



HAL
open science

Vortex confinés dans des nanostructures de Pb/Si(111) étudiés par microscopie à effet tunnel

Lise Brinon Serrier-Garcia

► **To cite this version:**

Lise Brinon Serrier-Garcia. Vortex confinés dans des nanostructures de Pb/Si(111) étudiés par microscopie à effet tunnel. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : 2014PA066018 . tel-01037887

HAL Id: tel-01037887

<https://theses.hal.science/tel-01037887v1>

Submitted on 23 Jul 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



**THESE DE DOCTORAT DE
L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité PHYSIQUE DES SOLIDES

École doctorale de la région parisienne ED 107

Présentée par

SERRIER-GARCIA née BRINON Lise

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

**Vortex confinés dans des nanostructures de Pb/Si(111)
étudiés par microscopie à effet tunnel**

soutenue le 17 janvier 2014

devant le jury composé de :

M. RODITCHEV Dimitri,	Directeur de thèse
M. CREN Tristan,	Co-directeur de thèse
M. CHAPELIER Claude,	Rapporteur
M. SILLY Fabien,	Rapporteur
M. MAGGIO-APRILE Ivan,	Examineur
MME. GUÉRON Sophie,	Examinatrice
M. BUZDIN Alexandre,	Examineur
M. CALANDRA Matteo,	Examineur

REMERCIEMENTS

J'exprime ici ma plus profonde reconnaissance à tous ceux qui m'ont aidée de près ou de loin à effectuer ce travail et en particulier à :

Dimitri Roditchev et Tristan Cren qui m'ont initiée au travail de recherche et encouragée tout au long de ces années.

François Debontridder et Christophe Brun qui m'ont accompagnée tout au long de mon travail expérimental.

Clémentine Carbillet qui a partagé le quotidien d'un travail de thèse.

Juan-Carlos Cuevas et Milorad Milošević qui ont apporté une contribution théorique liée aux résultats expérimentaux obtenus lors de ce travail.

Claude Chapelier, Fabien Silly, Ivan Maggio-Aprile, Sophie Guéron, Alexandre Buzdin et Matteo Calandra d'accepter de participer au jury de cette thèse.

Le CNRS qui a financé cette thèse.

L'INSP et l'UPMC qui m'ont accueillie entre leurs murs.

TABLES DES MATIÈRES

INTRODUCTION : PRÉSENTATION DU SUJET DE RECHERCHE DE LA THÈSE.....	7
CHAPITRE I : BASES THÉORIQUES.....	15
1. Théorie de Ginzburg-Landau.....	15
1.1. Système macroscopique.....	16
1.2. Système mésoscopique extrême.....	28
2. La théorie BCS.....	36
CHAPITRE II : TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES.....	41
1. Le microscope à effet tunnel.....	41
1.1. Principe de l'effet tunnel.....	41
1.2. Effet tunnel et densité d'états supraconductrice.....	44
1.3. La microscopie à effet tunnel.....	45
1.4. La spectroscopie à effet tunnel.....	50
2. Traitement des données.....	52
2.1. Visualisation des données.....	52
2.2. Origine et traitement du bruit dans les données.....	56
3. Dispositif expérimental.....	58
3.1. Chambres ultrarapides.....	58
3.2. Cryostat.....	60
CHAPITRE III : PRÉSENTATION DU SYSTÈMES Pb/Si(111).....	63
1. Le système Pb/Si(111).....	63
1.1. Substrat de silicium.....	63
1.2. Croissance du plomb sur le silicium (111).....	65
1.3. Influence des états quantifiés sur la supraconductivité des nanostructures Pb/Si(111).....	68
2. Une nouvelle phase dans le diagramme de croissance du plomb sur le silicium (111).....	72
2.1. L'icosaèdre tronqué à base pentagonale.....	72
2.2. L'icosaèdre incliné et la pyramide à un seul plan de symétrie.....	77
2.3. L'icosaèdre tronqué présentant une arête.....	78
2.4. Les différentes structures en compétition.....	79

CHAPITRE IV : CONFINEMENT DES VORTEX.....	85
1. Confinement ultime des vortex.....	85
1.0. <i>Introduction : la boîte à un vortex et la boîte sans vortex.....</i>	86
1.1. <i>La mare de vortex.....</i>	88
1.2. <i>Le vortex géant.....</i>	94
1.3. <i>Calculs dans la phase multivortex.....</i>	104
2. Organisation des vortex à un quantum de flux.....	106
2.1. <i>Du réseau d'Abrikosov à la mare de vortex.....</i>	107
2.2. <i>Influence des défauts topographiques sur l'organisation des vortex.....</i>	113
2.3. <i>Organisation et piégeage des vortex : calculs en parallèles des expériences.....</i>	115
2.4. <i>Créer un défaut topographique avec la pointe STM pour piéger les vortex.....</i>	116
3. Diagramme de phase des vortex.....	119
CHAPITRE V : EFFET DE PROXIMITÉ ET VORTEX JOSEPHSON.....	121
1. Effet de proximité.....	122
1.1. <i>Approches théoriques.....</i>	122
1.2. <i>Blocage de Coulomb dynamique.....</i>	126
1.3. <i>Effet de proximité dans la couche désordonnée.....</i>	132
1.4. <i>Effet de proximité sous champ magnétique.....</i>	139
2. Vortex Josephson.....	143
2.1. <i>Introduction.....</i>	143
2.2. <i>Jonction Josephson.....</i>	145
2.3. <i>Vortex Josephson.....</i>	149
PERSPECTIVES : ENVOI AUX FUTURS THÉSARDS.....	161
BIBLIOGRAPHIE.....	166

PRESENTATION DU SUJET DE RECHERCHE DE LA THÈSE

L'objet de cette thèse est d'observer comment la supraconductivité évolue quand la dimension des objets d'étude devient comparable ou plus petite que les dimensions caractéristiques de la supraconductivité.

Motivations

La supraconductivité fait apparaître deux échelles caractéristiques. La première, appelée longueur de cohérence ξ , correspond à la distance à laquelle deux électrons d'une paire de Cooper interagissent entre eux. La deuxième, la longueur de pénétration de London λ , donne l'échelle sur laquelle un champ magnétique extérieur est écranté dans un supraconducteur massif. Dans les supraconducteurs dits de type II, la longueur ξ est plus petite que λ ce qui a pour conséquence l'éclatement du champ magnétique pénétrant le matériau en quanta de flux appelés vortex. Chaque vortex est constitué d'un cœur de dimensions nanométriques où la supraconductivité est détruite (à l'échelle de ξ), tandis qu'autour de ce cœur et dans un rayon typique de l'ordre de λ de quelques centaines de nanomètres, circulent des courants supraconducteurs. En général, dans les supraconducteurs massifs, les vortex s'organisent spontanément en un réseau triangulaire dit réseau d'Abrikosov. Cette organisation est due à une répulsion mutuelle entre vortex. En volume cette répulsion mutuelle est engendrée par l'interaction de leurs flux et de leurs courants respectifs, cependant ce mécanisme n'est plus pertinent dans des couches ultra-minces. Il faut invoquer d'autres raisons en particulier la minimisation de l'énergie cinétique du système de courants qui joue un rôle fondamental dans les nano-supraconducteurs, comme on va le montrer dans cette thèse.

En allant vers le monde nanométrique, certains caractères des supraconducteurs se maintiennent alors que d'autres sont radicalement modifiés. Les questions suivantes viennent naturellement à l'esprit :

Qu'advient-il du condensat dans un système de dimensions inférieures à la longueur de cohérence ? Comment est modifiée la supraconductivité, quelles propriétés sont conservées?

Sous champ magnétique, quelle forme prend le réseau de vortex confiné dans une si petite boîte ? Existe-t-il un confinement tel que la pénétration

d'un vortex à plusieurs quanta de flux soit énergétiquement plus favorable qu'un réseau de vortex à un quantum de flux chacun ?

Nous nous sommes également posé d'autres questions que nous n'avons pas eu le temps d'aborder au cours de ces trois années de thèse :

A partir de quelle taille les effets de quantification des niveaux d'énergie apparaissent-ils avec la réduction de la taille de la boîte et détruisent-ils la supraconductivité ?

Pour un supraconducteur macroscopique conventionnel, les fonctions d'ondes de millions de paires de Cooper se recouvrent dans le volume d'une paire ξ^3 . Qu'advient-il lorsque la densité de paires passe à une pour ξ^3 comme dans les films ultraminces désordonnés ?

Pour commencer, nous avons cherché à observer l'évolution de l'organisation des vortex confinés dans des nanostructures de plus en plus petites. En augmentant le confinement, nous avons cherché en particulier à faire fusionner des vortex en un vortex géant. Ce vortex géant était prédit depuis 1965, nous avons pu en mesurer les propriétés et confirmer la justesse de la description théorique [Saint-James 1965, Fink 1966, Saint-James 1969]. Nous avons également cherché à induire par effet de proximité des propriétés supraconductrices dans un film monoatomique non supraconducteur très désordonné. Nous avons constatés que ce désordre s'apparentait à l'effet Altshuler-Aronov. Nous nous sommes demandé quelle forme prenait l'effet de proximité dans ce film lorsque de telles interactions coulombiennes sont en compétition avec un ordre supraconducteur. Nous avons ensuite observé les vortex Josephson créés dans une jonction de proximité entre des nanostructures supraconductrices.

