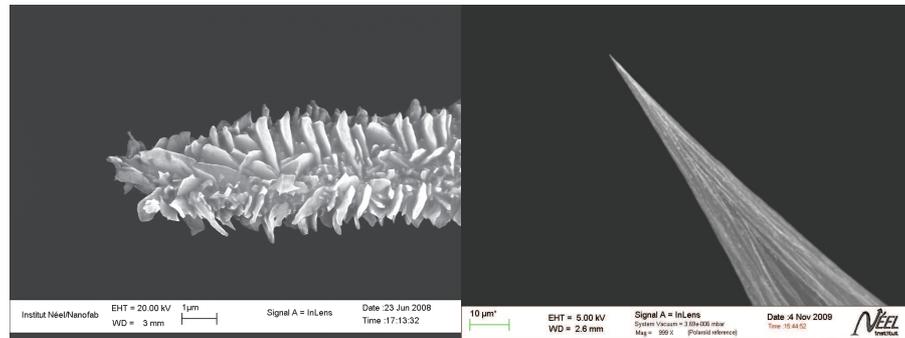


FIGURE 3.7 – Pointes taillées dans un mélange de HF(40%)/HNO<sub>3</sub>(65%) (1 :5) à gauche et (10 :1) à droite.

Il y a plusieurs solutions possibles pour enlever l'oxyde. La première est une solution chimique de (COOH)<sub>2</sub>/HNO<sub>3</sub>/CH<sub>3</sub>CHOHCOOH/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O/CH<sub>3</sub>COOH (3 :3 :10 :5 :35 :60) qui, d'après la littérature, permettrait de dissoudre l'oxyde

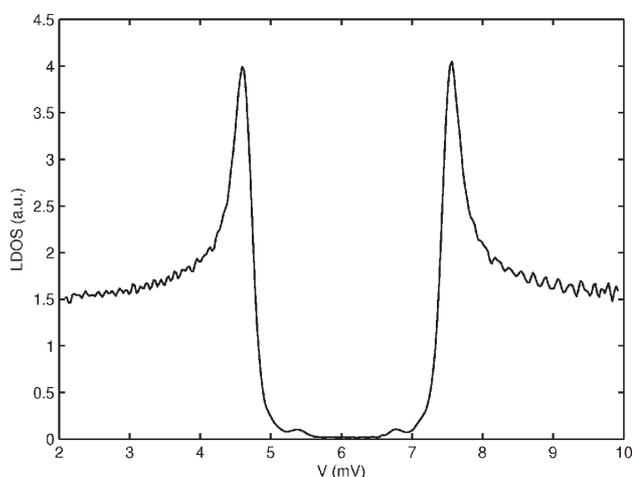


FIGURE 3.8 – Conductance différentielle obtenue en STM avec une pointe de niobium attaquée chimiquement sur une couche d'or à 300 mK. Le décalage en tension est dû à des tensions thermoélectriques le long de la chaîne de mesure.

[83]. Il serait aussi possible d'attaquer mécaniquement la pointe par IBE en ajustant l'angle pour conserver la forme [84, 85]. On peut également essayer de vaporiser l'oxyde sous vide en chauffant les pointes aux alentours de 2000 °C ou par émission de champ en appliquant quelques dizaines de kilovolts entre la pointe et une surface qui lui fait face de la même manière qu'en AP-FIM (atome probe field ion microscopy). L'émission de champ nécessite un vide poussé pour ne pas créer d'arc électrique. Nous n'avons pas eu le temps de tester ces diverses méthodes.

### Pointes AFM + pulvérisation

Afin de tirer parti de la résolution et de la fiabilité des pointes commerciales, nous avons évaporé du niobium par pulvérisation avec l'aide d'Emmanuel André et Jean-Luc Garden sur des pointes d'AFM en silicium [32]. Ce type de dépôt est peu directif. En mettant la pointe face au magnétron on obtient donc un dépôt homogène sur toutes les faces de la pointe. Ce dépôt est bien supraconducteur à basse température, malheureusement, le niobium n'est pas du tout amorphe et se casse en petit bâtonnets pendant les images AFM. Ce type de structure est typique des pulvérisations réalisées à température ambiante [86]. Pour résoudre ce problème, il faudrait chauffer la pointe à une température proche de la température de fusion du niobium (2477 °C) ce qui est impossible avec du silicium. Nous obtenons donc de très belles images AFM, mais des contacts tunnel très rarement stables à cause des miettes de niobium qui restent au bout de la pointe. De plus, la densité d'états observée sur une couche d'or varie d'une pointe à l'autre. C'est vraisemblablement dû à des polluants qui restent adsorbés

sur la surface de la pointe. Lors du dépôt, ils se mélangent au niobium et altèrent notablement la densité d'état supraconductrice.

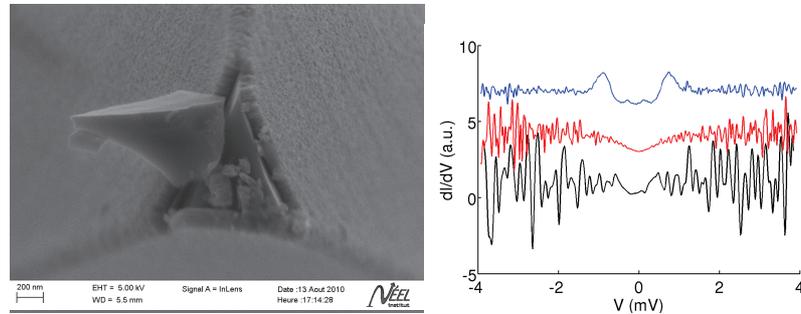


FIGURE 3.9 – *Pointe AFM avec un dépôt de 100 nm de niobium sous UHV après utilisation. Les spectroscopies sont effectuées avec 3 pointes différentes à 140 mK sur une couche d'or. Les courbes sont décalées pour faciliter la lecture.*

### Pointes AFM + dépôt dans le bâti UHV

Nous avons aussi essayé en parallèle d'évaporer du niobium avec un canon à électron dans le bâti UHV. Dans ce cas, le dépôt est beaucoup plus sensible aux impuretés, mais en nettoyant la pointe avant avec un plasma d'argon, il est possible d'avoir des dépôts propres (si l'on se fie au vide pendant le dépôt) et qui adhèrent très bien à la surface. Le comportement en AFM est similaire à celui des pointes EFM commerciales et l'extrémité s'use de la même manière. En testant plusieurs pointes sur une couche d'or nous n'avons jamais observé de densités d'états correspondant à un supraconducteur comme pour la pointe Figure 3.8.

### Conclusion

Si l'on désire faire des spectroscopies avec une pointe normale, les pointes EFM sont certainement ce que nous avons trouvé de mieux. L'unique point faible est que lorsqu'elles se cassent, la couche métallique peut commencer légèrement au dessus de l'extrémité de la pointe. Il faut alors légèrement enfoncer la pointe dans l'échantillon pour obtenir le contact tunnel. Ce n'est pas un problème pour des échantillons métalliques épais de plusieurs dizaines de nanomètres, mais cela pourrait le devenir si l'on voulait sonder du graphène par exemple. L'idéal serait sûrement des pointes en silicium fortement dégénérées qui auraient un comportement métallique même à froid.

Pour ce qui concerne les pointes supraconductrices, les pointes massives attaquées chimiquement restent de loin la meilleure piste car si l'AFM n'est pas aussi aisé qu'avec des pointes commerciales, la densité d'états de la pointe est très bien contrôlée, ce qui est indispensable pour en déduire les propriétés électroniques de l'échantillon.

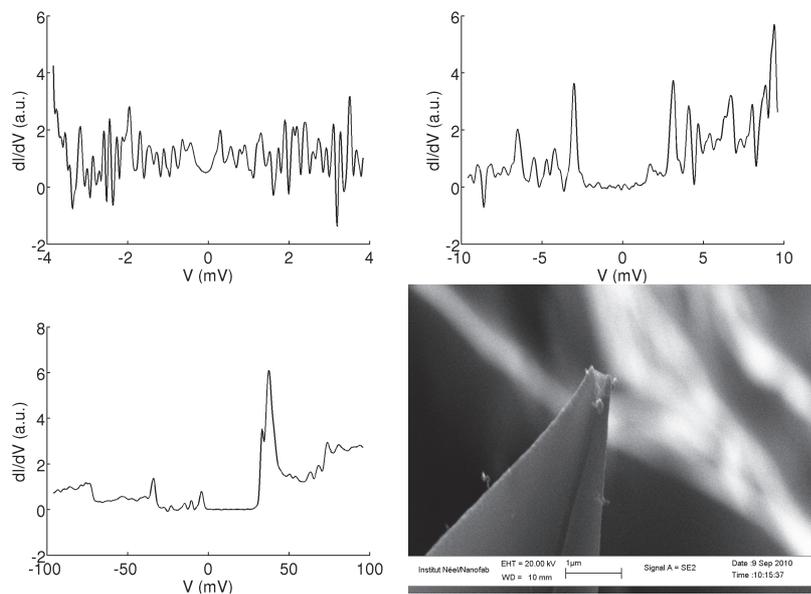


FIGURE 3.10 – *Pointe AFM avec un dépôt de 40 nm de niobium sous UHV après utilisation. Les spectroscopies sont effectuées avec 3 pointes différentes à 140 mK sur une couche d'or. On remarque que même les ordres de grandeurs en énergie des structures observées varient d'une pointe à l'autre.*

## Chapitre 4

# Microscope AFM/STM cryogénique

Ce chapitre a pour but de décrire en détail le système utilisé pour nos expériences. Pour effectuer des expériences en champ proche à basse température, nous avons dû apporter un soin particulier à la thermalisation et la stabilité mécanique du microscope ainsi qu’au bruit de l’électronique.

### 4.1 Sionludi

Notre microscope est monté sur un cryostat à dilution développé au laboratoire par A. Benoit et M. Caussignac. Ce type de cryostat, nommé sionludi, présente plusieurs particularités par rapport aux dilutions “classiques”. Il est représenté schématiquement figure 4.1.

Tout d’abord, les étages de cette dilution sont inversés par rapport à ce que l’on observe habituellement. Cela permet de monter et de démonter facilement notre microscope. Il présente six étages avec des températures de 80 K, 20 K, 4 K, 1 K, 200 mK et 70 mK. Des écrans en cuivre sont empilés les uns dans les autres et vissés aux quatre premiers étages. Les deux premiers écrans sont dorés afin de diminuer l’émissivité et donc la puissance rayonnée et absorbée. On note que l’étage à 1 K est très proche de la plaque de la dilution pour avoir les bouilleurs plus haut que la boîte à mélange.

La seconde particularité est qu’il n’y a pas de bain d’azote ni d’hélium. Le vase d’hélium de 100 L est mis sous pression (400 mbar) et l’hélium circule en continu pour thermaliser la boîte à 4 K, puis pré-refroidir le mélange et thermaliser les étages inférieurs à environ 20 K et 150 K. Le débit d’hélium 4 est régulé en sortie de cryostat. Lors de la première étape du refroidissement, les étages supérieurs sont refroidis en faisant circuler le mélange à haut débit à travers le bouilleur 2, la boîte à mélange puis le bouilleur 1. Grâce à ce système, le refroidissement est relativement rapide (10 heures pour atteindre 4 K avec le microscope). Un vide primaire sous la cloche suffit pour lancer le refroidissement,

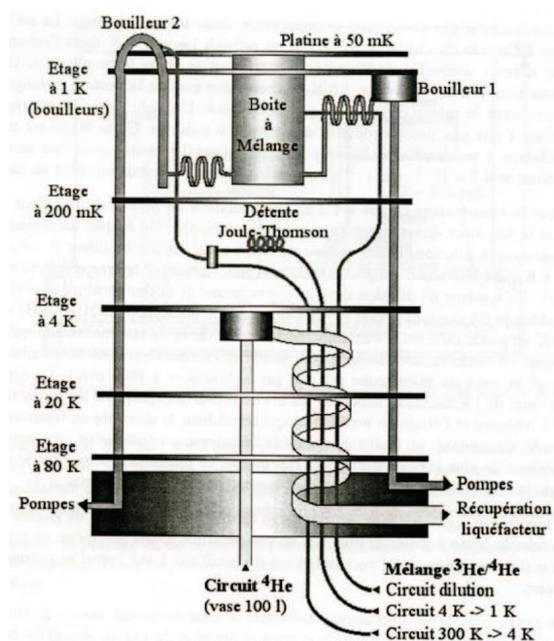


FIGURE 4.1 – Schéma du sionludi avec les différents étages, le circuit d'hélium 4 et les différents circuits de mélange. Ce dessin respecte plutôt bien les proportions réelles et permet de se faire une idée assez précise du système.

le cryopompage établit rapidement un vide secondaire sous la cloche.

Comme il n'y a pas de boîte à 1 K, la condensation du mélange se fait en utilisant un compresseur et une impédance pour réaliser une détente Joules-Thomson. Ceci présente l'avantage d'avoir plus facilement une température stable car elle ne dépend pas de la pression de pompage sur une boîte à 1 K. En contrepartie il faut veiller à bien filtrer le bruit mécanique en provenance du compresseur. Pour cela il est placé avec les pompes dans une pièce à part et les tuyaux traversent un caisson d'isolement. Nous n'avons pas observé de différence de bruit mécanique au niveau du microscope lorsque le compresseur est allumé ou éteint.

Il faut noter que le système est particulier avec deux bouilleurs. Lors du refroidissement à 4 K ou pendant la condensation du mélange, le mélange suit le parcours bouilleur 2  $\rightarrow$  boîte à mélange  $\rightarrow$  bouilleur 1 (figure 4.1). Une fois la majorité du mélange liquéfiée, on utilise le circuit de dilution qui injecte directement le mélange dans la boîte à mélange et on pompe sur les deux bouilleurs en parallèle.

Le circuit de condensation indépendant permet un plus grand débit que le circuit de dilution et donc une plus grande puissance frigorifique. Pourtant le gain de temps n'est pas considérable et ce circuit a disparu des dernières versions

de sionludi (construites en 2008). L'utilité des deux bouilleurs commence aussi à être remise en cause, et les derniers modèles, construits en 2011, ne possèdent qu'un seul bouilleur. Le pompage est effectué par une pompe primaire couplée avec une pompe Roots pour atteindre une pression de 0,3 mbar en sortie de bouilleur. Il faut environ deux heures pour liquéfier le mélange et deux heures pour atteindre 80 mK.

Les sionludi disposent d'un volume utile conséquent (13 cm de haut par 13 cm de diamètre) ce qui est déterminant pour des expériences de microscopie. De façon surprenante, à basse température, ce n'est pas vraiment la capacité calorifique qui importe mais la thermalisation. En effet, en dessous de 4 K, nous arrivons à refroidir 1,8 kg de métal presque aussi vite qu'à vide. Ce sont surtout les pièces isolantes qui prennent le plus de temps à refroidir (isolants électriques, tubes piézoélectriques, connecteurs plastiques, ...). Nous avons grandement amélioré la thermalisation en nettoyant le dessous du microscope et la platine de la dilution avec un Scotch-Brite pour enlever l'oxyde. La température a diminué de 110 mK sur la platine et 200 mK au niveau de l'échantillon à 80 mK et 140 mK respectivement. Nous avons par la suite appliqué la même méthode aux tresses de thermalisation qui connectent les différentes pièces métalliques (porte diapason, moteurs inertiels,...) à la base du microscope. La quarantaine de fils connectés au microscope sont des fils de constantan (alliage Cu-Ni) blindés dans des gaines inox. Ils sont thermalisés à chaque étage de la dilution avec suffisamment de longueur entre chaque étage (environ 20 cm) pour éviter les court-circuits thermiques.

L'ensemble du cryostat avec le vase d'hélium est fixé sur un bloc de ciment posé sur des vérins pneumatiques. La fréquence de coupure de cet amortisseur est inférieure à 2 Hz.

## 4.2 Microscope

Notre microscope, présenté figure 4.2, est un nouveau design basé sur celui du microscope de J. Senzier [87]. On peut noter cinq parties importantes :

- Un étage d'isolation mécanique de fréquence de coupure inférieure à 10 Hz.
- 30 cm de microcoax (les deux tiers sont enroulés sous le microscope) pour filtrer le bruit haute fréquence d'origine thermique provenant des étages inférieurs.
- Des moteurs inertiels attocube [88] permettant de déplacer l'échantillon sur 7 mm dans chaque direction avec une précision submicronique.
- Deux tubes scanners en série permettant de faire des images de  $6,2 \mu\text{m} \times 6,2 \mu\text{m}$  à basse température au bout desquels est vissée la sonde AFM/STM. L'un de ces tubes permet également d'exciter mécaniquement le diapason.
- Un calorimètre (non présent sur l'image) qui permet de fermer hermétiquement le microscope et d'insérer quelques  $10^{-2}$  mbar d'hélium pour thermaliser rapidement tous les éléments à 4 K.

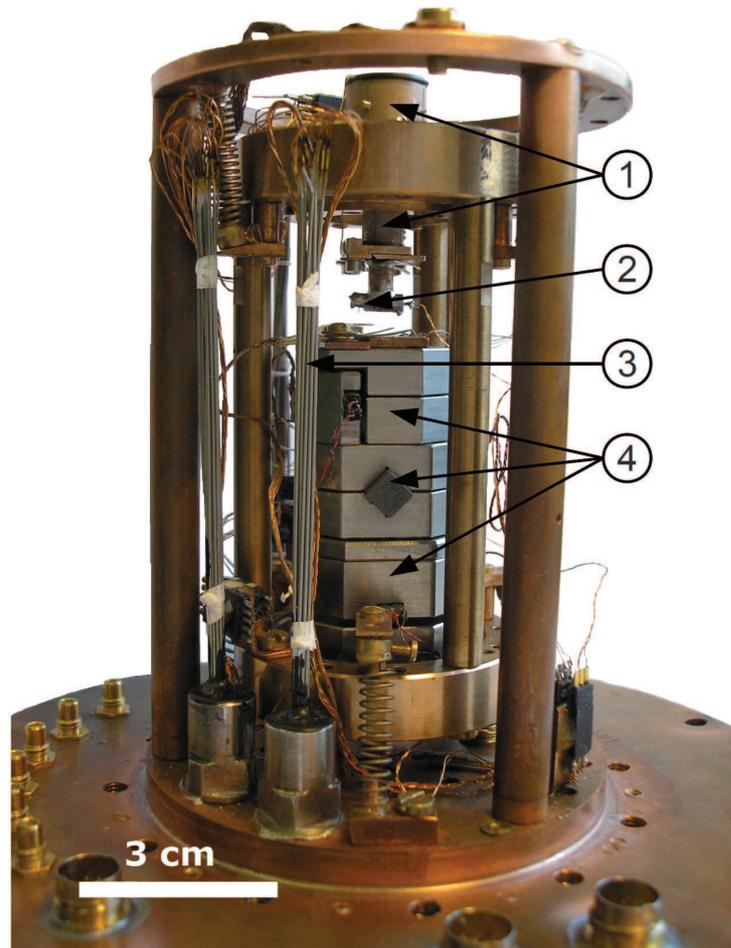


FIGURE 4.2 – *Microscope sans le calorimètre. On reconnaît 1) les tubes scanners, 2) la sonde dont le diapason est encore partiellement encapsulé, 3) les filtres microcoax et 4) les moteurs attocube avec au sommet l'échantillon.*

### 4.2.1 Tubes scanner

Pour déplacer la pointe, nous utilisons deux tubes piézoélectriques en PZT montés en série suivant le schéma 4.3. Le tube central est le plus fin et permet de faire des images de  $6,2 \mu\text{m} \times 6,2 \mu\text{m}$  à basse température. Nous utilisons l'électrode 5 pour régler la hauteur avec une amplitude de  $1,2 \mu\text{m}$ . Le tube extérieur est deux fois plus court et deux fois plus épais. Il peut éventuellement permettre, si l'on applique des potentiels opposés sur les électrodes 6 et 7, d'ajouter  $0,6 \mu\text{m}$  d'amplitude en Z. Dans notre cas, nous utilisons ce tube uniquement pour exciter le diapason.



FIGURE 4.3 – Schéma en coupe et vue de dessous des tubes avec les électrodes à droite. Les tubes sont représentés en gris et les pièces de cuivre en orange. Les électrodes 1-3 et 2-4 sont utilisées pour balayer la pointe et les autres pour l'approcher ou l'éloigner de l'échantillon.

Il faut noter que si le microscope baigne dans une faible pression d'hélium, il ne faut surtout pas appliquer de haute tension sur les électrodes à des températures supérieures à 4K. En effet, au niveau des connecteurs, la tension entre deux soudures peut atteindre 440V pour une distance inférieure au millimètre. C'est suffisant dans certains cas pour créer des étincelles entre certaines soudures qui déposent une fine pellicule d'étain et les court-circuitent. Dans les cas les plus graves, cela provoque un chauffage de plusieurs milliwatts.

### 4.2.2 Moteurs attocube

Pour déplacer l'échantillon, nous utilisons trois moteurs attocubes ANP100. Chaque moteur est constitué d'un axe connecté à la base par un actionneur piézoélectrique en PZT et autour duquel est serrée une partie mobile avec une force choisie précisément par le fabricant. En appliquant des tensions en dent de scie, on peut faire bouger la table sur une distance de 7 mm avec des pas de 100 nm en moyenne à tension maximale comme décrit figure 4.4.

Les moteurs en X et Y présentent une certaine fragilité car le poids de la table crée une torsion sur le piézoélectrique, d'autant plus que le moteur en Z produit des forces rapides mais considérables dans cette direction. C'est le principal phénomène qui limite la durée de vie de ces moteurs et qui a été corrigé dans le modèle suivant ANP101. Le fonctionnement de ces moteurs est très dépendant de l'état de surface où a lieu le frottement. Il peut arriver que

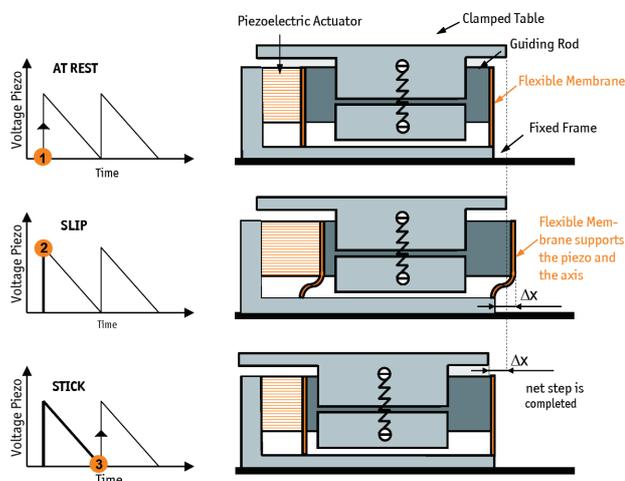


FIGURE 4.4 – Schéma expliquant le fonctionnement d'un pas attocube. Source : [88]

des poussières salissent l'axe et bloquent le moteur mais nous avons toujours réussi à nettoyer l'axe en déplaçant le moteur à chaud et en soufflant de l'azote.