Deux collaborations théoriques ont vu le jour avec les recherches de cette thèse. Tout d'abord, le professeur Milorad Milošević a simulé l'organisation des vortex en présence ou non de centre de piégeage dans les nanostructures de Pb/Si(111). Il a également calculé les portraits de phase du paramètre d'ordre dans les îlots ce qui nous a permis de déterminer la présence et la localisation des vortex Josephson dans les jonctions de proximité. Par ailleurs, un autre collaborateur, le professeur Juan-Carlos Cuevas, a proposé un modèle pour simuler le spectre tunnel mesuré sur le film de plomb amorphe et non supraconducteur qui entoure les nanostructures de Pb/Si(111). Il a ensuite calculé l'effet de proximité entre ces nanostructures et le film désordonné, en incluant la signature particulière de l'effet Alshuler-Aronov [Altshuler 1985].

Plan de la thèse

Chapitre I

La théorie de Ginzburg-Landau pour comprendre et modéliser le confinement des vortex

La supraconductivité peut être décrite par différentes approches théoriques, comme la théorie microscopique BCS issue de la mécanique quantique et de la physique statistique, la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau issue de la théorie des transitions de phase de Landau, la théorie classique de London des métaux sous champ magnétique, les équations d'Usadel, etc [Levy 1997, Tinkham 2004]. Dans ce travail, nous nous sommes appuyés pour l'essentiel sur la théorie de Ginzburg-Landau qui se prête bien à la compréhension et aux simulations de la physique des vortex confinés dans les nanostructures. La théorie de Ginzburg-Landau ne permet cependant pas de décrire le spectre supraconducteur. Nous utilisons donc la théorie BCS pour décrire les spectres tunnel mesurés. La théorie de Ginzburg-Landau n'est pas adaptée non plus pour simuler l'effet de proximité, nous avons alors utilisé les équations d'Usadel. Ce modèle est présenté au chapitre V.

Chapitre II

La microscopie à effet tunnel pour l'observation des vortex confinés

Il existe plusieurs techniques pour sonder la présence de vortex dans des systèmes mésoscopiques. Dans le régime de confinement faible, le champ magnétique est encore spatialement inhomogène à l'échelle de l'échantillon et une étude de la réponse magnétique est possible (décoration de Bitter [Grigorieva 2007], SQUID [Okayasu 2006], sonde de Hall [Geim 2000, Connolly 2009], microscopie électronique à force de Lorentz [Matsuda 2001], etc). Cependant en régime de confinement fort, lorsque les dimensions sont bien inférieures à la longueur de London λ , le champ magnétique pénètre partout dans le supraconducteur, et les méthodes sensibles au signal magnétique ne sont plus applicables car le champ devient quasiment constant. Une autre technique consiste à cartographier les vortex en transport en détruisant localement l'ordre supraconducteur par excitation laser, mais la résolution spatiale est limitée par la taille du faisceau. En réduisant la taille du système à l'échelle sub-micrométrique, l'organisation spatiale statique ou dynamique des vortex peut être étudiée en construisant des multi jonctions tunnel entre des électrodes supraconductrices [Kanda 2004].

Le microscope à effet tunnel s'avère être un outil idéal pour étudier les vortex à l'échelle de la longueur de cohérence de quelques dizaines de

nanomètres [Tanaka 2002, Nishio 2006, Ning 2009, Cren 2011, Tominaga 2012]. En effet, la pointe tunnel balaie la surface de l'échantillon et permet de relever localement la densité d'états électroniques avec une résolution spatiale nanométrique et une résolution en énergie de $3,5 k_B T$. La densité d'états d'un supraconducteur est caractérisée par l'ouverture d'une bande interdite, le gap, dont la largeur et la forme reflètent finement les détails de l'état supraconducteur. A l'aide d'un microscope à effet tunnel, il est possible de faire les cartes de cette densité d'états et ainsi d'étudier les différentes configurations supraconductrices. Cependant, la microscopie tunnel est une méthode très sensible à l'état de la surface, et une étude des systèmes nano-supraconducteurs élaborés *ex-situ* serait difficile voire impossible à cause des problèmes de dégradation de la surface à l'air. Ceci explique, par ailleurs, le peu d'expériences STM/STS réussies dans la littérature [Karapetrov 2005, Nishio 2006, Nishio 2008]: il faut combiner, dans un seul ensemble expérimental, des moyens d'élaboration *in-situ* de supraconducteurs nanométriques avec une étude fine en STM/STS à basse température et sous fort champ magnétique.

Afin de mesurer l'état supraconducteur des nanostructures, il est préférable de travailler à une température très en deçà de leur température critique. Elle est de l'ordre de 5 à 7 K dans les nanostructures de Pb/Si(111). Le fait d'effectuer les mesures spectroscopiques à de plus basses températures permet d'augmenter la résolution en énergie dans la densité d'états tunnel. On mesure ainsi des effets plus fins que le gap supraconducteur. Par ailleurs, les fluctuations thermiques sont d'autant plus faibles que la température est basse. Descendre à très basse température nous permet ainsi de sonder des effets quantiques qui ne sont plus limités par des effets thermiques. Par exemple, nous sommes sensibles aux barrières énergétiques de surface des îlots de Pb/Si(111). Nous pouvons aussi créer des jonctions Josephson dont la taille n'est pas limitée par la longueur thermique.

Notre système de prédilection : Pb/Si(111)

Afin d'aborder la question principale de la supraconductivité confinée, notre choix s'est porté sur le système modèle Pb/Si [Tringides 2005]. Ce système présente l'avantage de suivre une croissance de type Stranski-Krastanov, qui conduit à la formation de cristaux bidimensionnels de Pb d'une épaisseur de quelques nanomètres et de la largeur de plusieurs centaines de nanomètres. Par ailleurs, le choix d'un substrat semiconducteur présentant une bande électronique interdite est a priori important dans notre cas. En effet, un substrat métallique se trouvant en contact avec les îlots de Pb aurait eu pour effet de modifier, voire détruire, la supraconductivité dans

les îlots par l'effet de proximité inverse. En appliquant les méthodes d'élaboration répertoriées dans la littérature nous avons réussi à élaborer des nanocristaux de Pb et nous avons aussi pu étudier leur mûrissement après le dépôt. Nous avons appris à varier leur taille, leur épaisseur et leur forme en fonction des conditions de dépôt et de recuit. Nous avons aussi eu la chance d'observer pour la première fois des pyramides poly-cristallines à base pentagonale. Ces objets sont très difficiles à mesurer en microscopie à effet tunnel, ce qui explique qu'ils ont jusqu'alors été peu répertoriés dans les diagrammes de croissance des cristaux sub-micrométriques de divers métaux déposés sur un substrat.

Le confinement des vortex dans les nanostructures supraconductrices

La question du confinement des vortex avec la réduction des dimensions du système a fait l'objet de nombreux travaux théoriques depuis ces 40 dernières années. Déjà la première étude de l'apparition et de la stabilité des diverses configurations de vortex confinés dans des îlots supraconducteurs prévoyait un diagramme de phase de l'état supraconducteur très particulier du fait du nombre limité des vortex qu'un supraconducteur nanométrique pouvait accepter avant que la supraconductivité ne soit complètement détruite par le champ magnétique [Saint-James 1963]. Les travaux qui ont suivi prédisaient que, sous certaines conditions, le confinement des vortex dans un nano-supraconducteur pourrait même conduire à la fusion de plusieurs vortex en un vortex géant qui ne pourrait exister dans un matériau massif (figure 1) [Baelus 2002].

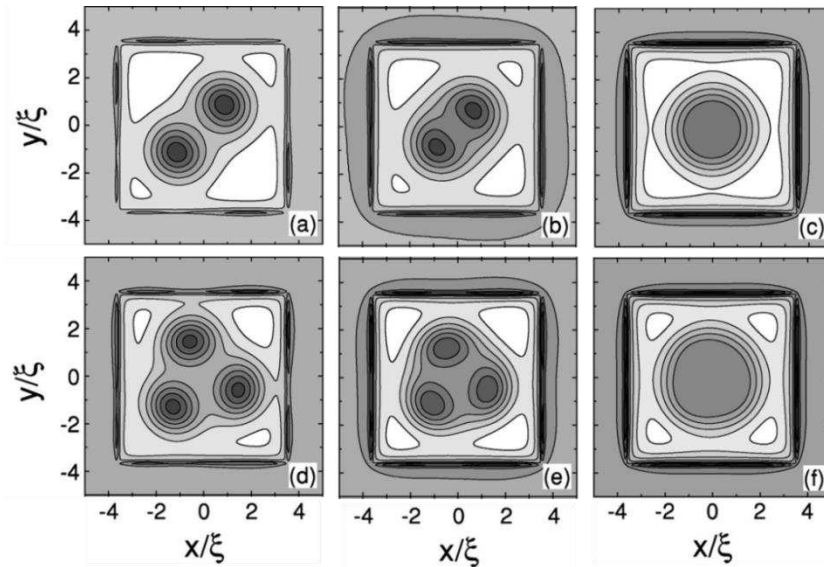


Figure 1 : Création d'un vortex géant dans un disque dans la limite $\xi, \lambda_{eff} < r$ [Baelus 2002]. Pour les polygones réguliers tels que le triangle, le carré ou encore l'hexagone [Pereira 2012], le vortex géant est la phase vers laquelle tendent ces systèmes mésoscopiques près du champ critique de transition. ($L = 2$: **a.** $H_a = 0,42 H_c$, **b.** $H_a = 0,52 H_c$, **c.** $H_a = 0,62 H_c$. $L = 3$: **d.** $H_a = 0,62 H_c$. **e.** $H_a = 0,72 H_c$. **f.** $H_a = 0,82 H_c$).

Malgré les efforts expérimentaux considérables dans ce domaine, les expériences concluantes sont peu nombreuses, presque toutes explorent le régime de confinement faible c'est-à-dire lorsque la dimension latérale des structures supraconductrices D est comparable à la longueur de pénétration λ mais beaucoup plus grande que la longueur de cohérence ξ [Buisson 1990, Moshchalkov 2011]. Dans ce régime de confinement faible les propriétés supraconductrices s'écartent peu des propriétés de volume [Fetter 1980]. Il en va tout autrement dans le régime de confinement fort, lorsque la dimension latérale est comparable à la longueur de cohérence et beaucoup plus petite que la longueur effective de pénétration, et pour lequel de grands écarts au comportement en volume sont prévus [Milošević 2011]. Dans cette limite les propriétés supraconductrices sont très sensibles à la forme et aux dimensions des objets (figure 2). Nous montrons par exemple dans cette thèse que les vortex peuvent être alignés le long des bords des nanostructures ou organisés en réseau triangulaire d'Abrikosov suivant le type de confinement latéral.

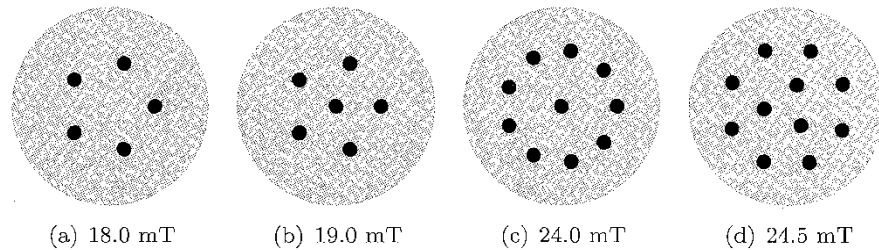


Figure 2 : Organisation de vortex dans un disque dans la limite de confinement faible, $\xi, \lambda_{eff} < r$ [Moshchalkov 2011]. L'organisation des vortex confinés dans des nanostructures a déjà fait l'objet de calculs théoriques et d'expérience dans des nanostructures supraconductrices bidimensionnelles de différentes formes, circulaires, triangulaires, carrées [Buzdin 1994, Schweigert 1998, Moshchalkov 2011]. Ainsi pour reproduire les résultats d'une expérience réalisée avec une sonde SQUID, Moshchalkov et al ont calculé la distribution des vortex en champ à partir des équations de Ginzburg-Landau dans un disque ayant les mêmes paramètres géométriques. L'épaisseur est inférieure à la longueur de cohérence ce qui le place dans la limite des couches minces ; son rayon est supérieur au deux longueurs caractéristiques effectives, $\kappa \cong 2,9$, $\pi R^2 \cong 2,5 \mu m^2$, $\xi \cong 240 nm$ et $\lambda_{eff} \cong 115 nm$. Le réseau de vortex obtenu pour différente valeur du champ n'est plus triangulaire mais s'adapte à la géométrie circulaire du disque en formant des anneaux de vortex.

Effet de proximité, jonctions et vortex Josephson dans un film non supraconducteurs désordonné de Pb/Si(111)

Dans le cadre de nos travaux sur les îlots supraconducteurs, nous avons observé un effet de proximité dans le métal normal autour des îlots. En fait, les îlots sont entourés d'une couche de mouillage de Pb amorphe d'une à deux couches atomiques d'épaisseur. Ce métal 2D très diffusif présente un intérêt fondamental. En particulier, nous avons pu mesurer un effet de

blocage de Coulomb dynamique de type Altshuler-Aronov lié au caractère fortement diffusif du métal [Altshuler 1985, Rollbühler 2001, Ingold 2005]. Ce phénomène entre en compétition avec le mini-gap induit par effet de proximité ce qui confère une certaine complexité au problème. Nous avons montré que la cohérence du condensat se propage dans la phase normale désordonnée malgré la compétition avec les fortes interactions coulombiennes entre les électrons liées à l'effet Altshuler-Aronov. L'effet de proximité s'étend sur une petite distance mais mesurables, de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, et confère des propriétés supraconductrices aux électrons de conduction localisés à proximité de l'interface.

En augmentant la densité de nanostructures de Pb/Si(111), nous avons pu créer des ponts de proximité entre différents îlots. Ces ponts constituent des jonctions Josephson. Nous avons observé un grand nombre de ces jonctions sous champ magnétique et nous avons pu mesurer directement et pour la première fois le cœur normal des vortex Josephson de proximité. Ces vortex résultent de la circulation de courants supraconducteurs autour de leurs cœurs normaux. Tout comme dans un supraconducteur de type II, ils portent chacun un quantum de fluxoïd. Le vortex Josephson est aujourd'hui bien décrit mais la question de savoir si les vortex Josephson dans un métal normal ont un vrai cœur ou non n'est que récente (figure 3).

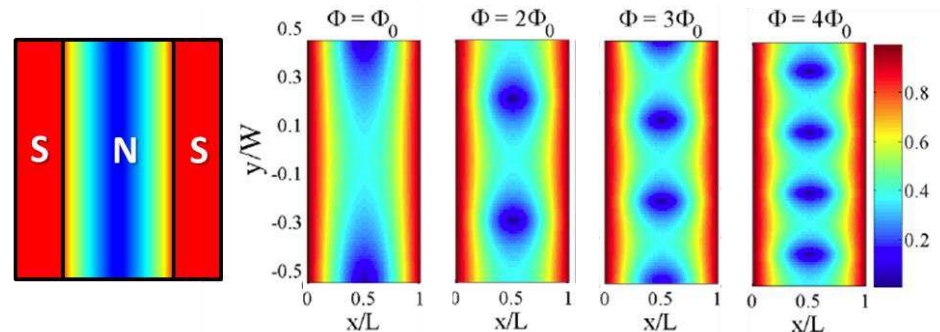


Figure 3 : Vortex Josephson dans une jonction longue constituée d'un métal non supraconducteur pris en sandwich entre deux électrodes supraconductrices [Cuevas 2007].

Grace à la spectroscopie tunnel, nous avons pu étudier finement le spectre et la forme des cœurs de vortex Josephson, leur nombre et leur position dans une panoplie de jonctions de proximité de tailles et de formes différentes. Non seulement nous avons pu mesurer directement et spatialement ces vortex Josephson mais nous avons montré également qu'ils résultent bien d'un phénomène d'interférence, ce qui explique les figures de type Fraunhofer observées dans les mesures de transport.

BASES THEORIQUES

La théorie de Ginzburg-Landau est utilisée afin de décrire la supraconductivité dans les systèmes macroscopiques et mésoscopiques.

La théorie de Ginzburg-Landau est l'approche théorique choisie pour analyser les résultats de cette thèse. Bien que beaucoup d'autres théories aient été développées depuis 1957 (équations d'Usadel, d'Eilenberger, etc), elle reste la plus simple valide dans notre limite. La première partie de ce chapitre est donc consacrée à l'exposé de ce modèle pour un système usuel macroscopique puis la deuxième partie explique en quoi la limite de cette thèse diffère des systèmes macroscopiques et mésoscopiques habituels. Ce chapitre est clos par une présentation de la théorie microscopique BCS car elle permet de connaître la densité d'états supraconductrice, grandeur reliée à la mesure de spectroscopie à effet tunnel.

Conventions adoptées :

\mathbf{H} est le champ magnétique. \mathbf{H}_a est le champ magnétique appliqué, il est considéré comme constant en tout point de l'espace.

\mathbf{B} est l'induction magnétique telle que $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$, où \mathbf{A} est le potentiel vecteur.

On distingue usuellement le champ magnétique microscopique \mathbf{b} de l'induction magnétique de champ moyen $\mathbf{B} = \bar{\mathbf{b}}$. Pour éviter toute confusion, j'ai choisi de n'utiliser que l'induction microscopique \mathbf{B} .

1. Théorie de Ginzburg-Landau

La supraconductivité est découverte en 1911 par Heike Kamerlingh Onnes. Il étudie alors les propriétés de conduction du mercure solide à basse température et constate que sa résistance chute brutalement en dessous de 4,2 K. D'autres matériaux présentent le même effet comme le plomb à la température critique 7 K (1913) ou encore le nitrure de niobium à 16 K (1914).

En 1933 Meissner et Ochsenfeld remarquent que les supraconducteurs expulsent le champ magnétique. Les frères Fritz et Heinz London trouvent une explication qualitative de ce phénomène en 1935 et définissent une longueur de pénétration du champ magnétique dans un

supraconducteur, aussi appelée longueur de London. Après quarante ans de recherche, deux théories voient le jour. La première porte le nom de ses créateurs Landau et Ginzburg. C'est une théorie phénoménologique de la supraconductivité (1950). La seconde porte également le nom de ses concepteurs, Bardeen, Cooper et Schriffer, et apporte une description microscopique complète de la supraconductivité conventionnelle (1957). Lev Gor'kov montre en 1959 que la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau découle de la théorie de Bardeen Cooper et Schrieffer (BCS). Ce n'est que dans les années 80 que ces deux modèles voient leurs limites avec la découverte expérimentale de nouveaux supraconducteurs à hautes températures critiques. Leurs comportements diffèrent notablement des supraconducteurs conventionnels et sont aujourd'hui encore mal compris. Depuis, d'autres théories ont été développées pour étendre la compréhension de la supraconductivité dans différentes limites (Bogoliubov-De Gennes, Usadel, Eilenberger, etc).

1.1. Système macroscopique

La théorie Ginzburg-Landau est issue de la théorie de Landau appliquée au condensat supraconducteur.