Pour faire fonctionner ces moteurs, nous appliquons des dents de scie de 1 ms avec des tensions maximums de 20 V à température ambiante et 70 V à basse température. La capacité intrinsèque des piézoélectriques est de 700 nF à chaud. Pour ne pas filtrer le signal ce qui rend le mouvement des moteurs beaucoup plus difficile, il est recommandé d'avoir une résistance de fil d'une dizaine d'ohm maximum. Heureusement, à basse température la capacité chute à 35 nF ce qui nous permet d'utiliser des câbles de constantan en parallèle avec une résistance totale d'environ 50  $\Omega$  pour les moteurs X et Y et 25  $\Omega$  pour le moteur Z. Dans ces conditions, 14 V à température ambiante et 50 V à basse température suffisent, en général, à faire bouger les moteurs.

Globalement nous sommes très satisfaits de ces moteurs qui sont fiables, faciles à commander et chauffent peu la dilution. De plus, pour des expériences nécessitant des déplacements d'un échantillon à l'autre, nos moteurs possèdent une mesure de position résistive précise à moins de 10  $\mu\text{m}$ .

### 4.2.3 Sondes

Nos sondes sont composées d'un diapason en quartz collé sur une plaque de cuivre avec de l'araldite rapide. À l'extrémité du diapason, une pointe conductrice est collée avec de l'époxy argent (epotek H21D [89]) qui assure le lien mécanique et la conductivité électrique avec une des électrodes.

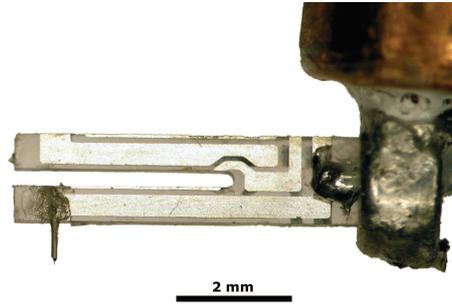


FIGURE 4.5 – *Diapason en quartz sur lequel est collée une pointe de tungstène taillée par électrochimie avec une goutte d'époxy argent.*

### Diapasons

Le diapason a été inventé par le trompettiste John Shore en 1711. Comme principal intérêt, le centre du diapason reste absolument immobile. Ainsi, lorsqu'il est excité suivant le mode asymétrique (chaque bras vibre en opposition), la résonance ne dépend pas de la manière dont est fixé le diapason et la dissipation est très faible car les contraintes sont concentrées entre les deux bras du diapason. Cela donne un résonateur avec un grand facteur de qualité et donc une fréquence de résonance très bien définie.

K. Karrai et R. Grober ont introduit les diapasons en quartz en microscopie optique en champ proche en 1995 [90]. Ces détecteurs sont devenus rapidement populaires et sont actuellement utilisés par de nombreux groupes pour des expériences en champ proche variées [36, 91, 92, 78, 93, 20, 21, 24].

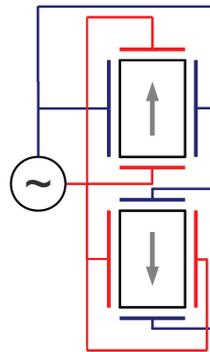


FIGURE 4.6 – *Coupe d'un diapason avec le schéma de câblage. On remarque que les polarités sont inversées entre les deux bras afin d'exciter le mode antisymétrique. Les flèches représentent le déplacement des bras.*

Les diapasons que nous utilisons sont des résonateurs en quartz vendus en-

capsulés sous vide utilisés en électronique principalement comme horloge. Ils sont donc très peu chers ( $\sim 0,10$  € l'unité). Les bras des diapasons sont couverts par des électrodes dont le câblage est présenté figure 4.6. Ce montage permet de court-circuiter d'autres modes de vibration et en particulier le mode symétrique (les deux bras vibrant en phase). L'angle pour tailler le diapason dans le cristal de quartz est choisi de manière à annuler les dérives thermiques au premier ordre à température ambiante. La fréquence du mode fondamental est de 32,768 kHz à température ambiante et varie de moins de 1 kHz à basse température.

Les propriétés du diapason qui nous intéressent sont son grand facteur de qualité et sa forte rigidité (de 10 à 100 N/m). En effet, cela permet de travailler en FM-AFM et d'avoir une très bonne stabilité pour les spectroscopies STM. De plus, ce système dissipe très peu d'énergie (moins de 1 nW) par rapport à des mesures optiques ou résistives.

### Excitation mécanique

Le diapason en tant que système oscillant peut être modélisé du point de vue électrique par un circuit RLC où R est associé à la dissipation de l'oscillateur, L équivaut à une masse effective et  $\frac{1}{C}$  à une raideur effective. A cela il faut ajouter une capacité en parallèle  $C_0$  qui est la capacité réelle entre les deux électrodes (Figure 4.7). Elle vaut environ 100 pF ce qui est bien supérieur à la capacité C (inférieure à 1 pF). Cette équivalence a été décrite en détail par J. Rychen [94] et H. le Sueur [95].

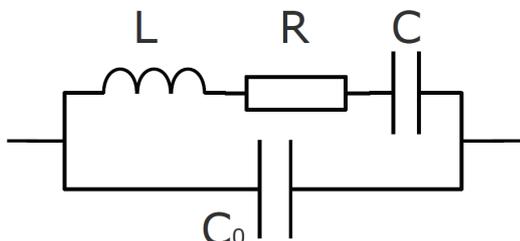


FIGURE 4.7 – Modélisation électrique d'un diapason.

Dans notre cas, nous excitions le diapason mécaniquement en appliquant l'excitation sur un des tubes Z. Cela peut paraître surprenant car les oscillations sont normalement indépendantes du centre du diapason. Heureusement, les deux bras ne sont jamais symétriques principalement à cause de la pointe, ce qui permet un léger couplage du mode à l'extérieur.

La réponse du diapason peut être modélisée en ajoutant un générateur alternatif en série avec l'oscillateur RLC. On mesure alors le courant émis par l'ensemble avec un amplificateur courant-tension fabriqué au laboratoire. Cet amplificateur ayant une très faible impédance d'entrée, la capacité  $C_0$  est court-circuitée et ne joue donc aucun rôle.

L'excitation mécanique a l'avantage d'être très facile à mettre en oeuvre. Elle présente cependant plusieurs inconvénients : le système oscillant comprend en fait le tube scanner, le porte diapason et le diapason. La liaison entre chaque élément doit donc être réalisée avec soin, sinon on observe typiquement une phase qui dérive avec des sauts aléatoires. Nous avons donc remplacé le système de languettes qui fixait le porte diapason à l'extrémité du tube (encore présents sur la Figure 4.2) par deux vis en laiton. Nous prenons aussi soin de laisser l'araldite qui colle le diapason sécher au moins 24 heures. La fixation de la pointe est aussi très importante pour éviter une modification de l'oscillateur lui-même et pour cela un collage à l'époxy argent est indispensable. Avec cette méthode, nous n'avons plus observé aucune dérive à froid.

Il peut cependant subsister un couplage entre la fréquence de résonance du diapason et l'élongation du tube piézoélectrique probablement dû à un couplage capacitif entre l'électrode 5 et le diapason. Au début de cette thèse, nous avions tendance à garder la capsule autour du diapason et à ne percer qu'un petit trou à l'extrémité afin de l'isoler le plus possible. Finalement il semble que si le diapason est bien collé au centre du porte diapason et que ses électrodes sont suffisamment courtes, le décalage en fréquence est similaire qu'il soit décapsulé ou pas. Sur toute la course du tube, la fréquence ne varie jamais de plus de 200 mHz ce qui est toujours inférieur à notre consigne (typiquement 300 ou 400 mHz).

### Excitation électrique

Une autre solution consiste à exciter le diapason directement avec une source de tension et à mesurer le courant. Cette solution permet de ne dépendre ni des liaisons entre les différentes pièces de la chaîne d'excitation ni de l'asymétrie du diapason. Elle est employée actuellement sur les microscopes de P. Joyez [21] et de C. Winkelmann à l'institut Néel. Même si nous n'en avons pas eu besoin, compte tenu de l'utilisation croissante des résonateurs piézoélectriques en champ proche, elle mérite d'être mentionnée.

Il faut cependant prendre quelques précautions. Si l'on se contente de brancher la source de tension et l'amplificateur de courant en série aux bornes du diapason, on mesure la somme du courant traversant le résonateur RLC et celui traversant  $C_0$ . Malheureusement, pour des fréquences proches de la résonance, les deux courants sont du même ordre de grandeur. On observe alors une caractéristique comparable à la courbe bleue sur la figure 4.8 qui est difficilement exploitable. Pour palier à ce problème, il faut ajouter une capacité variable comme décrit dans le schéma figure 4.8 [95]. Si l'on ajuste la capacité variable pour qu'elle soit égale à  $C_0$ , l'amplificateur de courant ne mesure alors que le courant  $I$  traversant le système RLC et l'on retrouve la courbe noire (figure 4.8).

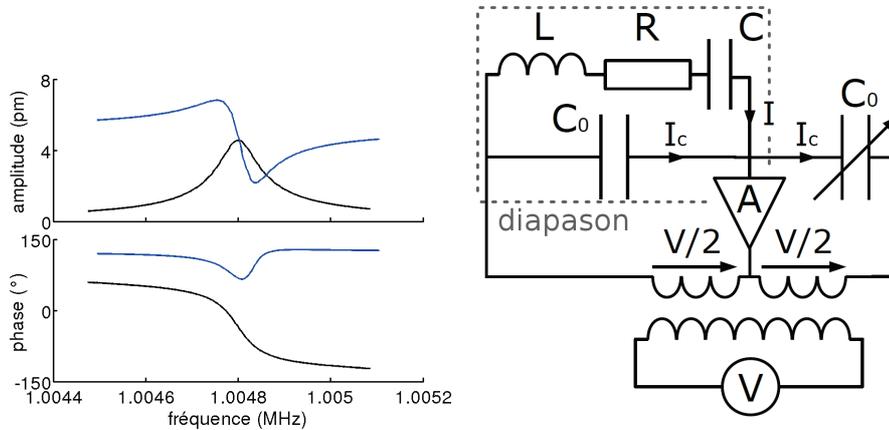


FIGURE 4.8 – Réponse d'un oscillateur piézoélectrique (LER [96]) excité électriquement et mesurée à l'institut Néel par S. Martin. Le comportement de ce résonateur est similaire à celui des diapasons. Les courbes bleue et noire sont mesurées sans et avec compensation de  $C_0$  respectivement. A droite : circuit d'excitation électrique du diapason. Le transformateur est un moyen astucieux d'appliquer la même tension sur le diapason et sur la capacité de compensation.

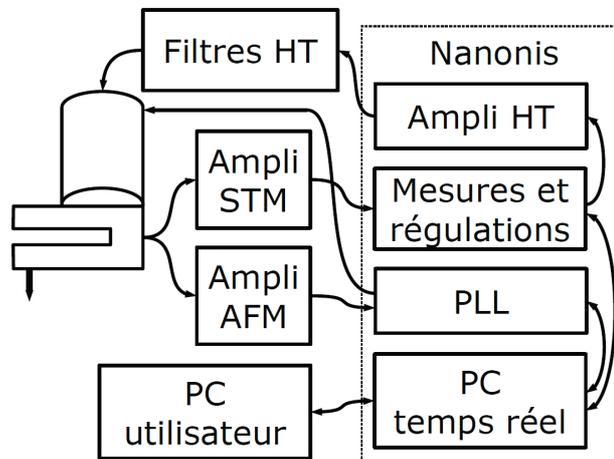


FIGURE 4.9 – Schéma décrivant succinctement l'électronique utilisée pour les mesures en champ proche.

## 4.3 Électronique

Notre électronique de mesure comprend les amplificateurs de courant STM et AFM, les filtres haute tension développés au laboratoire, l'alimentation attocube et une électronique Nanonis qui regroupe et traite tous les signaux. Indépendamment de cela, on peut ajouter une source de courant flottante et un amplificateur de tension différentiel pour effectuer des mesures de transport 4 fils. Le système nécessaire pour les mesures de champ proche est résumé par le schéma 4.9.

### 4.3.1 Amplificateurs

#### Amplificateur STM

Notre amplificateur de courant a un gain de  $10^8$  V/A. Le calcul du logarithme du courant, afin d'avoir une mesure de la distance pointe échantillon, est fait en aval par la Nanonis. Le principe de cet amplificateur est donné par le schéma classique 4.10.

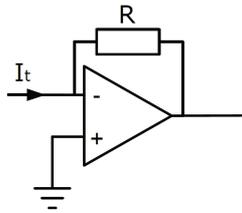


FIGURE 4.10 – Schéma classique du montage d'un amplificateur opérationnel en convertisseur courant-tension. Le gain du convertisseur est égal à la résistance  $R$ .

Le montage réel a été étudié afin de réduire la tension d'alimentation de  $\pm 15V$  à  $\pm 6V$  et de la filtrer au maximum (Annexe D), l'objectif étant de réduire le courant de polarisation de l'amplificateur opérationnel (AO). Le bruit à basse fréquence de l'amplificateur est limité par le bruit Johnson-Nyquist [97, 98] de la résistance d'amplification. La densité spectrale de bruit en tension d'une résistance  $R$  à une température  $T$  s'écrit :

$$S_V = \sqrt{4k_B T R \Delta f} \quad (4.1)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $\Delta f$  la bande passante considérée. Dans notre cas, la résistance d'amplification de  $100 \text{ M}\Omega$  est déportée sur la plaque à  $4K$  afin d'obtenir un bruit ramené à l'entrée de l'ordre des  $1,5 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  théoriques au lieu de  $12,6 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  à température ambiante.

A cela vient s'ajouter le bruit généré par l'amplificateur opérationnel égal à :

$$S_I = \omega C S_{V_{AO}} + S_{IAO} \quad (4.2)$$

où  $C$  est la capacité à la masse du câble d'entrée  $S_{IAO}$  le bruit de courant en entrée et  $S_{VAO}$  le bruit en tension en entrée d'amplificateur. D'après les spécifications techniques  $S_{IAO}$  est de l'ordre  $2 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  et  $S_{VAO}$  d'environ  $10 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Afin de minimiser  $C$  et donc le bruit, le câble pour la mesure du courant tunnel est un câble de basse capacité ( $30 \text{ pF}$  pour un mètre environ) ce qui permet de ne pas être limité par le bruit en tension de l'AO pour des fréquences inférieures à  $300 \text{ Hz}$ .

### Amplificateur AFM

L'amplificateur AFM est un amplificateur courant-tension de gain  $2.10^8 \text{ V/A}$  comprenant trois étages (voir annexe E). Les deux premiers étages constituent un amplificateur cascade [99]. Le premier étage est composé de deux transistors à effet de champ en série fonctionnant dans leur régime linéaire. Cela permet d'obtenir une très grande impédance d'entrée et un très faible bruit. Ces deux points sont particulièrement importants car le courant produit par le diapason peut être inférieur au nanoampère. Le second étage est un amplificateur intégrateur qui amplifie le signal en limitant le bruit. Le troisième est un simple amplificateur de tension avec une capacité en entrée et en sortie pour être sûr de ne laisser passer aucun signal continu.

#### 4.3.2 Nanonis

La compagnie Nanonis (rachetée en 2009 par SPECS) commercialise une électronique numérique générique conçue pour équiper diverses expériences de champ proche en fonction des besoins. L'électronique Nanonis est constituée d'un PC équipé d'un OS temps réel qui communique avec l'ordinateur de contrôle par ethernet. Cet ordinateur temps réel gère l'acquisition, le traitement et la transmission de données. Il intègre, entre autres, un lock-in basique utilisable sur n'importe quel signal, un analyseur de spectre basique et surtout la boucle de régulation qui contrôle la distance pointe échantillon à partir de n'importe quel signal d'entrée. Cet ordinateur est équipé de deux cartes NI-FPGA pour gérer les différents signaux.

La première gère 8 entrées et 8 sorties analogiques et 8 entrées et 8 sorties binaires. Les entrées et sorties analogiques de  $\pm 10 \text{ V}$  sont filtrées à  $5 \text{ kHz}$  et discrétisées sur 16 bits. Depuis l'implémentation du suréchantillonnage, la résolution effective est de 22 bits. Certaines sont réservées pour les déplacements X, Y, Z et pour la polarisation et la mesure de courant tunnel. En général les autres sont libres et peuvent être utilisées selon nos besoins.

La deuxième carte est dédiée à la PLL. L'entrée et la sortie sont échantillonnées à  $40 \text{ MHz}$  (la bande passante est de  $5 \text{ MHz}$ ) toute la partie Lock-in et les régulations en phase et en amplitude sont intégrées sur la carte FPGA.

Toute l'interface est faite avec un programme Labview qui permet d'ajuster les paramètres des lock-in et des régulations. Ce programme est modulaire et Nanonis fournit les modules nécessaires à chaque microscope. Il intègre entre autre un module de contrôle de moteurs spécifique à notre microscope. On

peut donc effectuer toutes les opérations courantes de microscopie à partir d'un seul programme. Un lot de routines Labview est fourni en complément afin de pouvoir programmer nous mêmes des modules complémentaires. Lors de la phase d'approche, les pas moteurs sont relativement violents et peuvent modifier la phase ou la fréquence de résonance de l'oscillateur. J'ai donc adapté la routine d'approche afin de recalibrer la sonde après chaque pas.

### 4.3.3 Mesures en transport

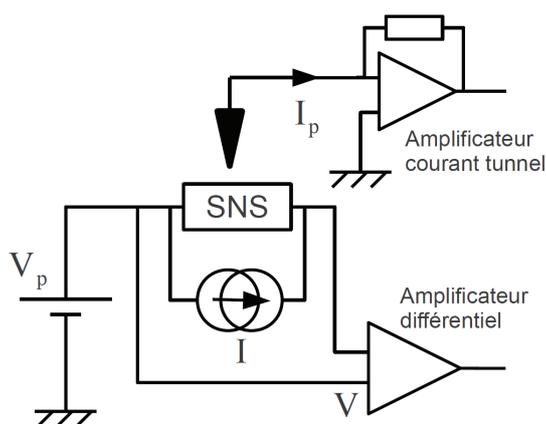


FIGURE 4.11 – Schéma électrique des appareils utilisés pour mesurer simultanément l'échantillon SNS en transport (avec  $I$  et  $V$ ) et en STM (avec  $I_p$  et  $V_p$ ).

L'échantillon est connecté de manière à pouvoir effectuer des mesures de transport 4 fils. Ces mesures sont effectuées à l'aide d'une source de courant et d'un amplificateur d'instrumentation tous deux flottants. En effet, nous voulons pouvoir varier indépendamment le potentiel de l'échantillon pour faire simultanément des spectroscopies avec la pointe, dont le potentiel est celui du cryostat. Le schéma du montage est représenté figure 4.11. Nous utilisons les entrées et sorties configurables de l'électronique Nanonis pour piloter les mesures de transport.



## Chapitre 5

# Spectroscopies locales sur un échantillon unique

Notre microscope présenté en détail au chapitre 4 nous permet de localiser un échantillon à très basse température, puis d'effectuer simultanément des mesures de transport et des spectroscopies locales. Ce chapitre montre quel type d'étude est réalisable avec notre microscope sur des jonctions Josephson hybrides. Nous verrons les caractéristiques hystérétiques de ces jonctions obtenues en transport, la densité d'états le long de la jonction ainsi que l'influence du courant à travers la jonction sur la densité d'états de l'aluminium. Cette dernière mesure donne la température de la jonction et nous permet, à l'aide d'un modèle thermique simple, de comprendre de quelle manière la chaleur se dissipe dans notre échantillon. Enfin, nous verrons d'autres mesures hors équilibre, effectuées avec un nouveau microscope du même type, sur la partie normale de la jonction Josephson. Ces mesures ont permis en particulier de sonder avec précision la zone de recouvrement entre l'aluminium et le cuivre.

### 5.1 Localisation de l'échantillon

La première étape de nos expériences consiste à localiser l'échantillon en AFM pour pouvoir ensuite effectuer nos mesures STM.

Pour positionner notre pointe, nous utilisons une loupe binoculaire avec une vue plongeante à environ  $45^\circ$  sur l'échantillon. Comme nous utilisons un substrat silicium ou des couches métalliques pour certains tests, on voit très nettement le reflet de la pointe (ce qui est moins évident avec un substrat de saphir par exemple). Il suffit de positionner le centre de l'échantillon exactement entre la pointe et son reflet. La précision du positionnement que l'on peut atteindre alors dépend principalement de l'éclairage de la pointe et de l'échantillon. Si l'on utilise des fils métalliques taillés comme pointe, le diapason est suffisamment loin de la surface pour que l'on puisse éclairer et observer l'ensemble pointe-échantillon dans de diverses directions. On peut alors positionner la pointe à

moins de  $10\ \mu\text{m}$  de l'échantillon. Dans le cas des pointes EFM, l'opération est plus compliquée car le diapason masque souvent la pointe. Il faut parfois se contenter du reflet pour la positionner. Cependant nous avons toujours réussi à placer la pointe à moins de  $50\ \mu\text{m}$  de la jonction à chaud.

Lors de chaque refroidissement, l'échantillon dérive de  $60\ \mu\text{m}$  en moyenne par rapport à la pointe. Cette valeur n'est pas reproductible car elle dépend de l'élongation des moteurs attocube. Si l'on positionne toujours l'échantillon et la pointe au même endroit, on peut anticiper les dérives à moins de  $10\ \mu\text{m}$  près. Au final, après refroidissement, la pointe ne se trouve qu'extrêmement rarement à plus de  $100\ \mu\text{m}$  de l'échantillon.

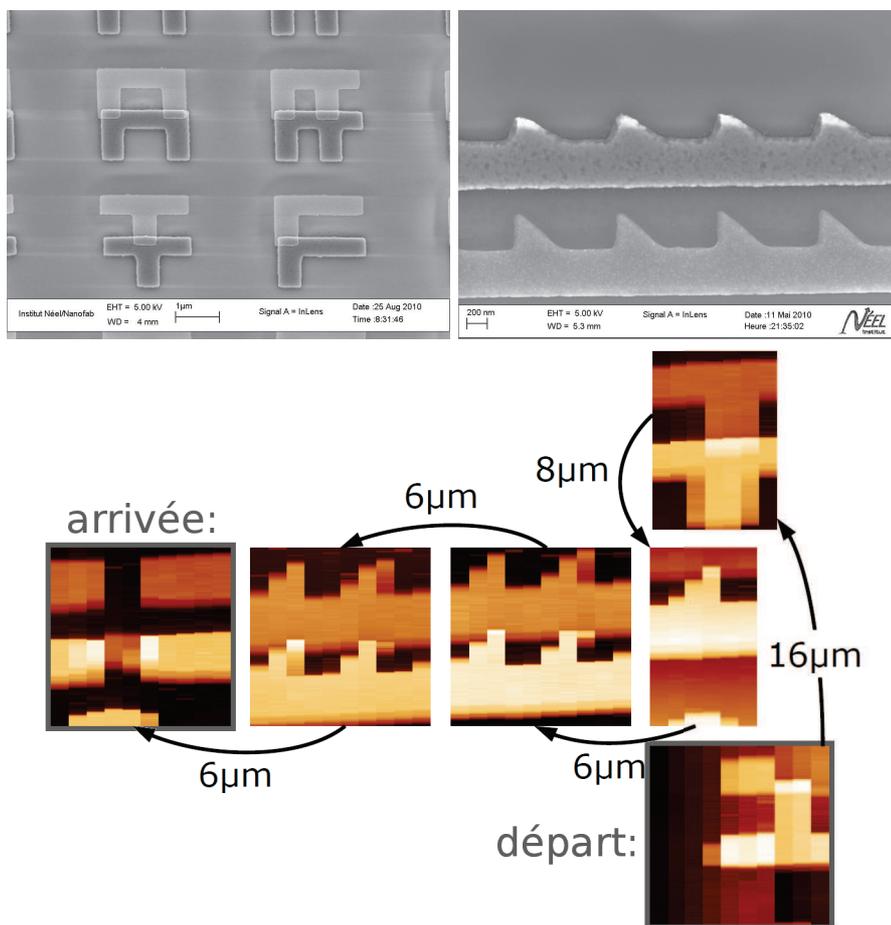


FIGURE 5.1 – Motifs utilisés pour localiser l'échantillon à gauche et amenées de courant à droite. On remarque que tous les motifs sont dédoublés par l'évaporation sous angle. La partie claire est l'aluminium et l'autre le cuivre. En bas : exemple de parcours effectué pour localiser la jonction en AFM.

Pour localiser l'échantillon, nous avons donc placé des symboles sur le substrat dans une zone de  $200\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  autour de l'échantillon. La question a été d'optimiser le masque pour pouvoir localiser l'échantillon avec le moins d'images AFM possible. Il faut choisir des symboles simples pour qu'ils soient lus et reconnus facilement mais aussi suffisamment nombreux pour pouvoir localiser la jonction en un nombre réduit de déplacements. Pour cela, nous avons choisi 4 symboles en forme de F, U, L et T de  $2\ \mu\text{m} \times 1.5\ \mu\text{m}$  avec différentes orientations et espacés de  $2\ \mu\text{m}$  horizontalement et  $1.5\ \mu\text{m}$  verticalement (figure 5.1). La grande simplicité des formes permet de les identifier avec certitude avec des images très grossières, ce qui économise la pointe. Ils indiquent dans quelle direction se diriger et si nous sommes à plus, ou à moins, de  $35\ \mu\text{m}$  de l'échantillon. Leur taille et leur espacement est choisi pour être quasiment sûr d'observer un symbole complet dans n'importe quelle zone de scan de  $6.2\ \mu\text{m} \times 6.2\ \mu\text{m}$ . Les arrivées de courant présentent des flèches qui permettent de savoir dans quelle direction se déplacer. Ces marqueurs en particulier pourraient être encore optimisés en choisissant deux sortes de flèches différentes dans la partie la plus proche de l'échantillon pour mieux connaître la distance.

La localisation de l'échantillon est effectuée lorsque le microscope atteint 1 K pour éviter tout risque de claquage du gaz d'échange comme décrit au chapitre 4.2.1. La zone de scan est d'abord explorée dans sa totalité en 3 ou 4 lignes afin de savoir où se situe le symbole. Une seconde image de 10 lignes seulement permet, en général, d'identifier avec certitude le symbole. Ensuite il faut retirer la pointe, déplacer l'échantillon avec les moteurs inertiels et recommencer jusqu'à atteindre la jonction. Avec notre système de motifs, à chaque fois que l'AFM fonctionne, nous parvenons à la localiser en 5 à 10 étapes (figure 5.1 et 5.2).

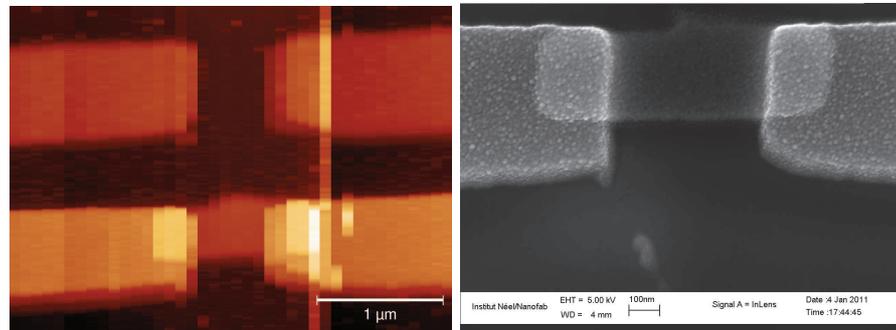


FIGURE 5.2 – Image AFM finale de la jonction qui servira ensuite pour positionner la pointe lors des spectroscopies et à droite l'image MEB de la jonction.

## 5.2 Mesures de transport

Après localisation de l'échantillon, l'étape suivante est d'effectuer des mesures de transport 4 fils afin de caractériser l'échantillon à froid (résistance normale,

courant critique). Nous présenterons d'abord deux échantillons que nous nommerons **1** et **2** et dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 5.1.

Nom	L	w	d <sub>Cu</sub>	d <sub>Al</sub>	jonctions
Échantillon <b>1</b>	1200 nm	300 nm	35 nm	30 nm	2 × 200 nm
Échantillon <b>2</b>	900 nm	300 nm	30 nm	70 nm	2 × 200 nm

$R_N$	$L_N$	$I_{C_{max}}$	T	$k_B T$	$E_{Th}$	$I_{C_{Th}}$
4,5 $\Omega$	1100 nm	0,8 $\mu A$	270 mK	23 $\mu eV$	11 $\mu eV$	11 $\mu A$
2,7 $\Omega$	480 nm	12 $\mu A$	260 mK	22 $\mu eV$	53 $\mu eV$	82 $\mu A$

TABLE 5.1 – Paramètres des deux échantillons présentés ici.  $L$ ,  $w$  et  $d_{Cu}$  sont la longueur, la largeur et l'épaisseur de l'îlot normal et  $d_{Al}$  est l'épaisseur d'aluminium.  $L_N$  est la longueur de métal normal calculée grâce à la résistance normale  $R_N$  et la conductivité du cuivre ( $\sigma_{Cu} \approx 2.10^7 \text{ Sm}^{-1}$  [62]).  $T$  est la température extraite des spectroscopies, c'est donc la température électronique de la pointe.  $E_{Th}$  est l'énergie de Thouless calculée à partir de la longueur  $L_N$ .  $I_{C_{max}}$  et  $I_{C_{Th}}$  sont respectivement le courant critique maximal mesuré et le courant critique théorique déduit de  $R_N$ ,  $E_{Th}$  et  $T$ .

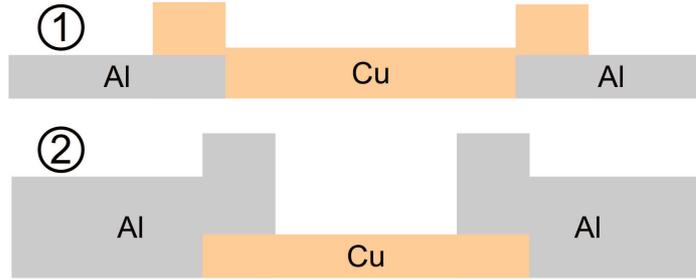


FIGURE 5.3 – Schéma en coupe de la structure attendue pour les échantillons **1** et **2**. Les épaisseurs ont été multipliées par 4 par rapport aux longueurs pour une meilleure lisibilité.

Dans nos échantillons, la couche supérieure est toujours plus épaisse que la couche inférieure pour qu'elle ne soit pas coupée lors du dépôt aux endroits où les deux métaux se superposent. On est alors sûr que les interfaces sont bien définies par les zones de superposition. Dans l'échantillon **1**, nous avons choisi que le cuivre recouvre l'aluminium pour pouvoir observer la densité d'états dans tout le barreau de cuivre. La couche de cuivre est donc légèrement plus épaisse pour cet échantillon. Cependant, pour ne pas détruire la supraconductivité aux alentours des contacts, il faut pouvoir augmenter l'épaisseur du supraconducteur. Dans l'idéal, pour avoir un supraconducteur véritablement massif, il faudrait que ses dimensions soient au moins de l'ordre de la longueur de cohérence de l'aluminium

c'est à dire supérieur à 150 nm [100, 101]. C'est pour cette raison que dans l'échantillon ②, nous avons choisi de placer le cuivre en dessous, afin de pouvoir doubler l'épaisseur d'aluminium. La géométrie des échantillons est schématisée figure 5.3.

### 5.2.1 Échantillon ①

La caractéristique courant-tension de l'échantillon ① (figure 5.4) est un bon exemple d'une jonction Josephson légèrement hystérétique. On peut facilement mesurer le courant critique et la résistance normale et en déduire les grandeurs caractéristiques de la jonction.

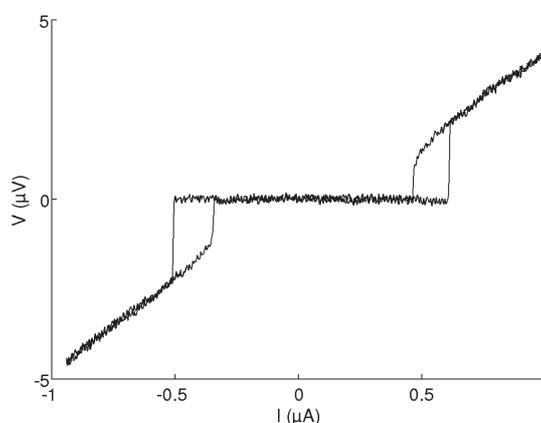


FIGURE 5.4 – Courbe courant-tension de l'échantillon ① à 160 mK.

Au dessus du courant critique de la jonction, on observe une caractéristique linéaire correspondant à la résistance normale de la jonction. Si l'on augmente beaucoup plus le courant de la jonction, on peut faire transiter les fils d'aluminium et l'on observe alors une seconde caractéristique linéaire (non représentée ici) correspondant à la résistance normale de l'aluminium mesurée à 4 K.

En prenant pour la conductivité du cuivre  $\sigma_{Cu} \approx 2.10^7 \text{ Sm}^{-1}$ , qui est la valeur mesurée sur d'autres échantillons de cuivre évaporés dans le même bâti, on peut déduire une longueur normale  $L_N$  à partir de la résistance  $R_N$  mesurée et des dimensions  $w$  et  $d_{Cu}$ . Pour l'échantillon ①, on obtient  $L \approx L_N$ . Presque toute la longueur de métal normal est donc résistive y compris dans les zones où le cuivre recouvre l'aluminium.

### 5.2.2 Échantillon ②

Le comportement de l'échantillon ② est plus atypique. Dans la branche résistive, lorsque le courant augmente la résistance augmente également. Pour les courants les plus faibles, on observe une résistance de  $2,7 \Omega$ , ce qui correspond, en prenant la même valeur de  $\sigma_{Cu}$  que pour l'échantillon ①, à la longueur de cuivre non

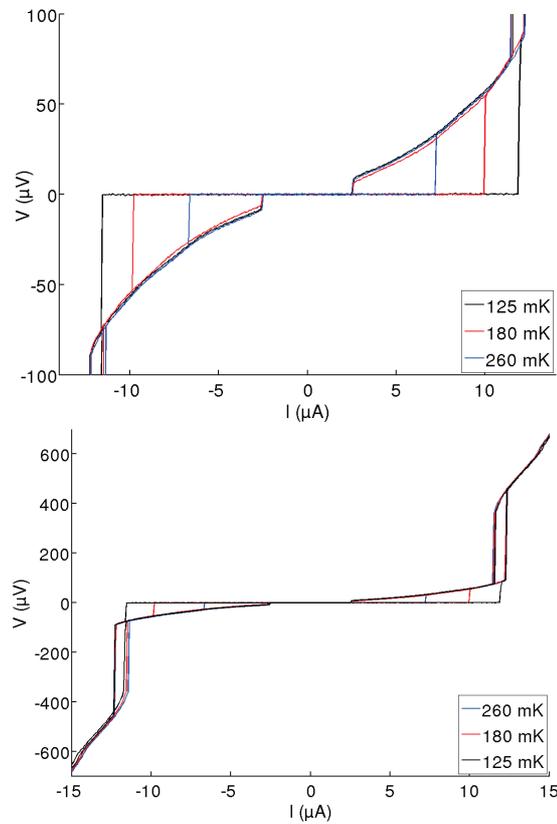


FIGURE 5.5 – Courbes courant-tension de l'échantillon ② présenté figure 5.2 à différentes températures. La figure du haut montre la partie centrale des courbes représentées en bas.

recouverte par l'aluminium. Pour un courant proche de  $12 \mu\text{A}$ , la résistance atteint  $6 \Omega$ , ce qui correspond à la résistance de tout le barreau de cuivre plus celle de l'aluminium à l'endroit où il recouvre le cuivre. Pour rappel, on se trouve ici dans une géométrie où l'aluminium est plus épais que dans l'échantillon ①. La supraconductivité est alors présente mais suffisamment affaiblie au niveau des jonctions SN pour qu'une partie de l'aluminium devienne progressivement normale lorsque la quantité de quasiparticules injectée augmente.

Pour un courant supérieur à environ  $12 \mu\text{A}$ , un saut de résistance apparaît, qui correspond à environ  $10 \mu\text{m}$  d'aluminium transitant dans l'état normal. Ce comportement est assez surprenant car pour les échantillons que nous avons mesurés avec des épaisseurs d'aluminium plus fines comme l'échantillon ①, toute l'amenée de courant en aluminium transitait (soit environ  $180 \mu\text{m}$ ). Ensuite, l'aluminium devient progressivement résistif au fur et à mesure que le courant augmente. La transition de plusieurs microns d'aluminium à environ  $12$

$\mu\text{A}$  pourrait s'expliquer par un défaut ponctuel dans un des fils d'aluminium. C'est cependant surprenant car le même comportement a été observé sur un autre échantillon du même wafer et aucun défaut géométrique n'apparaît au microscope électronique.

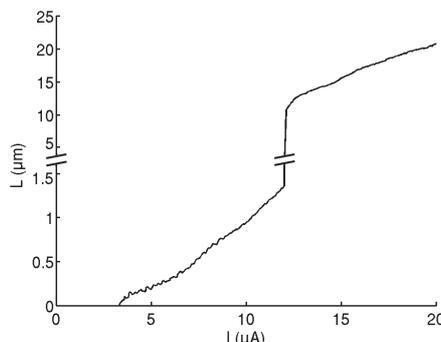


FIGURE 5.6 – Longueur d'aluminium normal en fonction du courant déduit des courbes tracées en diminuant le courant (branche résistive des courbes hystériques).

### 5.2.3 Facteurs de réduction du courant critique

On remarque aussi que le courant critique de l'échantillon ❶ est 14 fois plus faible que le courant attendu alors qu'il est 7 fois trop faible pour l'échantillon ❷. Si l'interface est plus transparente pour l'échantillon ❷, cela expliquerait aussi pourquoi les effets de chauffage dans le supraconducteur sont plus importants que pour l'échantillon ❶. Ceci est cohérent avec l'ordre dans lequel sont évaporés les métaux. L'aluminium s'oxydant beaucoup plus facilement que le cuivre, l'interface aluminium-cuivre de l'échantillon ❶ après le dépôt pourrait être moins transparente que l'interface cuivre-aluminium de l'échantillon ❷. Il est, cependant, surprenant que des interfaces réalisées dans un bâti à ultra vide soient sales au point de diminuer le courant critique d'un facteur 14. Il est aussi possible que les interfaces se dégradent par interdiffusion du cuivre et de l'aluminium au cours du temps.

On peut aussi émettre l'hypothèse d'un bruit électromagnétique dans le microscope qui ferait transiter l'échantillon, dû aux différents fils nécessaires aux mesures de transport et éventuellement à la haute tension appliquée sur les tubes piézoélectriques et les moteurs inertiels. Plus précisément, à la température de base, l'échantillon ❶ se trouve dans le domaine où  $k_B T > E_{Th}$  pour lequel le courant critique dépend fortement de la température, alors que pour l'échantillon ❷, on a  $k_B T < E_{Th}$  et le courant critique devrait peu varier avec la température. Pourtant, on observe expérimentalement que pour les deux échantillons, le courant critique varie fortement avec la température.

Si l'on suppose que la sensibilité au bruit est la même que la température,

on peut introduire une température  $T_{bruit}$  qui jouerait le rôle des pics de bruit les plus importants qui font transiter l'échantillon. Si l'on reprend les calculs du courant critique avec la température effective  $T_{bruit}$ , on remarque qu'il faut 1 K pour retrouver le courant critique de l'échantillon ❶, alors qu'il faut 1,7 K pour retrouver celui de l'échantillon ❷. Cela s'explique car une partie de cette température sert à amener l'échantillon ❷ dans le domaine où  $k_B T > E_{Th}$  et donc où le courant critique varie en température. Ces températures paraissent cependant étonnamment importantes pour observer des caractéristiques hystérétiques.

Le plus probable est que les deux phénomènes aient lieu simultanément. Pour obtenir des valeurs plus réalistes, on peut faire les hypothèses que les échantillons sont soumis au même bruit et que les courants critiques calculés avec  $T_{bruit}$  sont réduits d'un même facteur  $\alpha$  à cause de la résistance des interfaces SN. Cette seconde hypothèse est la plus discutable car les métaux n'ont pas été évaporés dans le même ordre pour les deux échantillons et car ils n'ont pas vieilli aussi longtemps avant d'être mesurés. On trouve alors une unique solution :  $T_{bruit} \approx 0,5$  K et  $\alpha \approx 0,2$  ce qui paraît plus raisonnable pour les deux valeurs. Une mesure de la température électronique de l'échantillon et une étude plus poussée en dilution avec un environnement uniquement dédié au transport et donc mieux filtré pourraient permettre de mieux discriminer les deux phénomènes.

Il est important de noter, que dans ce chapitre, nous avons choisi d'utiliser pour nos calculs la longueur de métal déduite de la résistance  $R_N$ . Ce choix est néanmoins assez arbitraire. En effet dans la théorie utilisée pour calculer le courant critique, on considère que le système est 1D et que le supraconducteur n'est pas affecté par le métal normal. Compte tenu de la géométrie de nos échantillons, le courant ne peut pas se propager en ligne droite dans les zones où le cuivre et l'aluminium se superposent. De plus, lorsque le supraconducteur est plus fin que la longueur de cohérence supraconductrice  $\xi_S$ , il est affecté par le métal normal sur une distance pouvant atteindre cette longueur de cohérence. La longueur du métal normal à considérer est donc comprise entre la longueur de cuivre non recouverte par l'aluminium dans le meilleur des cas et la longueur de cuivre totale plus une distance  $\xi_S$  de part et d'autre dans le pire des cas. Dans nos calculs avec l'échantillon ❷ nous avons donc considéré le cas le plus favorable, soit une longueur  $L_N=480$  nm, ce qui est très optimiste car si l'épaisseur d'aluminium est plus importante que l'échantillon ❶, elle reste inférieure à la longueur de cohérence supraconductrice. On voit d'ailleurs clairement l'influence du cuivre sur l'aluminium dans les spectroscopies présentées ensuite. Pour l'échantillon ❶, nous avons utilisé une longueur  $L_N=1100$  nm ce qui revient à considérer que la majorité de la zone de recouvrement se comporte de manière résistive.

Un autre choix, tout aussi arbitraire, serait de prendre la longueur de métal normal non recouverte plus la moitié de la longueur des zones de recouvrement entre le cuivre et l'aluminium. Les calculs précédents sont refaits avec cette nouvelle valeur de  $L_N$  dans le tableau 5.2. Les facteurs de réduction du courant critique deviennent alors 17 et 4 pour les échantillons ❶ et ❷ respectivement.

Nom	L	$I_{C_{max}}$	$k_B T$	$L_N$	$E_{Th}$	$I_{C_{Th}}$
Échantillon ❶	1200 nm	0,8 $\mu A$	23 $\mu eV$	1000 nm	13 $\mu eV$	14 $\mu A$
Échantillon ❷	900 nm	12 $\mu A$	22 $\mu eV$	700 nm	27 $\mu eV$	53 $\mu A$

TABLE 5.2 – Paramètres des deux échantillons.  $L_N$  est la longueur de métal normal ou seule la moitié de la zone de recouvrement est comptée.  $E_{Th}$  est donné pour cette nouvelle valeur de  $L_N$ .  $I_{C_{Th}}$  est calculé à partir de  $R_N$ ,  $T$  (tableau 5.1) et  $E_{Th}$ .

### 5.2.4 Influence de la pointe

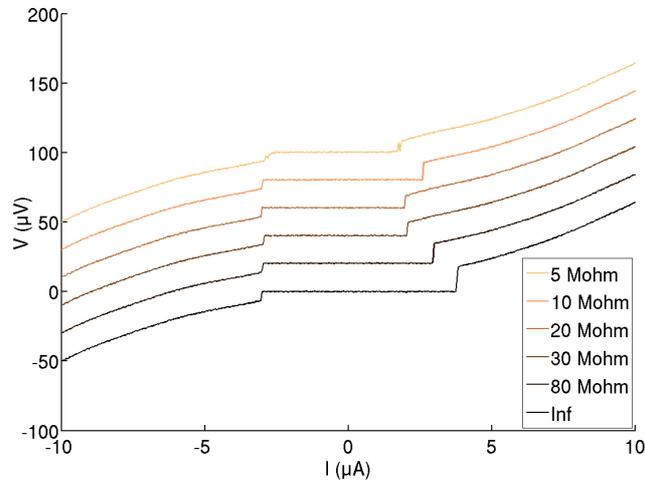


FIGURE 5.7 – Caractéristiques IV de la jonction mesurées en augmentant le courant d'injection, avec un contact tunnel sur la partie normale de l'échantillon ❷. On lit donc le courant critique sur la moitié droite de la courbe et le courant de repiégeage sur la moitié gauche. On peut noter que le courant critique observé pour une jonction tunnel de 10  $M\Omega$  ne suit pas la tendance des autres données. Ceci est dû au hasard et il serait probablement plus faible si la mesure était reproduite.

Comme décrit dans la partie précédente, il est possible de réaliser simultanément des mesures de transport et des mesures locales avec la pointe. Ici on établit un contact tunnel entre la pointe et l'échantillon et l'on mesure la caractéristique courant-tension. Les courbes présentées figure 5.7 sont réalisées avec une tension nulle entre la pointe et l'échantillon.