Ginzburg et Landau proposent en 1950 une théorie phénoménologique de la supraconductivité à partir de considérations intuitives. Elle est issue de la théorie de Landau des transitions de phases où une fonctionnelle de Landau, en l'occurrence la densité d'énergie libre, est développée en puissances d'un paramètre d'ordre autour du point critique et selon les excitations extérieurs, en l'occurrence le champ magnétique. Le paramètre d'ordre n'est autre que la densité du fluide supraconducteur définie localement, $n_s = |\Psi|^2$, avec $\Psi = |\Psi| \exp(i\varphi)$ la pseudo-fonction d'onde complexe du condensat.

$$f(\mathbf{r}, t) = a|\Psi(\mathbf{r})|^2 + \frac{b}{2}|\Psi(\mathbf{r})|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - 2e\mathbf{A} \right) \Psi(\mathbf{r}) \right|^2 + \mu_0 \frac{\mathbf{B}^2(\mathbf{r})}{2}$$

Equation 1.1.1 : fonctionnelle de Landau. $f(\mathbf{r}, t) = f_s(\mathbf{r}, t) - f_n(\mathbf{r}, t)$ où f_s et f_n sont les énergies par unité de volume dans l'état supraconducteur et dans l'état normal. La charge d'une paire de Cooper est $2e$.

Le graphe de la figure 1.1.1 présente la différence d'énergie libre entre l'état supraconducteur et l'état normal en fonction de l'amplitude du paramètre d'ordre pour différentes températures et en l'absence de champ magnétique. La courbe représentée dans l'espace complexe est la même quelque soit la phase φ du paramètre d'ordre, ce qui impose un

développement en puissances paires de Ψ . Son module possède un minimum en dessous de la température critique dont l'amplitude tend continûment vers zéro et l'atteint à la température critique T_c .

Les deux premiers termes du développement déterminent la forme de la courbe si et seulement si le premier coefficient est négatif et le deuxième positif. La théorie du champ moyen donne la dépendance en température de ces coefficients : $a(T) \propto (1 - T/T_c)$. Le troisième terme correspond à l'énergie cinétique du condensat. Le quatrième est l'énergie magnétique associée à l'expulsion du champ microscopique par le système.

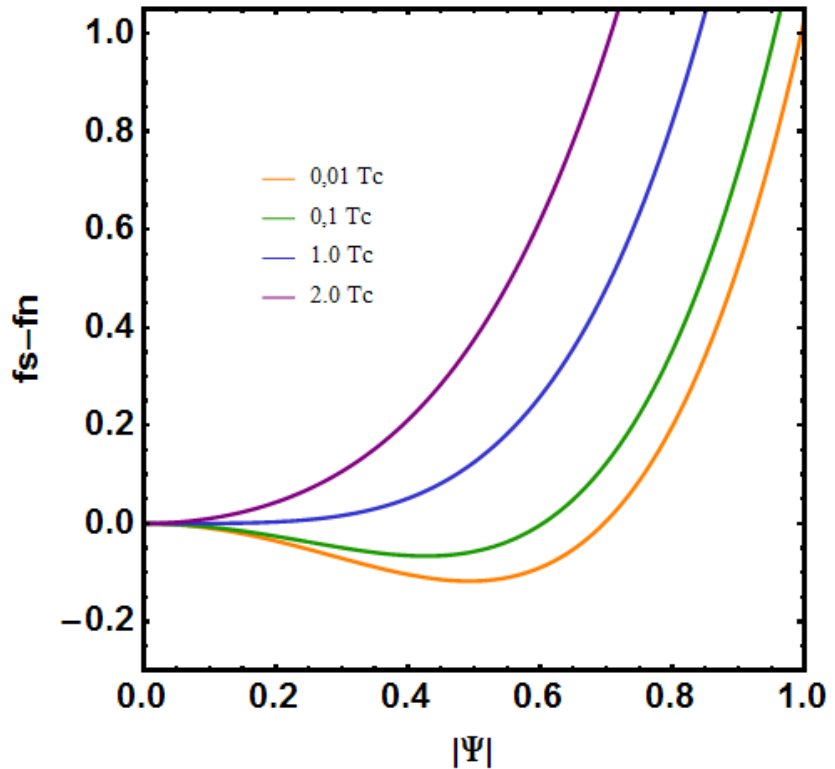


Figure 1.1.1 : Fonctionnelle de Landau en l'absence de champ magnétique et en fonction de la température.

Si on réécrit la fonctionnelle en séparant les termes de phase et d'amplitude du paramètre d'ordre, on peut facilement interpréter la contribution énergétique des différentes composantes : le premier terme est l'énergie additionnelle induite par un gradient de l'amplitude, le deuxième terme donne l'énergie cinétique d'un courant supraconducteur indépendant du choix de jauge pour \mathbf{A} .

$$\left| \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - e^* \mathbf{A} \right) \Psi(\mathbf{r}) \right|^2 = (\hbar \nabla |\Psi(\mathbf{r})|)^2 + (\hbar \nabla \varphi(\mathbf{r}) - 2e \mathbf{A}(\mathbf{r}))^2 |\Psi(\mathbf{r})|^2$$

Equation 1.1.2 : Terme de courant dans l'expression de la fonctionnelle de Landau.

Choix de Jauge

Dans la théorie de Landau, une brisure de symétrie est associée à une transition de phase. La symétrie brisée ici par le paramètre d'ordre est l'invariance de jauge locale. Le choix du potentiel vecteur est donc unique pour chaque particule, ce qui revient à dire que le système a une phase particulière tout comme un aimant a une direction particulière en dessous de la température critique de Curie. Le choix d'une phase du paramètre d'ordre revient donc à choisir une jauge pour le potentiel vecteur. Comme le comportement thermodynamique ne dépend pas de la jauge, elle est choisie selon la géométrie du système afin de faciliter les calculs analytiques. Certaines géométries ne permettent pas un choix de jauge pratique ce qui rend difficile la représentation des phénomènes. Nous sommes confrontés à ce problème dans les jonctions planaires entre des îlots présentés en seconde partie du chapitre IV. Je découpe alors le problème en trois étapes, je traite séparément les deux îlots puis je raccorde les résultats obtenus sur la distribution sur les courants puisqu'ils sont une grandeur physique indépendante du choix de jauge.

Les deux équations de Ginzburg-Landau

Les deux célèbres équations de Ginzburg-Landau sont dérivées de la fonctionnelle de Landau. La minimisation de la densité d'énergie libre selon une variation infinitésimale du paramètre d'ordre donne lieu à la première équation :

$$a\Psi(\mathbf{r}) + b|\Psi(\mathbf{r})|^2\Psi(\mathbf{r}) + \frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - 2e\mathbf{A}(\mathbf{r}) \right)^2 \Psi(\mathbf{r}) = 0$$

Equation 1.1.3 : Première équation de Ginzburg-Landau.

La deuxième est obtenue en minimisant cette densité d'énergie pour une modulation infinitésimale du potentiel vecteur. Comme l'équation de Maxwell-Ampère relie le potentiel vecteur au courant, $\nabla \times \mathbf{H}_a(\mathbf{r}) = \mu_0 \mathbf{J}$, la deuxième équation de Ginzburg-Landau correspond à la densité locale de courant :

$$\mathbf{J} = \frac{2e}{m^*} |\Psi(\mathbf{r})|^2 (\hbar \nabla \varphi(\mathbf{r}) - 2e\mathbf{A}(\mathbf{r}))$$

Equation 1.1.4 : Deuxième équation de Ginzburg-Landau.

Deux échelles caractéristiques ressortent de ces équations. Lorsqu'on linéarise la première équation en l'absence de tout champ magnétique

interne ou appliqué, on obtient une équation différentielle dont les solutions sont exponentiellement décroissantes sur une longueur caractéristique ξ , la longueur de cohérence, dont l'expression est donnée en équation 1.1.6.

Si on néglige les variations spatiales de l'amplitude du paramètre d'ordre $|\Psi|$, ce qui revient à annuler le terme du gradient et ne conserver que celui du potentiel vecteur, la seconde équation est celle de London. Elle est analytique et a pour solutions dans la jauge de London des exponentielles décroissantes sur une longueur λ .

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A})(\mathbf{r}) = -\frac{\mathbf{A}(\mathbf{r})}{\lambda^2}$$

Les deux longueurs caractéristiques de la supraconductivité sont celles de cohérence et celle d'écrantage du champ magnétique.

Equation 1.1.5 : Équation de London.

$$\xi = \frac{\hbar}{\sqrt{2m^*a(T)}}$$

$$\lambda = \sqrt{\frac{m^*}{\mu_0(2e)^2|\Psi_0|^2}}$$

Equation 1.1.6 : Longueur de cohérence et longueur de London.

La première longueur est celle de cohérence du condensat supraconducteur. La seconde est la longueur d'écrantage du champ magnétique dans la théorie de London.

Les échelles caractéristiques en fonction de la température

Un supraconducteur expulse le champ magnétique qui le traverse, c'est l'effet Meissner.

Les grandeurs telles que la longueur de cohérence et la longueur de London dépendent de la température. Leurs expressions empiriques sont données en équation 1.1.7.

$$\xi(T) \cong \frac{\xi(0)}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}}$$

$$\lambda(T) \cong \frac{\lambda(0)}{\sqrt{1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^4}}$$

Equation 1.1.7 : Longueur de cohérence et longueur de London en fonction de la température T.

Limite sale et limite propre

Les expériences de cette thèse sont réalisées dans des systèmes soit

désordonnés ayant une grande concentration d'impuretés non magnétiques, soit dans des systèmes ordonnés de dimensions réduites et présentant une interface défectueuse, ce qui implique dans les deux cas une importante réduction du libre parcours moyen l_e . La théorie de Ginzburg-Landau reste valable dans cette limite dite sale où le libre parcours moyen est inférieur à la longueur de cohérence $l_e < \xi$. Les grandeurs ξ et λ sont modifiées et peuvent être exprimées comme une fonction du libre parcours moyen : $l_e = v_F \tau_e$, avec v_F la vitesse de Fermi et τ_e le temps moyen de diffusion des électrons.

$$\xi_{sale} \cong \xi_{propre} \frac{0,855}{0,74} \sqrt{\frac{l_e}{\xi_0}}$$

$$\lambda_{sale} = \lambda \sqrt{\frac{\xi_0}{1,33 l_e}}$$

Equation 1.1.8 : Longueur de cohérence et longueur de London en limite sale.