De façon surprenante, les caractéristiques courant-tension sont modifiées par le contact tunnel. On observe le courant critique diminuer lorsque l'on approche la pointe alors qu'aucun changement de la résistance normale n'est observé. Ce changement est réversible tant que l'on n'abîme pas mécaniquement l'échan-

tillon. Le phénomène reste le même que le contact tunnel ait lieu sur le cuivre ou sur l'aluminium à 1  $\mu\text{m}$  de la jonction. Cette diminution du courant critique est donc vraisemblablement due au bruit apporté par la pointe.

Ce phénomène avait également été observé avec des pointes de niobium attaquées chimiquement et donc couvertes d'une épaisse couche d'oxyde. Pour obtenir un contact électrique, il faut écraser la pointe sur l'échantillon de plusieurs dizaines de microns. La surface en contact est alors bien supérieure à celle de la jonction (figure 5.8). Nous avons d'abord pensé à une modification réversible du cuivre due aux pressions énormes nécessaires pour établir un contact tunnel avec ces pointes. Cependant, ce n'est cohérent ni avec la conservation de la résistance normale ni avec l'indépendance de l'effet par rapport à la position de la pointe, mise clairement en évidence lors de l'utilisation des pointes EFM. Avec les pointes en niobium, la chute du courant critique apparaissait à des résistances tunnel très variables en fonction du contact (de plusieurs gigaohms à quelques dizaines de mégohms). Nous pensons donc que les variations de courant critique sont dues, pour les pointes en niobium, au couplage capacitif entre la pointe et l'échantillon. Dans ce cas particulier, la capacité augmente fortement lorsque l'épaisseur de vide séparant la pointe de l'échantillon devient négligeable devant l'épaisseur d'oxyde. Les variations de courant critique seraient donc liées à la surface de contact entre la pointe et l'échantillon.

Il est probable que le couplage avec l'échantillon soit différent pour les pointes EFM et pour celles en niobium. Une étude plus poussée du phénomène serait nécessaire pour mieux comprendre et caractériser ce couplage. Pour des jonctions Josephson qui sont particulièrement sensibles au bruit haute fréquence, il faut veiller à rester dans une gamme de résistance tunnel qui ne modifie pas trop les comportements que l'on veut observer. Pour les expériences présentées ici, il faudrait idéalement travailler avec une résistance tunnel minimale d'environ 100  $\text{M}\Omega$ .

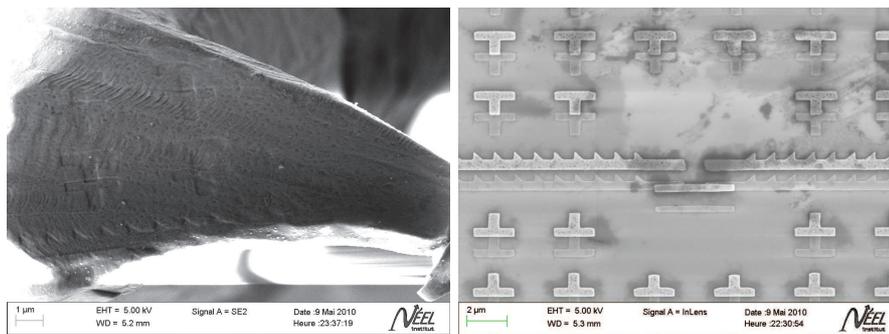


FIGURE 5.8 – Pointe en niobium après STM et à droite la jonction correspondante. On remarque que les motifs ont été très nettement imprimés dans la pointe, quasiment sans déformer l'échantillon.

## 5.3 Spectroscopies locales

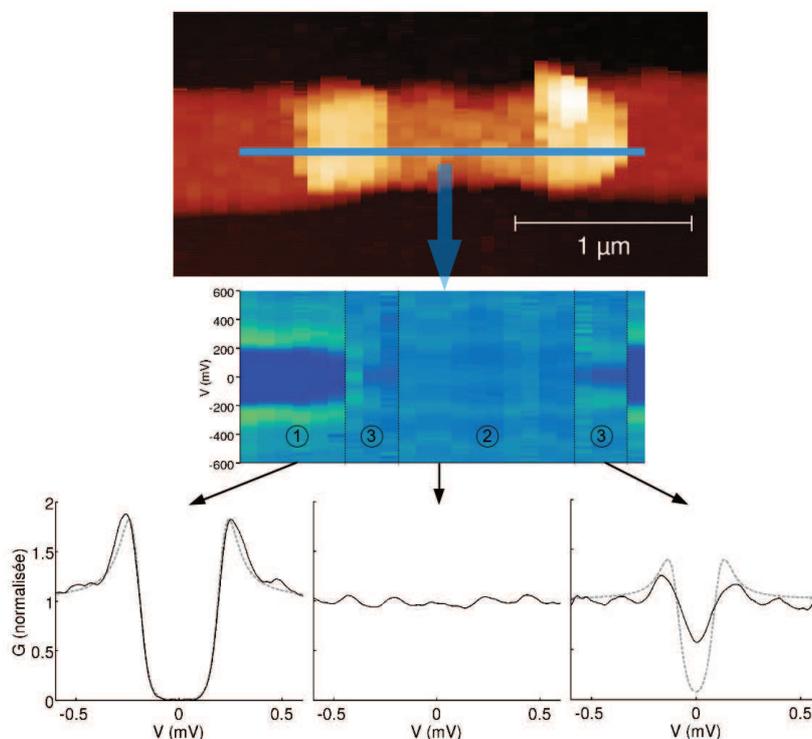


FIGURE 5.9 – *Haut* : Image AFM de l'échantillon Spectroscopies ❶. *Milieu* : Spectroscopies réalisées tous les 100 nm le long de la ligne bleue à courant de polarisation nul. La conductance différentielle  $G$  est représentée par la couleur : bleu foncé lorsque  $G$  est nulle et vert clair pour  $G \approx 2$ . La tension de polarisation est en ordonnée et l'abscisse est la même que sur l'image AFM. *Bas* : Trois spectroscopies caractéristiques des densités d'état de l'aluminium, du cuivre et la zone de recouvrement aluminium/cuivre sont représentées en bas. Les courbes en pointillé sont calculées avec la théorie BCS et une température de 270 mK. Le gap de la courbe de gauche est de 210  $\mu\text{eV}$ .

L'objectif est, ici, d'obtenir une image de la densité d'états le long de l'échantillon. Après avoir localisé l'échantillon, on arrête de faire vibrer le diapason pour passer en mode STM et l'on effectue des spectroscopies en différents points de l'échantillon. Dans le meilleur des cas, on obtient les mesures effectuées sur l'échantillon ❶ présentées figure 5.9. Chaque courbe est mesurée avec une résistance tunnel de 10 M $\Omega$  et comprend 1000 points mesurés chacun sur une période 20 ms afin de moyennner le bruit à 50 Hz. Les courbes enregistrées sont la moyenne de 10 mesures entre lesquelles la régulation STM est réactivée pendant quelques secondes afin de corriger les éventuelles dérives. La dérivée est

ensuite calculée numériquement avec un filtrage gaussien sur 12 points suivant la méthode détaillée dans l'annexe A. La même méthode est appliquée pour toutes les spectroscopies présentées ultérieurement.

Sur l'image de la densité d'états, on reconnaît clairement 3 zones :

- zone 1 : L'aluminium, dont la densité d'états correspond à une densité d'états BCS.
- zone 2 : Le centre du barreau de cuivre où la densité d'états mesurée est constante comme dans un métal normal. Les légères oscillations semblent reproductibles d'une courbe à l'autre.
- zone 3 : La zone où le cuivre recouvre l'aluminium dans laquelle on observe un creux dans la densité d'états sur une bande d'énergie d'environ 100  $\mu\text{eV}$ .

On peut ajuster les courbes sur l'aluminium avec l'expression

$$\frac{\partial I}{\partial V}(V) \propto - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial f_p}{\partial V}(E - eV) n_e(E) dE$$

justifiée au chapitre 1.2.3 en utilisant la densité d'états du modèle BCS pour  $n_e$ . Dans la zone 1, on obtient alors un gap de 210  $\mu\text{eV}$  pour l'aluminium et une température électronique de 270 mK pour la pointe. La température mesurée par le thermomètre à coté de l'échantillon est alors de 180 mK

Dans la zone 3, la densité d'états ne correspond pas à ce que l'on attend pour un gap induit car la densité d'états n'est pas nulle dans le gap. Pour s'en rendre compte, on peut comparer la mesure à celle que l'on obtiendrait avec un gap BCS de même largeur à cette température. Dans la zone 2, d'après le tableau 5.1, on s'attend à voir un gap induit dans la partie normale de  $3,12E_{Th} = 34 \mu\text{eV}$ , ce qui est notablement inférieur au moyennage dû à la température d'environ  $4k_B T = 93 \mu\text{eV}$ . La conductance différentielle étant la convolution de la densité d'états et d'une courbe en cloche de largeur  $4k_B T$ , il est compréhensible que l'on n'observe pas le gap induit.

Pour cette raison, nous avons modifié les dimensions pour réaliser l'échantillon ② dont une image AFM est présentée figure 5.2. La partie normale a été raccourcie pour atteindre environ 500 nm et l'épaisseur de l'aluminium a été doublée pour que la supraconductivité ne soit pas détruite par le métal normal à proximité de la jonction. L'énergie de Thouless est bien supérieure et l'on s'attendrait à observer un gap induit d'environ 165  $\mu\text{eV}$ , qui serait cette fois observable à température équivalente.

Sur cet échantillon, c'est l'aluminium qui recouvre le cuivre comme décrit précédemment. Lors de cette expérience, il était très difficile d'obtenir un contact tunnel stable à plusieurs endroits sur l'échantillon et il n'a donc pas été possible de faire une cartographie complète de la densité d'états comme dans l'échantillon

①. Cependant, on retrouve qualitativement les trois zones précédentes :

- La spectroscopie réalisée sur l'aluminium massif donne une température de 280 mK et un gap de 250  $\mu\text{eV}$ .
- Au centre de l'échantillon, on observe une légère diminution de la densité d'états (environ 20%) sur une largeur identique au gap de l'aluminium massif. Cependant, cette densité d'états ne correspond pas du tout à celle à laquelle on s'attend dans le cas de l'effet de proximité [21].

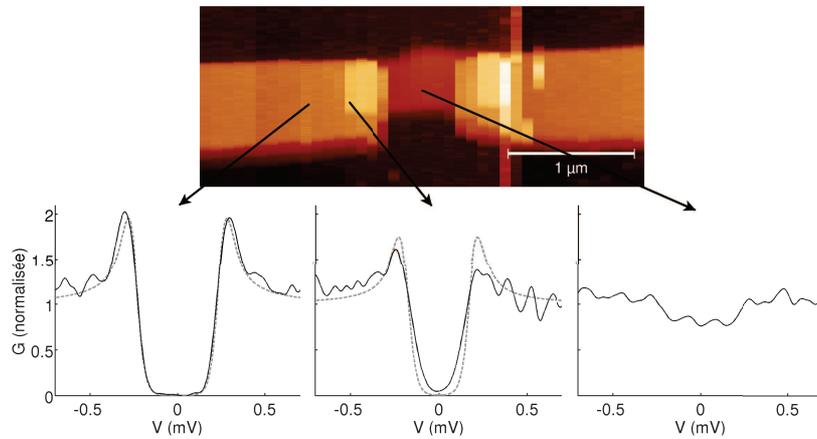


FIGURE 5.10 – Haut : Image AFM de l'échantillon ②.

Bas : Spectroscopies réalisées à courant de polarisation nul. Elles sont représentatives de différentes densités d'états observables sur cet échantillon. En pointillé, des courbes théoriques obtenues avec la théorie BCS et une température de 280 mK. Le gap de la courbe de gauche est de 250  $\mu$ eV.

- Sur les zones où les deux métaux se superposent, on observe clairement un effet de proximité inverse qui modifie la densité d'états de l'aluminium. Le gap diminue à une valeur d'environ 180  $\mu$ eV et pour cet échantillon aussi, l'arrondi de la courbe ne peut pas être expliqué par l'arrondi thermique dû à la pointe. Si l'on utilise la théorie BCS pour ajuster la courbe, on trouve une température de 450 mK.

Un gap est vraisemblablement présent dans la partie normale sans quoi l'on n'observerait pas de courant critique. Des jonctions Josephson SNS composées de cuivre et d'aluminium ont été étudiées en transport par de nombreux groupes sans que l'on observe de comportement inattendu. Il semble donc que le problème ait lieu à la surface de l'échantillon.

## 5.4 Spectroscopies sur des bicouches SN

Pour essayer de lever l'ambiguïté, des spectroscopies ont été réalisées en collaboration avec Sylvain Martin et Clemens Winkelmann dans un microscope comparable au notre sur deux échantillons :

- Un dépôt pleine plaque de 200 nm d'aluminium recouvert de 10 nm d'argent.
- Un dépôt pleine plaque de 150 nm d'aluminium recouvert de 10 nm de cuivre.

L'épaisseur d'aluminium est environ égale à la longueur de cohérence [100, 101] ce qui nous assure d'avoir un bon réservoir supraconducteur. L'épaisseur de

métal normal est choisie très faible afin de ne pas influencer le supraconducteur. On se trouve dans le cas où  $E_{Th} \gg \Delta$  pour lequel la densité d'états dans le métal normal devrait être proche de celle du supraconducteur [102, 103]. L'expérience a été réalisée en un seul refroidissement avec une seule pointe EFM du même modèle que celles utilisées pour mes expériences. Les mesures de densité d'états sont présentées figure 5.11.

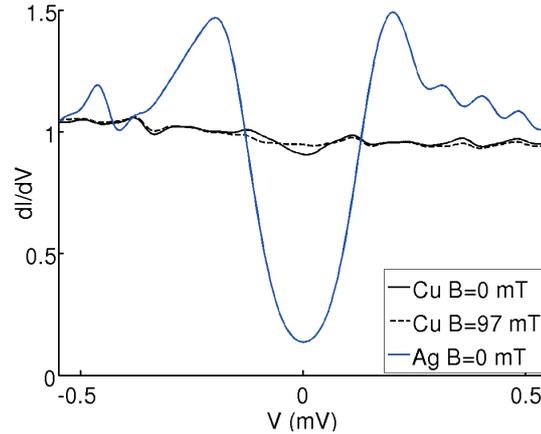


FIGURE 5.11 – Spectroscopies réalisées à 90 mK avec une pointe de EFM et une résistance tunnel de 2,2 M $\Omega$ . Les échantillons sont constitués d'une couche massive d'aluminium recouverte de 10 nm d'argent pour une courbe et de 10 nm de cuivre pour l'autre. La courbe en pointillé est mesurée au même endroit avec un champ magnétique suffisant pour détruire la supraconductivité de l'aluminium.

On reconnaît clairement un fort effet de proximité dans la densité d'états de l'argent. Si on ajuste la courbe avec la théorie BCS, on trouve un gap de 140  $\mu\text{eV}$  et une température de la pointe de 450 mK.

Pour le cuivre au contraire, on n'observe qu'une très faible diminution de la densité d'états au niveau de l'énergie de Fermi. Si l'on détruit la supraconductivité de l'aluminium à l'aide d'un champ magnétique, cette structure disparaît également. C'est donc bien la signature de l'effet de proximité dans le cuivre. Ces mesures ont, bien sûr, été reproduites à différents points de l'échantillon.

Nos échantillons séjournent habituellement plusieurs jours dans l'atmosphère avant d'être refroidis. Pendant ce temps, le cuivre se recouvre d'une fine couche d'oxyde qui peut présenter des moments magnétiques. Cet oxyde magnétique pourrait perturber fortement les corrélations électroniques sur la surface de l'échantillon et empêcher d'observer des densités d'état représentatives du matériau massif.

Sonder l'îlot central avec une sonde tunnel lithographiée permettrait de connaître facilement la densité d'états du cuivre massif. Des échantillons similaires où le cuivre serait remplacé par de l'argent [95, 21] ou de l'or, qui s'oxydent beaucoup moins, permettraient aussi d'observer correctement la densité d'états

du métal normal. Cette solution présente cependant des problèmes pratiques : l'or a une résistivité légèrement plus élevée mais surtout il diffuse facilement dans l'aluminium ce qui dégrade rapidement l'interface S/N. L'argent quant à lui est un bon candidat mais nous avons rencontré de gros problèmes d'adhésion au substrat, même avec une couche d'accroche comme le titane, ce qui nous a empêché de fabriquer des échantillons de façon fiable. La solution la plus simple dans un premier temps serait peut-être de décaper la surface de l'échantillon avec un plasma d'argon juste avant de l'introduire dans le microscope.

## 5.5 Spectroscopies hors équilibre

L'objectif suivant est bien sûr de réaliser des spectroscopies hors équilibre. Un contact STM est établi entre la pointe et l'échantillon ② à 1,1  $\mu\text{m}$  du centre de la jonction. Des spectroscopies pour différents courants d'injection allant de 0 à 13  $\mu\text{A}$  sont ensuite effectuées. Les mesures sont présentées figure 5.12.

Toutes ces courbes, à l'exception de la première, sont réalisées pour des courants supérieurs au courant critique de la jonction. Le décalage progressif des courbes vers la gauche quand on augmente le courant est dû au fait que la tension de polarisation  $V$  est appliquée d'un côté de la jonction alors que le contact tunnel est établi de l'autre. La tension entre la pointe et l'échantillon est donc  $V + R_N(I).I$  avec  $I$  le courant traversant la jonction. On remarque aussi des oscillations importantes autour de la résistance normale. Elles sont dues à un bruit mécanique causé vraisemblablement par un mauvais état de surface de la pointe ou de l'échantillon, rendant la barrière tunnel instable.

Chaque courbe est ajustée avec la théorie BCS ce qui nous donne le gap du supraconducteur et la température de la pointe. Le gap nous fournit une indication sur la température du supraconducteur, cependant la conversion n'est fiable qu'à des températures supérieures à 0,5 K car le gap varie trop peu à basse température. Les mesures sont présentées figure 5.13. Comme on peut s'y attendre, lorsque le courant augmente, le gap de l'aluminium diminue, ce qui correspond à une augmentation de la température électronique locale. On remarque que la température de la pointe augmente aussi jusqu'à s'élever de 100 mK pour un courant de 12  $\mu\text{A}$ .

On pourrait aussi s'attendre à une modification de la densité d'états due au courant traversant le supraconducteur comme décrit par Anthore *et al.* dans [104]. Il en résulterait non seulement une diminution du gap mesuré mais également un élargissement et une diminution de la hauteur des pics de cohérence. Cependant, les calculs numériques que j'ai effectués montrent que le courant injecté est trop faible par rapport au courant critique de l'aluminium pour voir une déviation par rapport à la théorie BCS. Le chauffage du supraconducteur par l'élément normal empêche d'atteindre le courant critique intrinsèque du fil supraconducteur.

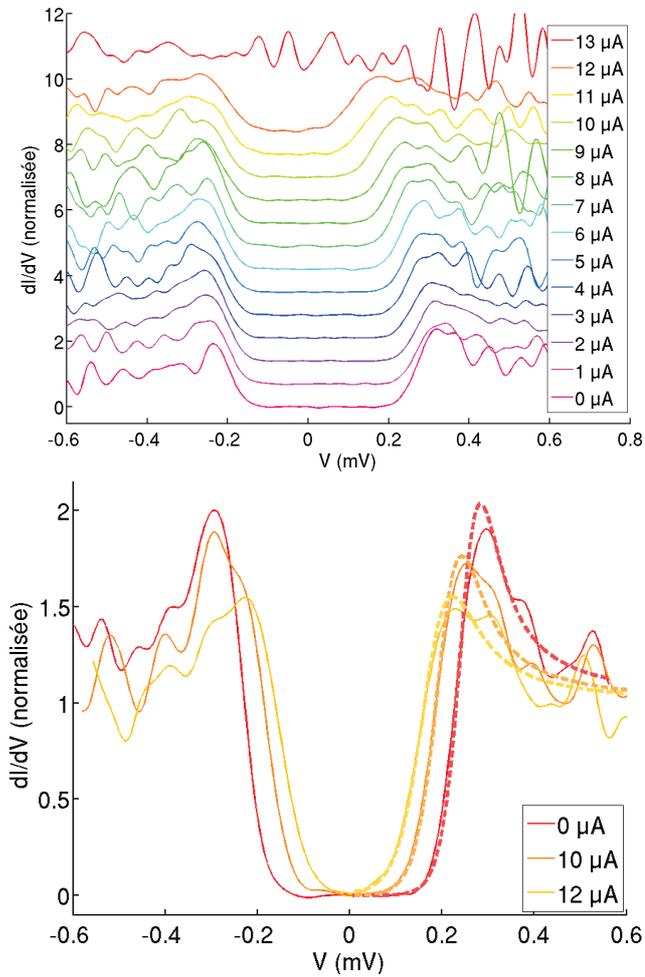


FIGURE 5.12 – Courbes mesurées sur l'échantillon ② sur un fil d'aluminium à  $1,1 \mu\text{m}$  de la jonction avec une résistance tunnel de  $20 \text{ M}\Omega$ . En bas, on peut comparer les mêmes courbes qu'en haut pour les courants proches du courant critique avec, en pointillé, les courbes calculées avec la théorie BCS et une température de  $260 \text{ mK}$ . Le gap est de  $250 \mu\text{eV}$  à courant nul.

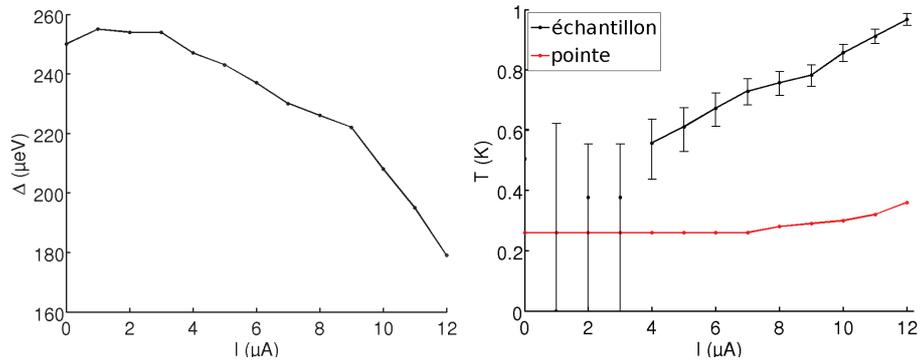


FIGURE 5.13 – *Gap et température du supraconducteur en fonction du courant d'injection en noir et température de la pointe en rouge. Ces courbes sont obtenues en ajustant les mesures de la figure 5.12. Les barres d'erreurs sur la courbe de droite sont déduites de l'erreur sur le mesur du gap ( $\pm 5 \mu\text{eV}$ ).*

## 5.6 Modèle thermique

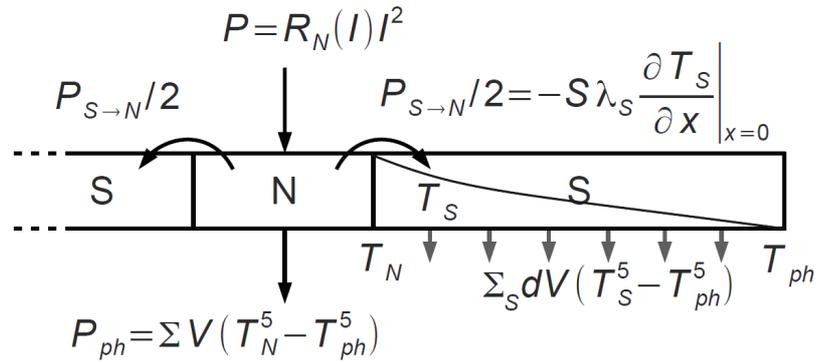


FIGURE 5.14 – *Modèle utilisé pour évaluer la dissipation thermique dans nos jonctions SNS.*

Le modèle thermique que nous avons retenu est schématisé figure 5.14. La partie normale comprend l'îlot de cuivre et éventuellement un certain volume d'aluminium normal dépendant du courant, le tout à une température  $T_N$ . Cette partie est connectée par les deux amenées de courant en aluminium supraconducteur et l'ensemble est mesuré avec une mesure 4 fils avec des contacts placés à  $95 \mu\text{m}$  de part et d'autre. La puissance  $P = IV$  mesurée est dissipée uniquement dans la partie normale. Cette puissance est évacuée par deux canaux :

- Le couplage électron-phonon dans la partie normale qui évacue une puissance

$$P_{e-ph} = \Sigma U (T_N^5 - T_{ph}^5) \quad (5.1)$$

où  $\Sigma$  est la constante de couplage électron-phonon valant environ  $2.10^9$   $\text{W.m}^{-3}.\text{K}^{-5}$  dans le cuivre [105],  $U$  est le volume de métal normal et  $T_{ph}$  la température des phonons.

- La conduction le long des fils supraconducteurs d'environ  $95 \mu\text{m}$  de part et d'autre. La chaleur va en majeure partie être transportée jusqu'aux réservoirs normaux à l'autre extrémité du fil (d'après nos simulations numériques) mais va également être absorbée à travers l'interaction électron-phonon le long du fil.

Dans ce modèle, nous faisons l'hypothèse qu'il existe un quasi-équilibre thermique dans le cuivre. En effet, la tension aux bornes de l'îlot normal reste suffisamment faible pour que, même avec des réflexions d'Andreev multiples, les électrons relaxent avant d'avoir atteint une énergie suffisante pour s'échapper au dessus du gap du supraconducteur. Ils restent donc confinés dans l'élément normal, comme décrit au chapitre 2.4. Pour cette raison, on peut considérer que la majorité des électrons suivent une distribution thermique de température  $T_N$  [67].

Pour connaître l'énergie s'échappant dans le supraconducteur, il faut résoudre l'équation de diffusion dans le fil afin de connaître le profil de température  $T_S$  le long du fil :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda_S \frac{\partial T_S}{\partial x} \right) + \Sigma_S (T_S^5 - T_{ph}^5) = 0 \quad (5.2)$$

avec  $\lambda_S$  et  $\Sigma_S$  la conductivité thermique et la constante de couplage électron-phonon du supraconducteur. Ces deux quantités dépendent du nombre de quasiparticules présentes dans le supraconducteur, c'est à dire de la portion de la fonction de Fermi  $f$  supérieur au gap  $\Delta$ . Pour  $k_B T \ll \Delta$  :

$$\int_{\Delta}^{+\infty} f(E, T) dE \approx \exp \left( -\frac{\Delta}{k_B T} \right) \quad (5.3)$$

On s'attend donc à ce que ces deux grandeurs décroissent exponentiellement avec la température. On peut démontrer qu'elles se calculent à partir des formules suivantes :

$$\Sigma_S = 0.98 \exp \left( -\frac{\Delta}{k_B T_S} \right) \Sigma_N \quad (5.4)$$

avec  $\Sigma_N$  le couplage électron-phonon dans l'état normal d'après [106]. Dans l'aluminium elle vaut environ  $0,2.10^9$   $\text{W.m}^{-3}.\text{K}^{-5}$  soit 10 fois moins que dans le cuivre [107]. La conductivité thermique est calculée avec la loi de Wiedemann-Franz

$$\lambda_S = r(T_S) L_0 \sigma_N T_S \quad (5.5)$$

où  $L_0$  est le nombre de Lorentz valant  $2,45.10^{-8}$   $\text{W}.\Omega.\text{K}^{-2}$ ,  $\sigma_N$  la conductivité électrique dans l'état normal et  $r(T_S)$  le rapport entre la conductivité thermique

dans l'état supraconducteur et dans l'état normal :

$$r(T_S) = \frac{3}{2\pi^2} \int_{\Delta/k_B T_S}^{+\infty} \left( \frac{x}{\cosh(x/2)} \right)^2 dx \quad (5.6)$$

d'après [14]. À basse température,  $r(T_S) \sim \frac{3}{2\pi^2} \left( \frac{\Delta}{k_B T_S} \right)^2 \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T_S}\right)$ . La propagation de la chaleur ralentit donc exponentiellement avec la température dans le fil supraconducteur, mais le couplage avec les phonons diminue lui aussi exponentiellement. Les deux contributions conservent donc des ordres de grandeurs comparables et ce sont les parties polynomiales de leurs dépendances en  $T_S$  qui font la différence. On se rend compte, après résolution numérique, que l'interaction électron-phonon joue un rôle important pour  $T_S \approx 1$  K et devient négligeable pour  $T_S < 0.5$  K. On peut observer sur les profils de température, figure 5.15, l'inflexion des courbes aux températures les plus chaudes provoquée par la thermalisation avec les phonons.

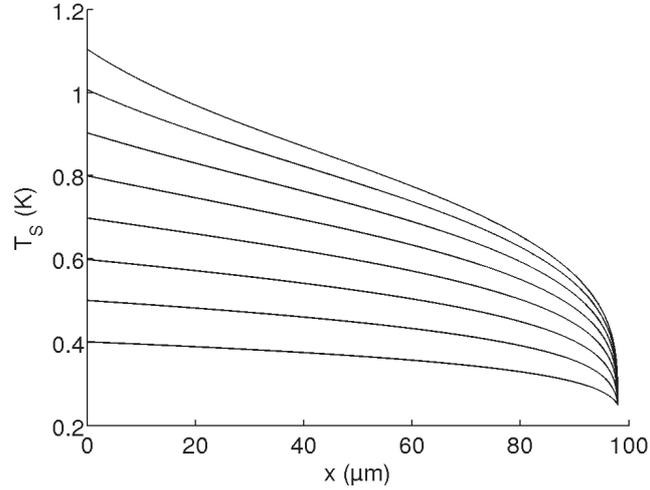


FIGURE 5.15 – Profils de température  $T_S$  en fonction de la position le long du fil supraconducteur. La température de l'îlot normal varie de 400 mK à 1,1 K et la température du thermostat est de 260 mK.

La conduction le long du fil est donc le phénomène prépondérant. On peut en déduire la puissance s'échappant dans les fils d'aluminium :

$$P_{N \rightarrow S} = -2S\lambda_S \left. \frac{\partial T_S}{\partial x} \right|_{x=0} \quad (5.7)$$

Dans ce calcul,  $S$  est la section du fil d'aluminium.

Dans les paramètres de calcul, j'ai choisi de prendre  $T_{ph}$  égale à la température extraite des spectroscopies à l'équilibre, soit 260 mK. Cela suppose qu'à l'équilibre, on considère la température des électrons dans la pointe égale à celle

des phonons dans le substrat. Ce n'est pas évident car à très basse température, il devient difficile de bien thermaliser les électrons. Il est donc possible que la température des phonons soit légèrement plus faible. Heureusement, ce paramètre n'influe que pour les faibles valeurs de  $T_N$ , c'est à dire aux températures où le gap  $\Delta$  est quasiment constant. La seconde approximation consiste à considérer que la température des phonons du métal normal et du supraconducteur ne varie pas. Elle est donc toujours égale à la température du substrat, ce qui revient à négliger la résistance de Kapitza entre l'échantillon et le substrat [59]. Si l'on introduisait un couplage de Kapitza entre le substrat et le métal normal, la puissance transférée des électrons aux phonons serait très légèrement inférieure.

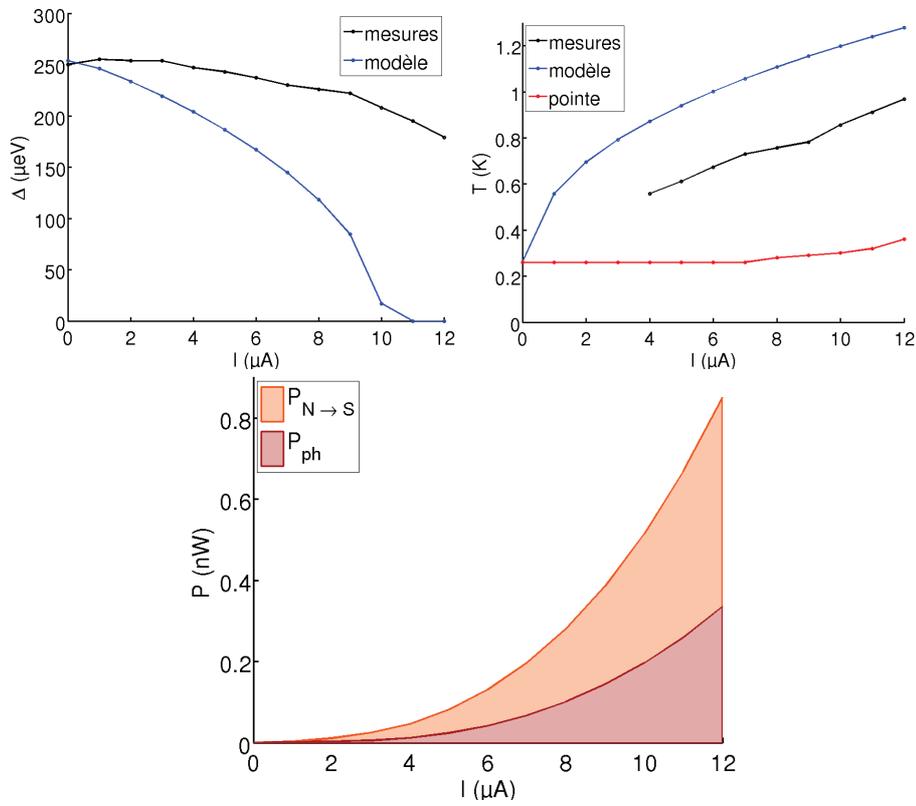


FIGURE 5.16 – Courbes du gap local dans le supraconducteur et de la température dans le métal normal en fonction du courant d'injection. La troisième figure montre la part d'énergie évacuée par l'interaction électron-phonon dans le métal normal,  $P_{e-ph}$ , et celle qui s'échappe à travers les fils d'aluminium,  $P_{N \rightarrow S}$ , dans l'énergie totale dissipée.

Ces équations ont été résolues avec Matlab en deux temps : nous avons d'abord calculé la dépendance de  $P_{N \rightarrow S}$  en fonction de  $T_N$ , puis nous avons

calculé la température  $T_N$  nécessaire pour évacuer la puissance  $IV$ . Les résultats sont tracés figure 5.16. On remarque que les différentes puissances calculées sont du bon ordre de grandeur. Dans ce modèle, les seuls paramètres n'étant pas connus avec précision sont les constantes de couplage électron-phonon des deux matériaux ainsi que le volume de conducteur dans l'état normal qui est estimé à partir de la résistance. Ce modèle offre donc une explication qualitative satisfaisante du phénomène.

Cependant, les températures calculées sont plus élevées que celles mesurées. Pour ajuster correctement le modèle aux données, il faut multiplier par 20 la conductivité à travers les fils d'aluminium (ou diviser par environ 20 leurs longueur). Sur la seconde courbe, on voit que la pointe STM chauffe de 100 mK pour un courant de 12  $\mu\text{A}$ , ce qui est considérable car la couche métallique qui la recouvre est bien plus massive que le métal constituant l'échantillon. On peut donc penser qu'une partie importante de la chaleur s'échappe dans la pointe après n'avoir traversé qu'une très petite longueur ( $\sim 0,5 \mu\text{m}$ ) de fil supraconducteur. Ceci augmente d'autant la chaleur s'échappant par ce canal.

Il semble que le rôle de la pointe soit indispensable pour expliquer la dissipation thermique dans notre échantillon. Il est possible que le couplage soit le même que celui responsable de la diminution du courant critique lorsque l'on établit un contact tunnel à proximité ou sur le métal normal (section 5.2.4). Pour mieux comprendre le phénomène, il serait intéressant d'effectuer cette étude pour différentes résistances tunnel.

## 5.7 Spectroscopies sur l'îlot normal

Cette section présente les résultats que nous avons obtenus avec notre nouveau microscope développé par S. Martin et C. Winkelmann. Ce microscope est similaire à celui présenté au chapitre 4 et permet de faire le même type de mesure. Il possède en plus une bobine permettant d'appliquer un champ magnétique orthogonal au plan de l'échantillon pouvant atteindre 1,6 T. Ce champ magnétique est équivalent au passage d'un courant pour le supraconducteur [104] et permet donc d'affaiblir ou de détruire la supraconductivité. En ce qui concerne la physique des jonction Josephson SNS, cela n'apporte que peu d'information nouvelle. Les mesures en champ magnétique ne seront donc pas discutées ici.

Nous avons utilisé ce microscope pour mesurer une jonction SNS similaire aux précédentes. Une première section est consacrée à la description du microscope, puis nous comparerons les données en transport et en champ proche à celles discutées précédemment. Nous verrons en particulier qu'il a été possible d'effectuer des mesures hors équilibre sur le cuivre formant la jonction Josephson. Enfin, nous comparerons notre modèle thermique appliqué à cet échantillon aux données expérimentales.

### 5.7.1 Microscope

Le microscope utilisé est représenté figure 5.17. Il a été dessiné sur le modèle de S. H. Pan [108] et est équipé de tables piézoélectriques qui permettent de déplacer l'échantillon sur plusieurs millimètres. Ces tables disposent de capteurs capacitifs pour mesurer les déplacements. Ce dessin plus compact et symétrique produit des dérives reproductibles d'environ 20  $\mu\text{m}$  en X et 80  $\mu\text{m}$  en Y lors du refroidissement.

La sonde est composée d'une pointe EFM collée sur un résonateur piézoélectrique en quartz [96]. Ces résonateurs, nommés LER (Length Extension Resonator), vibrent suivant le premier mode longitudinal antisymétrique (figure 5.17). Leur fréquence de résonance est de 1 MHz et nous travaillons avec une amplitude de vibration de l'ordre de l'angström. Sur ce microscope, la sonde est excitée électriquement comme décrit au chapitre 4.2.3.

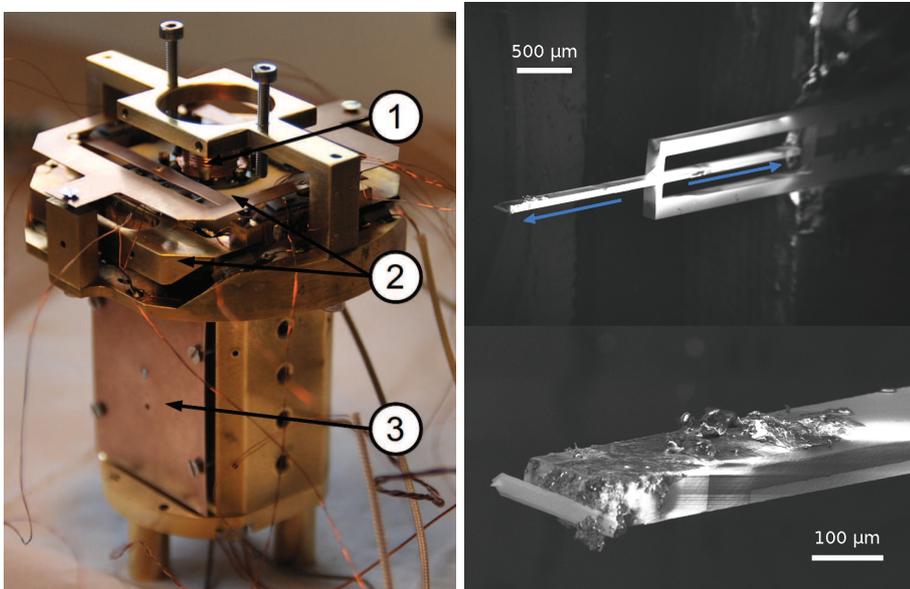


FIGURE 5.17 – À gauche : microscope avec (1) l'échantillon, (2) les moteurs X et Y et (3) le châssis contenant le moteur Z, le tube scanner et la sonde. À droite : détails de la sonde avec une pointe EFM collée à l'extrémité. Les flèches indiquent le mode de vibration du résonateur.

La connectique est, elle aussi, légèrement différente : l'une des électrodes de l'échantillon est connectée à la masse, et la tension de polarisation tunnel est appliquée sur la pointe qui sert également à mesurer le courant tunnel. Pour cela, nous utilisons un amplificateur tunnel inspiré du travail de H. le Sueur et al. [109]. Indépendamment de cela, l'échantillon est polarisé en courant grâce à une résistance et une source de tension en série. De plus, un amplificateur de tension flottant permet d'effectuer des mesures de transport en configuration 4

fil. Le montage est résumé par le schéma 5.18.

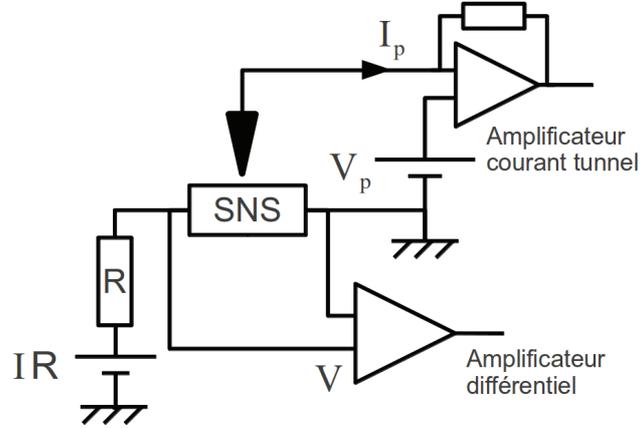


FIGURE 5.18 – Schéma électrique des appareils utilisés dans ce microscope pour mesurer simultanément l'échantillon SNS en transport (avec  $I$  et  $V$ ) et en STM (avec  $I_p$  et  $V_p$ ).

L'ensemble du microscope est placé sur un réfrigérateur à dilution de type sionludi très proche de celui utilisé pour les autres expériences. La température de la plaque froide atteinte pendant l'expérience présentée ici est de 90 mK.

### 5.7.2 Mesures de transport

Comme décrit dans le tableau 5.3, l'échantillon ③, mesuré ici, a des dimensions proches de celles de l'échantillon ①. Il a été réalisé à la plateforme Nanofab suivant la même procédure que les échantillons ① et ②. Il est important de noter que dans cet échantillon, le cuivre recouvre l'aluminium. Cela permet de sonder l'effet de proximité au niveau des zones de recouvrement entre les deux métaux mais risque de couper le barreau de cuivre au niveau de la marche d'aluminium (figure 5.19).

L	w	$d_{Cu}$	$d_{Al}$	jonctions
1400 nm	300 nm	30 nm	35 nm	$2 \times 200$ nm
$L_N$	$R_N$	$E_{Th}$	$T$	$I_{C_{Th}}$
1000-1400 nm	4,2-5,8 $\Omega$	13-6,7 $\mu$ eV	$230 \pm 30$ mK	18-4 $\mu$ A

TABLE 5.3 – Caractéristiques de l'échantillon ③. Les valeurs extrêmes de  $L_N$  représentent  $L$  avec ou sans la prise en compte des zones de recouvrement. La température électronique  $T$  a été déterminée par une mesure de spectroscopie sur une couche d'aluminium lors d'une expérience postérieure.  $R_N$ ,  $E_{Th}$  et  $I_{C_{Th}}$  sont calculés à partir des paramètres précédents.

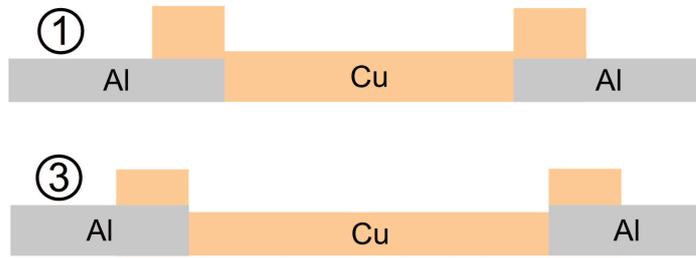


FIGURE 5.19 – Schéma en coupe de la structure attendue pour l'échantillon ③. La structure de l'échantillon ① est rappelée pour comparaison. Les épaisseurs ont été multipliées par 4 par rapport aux longueurs pour une meilleure lisibilité.

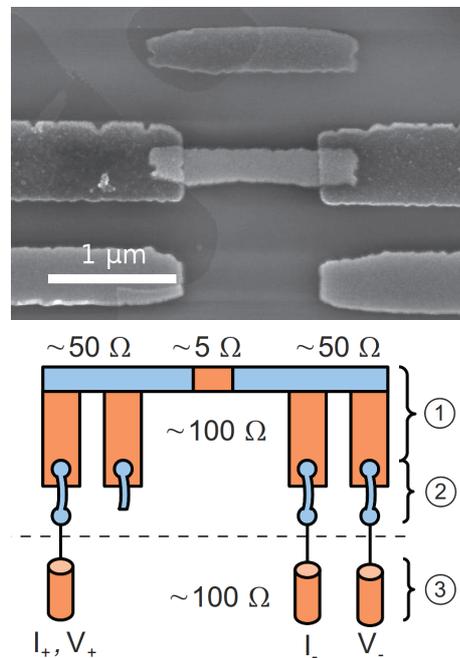


FIGURE 5.20 – En haut : Image MEB de la jonction SNS. En bas : Schéma représentant la manière dont est connecté l'échantillon avec (1) l'échantillon, (2) les micro-soudures et (3) les fils du cryostat. Les parties normales sont coloriées en orange et les parties supraconductrices en bleu.

Lors du refroidissement, une des micro-soudures a cassé. Les mesures de transport sont donc faites avec 3 fils, suivant le schéma figure 5.21. Lors d'expériences précédentes, nous avons remarqué que si l'on superpose 35 nm d'aluminium et 30 nm de cuivre, la supraconductivité de l'aluminium est détruite

et l'ensemble a un comportement résistif. Dans l'échantillon ③, l'aluminium est supraconducteur lorsque les motifs sont suffisamment fins pour ne pas se superposer et devient résistif pour les motifs plus larges loin de la jonction. Dans les mesures de transport, les résistances d'un fil et d'une partie des amenées de courant s'ajoutent donc à celle de notre jonction SNS.