Les deux types de supraconducteurs

Sous champ magnétique se distingue deux grandes classes de supraconducteurs.

La théorie de London met en évidence qu'un supraconducteur soumis à un faible champ magnétique écrante celui-ci. Les courants Meissner circulant sur une épaisseur λ à la périphérie du système induisent un champ magnétique \mathbf{M} . Celui-ci est exactement opposé à l'intérieur du supraconducteur au champ appliqué \mathbf{H}_a . L'induction magnétique est donc nulle : $\mathbf{B} = \mathbf{0}$, avec $\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H}_a + \mathbf{M})$ et $\mathbf{M} = -\mathbf{H}_a$. Le supraconducteur se comporte donc comme un diamagnétique parfait et ces supercourants sont dits Meissner ou diamagnétiques.

Comme montré dans les travaux d'Abrikosov, le ratio entre la longueur de cohérence et la longueur de London $\kappa = \lambda/\xi$ différencie deux grandes classes de supraconducteurs. Sous champ magnétique, les supraconducteurs dans la phase Meissner ont leur aimantation croissante avec le champ appliqué (figure 1.1.2). Au-delà d'une valeur critique, des zones normales apparaissent dans les supraconducteurs de type I ($\kappa < \sqrt{2}$) ce qui provoque l'annulation de l'aimantation lorsque tout le système est dans l'état normal. Les supraconducteurs de type II ($\kappa > \sqrt{2}$) présentent une phase supplémentaire dite multivortex entre la phase Meissner et la transition au champ critique.

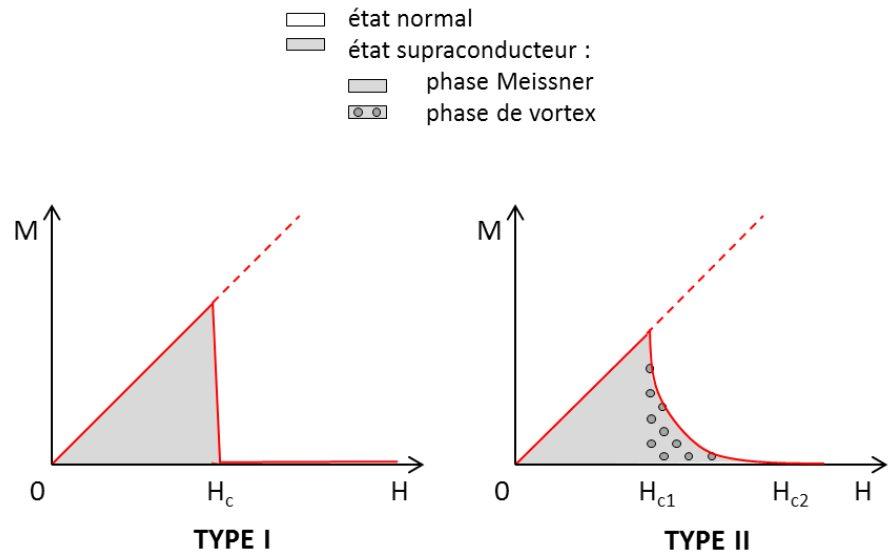


Figure 1.1.2 : Courbes d'aimantation en fonction du champ magnétique pour les deux classes de supraconducteurs. Le champ magnétique est entièrement expulsé dans la phase Meissner complète, et partiellement dans la phase de vortex.

Le vortex d'Abrikosov

Une approche couramment utilisée pour appréhender la notion de vortex est de l'assimiler à un cylindre supraconducteur percé selon son axe et de traiter les équations de Ginzburg-Landau autour de ce trou. Cette vision simpliste du vortex s'explique du fait que dans un système macroscopique, les vortex concentrent les lignes de champ magnétique d'où leur nom premier, tube de flux. Comme nous le verrons par la suite, les vortex ne peuvent plus être considérés comme tels dans des systèmes de très petites tailles. Mais comme le montre l'expérience réalisée par Morelle et al [Moshchalkov 2011], l'assimilation du cœur de vortex à un cylindre normal de rayon égal à la longueur de cohérence reste valable (figure 1.1.3).

Le vortex est un tourbillon de courants supraconducteurs circulant autour d'un cœur normal.

Le vortex d'Abrikosov est une solution des équations de Ginzburg-Landau pour laquelle la circulation de la phase du paramètre d'ordre autour d'un point vaut 2π . D'après la deuxième équation, le gradient de la phase le long de ce circuit induit des courants. On peut montrer que le paramètre d'ordre est nul en ce point. Il est restauré sur un rayon de l'ordre de la longueur de cohérence, c'est le cœur du vortex. Les courants de vortex circulent autour du cœur sur une couronne dont l'épaisseur est la longueur de London (figure 1.1.4).

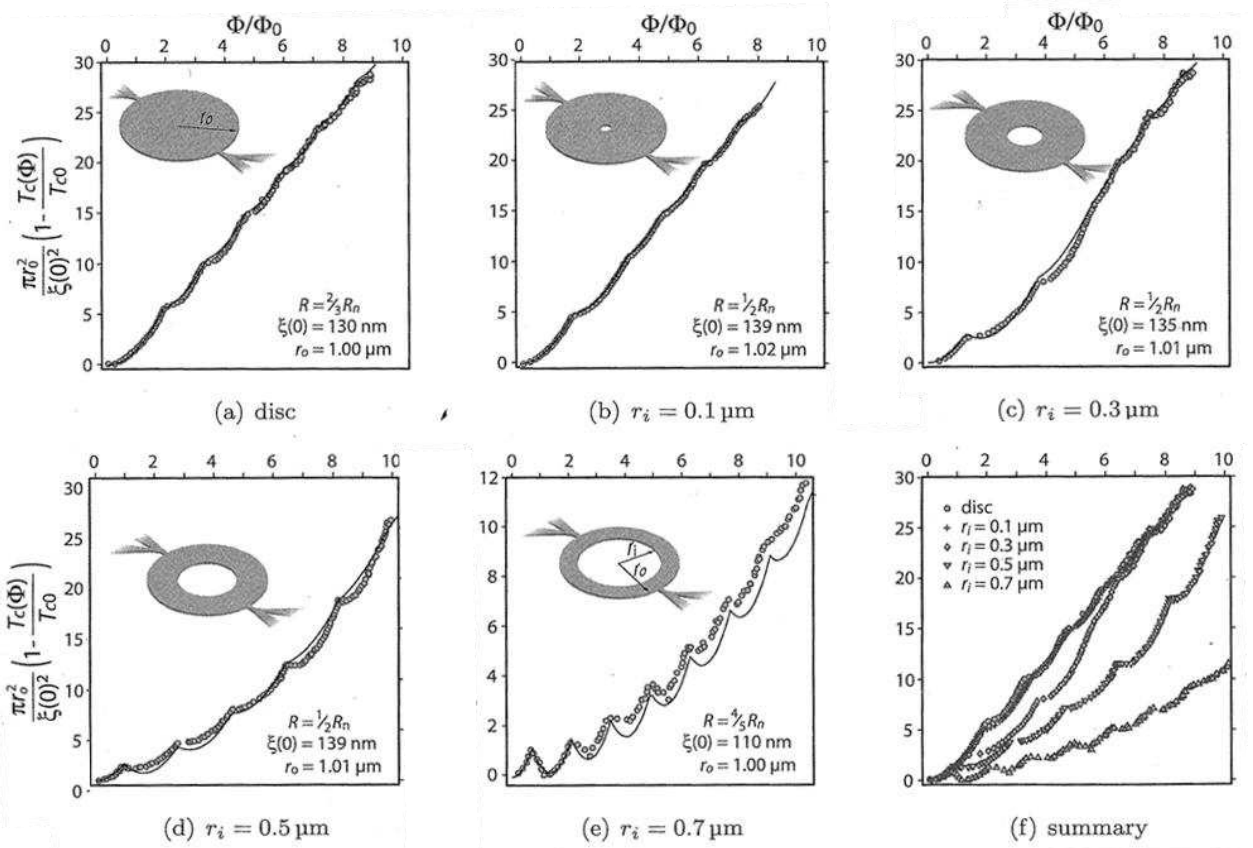


Figure 1.1.3 : courbe Tc-H expérimentales et théoriques prises au bord d'un disque troué en son centre pour différentes valeurs de rayon interne : $r_a = 0$, $r_b = 0,72 \xi$, $r_c = 2,22 \xi$, $r_d = 3,60 \xi$ et $r_e = 6,36 \xi$ [Moshchalkov 2011]. Les courbes a et b sont identiques, les autres courbes s'en écartent d'autant plus que le rayon interne augmente. La courbe c rejoint les deux premières après le quatrième plateau : de même que la courbe limite entre b et c permet de connaître le rayon du cœur normal d'un vortex, la courbe c permet de connaître celui d'un vortex à quatre quanta de flux (chapitre III).