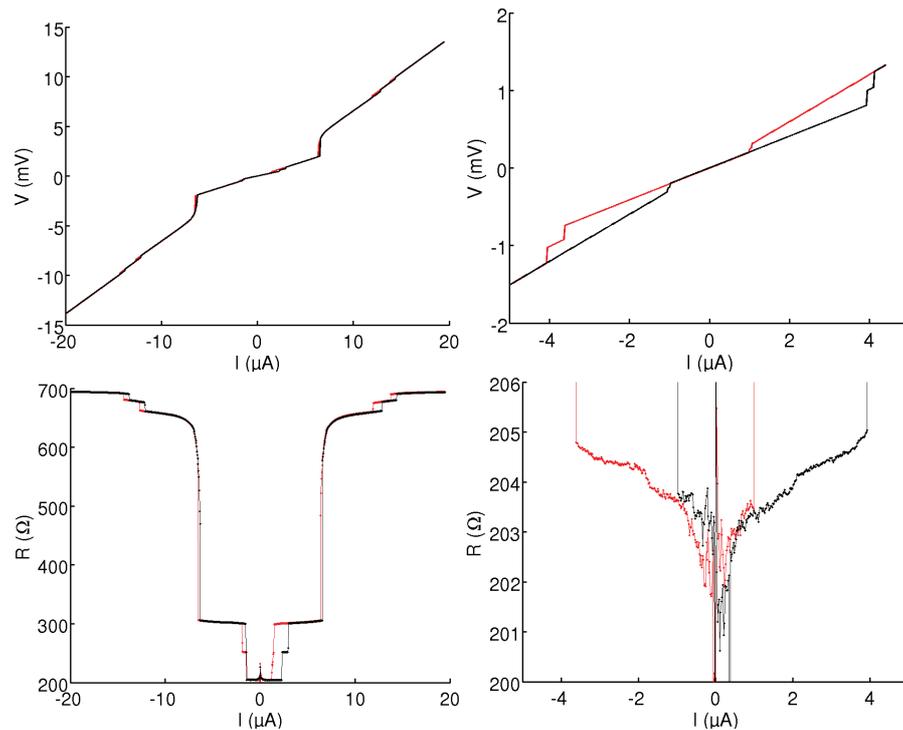


FIGURE 5.21 – *En haut* : Caractéristiques courant-tension de l'échantillon mesurées en augmentant le courant (courbe noire) puis en le diminuant (courbe rouge).

*En bas* : Caractéristiques courant-résistance déduite des courbes au dessus en calculant le rapport  $R = V/I$ . Ces données ne sont pas filtrées numériquement ce qui explique le bruit à faible courant qui apparaît lors du calcul.

Sur les mesures de transport figure 5.21, on remarque trois régimes résistifs successifs :

- À faible courant, la résistance varie de 203 à 205  $\Omega$ . Ceci correspond à la résistance d'une partie résistive de l'échantillon et d'un fil du cryostat.
- Un premier courant critique proche de 4  $\mu\text{A}$  fait transiter l'échantillon sur un second palier. Ensuite, la résistance vaut sur ce palier entre 296 et 302  $\Omega$ . Par rapport au régime précédent, ce supplément de résistance correspond à la transition de la partie supraconductrice des amenées de courant, de part et d'autre de l'îlot normal.

- Un second courant critique d'environ  $6,5 \mu\text{A}$  au dessus duquel la résistance atteint  $600\text{-}700 \Omega$ . Cette valeur étant bien supérieure à la résistance comprenant notre échantillon et le câblage du cryostat, nous attribuons ce saut à la transition du fil d'aluminium utilisé pour micro-souder l'échantillon au porte-échantillon.

En ce qui concerne l'interprétation de ces données, la première question est de savoir si la jonction SNS transporte un supercourant. La résistance calculée du barreau de cuivre est d'au moins  $4 \Omega$ . Si la jonction SNS avait un courant critique compris entre  $100 \text{ nA}$  et  $4 \mu\text{A}$ , le saut serait clairement visible dans la courbe de résistance. Comme un tel saut n'est pas observé, le courant critique serait donc identique à celui des fils de connexion supraconducteurs. Par ailleurs, l'échantillon ③ a été fabriqué dans les mêmes conditions que les échantillons précédents et il a été exposé à l'atmosphère quelques jours de plus que les échantillons ① et ②. Il est donc probable que les interfaces SN ne soient pas parfaites et que l'on ait un facteur de réduction du courant critique théorique d'au moins  $\alpha \approx 0,2$  (cf. section 5.2.3). Avec les conditions choisies dans le tableau 5.3 cela donnerait un courant critique compris entre  $0,8$  et  $3,6 \mu\text{A}$ . Pour mesurer, avec une jonction aussi longue, un courant critique environ égal au courant critique théorique le plus optimiste, il faudrait supposer que l'échantillon soit beaucoup mieux thermalisé et mieux isolé du bruit dans ce nouveau microscope.

Il est donc plus probable que le palier aux alentours de  $204 \Omega$  comprenne la résistance des fils et la résistance de l'îlot normal et que le courant critique, s'il existe, soit trop faible pour être mesuré. Un moyen de s'en assurer serait d'effectuer des spectroscopies de part et d'autre de la jonction SNS. Du côté qui n'est pas connecté à la masse, on observerait un décalage des courbes comme pour les mesures sur l'échantillon ②. Dans l'état résistif, un courant de  $2 \mu\text{A}$  décale l'énergie de Fermi d'environ  $10 \mu\text{eV}$  ce qui est tout à fait mesurable.

### 5.7.3 Spectroscopies locales

Comme précédemment la première mesure locale consiste à mesurer la densité d'états le long de l'échantillon à l'équilibre. Cette expérience a permis de sonder avec une grande précision la zone où le cuivre recouvre l'aluminium. Les spectroscopies sont effectuées tous les  $50 \text{ nm}$  avec une résistance tunnel de  $2 \text{ M}\Omega$ . Elles sont représentées avec leur emplacement sur l'image AFM figure 5.22.

On reconnaît une densité d'états typique de l'effet de proximité sur la zone où le cuivre recouvre l'aluminium. La première courbe donne un gap induit de  $110 \mu\text{eV}$ , ce qui est environ la moitié du gap de l'aluminium. De plus, on voit clairement l'amplitude du pseudo-gap diminuer lorsque l'on se dirige vers le centre du cuivre. Lorsque l'on quitte la zone de superposition, la densité d'états devient quasiment constante.

Ces mesures concordent avec celles réalisées sur l'échantillon ①. En particulier, la première courbe a quasiment la même valeur de gap et la même conductance différentielle à énergie nulle que pour la zone de recouvrement de l'échantillon ①. Bien qu'elle couvrent une portion beaucoup plus réduite de l'échantillon, ces mesures sont aussi deux fois plus rapprochées spatialement, ce

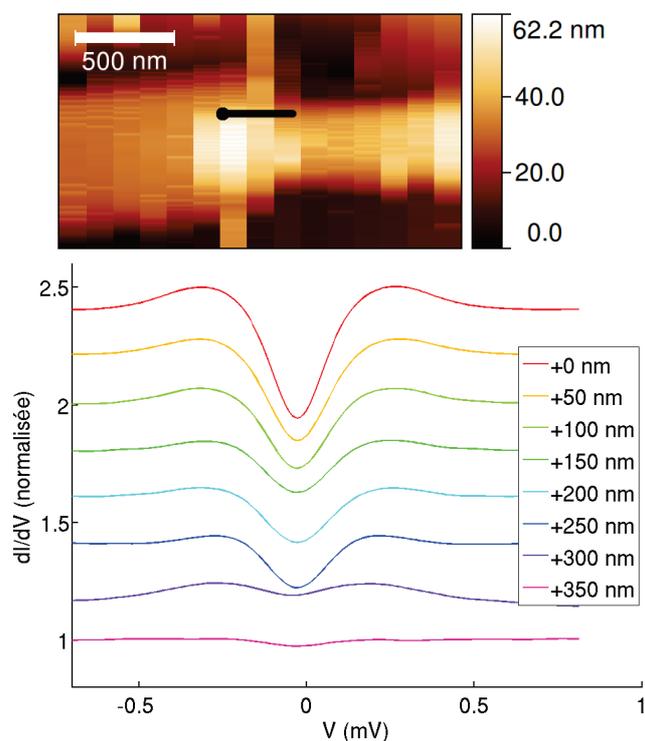


FIGURE 5.22 – Image AFM de l'échantillon ③ obtenue à basse température et spectroscopies réalisées le long de la jonction. Le point indique la position de la première courbe. La résistance tunnel est de  $2\text{ M}\Omega$ .

qui permet de mettre en évidence la modification continue de la densité d'états le long des interfaces SN.

#### 5.7.4 Spectroscopies hors équilibre

Nous avons ensuite réalisé des spectroscopies en polarisant l'échantillon avec un courant allant de 0 à  $3,5\ \mu\text{A}$  (figure 5.23). D'après l'image AFM, ces spectroscopies ont été réalisées en un point proche de la limite entre la zone où le cuivre recouvre l'aluminium et celle où le cuivre est présent seul. Cette position se situe entre l'abscisse de la sixième et de la septième courbe (coordonnées  $+250\text{ nm}$  et  $+300\text{ nm}$ ) sur la figure 5.22. Pourtant, la courbe mesurée à courant nul correspond à une densité d'états intermédiaire entre la première et la deuxième courbe mesurées précédemment. Ces mesures ayant été réalisées trois jours plus tard, il est possible que la position de l'échantillon ait dérivé de  $250\text{ nm}$ , même à basse température, et que l'on mesure la densité d'états près du centre de la zone de superposition.

On observe que lorsque le courant augmente, le gap induit diminue. La den-

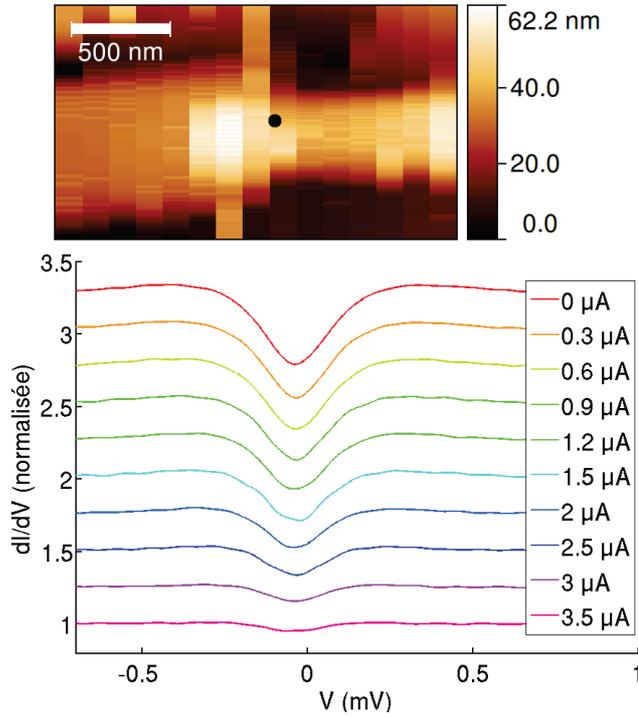


FIGURE 5.23 – Spectroscopies réalisées sur la zone de recouvrement en polarisant la jonction en courant. L’emplacement où sont réalisées ces spectroscopies tunnel est marqué d’un point sur l’image AFM. La résistance tunnel est de  $2\text{ M}\Omega$ .

sité d’états devient quasiment constante lorsque l’on s’approche du courant critique des fils d’aluminium. Ces mesures constituent nos premières mesures hors équilibre sur la partie normale d’une jonction SNS.

Nous avons également réalisé des spectroscopies en un deuxième point de l’échantillon ②. Les mesures et leur localisation théorique sur l’image AFM sont présentées figure 5.24. Elles ont été réalisées le même jour que les mesures sur le cuivre, il est donc très probable que la position réelle de la pointe par rapport à l’échantillon soit également décalée de la même quantité, soit 250 nm vers la gauche. Les spectroscopies sont alors effectuées sur l’aluminium très proche de la jonction, ce qui est cohérent avec les densités d’états observées.

On remarque que cette densité d’états supraconductrice ne possède pas de pics de cohérence et ne correspond donc pas à la densité d’états de la théorie BCS. C’est vraisemblablement la proximité du cuivre qui modifie la densité d’états de l’aluminium.

Le gap de ces courbes peut, cependant, être ajusté en prenant la théorie BCS et une température électronique de la pointe de 500 mK indépendante

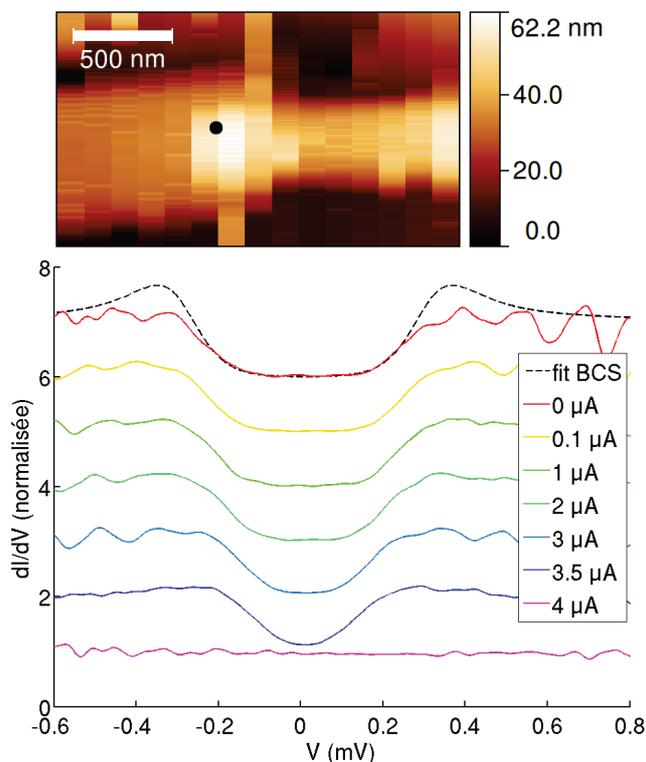


FIGURE 5.24 – Spectroscopies réalisées sur l'aluminium en polarisant la jonction en courant. L'emplacement où sont réalisées ces spectroscopies est marqué d'un point sur l'image AFM. La résistance tunnel est d'environ  $4 M\Omega$ . La courbe en pointillé montre un ajustement de la courbe à courant nul en utilisant la théorie BCS avec un gap de  $300 \mu\text{eV}$ .

du courant de polarisation. À courant nul on trouve un gap de l'aluminium de  $300 \mu\text{eV}$ . Si l'aluminium est bien influencé par le cuivre, il est possible que la température apparente cumule la température électronique de la pointe et un arrondi de la densité d'états de l'aluminium dû à l'effet de proximité.

### 5.7.5 Effet de chauffage

Dans cette section, nous reprenons le modèle développé à la section 5.6 pour l'appliquer à l'échantillon  $\textcircled{5}$ . L'objectif est de comparer le gap mesuré sur l'aluminium au gap prédit par la théorie.

Les courbes courant-tension ne permettant pas de caractériser l'îlot central, nous avons choisi les valeurs médianes (cf. tableau 5.3) pour chaque propriété : une longueur  $L_N$  de  $1,2 \mu\text{m}$  et une résistance  $R$  de  $5 \Omega$ . Nous avons également choisi une température des phonons de  $230 \text{ mK}$ . Les fils d'aluminium reliant

l'îlot normal aux réservoirs ne mesurent que  $34 \mu\text{m}$  de long et une épaisseur de  $30 \text{ nm}$ .

De plus, il faut faire attention en adaptant ce modèle : ici, les fils d'aluminium ne sont plus connectés à des réservoirs massifs mais à des bicouches cuivre-aluminium traversées par le courant de polarisation. Ces bicouches mesurent  $760 \mu\text{m}$  de long,  $5 \mu\text{m}$  de large et ont une résistance de  $100 \Omega$  et la chaleur est produite de façon homogène tout le long du fil. La conductivité de cette section de métal normal étant bien supérieure à celle de l'aluminium supraconducteur, on peut considérer que la température est homogène à proximité de la jonction avec les fils d'aluminium, et que cette énergie est principalement dissipée par l'interaction électron-phonon.

Pour calculer la température électronique de ces réservoirs avec ces hypothèses, nous avons donc choisi de considérer un courant de  $3,5 \mu\text{A}$ . Nous avons préféré choisir le courant maximal car, comme nous l'avons vu dans la figure 5.16, la température dans une partie normale augmente très rapidement avec les faibles courants et de façon plus lente avec les courants plus élevés. La température trouvée sera donc pertinente sur une assez large gamme de courant. De plus, le gap supraconducteur ne varie de façon conséquente que pour des températures proches de la température critique. Si l'on considère cette mesure de gap comme une mesure de température dans le supraconducteur, elle est donc d'autant plus précise que la température, et donc le courant, sont élevés. Le calcul numérique donne une température électronique dans la bicouche d'environ  $400 \text{ mK}$  pour un courant de  $3,5 \mu\text{A}$ . Les mesures et la simulation sont illustrés figure 5.25.

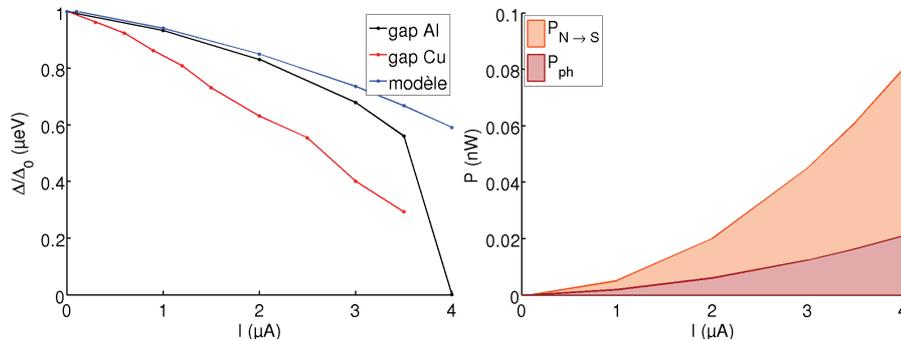


FIGURE 5.25 – À gauche, rapport entre le gap et le gap à courant nul mesuré à partir des spectroscopies précédentes ( $300 \mu\text{eV}$  pour l'aluminium) et comparaison avec le modèle. La température du thermostat considérée est de  $400 \text{ mK}$ . À droite, la part d'énergie évacuée par l'interaction électron-phonon dans le métal normal,  $P_{e-ph}$ , et celle qui s'échappe à travers les fils d'aluminium,  $P_{N \rightarrow S}$ , dans l'énergie totale dissipée.

On remarque que le gap du cuivre diminue avec le courant plus rapidement que le gap de l'aluminium. La différence est due au fait que, dans un régime

d'effet de proximité, la dépendance en température du pseudo-gap n'est pas la même que celle prédite par la théorie BCS pour un supraconducteur massif. Cette mesure est présentée uniquement pour comparer la variation relative du gap induit dans le métal normal avec celle dans le supraconducteur. Elle n'a, bien sûr, pas vocation à être comparée à nos calculs numériques effectués pour un supraconducteur décrit par la théorie BCS.

Pour l'aluminium, les mesures confirment étonnement bien les prédictions théoriques. Ce n'était pas le cas dans l'échantillon ②, pour lequel une part importante de l'énergie semble s'échapper par la pointe STM. D'autre part, la proportion d'énergie s'échappant par les fils supraconducteurs est plus importante que pour l'échantillon ② car ces fils sont nettement plus courts.

Nous avons vu qu'à cette position, l'aluminium ne possède pas une densité d'états BCS car il est affecté par l'effet de proximité. Il est donc probable que la dépendance du gap de l'aluminium en fonction de la température soit également affectée, mais à un degré moindre que pour le cuivre. Le gap mesuré décroîtrait donc plus vite que ne le prédit la théorie BCS. Dans cette expérience, la mesure du gap de l'aluminium ne serait alors plus une bonne indication de la température.

L'accord apparent avec la simulation combinerait alors deux effets qui se compensent : une part de l'énergie thermique s'échappe vraisemblablement par la pointe comme pour l'échantillon ②, mais l'aluminium, mieux refroidi que dans la simulation, voit son gap diminué par la proximité du cuivre. Pour obtenir une confirmation de cette interprétation, il serait intéressant de reproduire l'expérience en sondant l'aluminium plus loin de l'interface SN pour être sûr que la mesure du gap supraconducteur peut être utilisée comme une mesure de température.

## 5.8 Conclusion

Nous avons montré qu'il était possible de localiser de façon fiable un échantillon unique et d'effectuer des spectroscopies locales à très basse température sur cet échantillon polarisé en courant. Si les contacts en mode AFM et STM se passent bien, on peut mesurer la densité d'états tout le long de l'échantillon avec une résolution spatiale d'au moins 50 nm. Dans notre cas, il semble que la couche d'oxyde sur le cuivre empêche de mesurer la densité d'états à l'intérieur de l'échantillon. Nous avons pu voir la corrélation entre les mesures de transport et les mesures locales. Les mesures effectuées avec le nouveau microscope permettent de confirmer une partie des observations précédentes. Plus d'études seraient nécessaires pour bien comprendre pourquoi le courant critique observé est si faible.

Nous avons également réalisé des spectroscopies hors équilibre sur l'aluminium et le cuivre. Ces expériences constituent, à notre connaissance, les premières mesures locales à très basse température d'un échantillon unique polarisé en courant. Ces mesures sont intéressantes en elles-mêmes. De plus, si ces mesures peuvent être effectuées de façon reproductible, elles constituent égale-

ment la première étape absolument nécessaire pour pouvoir ensuite extraire des fonctions de distribution hors équilibre avec une pointe supraconductrice.

Grâce aux spectroscopies sur l'aluminium, nous avons pu modéliser le comportement thermique de la jonction et mettre en évidence le rôle de la pointe. Les spectroscopies à proximité de l'interface SN montrent que les deux matériaux s'influencent mutuellement et que les densités d'états varient fortement de part et d'autre avec le courant d'injection.

Même si l'étude locale des jonction SNS reste incomplète, le degré de fiabilité atteint laisse espérer des résultats très prometteurs dans les années qui viennent.

# Conclusion

Au cours de cette thèse, j'ai eu la chance de pouvoir utiliser un microscope qui est le fruit de plusieurs années d'expérience en champ proche et du travail de Julien Senzier et Franck Dahlem. J'ai aussi utilisé une électronique Nanonis entièrement numérique qui est extrêmement puissante et pratique pour ce type d'expérience. La prise en main du microscope est cependant relativement longue car ce type d'expérience dure en moyenne trois jours et la moindre erreur détruit souvent la pointe ou l'échantillon. Une grande partie de cette thèse a aussi été consacrée au développement des sondes AFM/STM et des échantillons sans lesquels il n'était pas possible de faire des mesures fiables.