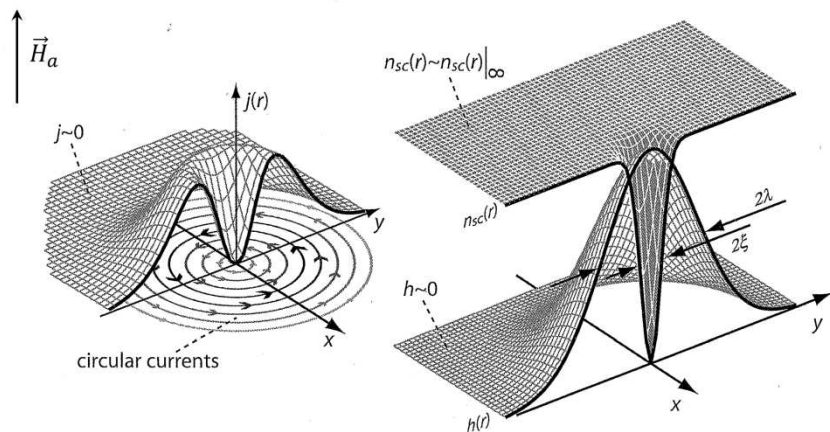


Figure 1.1.4 : Profil de la distribution des courants et du paramètre d'ordre d'un vortex [Moshchalkov 2011]. $h(r)$ utilisée dans la référence correspond au champ magnétique microscopique $b(r)$, $j(r)$ sont les courants de vortex et n_{sc} la densité de paires de Cooper.

A une distance r supérieure à la longueur de cohérence, le paramètre d'ordre vaut quasiment 1, le champ magnétique interne est alors calculé dans la limite de London, $\kappa \gg \sqrt{2}$, à partir de la deuxième équation de Ginzburg-Landau. La solution est une fonction de Bessel dont les trois limites intéressantes sont exposées ci-dessous.

$$\begin{aligned} B(r) &\approx B(0), && \text{pour } r \ll \xi \\ B(r) &\approx \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\lambda^2} \ln\left(\frac{\lambda}{r}\right), && \text{pour } \xi < r \ll \lambda \\ B(r) &\approx \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\lambda^2} \sqrt{\frac{\pi\lambda}{2r}} \exp(-r/\lambda), && \text{pour } r \gg \lambda \end{aligned}$$

Equation 1.1.9 : Champ magnétique interne en fonction de la distance au cœur d'un vortex dans différentes limites. Le cœur du vortex est traité par une fonction delta $\delta(\mathbf{r})$ et le quantum de flux Φ_0 [Moshchalkov 2011].

Les courants de vortex sont calculés à partir des expressions du champ magnétique microscopique.

$$\begin{aligned} j(r) &\approx \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\lambda^2} \frac{1}{r}, && \text{pour } \xi < r \ll \lambda \\ j(r) &\approx \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\lambda^2} \sqrt{\frac{\pi\lambda}{2r}} \exp(-r/\lambda), && \text{pour } r \gg \lambda \end{aligned}$$

Equation 1.1.10 : Courant de vortex en fonction de la distance au cœur [Moshchalkov 2011].

Quantification du flux dans un vortex

Un vortex est traversé par un quantum de flux.

A l'aide des équations de London, de Maxwell et de la conservation de la charge appliquées le long d'un cercle c situé au-delà des courants d'écrantage, $r > \lambda$ (figure 1.1.4), on peut montrer que le flux magnétique est constant à travers la surface délimitée par ce cercle, et que cette constante est le quantum de flux. C'est la signature d'un effet de cohérence quantique.

$$\Phi_0 = h/2e$$

Equation 1.1.11 : Quantum de flux. $2e$ est la charge d'une paire de Cooper et h la constante de Planck.

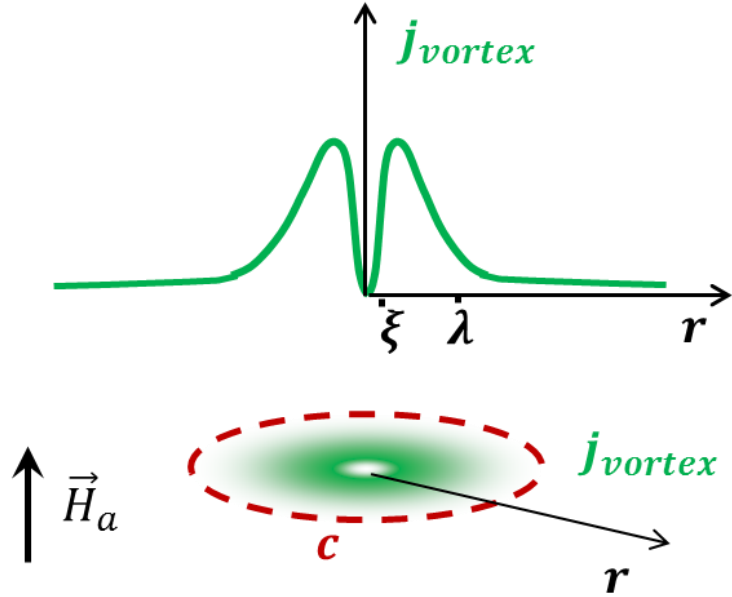


Figure 1.1.5 : Schéma des courants d'un vortex et du contour c permettant de calculer la quantification du flux.

En effet lorsqu'on intègre la seconde équation de Ginzburg-Landau sur ce chemin c , on trouve que l'intégrale est nulle puisque les courants de vortex sont négligeables à un rayon bien supérieur à la longueur de London, $r \gg \lambda$.

$$\begin{aligned} \oint_c d\mathbf{l} \mathbf{J} &= \frac{e^*}{m^*} \oint_c d\mathbf{l} |\Psi(\mathbf{r})|^2 (\hbar \nabla \varphi(\mathbf{r}) - e^* \mathbf{A}(\mathbf{r})) \\ \Rightarrow 0 &= \hbar \oint_c d\mathbf{l} \nabla \varphi(\mathbf{r}) - 2e \oint_c d\mathbf{l} \mathbf{A}(\mathbf{r}) \end{aligned}$$

Equation 1.1.12 : Intégration de la seconde équation de Landau le long d'un circuit fermé entourant un vortex. s est la surface délimitée par le cercle c .

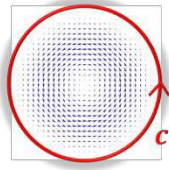
Comme la fonction d'onde est univaluée, la phase est définie à n fois 2π près en chaque point. La circulation du gradient de la phase le long du cercle c vaut donc $2n\pi$.

$$\oint_c d\mathbf{l} \nabla \varphi(\mathbf{r}) = 2n\pi, \quad \text{avec } n \in \mathbb{N}$$

Equation 1.1.13 : L'univaluation de la fonction d'onde en un point du condensat est à l'origine de la quantification du flux.

De plus le potentiel vecteur est relié au champ magnétique par la relation de Maxwell-Ampère qui intégrée sur le cercle c s'écrit sous la forme de l'équation 1.1.12.

$$\oint_c d\mathbf{l} \mathbf{A}(\mathbf{r}) = \int_s d\mathbf{s} \mathbf{B} = \Phi$$



Equation 1.1.14 : Théorème de Maxwell-Ampère et théorème de Green-Ostrogradski appliqués au cercle c entourant la surface s .

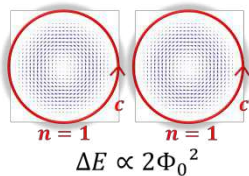
En remplaçant les deux termes des égalités 1.1.13 et 1.1.14 dans la seconde équation de Ginzburg-Landau intégrée en équation 1.1.12, on obtient la quantification du flux.

$$\frac{1}{2\pi} \oint_c \vec{\nabla} \varphi d\vec{l} = n$$

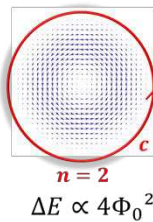
$$\mathbf{0} = \hbar 2n\pi - 2e \Phi$$

$$\Leftrightarrow \frac{\Phi}{\Phi_0} = n$$

Equation 1.1.15 : Quantification du flux au niveau d'un vortex isolé sur une distance bien supérieure à la taille de son cœur, $r \gg \lambda$.



L'énergie du système n'est pas la même selon que les quanta de flux sont créés autour d'un même cœur ou non. En effet l'énergie apportée dépend de $(n \Phi_0)^2$ (équation 1.1.16), soit $(n \Phi_0)^2$ dans le premier cas et $n(\Phi_0)^2$ dans le second, or on voit bien que $(n \Phi_0)^2 > n(\Phi_0)^2$. Le premier cas est celui du vortex géant, n correspond alors à la vorticité L définie comme étant le nombre de quanta de flux qui traversent le vortex géant. Le second cas est celui d'un réseau de vortex d'Abrikosov. Il est donc plus favorable pour un condensat caractérisé par un $\kappa > \sqrt{2}$ de créer des vortex d'Abrikosov plutôt que des vortex géants pour minimiser l'énergie.



$$\Delta E = \frac{1}{4\pi\mu_0} \left(\frac{n \Phi_0}{\lambda} \right)^2 \left[\ln \left(\frac{\lambda}{\xi} \right) + 0.12 \right]$$

Equation 1.1.16 : Energie apportée par un vortex isolé à n quanta de flux dans un système macroscopique. [Lévy 1997]

Organisation des vortex d'Abrikosov

Les supraconducteurs de type II créent un réseau triangulaire de vortex d'Abrikosov.

Les vortex d'Abrikosov se repoussent. Cette interaction répulsive peut être appréhendée facilement à partir des courants de vortex et des champs magnétiques microscopiques. La circulation des courants autour du cœur du vortex induit un champ magnétique. Comme les courants de deux vortex voisins circulent dans le même sens lorsqu'ils sont soumis au même champ magnétique extérieur (je n'aborde pas le cas des antivortex), chacun est traversé par les lignes de champ de l'autre. Les courants induits circulent alors dans le sens opposés aux courants de vortex, ce qui est énergétiquement défavorable. Les vortex s'éloignent.