Au niveau de la sonde, le diapason est un élément remarquablement bien adapté à ce type d'expérience. Sa faible dissipation et son grand facteur de qualité permettent de faire de l'AFM à très basse température et d'explorer jusqu'au domaine répulsif en mode non contact. En mode STM, sa grande rigidité hors de la résonance permet des spectroscopies stables. Au niveau du développement de la sonde en général, j'ai optimisé les collages et fixations entre les différentes pièces pour maîtriser la rigidité de la liaison entre le diapason et les tubes piézoélectriques qui l'excitent.

Un travail important a aussi été réalisé sur les pointes permettant de combiner AFM et STM. Devoir associer un faible rayon de courbure, peu de déformations en cas de choc et un bon état de surface rend le choix assez restreint. Finalement, les pointes commerciales EFM sont celles qui offrent les meilleurs résultats en particulier ce sont les seules qui permettent d'atteindre une résolution AFM inférieure à 100 nm et qui donnent les images AFM les plus reproductibles d'une pointe à l'autre. Au niveau des pointes supraconductrices en niobium, j'ai développé un procédé permettant d'obtenir des pointes de faible rayon de courbure et qui conservent la densité d'états du niobium massif. Une dernière étape reste à développer afin de retirer la couche d'oxyde qui les recouvrent pour pouvoir effectuer des spectroscopies locales. On pourrait alors mesurer localement la fonction de distribution électronique d'un échantillon hors équilibre.

La fabrication des échantillons réalisés pendant cette thèse consiste à utiliser des bicouches de résine et une évaporation sous angle. Ce procédé est maîtrisé en général mais nécessite des ajustements pour chaque nouveau dessin et, si l'on veut être précis, pour chaque étalement de résine et requiert donc un savoir faire qui n'est pas trivial. Pour des expériences de champ proche, la nano-fabrication nécessite d'apporter un soin particulier à la propreté de la surface. J'ai égale-

ment essayé de créer des échantillons pour faire la même étude en transport. Le but était de réaliser des jonctions SNS avec du cuivre et du niobium et de les sonder avec des sondes tunnel en aluminium. Malheureusement, nous n'avons pas réussi à reproduire le procédé qui a été développé au laboratoire par P. Dubos [73].

Du point de vue pratique, j'ai montré qu'il était possible de localiser un échantillon unique, d'effectuer des spectroscopies locales le long de l'échantillon et de combiner mesure en transport et mesures locales à très basse température. J'ai pu observer la densité d'états le long de la partie normale et des contacts cuivre/aluminium et il n'est pas apparu de gap induit à l'équilibre comme l'a observé H. Le Sueur [21]. Compte tenu du courant critique mesuré en transport, le gap induit devrait être plus important que le moyennage thermique apporté par la pointe. Il semble que c'est l'oxyde de cuivre qui modifie la densité d'états de l'îlot normal en surface. J'ai pu également mesurer la modification de la densité d'états de l'aluminium lorsque l'échantillon est polarisé en courant. Grâce à un modèle assez simple, j'ai évalué la puissance dissipée par le couplage électron-phonon et par la conduction le long des fils supraconducteurs. Elle permet d'expliquer qualitativement les données, mais n'est pas suffisante pour retrouver les températures mesurées. Je pense que cette énergie en excès est évacuée à travers la pointe, ce qui est cohérent avec le chauffage de la pointe à fort courant et l'influence de la pointe sur le courant critique de l'échantillon. Un tel couplage entre la pointe et l'échantillon est bien plus fort qu'un simple couplage tunnel et plus d'études seraient nécessaires pour bien le comprendre.

Ces mesures sont donc extrêmement prometteuses. Un nouveau microscope plus compact a récemment été développé par Clemens Winkelmann et Sylvain Martin au laboratoire pour effectuer le même type de mesures. Ils utilisent des résonateurs LER [96] qui sont des résonateurs en quartz vibrant à plus haute fréquence ( $\sim 1\text{MHz}$ ) avec un facteur de qualité comparable à ceux des diapasons. Le microscope dérive également moins lors du refroidissement. Il donne un signal AFM moins bruité que le mien et permet d'obtenir des images en dissipation à une vitesse raisonnable car le temps de réponse en amplitude est inférieur à 10 ms. Ce microscope a déjà permis d'obtenir des mesures comparables aux miennes sur des jonctions SNS. On peut donc espérer des résultats relativement rapides sur la dynamique des jonctions SNS.

A plus long terme, on peut espérer obtenir assez facilement des pointes supraconductrices, et donc pouvoir observer où et comment est dissipée l'énergie lorsque les jonctions Josephson hybrides sont dans l'état résistif. Ce travail ouvre également la voie à l'observation d'autres circuits mésoscopiques. On peut, par exemple, penser à des nanotubes ou du graphène couplés à des électrodes normales ou supraconductrices. La sonde pourra alors également servir de grille locale et donc permettre d'alterner spectroscopies locales et expériences de SGM.

## Annexe A : Routine de dérivation

La dérivation est une opération qui amplifie les hautes fréquences et génère beaucoup de bruit. Il est donc important de filtrer les signaux que l'on dérive. Une autre solution consiste à utiliser des mesures lock-in mais elle se sont révélées moins précises dans notre cas. Pour dériver notre signal, nous utilisons la formule

$$\frac{\partial I}{\partial V} = \frac{\langle IV \rangle - \langle I \rangle \langle V \rangle}{\langle V^2 \rangle - \langle V \rangle^2} = \frac{\sum IV - \sum I \sum V}{\sum V^2 - (\sum V)^2} \quad (5.8)$$

si l'on ne désire pas effectuer un moyennage en utilisant une fenêtre glissante carrée, il est possible de pondérer chaque point avec le poids  $p$  de la manière suivante :

$$\frac{\partial I}{\partial V} = \frac{\sum pIV \sum p - \sum pI \sum pV}{\sum pV^2 \sum p - (\sum pV)^2} \quad (5.9)$$

On peut alors programmer le module matlab suivant :

```

function [ dldV ] = derivate( I , V , halflength )
%Calcul la dérivée multipoint avec la méthode de pondération
  Gaussienne
  halfpoints=2*halflength ;
  points=length( I );
  dldV=zeros(1, points);
  for i=1:halfpoints
    dldV(i)=0;
  end
  for i=halfpoints+1:points-halfpoints
    sigmaI=0;
    sigmaV=0;
    sigmaIV=0;
    sigmaVV=0;
    sigmaP=0;
    for j=-1*halfpoints:halfpoints
      sigmaI=sigmaI+I(i+j)*exp(-2*(j/halflength)^2);
      sigmaV=sigmaV+V(i+j)*exp(-2*(j/halflength)^2);
      sigmaIV=sigmaIV+I(i+j)*V(i+j)*exp(-2*(j/halflength)^2);
      sigmaVV=sigmaVV+V(i+j)^2*exp(-2*(j/halflength)^2);
      sigmaP=sigmaP+exp(-2*(j/halflength)^2);
    end
    dldV(i)=(sigmaIV*sigmaP-sigmaI*sigmaV)/(sigmaVV*sigmaP-
      sigmaV^2);
  end
  for i=points-halfpoints+1:points-1
    dldV(i)=0;
  end

```

## Annexe B : Routine de déconvolution

Bien que la convolution ne soit pas une opération inversible, il est possible de déconvoluer numériquement avec une méthode des moindres carrés. En pratique nous voulons déconvoluer des conductances différentielles afin de retrouver la fonction de distribution. La formule de départ est

$$\frac{\partial I}{\partial V}(V) \propto - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial f}{\partial V}(E - eV) n_{BCS}(E) dE = - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\partial f}{\partial V}(E) n_{BCS}(E + eV) dE \quad (5.10)$$

où  $\frac{\partial I}{\partial V}$  est la grandeur mesurée,  $f$  la fonction de distribution dans le métal normal et  $n_{BCS}$  la densité d'états dans le supraconducteur. Numériquement l'intégrale est une somme sur une bande d'énergie supérieure à toutes les énergies caractéristiques. On peut donc réécrire l'équation sous la forme

$$\frac{\partial I}{\partial V}(i) \propto -\Delta E \sum \frac{\partial f}{\partial V}(E(j)) n_{BCS}(E(j) + V(i)) \quad (5.11)$$

avec  $\Delta E$  le pas en énergie. Pour obtenir la fonction de distribution, on préférera mettre l'équation sous la forme

$$\frac{\partial I}{\partial V} \propto - \begin{pmatrix} n_{BCS}(E(1) + V(1)) & \dots & n_{BCS}(E(m) + V(1)) \\ \dots & & \dots \\ n_{BCS}(E(1) + V(n)) & \dots & n_{BCS}(E(m) + V(n)) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial f}{\partial V}(E(1)) \\ \dots \\ \frac{\partial f}{\partial V}(E(m)) \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

$$\frac{\partial I}{\partial V} \propto M \frac{\partial f}{\partial V} \quad (5.13)$$

$n$  est la taille du des vecteurs  $V$  et  $\frac{\partial I}{\partial V}$  et  $m$  la taille de l'inconnue  $\frac{\partial f}{\partial V}$ . On remarque alors que le nombre de point du résultat est arbitraire. Il n'y a aucun sens physique a choisir un nombre de point supérieur à  $n$  et on remarque que l'on diminue le bruit du signal déconvolué en augmentant le rapport  $n/m$ . Dans notre programme la variable `ratio` permet de choisir ce rapport. Avec cette formulation, on peut reconnaître un problème de minimisation par la méthode des moindres carrés linéaire. On peut alors démontrer que la solution minimisant l'erreur est

$$\frac{\partial f}{\partial V} \propto (M^T M)^{-1} M^T \frac{\partial I}{\partial V} \quad (5.14)$$

où  $M^T$  est la transposée de  $M$ . Cette matrice  $(M^T M)^{-1} M^T$  est appelée pseudo inverse et est calculable avec précision par la plupart des programmes de calcul numériques.

Dans le script matlab suivant il faut noter plusieurs détails :

- La fonction  $n_{BCS}$  présente de grosses singularités au bord du gap. Lorsque l'on s'approche du gap, le produit  $\frac{\partial f}{\partial V}(E(j)) n_{BCS}(E(j) + V(i)) \Delta E$  est une très mauvaise évaluation de  $\int_{E_j}^{E_{j+1}} \frac{\partial f}{\partial V}(E) n_{BCS}(E + eV(i)) dE$ . Il est beaucoup plus long mais aussi plus juste de calculer  $\frac{\partial f}{\partial V}(E(j)) \int_{E(j)}^{E(j+1)} n_{BCS}(E +$

$eV(i)dE$ . Cette astuce est indispensable pour pouvoir déconvoluer correctement nos courbes.

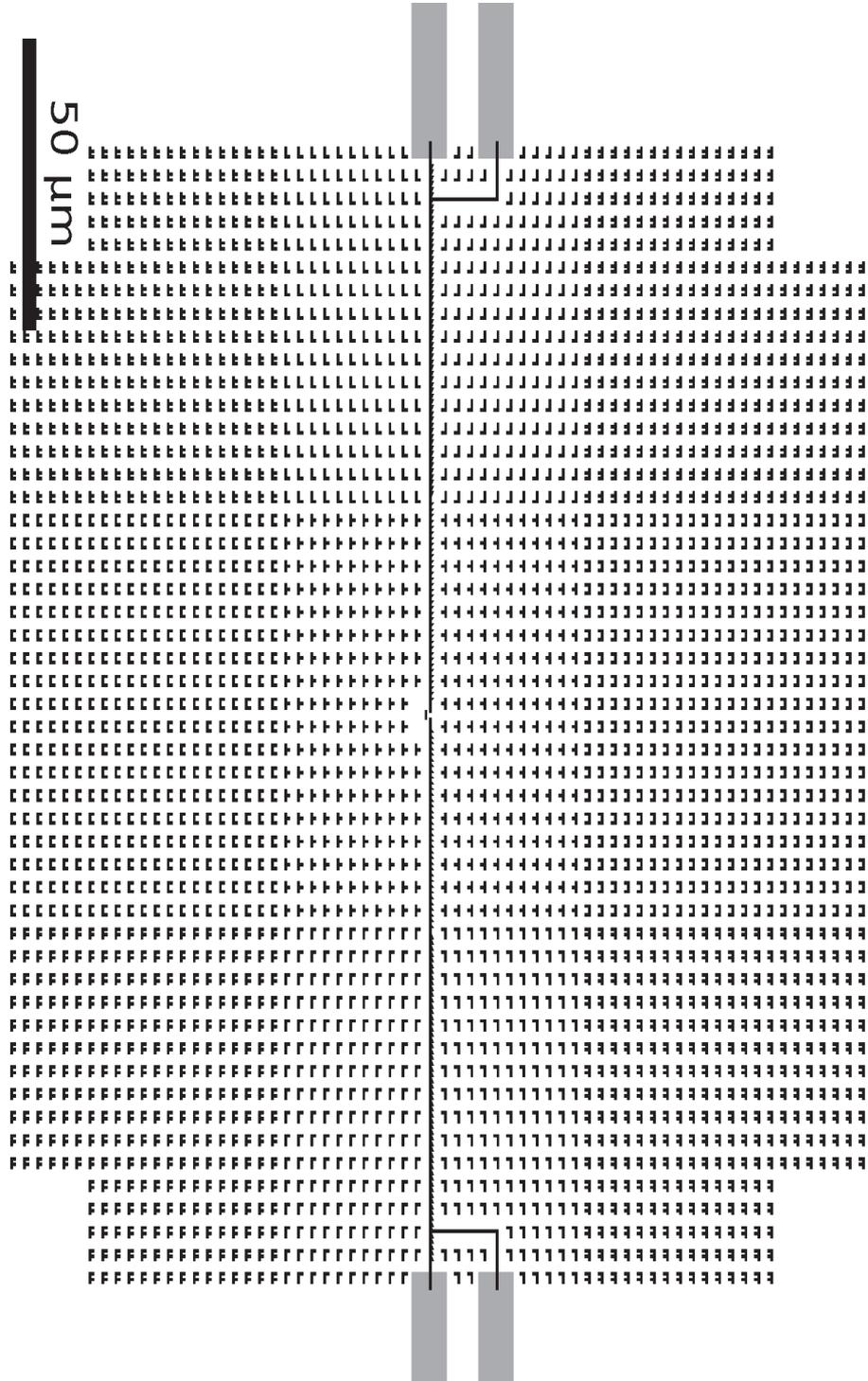
- Pour résoudre le système, il est plus précis (mais plus lent) de calculer la pseudo inverse avec `pinv(matc)` en spécifiant éventuellement la précision puis d'effectuer le produit avec `G` plutôt que d'effectuer la résolution uniquement pour ce vecteur avec la syntaxe `matc\G'`.
- A la fin de la fonction on intègre  $\frac{\partial f}{\partial V}$  pour retrouver  $f$ , ce qui permet de diminuer énormément le bruit. On peut éventuellement obtenir une fonction  $f$  quasiment juste alors que l'algorithme est à la limite de l'instabilité et que le bruit sur la dérivée est bien inférieur au signal.
- On peut également retrouver une densité d'états inconnue en supposant que  $f$  est une distribution de Fermi Dirac. Il est alors très utile de définir une variable `beta` égale à  $1/k_B T$ . La division étant l'opération de base la plus coûteuse numériquement, il est avantageux de ne la faire qu'une fois plutôt qu'à chaque calcul d'un élément de matrice.

```
function [f, Vint]=deconvolve_f(V,G,delta , ratio );
Vmin=V(1);
Vmax=V(length(V));
pas=abs(Vmin-Vmax)/length(V);
Vint=[Vmin:pas*ratio:Vmax];
matc=[];
for i=1:length(V)
    matc(i,:)=ns(Vint-V(i),delta ,pas*ratio);
end;
df=pinv(matc)*G';

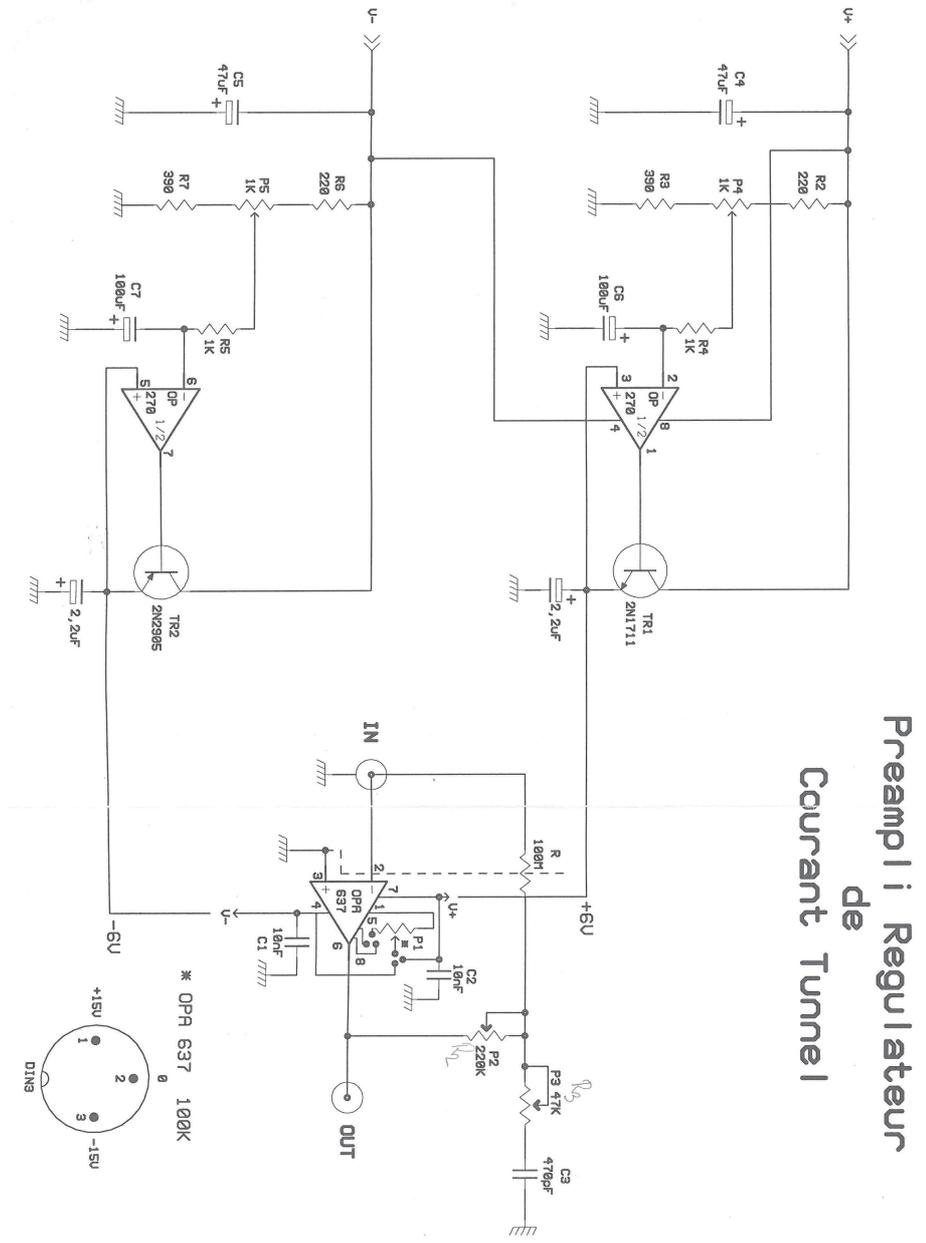
for i=1:length(df)
    f(i)=sum(df(1:i));
end;
f=f/max(abs(f));

function n=ns(E,delta ,width)
n=quadv(@(x)real(1./sqrt(1-(delta./(E+x)).^2)),-width/2,width
/2,1e-10)/width;
```

### Annexe C : Masque pour lithographie

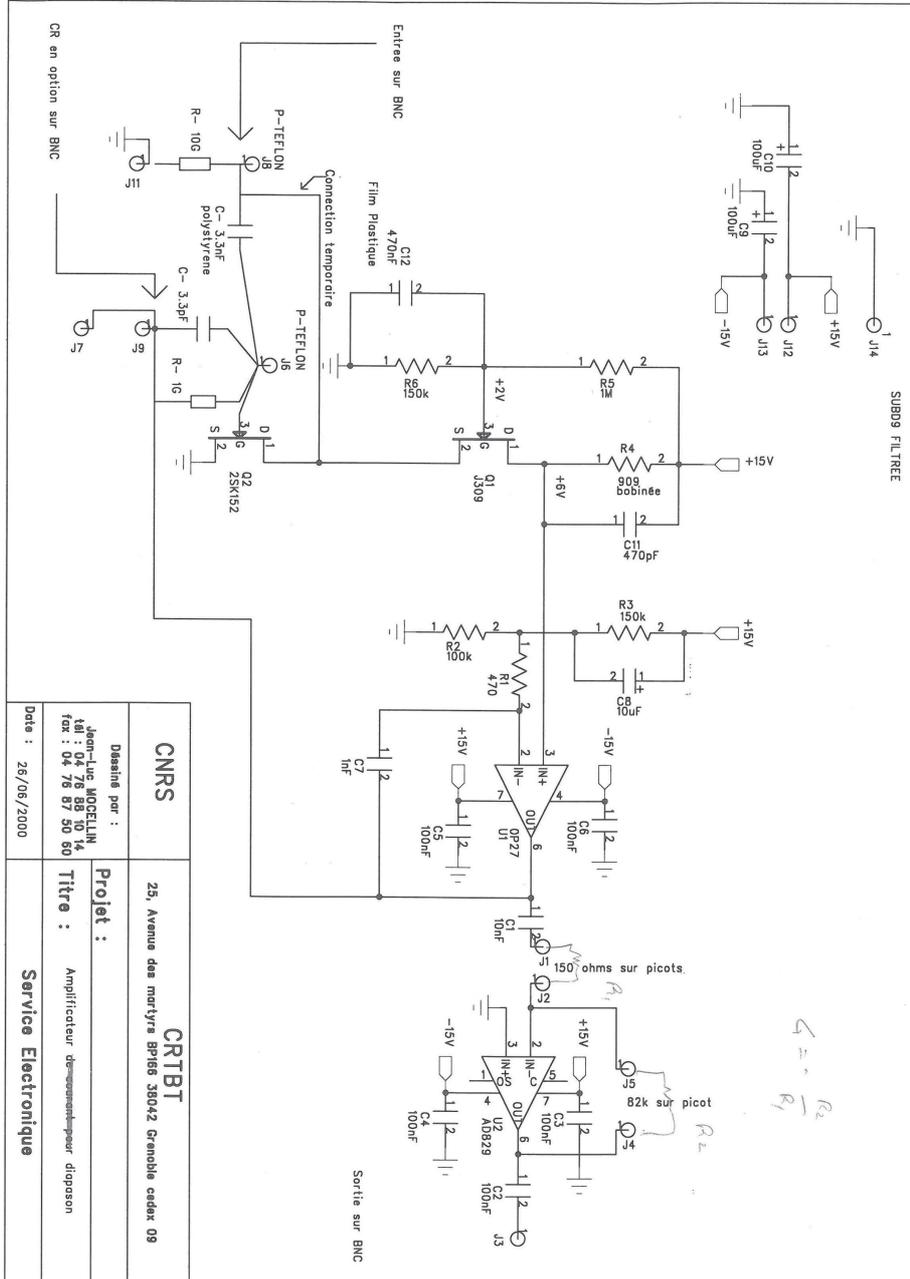


### Annexe D : Amplificateur Tunnel



Preamp I Regulateur  
de  
Courant Tunnel

# Annexe E : Amplificateur AFM



<b>CNRS</b>	Dessiné par :	<b>CRTBT</b>
	25, Avenue des martyrs BP166 38042 Grenoble cedex 09	
<b>Service Electronique</b>	Demain par :	Amplificateur de basse bande pour diposon
	Titre :	
Date :	26/06/2000	

Demain par :  
 M. MOGELIN  
 tel : 04 78 83 10 14  
 fax : 04 78 87 50 60

# Bibliographie

- [1] R. P. Feynman. There's plenty of room at the bottom. *Journal of microelectromechanical systems*, 1(1) :60–66, 1992.
- [2] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscope. *Physical review letters*, 49(1) :57–61, 1982.
- [3] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel. Tunneling through a controllable vacuum gap. *Applied Physics Letters*, 40(2) :178, 1982.
- [4] G. Binnig, C. F. Quate, and Ch. Gerber. Atomic force microscope. *Physical Review Letters*, 56(9) :930–933, 1986.
- [5] H. K. Onnes. The superconductivity of mercury. *Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden*, pages 122–124, 1911.
- [6] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Physical Review*, 108(5) :1175–1204, 1957.
- [7] Markus Ansmann, H. Wang, Radoslaw C. Bialczak, Max Hofheinz, Erik Lucero, M. Neeley, A. D. O'Connell, D. Sank, M. Weides, J. Wenner, A. N. Cleland, and John M. Martinis. Violation of bell's inequality in josephson phase qubits. *Nature*, 461(7263) :504–506, September 2009.
- [8] I. Chiorescu, P. Bertet, K. Semba, Y. Nakamura, C. Harmans, and J. E. Mooij. Coherent dynamics of a flux qubit coupled to a harmonic oscillator. *Nature*, 431(7005) :159–162, 2004.
- [9] A. Wallraff, D. I. Schuster, A. Blais, L. Frunzio, R. S Huang, J. Majer, S. Kumar, S. M. Girvin, and R. J. Schoelkopf. Strong coupling of a single photon to a superconducting qubit using circuit quantum electrodynamics. *Nature*, 431(7005) :162–167, 2004.
- [10] M. Neeley, Radoslaw C. Bialczak, M. Lenander, Erik Lucero, M. Mariantoni, A. D. O'Connell, D. Sank, H. Wang, M. Weides, J. Wenner, Y. Yin, T. Yamamoto, A. N. Cleland, and John M. Martinis. Generation of Three-Qubit entangled states using superconducting phase qubits. *Nature*, 467(7315) :570–573, 2010.
- [11] B. D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Physics Letters*, 1(7) :251–253, 1962.
- [12] B. D. Josephson. Coupled superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 36(1) :216–220, 1964.

- [13] L. Angers, F. Chiodi, G. Montambaux, M. Ferrier, S. Guéron, H. Bouchiat, and J. Cuevas. Proximity dc squids in the long-junction limit. *Physical Review B*, 77(16) :165408, April 2008.
- [14] H. Courtois, M. Meschke, J. Peltonen, and J. Pekola. Origin of hysteresis in a proximity josephson junction. *Physical Review Letters*, 101(6) :067002, August 2008.
- [15] F. Chiodi, M. Aprili, and B. Reulet. Evidence for two time scales in long SNS junctions. *Physical Review Letters*, 103(17) :177002, October 2009.
- [16] F. K Wilhelm, G. Schön, and A. D Zaikin. Mesoscopic Superconducting–Normal Metal–Superconducting transistor. *Physical review letters*, 81(8) :1682–1685, 1998.
- [17] P. Samuelsson, G. Johansson, Å. Ingerman, V. Shumeiko, and G. Wendin. Proximity effect and multiple andreev reflections in chaotic josephson junctions. *Physical Review B*, 65(18) :180514, May 2002.
- [18] J. Cuevas, J. Hammer, J. Kopu, J. Viljas, and M. Eschrig. Proximity effect and multiple andreev reflections in diffusive superconductor–normal-metal–superconductor junctions. *Physical Review B*, 73(18) :184505, May 2006.
- [19] Laszlo Solymar. *Superconductive tunnelling and applications*. Chapman and Hall, London, 1972.
- [20] J. Senzier, P. S. Luo, and H. Courtois. Combined scanning force microscopy and scanning tunneling spectroscopy of an electronic nanocircuit at very low temperature. *Applied Physics Letters*, 90(4) :043114, 2007.
- [21] H. le Sueur, P. Joyez, H. Pothier, C. Urbina, and D. Estève. Phase controlled superconducting proximity effect probed by tunneling spectroscopy. *Physical Review Letters*, 100(19) :197002, May 2008.
- [22] M. F. Crommie, C. P. Lutz, and D. M. Eigler. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. *Science*, 262(5131) :218–220, 1993.
- [23] L. Gross, F. Mohn, N. Moll, P. Liljeroth, and G. Meyer. The chemical structure of a molecule resolved by atomic force microscopy. *Science*, 325(5944) :1110–1114, August 2009.
- [24] G. Le Gac, A. Rahmani, C. Seassal, E. Picard, E. Hadji, and S. Callard. Tuning of an active photonic crystal cavity by an hybrid silica/silicon near-field probe. *Optics Express*, 17(24) :21672–21679, 2009.
- [25] J. Frenckel. On the electrical resistance of contacts between solid conductors. *Physical Review*, 36(11) :1604, 1930.
- [26] H. Pothier, S. Guéron, N. O Birge, D. Estève, and M. H. Devoret. Energy distribution function of quasiparticles in mesoscopic wires. *Physical review letters*, 79(18) :3490–3493, 1997.
- [27] F. Pierre, A. Anthore, H. Pothier, C. Urbina, and D. Estève. Multiple andreev reflections revealed by the energy distribution of quasiparticles. *Physical Review Letters*, 86(6) :1078–1081, February 2001.

- [28] J. E. Jones. On the determination of molecular fields. II. from the equation of state of a gas. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 106 :463–477, 1924.
- [29] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. HRW international edition and japan edition, 1981.
- [30] F. Dahlem, E. Ahlswede, J. Weis, and K. v. Klitzing. Cryogenic scanning force microscopy of quantum hall samples : Adiabatic transport originating in anisotropic depletion at contact interfaces. *Physical Review B*, 82(12) :121305, September 2010.
- [31] Gerhard Meyer and Nabil M. Amer. Novel optical approach to atomic force microscopy. *Applied Physics Letters*, 53(12) :1045, 1988.
- [32] OLYMPUS micro cantilever AC 160TS. <http://www.atomicforce.de/Olympus-Cantilever-Tip-Properties-ac160ts.php>.
- [33] M. L. M. Balistreri, J. P. Korterik, G. J. Veldhuis, L. Kuipers, and N. F. van Hulst. Quantitative photon tunneling and shear-force microscopy of planar waveguide splitters and mixers. *Journal of Applied Physics*, 89(6) :3307, 2001.
- [34] D. Rugar, H. J. Mamin, and P. Guethner. Improved fiber.,optic interferometer for atomic force microscopy. *Applied Physics Letters*, 55(25) :2588, 1989.
- [35] M. Tortonese, R. C. Barrett, and C. F. Quate. Atomic resolution with an atomic force microscope using piezoresistive detection. *Applied physics letters*, 62(8) :834–836, 2009.
- [36] Hal Edwards, Larry Taylor, Walter Duncan, and Allan J. Melmed. Fast, high-resolution atomic force microscopy using a quartz tuning fork as actuator and sensor. *Journal of Applied Physics*, 82(3) :980–984, 1997.
- [37] Ernst Meyer, Hans Josef Hug, and Roland Bennewitz. *Scanning probe microscopy*. Springer-Verlag berlin heidelberg new york edition, 2003.
- [38] Takeshi Fukuma, Jason I. Kilpatrick, and Suzanne P. Jarvis. Phase modulation atomic force microscope with true atomic resolution. *Review of Scientific Instruments*, 77(12) :123703, 2006.
- [39] T. R. Albrecht, P. Grutter, D. Horne, and D. Rugar. Frequency modulation detection using high-Q cantilevers for enhanced force microscope sensitivity. *Journal of Applied Physics*, 69(2) :668–673, 1991.
- [40] V. L. Ginzburg and L. D. Landau. On the theory of superconductivity. *Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki*, 1950(12) :1064–1082, 1950.
- [41] P. W. Anderson and A. H. Dayem. Radio-Frequency effects in superconducting thin film bridges. *Physical Review Letters*, 13(6) :195–197, 1964.
- [42] R. C. Jaklevic, John Lambe, A. H. Silver, and J. E. Mercereau. Quantum interference effects in josephson tunneling. *Physical Review Letters*, 12(7) :159–160, 1964.

- [43] P. W. Anderson and A. M. Goldman. Thermal fluctuations and the Josephson supercurrent. *Physical Review Letters*, 23(3) :128–131, 1969.
- [44] E. Ben-Jacob, D. J. Bergman, B. J. Matkowsky, and Z. Schuss. Lifetime of oscillatory steady states. *Physical Review A*, 26(5) :2805–2816, 1982.
- [45] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity : Second Edition*. Dover-Publications edition, 1996.
- [46] A. F. Andreev. Thermal conductivity of the intermediate state of superconductors. *Zhurnal Eksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki*, 46 :1823–1828, 1964.
- [47] D. Saint-James. Elementary excitations in the vicinity of the surface separating a normal metal and a superconducting metal. *Journal de Physique*, 25(10) :899–905, 1964.
- [48] F. B Müller-Allinger and A. C Mota. Paramagnetic reentrant effect in high purity mesoscopic AgNb proximity structures. *Physical Review Letters*, 84(14) :3161–3164, 2000.
- [49] C. J. Adkins and B. W. Kington. Investigations of the proximity effect by electron tunneling. *Physical Review*, 177(2) :777–785, 1969.
- [50] S. M. Freake and C. J. Adkins. Excitation spectrum induced by the proximity effect between copper and superconducting lead. *Physics Letters A*, 29(7) :382–383, 1969.
- [51] J. Warlaumont, J. C. Brown, and R. A. Buhrman. Response times and low-voltage behavior of SNS microbridges. *Applied Physics Letters*, 34(6) :415–418, 1979.
- [52] B. Pannetier and H. Courtois. Andreev reflection and proximity effect. *Journal of low temperature physics*, 118(5-6) :599–615, 2000.
- [53] P. Charlat, H. Courtois, Ph. Gandit, D. Mailly, A. Volkov, and B. Pannetier. Re-entrance of the metallic conductance in a mesoscopic proximity superconductor. *Physical Review Letters*, 77(24) :4950–4953, 1996.
- [54] G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk. Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions : Excess current, charge imbalance, and supercurrent conversion. *Physical Review B*, 25(7) :4515–4532, 1982.
- [55] F. Zhou, P. Charlat, B. Spivak, and B. Pannetier. Density of states in superconductor-normal metal-superconductor junctions. *Journal of low temperature physics*, 110(3) :841–850, 1998.
- [56] J. Rammer and H. Smith. Quantum field-theoretical methods in transport theory of metals. *Reviews of Modern Physics*, 58(2) :323–359, 1986.
- [57] Klaus D. Usadel. Generalized diffusion equation for superconducting alloys. *Physical Review Letters*, 25(8) :507–509, 1970.
- [58] W. Belzig, F. K. Wilhelm, C. Bruder, G. Schön, and A. D. Zaikin. Quasi-classical green's function approach to mesoscopic superconductivity. *Superlattices and Microstructures*, 25(5-6) :1251–1288, 1999.

- [59] S. Rajauria, P. S. Luo, T. Fournier, F. W. J. Hekking, H. Courtois, and B. Pannetier. Electron and phonon cooling in a superconductor-normal-metal-superconductor tunnel junction. *Physical review letters*, 99(4) :47004, 2007.
- [60] A. Sommerfeld. Electron theory of metals on the basis of the fermi statistics. *Zeitschrift fur Physik*, 47(1-2) :1–32, 1928.
- [61] P. Dubos. *Transport électronique dans les nanojonctions supraconducteur - métal normal - supraconducteur*. PhD thesis, Université Joseph-Fourier, Grenoble, 2000.
- [62] P. Dubos, H. Courtois, B. Pannetier, F. Wilhelm, A. Zaikin, and G. Schön. Josephson critical current in a long mesoscopic S-N-S junction. *Physical Review B*, 63(6) :064502, January 2001.
- [63] M. Crosser, Jian Huang, F. Pierre, Pauli Virtanen, Tero Heikkilä, F. Wilhelm, and Norman Birge. Nonequilibrium transport in mesoscopic multi-terminal SNS josephson junctions. *Physical Review B*, 77(1) :014528, January 2008.
- [64] W. C. Stewart. Current-Voltage characteristics of josephson junctions. *Applied Physics Letters*, 12(8) :277–280, 1968.
- [65] D. E. McCumber. Effect of ac impedance on dc Voltage-Current characteristics of superconductor Weak-Link junctions. *Journal of Applied Physics*, 39(7) :3113–3118, 1968.
- [66] Y Song. Origin of "capacitance" in superconducting microbridges. *Journal of Applied Physics*, 47(6) :2651–2655, 1976.
- [67] F. C. Wellstood, C. Urbina, and J. Clarke. Hot-electron effects in metals. *Physical Review B*, 49(9) :5942–5955, 1994.
- [68] J. J. A. Baselmans, A. F. Morpurgo, B. J. Van Wees, and T. M. Klapwijk. Reversing the direction of the supercurrent in a controllable josephson junction. *Nature*, 397(6714) :43–45, 1999.
- [69] ALLRESIST. E-Beam resist series AR-P 617. [http://www.allresist.de/wMedia/pdf/wEnglish/produkte\\_ebeamresist/AR\\_P617.pdf](http://www.allresist.de/wMedia/pdf/wEnglish/produkte_ebeamresist/AR_P617.pdf).
- [70] ALLRESIST. E-Beam resist series : AR-P 631-679. [http://www.allresist.de/wMedia/pdf/wEnglish/produkte\\_ebeamresist/AR-P631\\_679.pdf](http://www.allresist.de/wMedia/pdf/wEnglish/produkte_ebeamresist/AR-P631_679.pdf).
- [71] F. Lecocq, C. Naud, I. M Pop, Z. H Peng, I. Matei, T. Crozes, T. Fournier, W. Guichard, and O. Buisson. Novel e-beam lithography technique for in-situ junction fabrication : the controlled undercut. *Arxiv preprint arXiv :1101.4576*, 2011.
- [72] D. J. Monsma and S. S. P. Parkin. Spin polarization of tunneling current from ferromagnet/AIO interfaces using copper-doped aluminum superconducting films. *Applied Physics Letters*, 77(5) :720, 2000.
- [73] P. Dubos, P. Charlat, T. Crozes, P. Paniez, and B. Pannetier. Thermostable trilayer resist for niobium lift-off. *Journal of Vacuum Science &*

- Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 18(1) :122, 2000.
- [74] R. Dolata, H. Scherer, A. B. Zorin, and J. Niemeyer. Single electron transistors with high-quality superconducting niobium islands. *Applied Physics Letters*, 80(15) :2776, 2002.
- [75] A. Bauer, J. Bentner, M. Aprili, M. Della Rocca, M. Reinwald, W. Wegscheider, and C. Strunk. Spontaneous supercurrent induced by ferromagnetic pi junctions. *Physical Review Letters*, 92(21) :217001, May 2004.
- [76] BASF. Ultrason e 6020P (PESU) data sheet, 2010.
- [77] J. Lindahl, T. Takanen, and L. Montelius. Easy and reproducible method for making sharp tips of Pt/Ir. *Journal of Vacuum Science & Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, 16(6) :3077, 1998.
- [78] M. Kulawik, M. Nowicki, G. Thielsch, L. Cramer, H.-P. Rust, H.-J. Freund, T. P. Pearl, and P. S. Weiss. A double lamellae dropoff etching procedure for tungsten tips attached to tuning fork atomic force microscopy/scanning tunneling microscopy sensors. *Review of Scientific Instruments*, 74(2) :1027, 2003.
- [79] J. P. Ibe, P. P. Bey, S. L. Brandow, R. A. Brizzolara, N. A. Burnham, D. P. DiLella, K. P. Lee, C. R. K. Marrian, and R. J. Colton. On the electrochemical etching of tips for scanning tunneling microscopy. *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 8(4) :3570–3575, 2009.
- [80] PPP-EFM AFM probe. <http://www.nanosensors.com/PPP-EFM.htm>.
- [81] Laurent Cretinon. *Nanospectroscopie par microscopie à effet tunnel à très basse température de jonctions supraconductrices hybrides*. PhD thesis, UJF, 2004.
- [82] A. Kohen, Y. Noat, T. Proslie, E. Lacaze, M. Aprili, W. Sacks, and D. Roditchev. Fabrication and characterization of scanning tunneling microscopy superconducting nb tips having highly enhanced critical fields. *Physica C : Superconductivity*, 419(1-2) :18–24, 2005.
- [83] *Practical Metallography*, volume 4. 1967.
- [84] D. K. Biegelsen, F. A. Ponce, J. C. Tramontana, and S. M. Koch. Ion milled tips for scanning tunneling microscopy. *Applied Physics Letters*, 50(11) :696, 1987.
- [85] D. K. Biegelsen, F. A. Ponce, and J. C. Tramontana. Simple ion milling preparation of (111) tungsten tips. *Applied Physics Letters*, 54(13) :1223, 1989.
- [86] R. Messier, A. P. Giri, and R. A. Roy. Revised structure zone model for thin film physical structure. *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 2(2) :500–503, 2009.
- [87] Julien Senzier. *Spectroscopie locale de nanostructures supraconductrices par microscopie combinée AFM-STM à très basse température*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2007.

- [88] attocube systems. [www.attocube.com](http://www.attocube.com).
- [89] INC. EPOXY TECHNOLOGY. EPO-TEK H21D DataSheet. <http://www.epotek.com/SSCDocs/datasheets/H21D.PDF>, 2010.
- [90] Khaled Karrai and Robert D. Grober. Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes. *Applied Physics Letters*, 66(14) :1842–1844, 1995.
- [91] F. J Giessibl, S. Hembacher, H. Bielefeldt, and J. Mannhart. Subatomic features on the silicon (111)-(7x7). *Science*, 289 :422, 2000.
- [92] C. Veauvy, K. Hasselbach, and D. Mailly. Scanning?-superconduction quantum interference device force microscope. *Review of Scientific Instruments*, 73(11) :3825, 2002.
- [93] F. J Giessibl. AFM’s path to atomic resolution. *Materials Today*, 8(5) :32–41, 2005.
- [94] J. Rychen. *Combined Low-Temperature Scanning Probe Microscopy and Magneto-Transport Experiments for the Local Investigation of Mesoscopic Systems*. PhD thesis, SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH, 2001.
- [95] H. le Sueur. *Un AFM-STM cryogénique pour la physique mésoscopique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007.
- [96] Toshu An, Toyoaki Eguchi, Kotone Akiyama, and Yukio Hasegawa. Atomically-resolved imaging by frequency-modulation atomic force microscopy using a quartz length-extension resonator. *Applied Physics Letters*, 87(13) :133114, 2005.
- [97] H. Nyquist. Thermal agitation of electric charge in conductors. *Physical Review*, 32 :110–113, 1928.
- [98] J. B. Johnson. Thermal agitation of electricity in conductors. *Physical Review*, 32 :97–109, 1928.
- [99] P. R Gray, R. G Meyer, P. J Hurst, and S. H Lewis. *Analysis and design of analog integrated circuits*. Wiley (New York), 1993.
- [100] B. Pannetier, J. Chaussy, R. Rammal, and J. C. Villegier. Experimental fine tuning of frustration : Two-dimensional superconducting network in a magnetic field. *Physical review letters*, 53(19) :1845–1848, 1984.
- [101] C. Strunk, V. Bruyndoncx, V. V. Moshchalkov, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, and R. Jonckheere. Nonlocal effects in mesoscopic superconducting aluminum structures. *Physical review b*, 54(18) :12701–12704, 1996.
- [102] A. K. Gupta, L. Créton, N. Moussy, B. Pannetier, and H. Courtois. Anomalous density of states in a metallic film in proximity with a superconductor. *Physical Review B*, 69(10) :104514, 2004.
- [103] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, X. Grison, and L. Dumoulin. Superconducting proximity effect at the Paramagnetic-Ferromagnetic transition. *Physical Review Letters*, 93(13) :137001, September 2004.

- [104] A. Anthore, H. Pothier, and D. Estève. Density of states in a superconductor carrying a supercurrent. *Physical Review Letters*, 90(12) :127001, March 2003.
- [105] J. T. Karvonen, L. J. Taskinen, and I. J. Maasilta. Influence of temperature gradients on tunnel junction thermometry below 1 k : Cooling and Electron-Phonon coupling. *Journal of Low Temperature Physics*, 149(1) :121–135, 2007.
- [106] A. V. Timofeev, C. P Garcia, N. B. Kopnin, A. M. Savin, M. Meschke, F. Giazotto, and J. P. Pekola. Recombination limited energy relaxation in a BCS superconductor. *Physical Review Letters*, 102(1) :17003, 2009.
- [107] R. L. Kautz, G. Zimmerli, and J. M Martinis. Self-heating in the coulomb-blockade electrometer. *Journal of applied physics*, 73(5) :2386–2396, 1993.
- [108] SH Pan, EW Hudson, and JC Davis. He refrigerator based very low temperature scanning tunneling microscope. *Review of scientific instruments*, 70(2) :1459, 1999.
- [109] H. le Sueur and P. Joyez. Room-temperature tunnel current amplifier and experimental setup for high resolution electronic spectroscopy in millikelvin scanning tunneling microscope experiments. *Review of Scientific Instruments*, 77(2) :123701, 2006.

Cette thèse est dédiée  
à la curiosité,  
à la science,  
à Emmett Lathrop Brown.

Cette thèse n'est pas dédiée  
aux croyances,  
aux fuites,  
aux faux contacts.

D'une façon générale cette thèse est dédiée à Camille  
avec qui mes rapports furent aussi divers qu'enrichissants.