La densité de vortex d'Abrikosov augmente avec le champ magnétique appliqué. Dans un matériau macroscopique, les vortex s'organisent en réseau triangulaire dit d'Abrikosov (figure 1.1.6). La distance minimale entre vortex est atteinte au champ critique de transition vers l'état normal $\Phi_0/2\pi\xi^2 \cong B_{c2}$. Elle vaut près de trois fois la longueur de cohérence, $a_0 \cong 2,8 \xi$. Cette valeur atteinte, l'énergie libre tend vers zéro et le système transite vers l'état normal. Les vortex peuvent dans certains cas s'organiser en réseau carré dont l'énergie n'est que légèrement supérieure à celle du triangle si la structure cristalline possède une forte asymétrie selon un tel réseau.

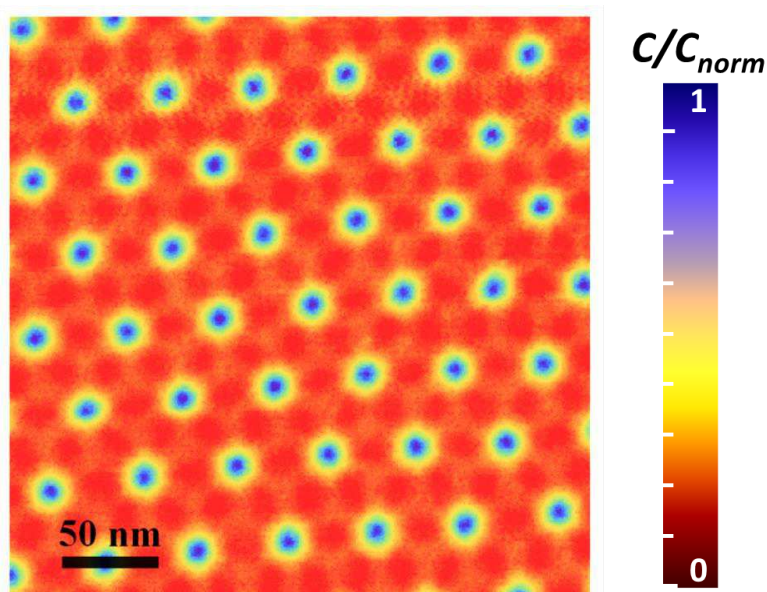


Figure 1.1.6 : Réseau triangulaire d'Abrikosov des vortex dans 2H-NbSe₂, mesuré par spectroscopie à effet tunnel à 300 mK et sous 1,0 T.

Gain énergétique de la phase multivortex

Dans le cas où la longueur de London est inférieure à la longueur de cohérence, $\xi > \lambda$, $\kappa < \sqrt{2}$, on parle de supraconducteur de type I. Le système perd de l'énergie en créant un vortex ; l'énergie de flux ne compense pas le coût en énergie de dé-condensation au niveau du cœur et en énergie magnétique. Les supraconducteurs de type I ne créent donc des vortex qu'à une valeur du champ magnétique très proche de celle de transition vers l'état normal. On observe en effet des zones normales à l'approche du champ critique de transition, le système se scinde en morceaux supraconducteurs avant de transiter entièrement dans l'état normal. Dans le cas des supraconducteurs de type II, la longueur de cohérence est petite devant celle de London, $\xi < \lambda$, le système gagne plus d'énergie liée à la pénétration de vortex qu'il ne perd d'énergie de décondensation et d'énergie magnétique. En augmentant le champ

magnétique, le système crée donc des vortex d'Abrikosov afin de minimiser son énergie libre.

Les vortex en limite propre

La limite sale influe sur l'état du cœur de vortex. Comme le prévoit la théorie de Ginzburg-Landau, le cœur est normal sur la distance ξ . Les équations de Bogoliubov-de Gennes mettent en évidence qu'en réalité, des états existent au cœur de vortex. Elles sont construites à partir de considérations microscopiques comme dans la théorie BCS. Les électrons interagissent via un potentiel d'interaction de contact qui tient compte, d'une part, du désordre, et d'autre part, du potentiel moléculaire. L'amplitude du paramètre d'ordre varie très rapidement sur distance ξ au cœur du vortex, et atteint une valeur asymptotique sur une distance $r = \xi_0 T/T_c$ du centre. Le potentiel associé est alors un potentiel confinant pour les électrons, et induit des états localisés [Caroli 1964]. Ces états localisés peuvent être mesurés en spectroscopie tunnel [Renner 1991]. En mesurant des spectres tunnel sur des films de Pb/Si(111) supraconducteurs de type II, Ning et al montrent qu'un pic d'états localisés est présent au niveau de Fermi pour des épaisseurs supérieures à une soixantaine de monocouches, et que ce pic disparaît des spectres tunnel en deçà de cette épaisseur (figure 1.1.7) [Ning 2010]. On peut ainsi déterminer expérimentalement la limite propre ou sale du système étudié. Les nanostructures de Pb/Si(111) de cette thèse d'une épaisseur de quelques nanomètres, sont donc *a priori* dans la limite sale.

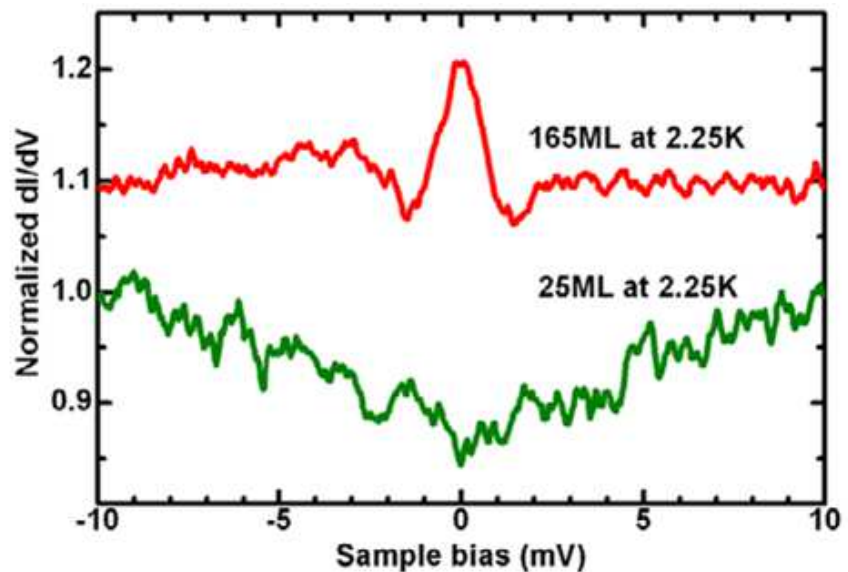
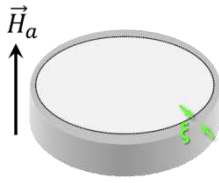


Figure 1.1.7 : Spectres tunnel mesurés par Ning et al au cœur d'un vortex sur deux films de Pb/Si(111) d'épaisseurs différentes : l'un présente un pic au niveau de Fermi, signature de la limite propre, et l'autre n'en présente pas, signature de la limite sale. [Ning 2010]

Supraconductivité de surface



Jusqu'à présent, j'ai basé mon discours sur les équations de Ginzburg-Landau en négligeant les termes de surface. Si on s'intéresse à ce qu'il se passe au voisinage de la surface parallèle au champ magnétique, on constate que la supraconductivité survit au-delà du champ critique H_{c2} , sur une épaisseur de l'ordre de la longueur de cohérence ξ . Cet effet est dû à la compensation entre les courants Meissner et de vortex. On s'attend à ce qu'il soit d'autant plus important que les dimensions du système sont réduites à quelques longueurs de cohérence. La transition vers l'état normal se fait alors au champ H_{c3} supérieur au champ critique H_{c2} .

$$H_{c3} \cong 1,695H_{c2}$$

Equation 1.1.17 : Champ critique de transition vers l'état normal avec la supraconductivité de surface. [Saint-James 1963].

1.2. Système mésoscopique extrême

Nous venons de rappeler quelques grandes caractéristiques de la supraconductivité dans un système macroscopique, nous allons voir à présent que ces caractéristiques diffèrent beaucoup dans un système dont les dimensions sont réduites aux échelles caractéristiques de la supraconductivité. Nous verrons aussi qu'il sera alors possible de créer un vortex géant dans un supraconducteur de type II, ce qui fut l'objectif premier du travail de thèse.

Supraconductivité dans les films minces

Les nanostructures de Pb/Si(111) ont une épaisseur d inférieure à la longueur de London macroscopique. Or dans les supraconducteurs d'épaisseur inférieure à la longueur de London, les courants Meissner ne génèrent pas de moment magnétique suffisant pour expulser le champ magnétique appliqué. Pour que le matériau conserve ses propriétés de diamagnétisme parfait sans que les courants ne dépassent localement le courant critique, ces derniers doivent circuler sur une largeur plus grande. La longueur de pénétration du champ de London Λ est inversement proportionnellement à l'épaisseur d du film.

La supraconductivité persiste dans des systèmes dont une des dimensions est inférieure à la longueur de London. Des grandeurs telles que la longueur de cohérence et la longueur de London dépendent alors de l'épaisseur du film.

$$\Lambda = \lambda^2/d$$

Equation 1.2.1 : Longueur de London dans les couches minces, $d < \lambda$ [ref Pearl 1964].

Comme les courants Meissner et de vortex s'étendent sur une même longueur caractéristique λ (deuxième équation de Ginzburg-Landau), les variations des grandeurs associées au vortex sont modifiées et varient en $1/r$ et non plus en $\ln(1/r)$ avec la réduction de l'épaisseur du film mince (équations 1.1.9, 1.1.10 et 1.2.2). Ainsi le champ magnétique interne h varie plus lentement avec la distance r au cœur du vortex et les courants j circulent sur une surface plus étendue $2\pi\lambda_{eff}^2$ autour du cœur. Le profil des vortex est donc modifié dans les couches minces. L'interaction répulsive entre vortex est de fait à plus grande portée que dans les systèmes de taille macroscopique.

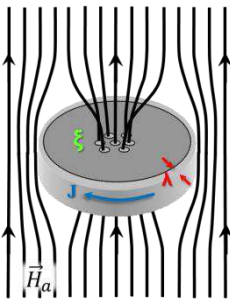
$$B(r) = \frac{\Phi_0}{4\pi\mu_0\lambda_{eff}r}$$

$$j(r) = \frac{\Phi_0}{2\pi\lambda_{eff}^2r}$$

Equation 1.2.2 : Induction magnétique et courant de vortex. r est la distance au cœur du vortex dans la limite où $\xi < r \ll \lambda_{eff}$ [Moshchalkov 2011].

Contributions énergétiques

Les différentes composantes énergétiques du supraconducteur de type II en présence de vortex n'ont pas le même poids selon que ses dimensions sont inférieures à la longueur de London ou non. Nous allons voir que l'énergie magnétique devient alors négligeable tandis qu'elle gouverne la phase de vortex dans un supraconducteur épais.

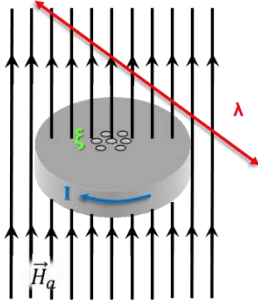


Dans la phase multivortex d'un système macroscopique, chaque vortex apporte une énergie magnétique par unité de volume $\varepsilon_{s,mag,vortex} \approx \mu_0 H_{c1}^2$ sur l'épaisseur λ_{eff} autour de leur cœur. L'énergie libre de Gibbs est reliée à l'énergie libre, $G = F - \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}$. Bien que le terme magnétique soit positif, l'énergie cinétique totale est réduite par une compensation de l'effet Meissner, ce qui revient à réduire l'énergie libre de Gibbs g_s .

$$g_{s,vortex} + n \frac{\lambda_{eff}^2}{D^2} \mu_0 H_{c1}^2 / 2 \approx g_n - \frac{\mu_0 H_{c2}^2}{2}$$

Equation 1.2.3 : Énergie libre de Gibbs par unité de volume dans la phase multivortex au champ critique de transition vers l'état normal H_{c2} . D est la dimension latérale du système et n le nombre de vortex. $g_{s,vortex}$ comporte les termes cinétiques et de décondensation au cœur des vortex.

Pour trouver l'état stable à partir des équations de Ginzburg-Landau, il faut considérer ce deuxième terme de la fonctionnelle de Landau et trouver le minimum d'énergie.



Dans le cas du système de très petites dimensions, le champ magnétique pénètre le système en tout point, la densité d'énergie magnétique par unité de volume vaut à peu près partout $\epsilon_{s,mag} \approx \mu_0 H^2 / 2$. L'induction magnétique totale égale le champ magnétique appliqué : $\mathbf{M} = \mathbf{0}$, or $\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M})$ donc $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}_a$. Il est important de noter que l'énergie magnétique supplémentaire apportée par le vortex lors de son entrée est alors quasiment nulle, $E_{s,mag} = (D^2 \hbar) \mu_0 H_{c1}^2 / 2 \gg (\xi_{eff}^2 \hbar) \mu_0 H_{c2}^2 / 2$. Dans les supraconducteurs dont les dimensions latérales sont de l'ordre de λ et ξ , la phase de vortex n'est donc pas gouvernée par l'énergie magnétique, quatrième terme de la fonctionnelle de Landau, mais par le troisième terme d'énergie comportant les énergies cinétiques Meissner et de vortex (équation 1.1.1). En somme, l'énergie libre a pour composantes l'énergie cinétique positive due à l'effet Meissner et aux vortex, l'énergie magnétique positive due à la pénétration totale du champ magnétique et l'énergie de condensation négative (équation 1.2.4).

Dans les systèmes confinés, les énergies cinétiques et de décondensation gouvernent la transition vers l'état normal.

$$G_s - G_n = (a|\Psi(\mathbf{r})|^2 + \frac{b}{2}|\Psi(\mathbf{r})|^4) + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - 2e\mathbf{A} \right) \Psi(\mathbf{r}) \right|^2 = E_{cond} + E_{c,Meissner+vortex}$$

Equation 1.2.4 : Différence d'énergie libre de Gibbs entre l'état normal G_n et l'état supraconducteur G_s d'un supraconducteur dont les dimensions sont bien inférieures à la longueur de London.

Pour une faible variation du champ magnétique lors de la création d'un vortex, l'énergie cinétique totale $E_{c,Meissner+vortex}$ chute, les courants Meissner sont en partie compensés par ceux de vortex ; l'énergie de condensation E_{cond} diminue en amplitude mais l'énergie magnétique E_{mag} ne change pas.

La figure 1.2.1 illustre le résultat numérique pour un disque sous champ magnétique appliqué selon son axe, et acceptant un vortex géant. Tout comme les résultats expérimentaux obtenus dans les disques troués (figure 1.1.3) ; la courbe de plus basse énergie a une allure parabolique et discontinue. Nous allons voir maintenant pourquoi.

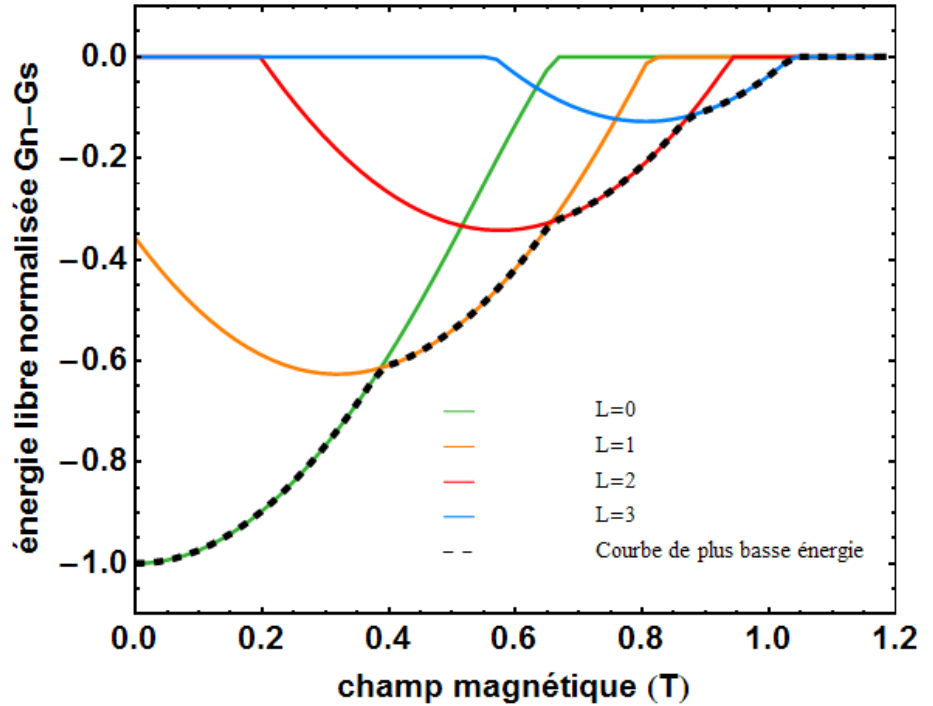


Figure 1.2.1 : Différence d'énergie libre de Gibbs entre l'état supraconducteur et l'état normal en fonction du champ magnétique et de la vorticité L du vortex géant dans un disque de rayon $R = 2 \xi_{eff}$.

Selon le théorème d'Ampère et la deuxième équation de Ginzburg-Landau appliqués à un cercle, les paires de Cooper mises en rotation par induction magnétique acquièrent une vitesse proportionnelle à la valeur du champ H_a et à la distance au centre r (équation 1.2.5, figure 1.2.2).

$$\nabla \times \mathbf{H}_a = \mu_0 \mathbf{j}(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{H}_a \times \mathbf{r}}{2\lambda^2} = \frac{H_a r}{2\lambda^2} \mathbf{u}_\theta$$

Equation 1.2.5 : Courant Meissner circulaire. \mathbf{u}_θ est le vecteur polaire angulaire et $\mathbf{H} = H \mathbf{u}_z$. La jauge idéale pour le calcul est $\mathbf{A} = \mathbf{r} \times \mathbf{H}_a/2$.

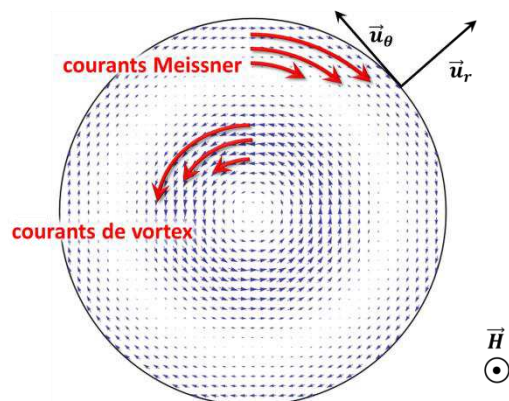


Figure 1.2.2 : Schéma de la distribution de la densité des courants dans un supraconducteur soumis à un champ magnétique.

Le nombre de vortex dans le système est donné par la courbe de plus basse énergie $E(H)$.

Comme l'énergie cinétique dépend du carré de la vitesse, l'énergie libre dans la phase Meissner et à faible champ $H_a \ll H_{c2}$ varie comme le carré de l'intensité du champ magnétique, $\varepsilon_c = m^* v^2 / 2 = m^* (H_a r / \sqrt{2} n e)^2$, d'où $E_c \propto H_a^2$. Avant l'entrée d'un vortex à H_e , l'énergie libre varie selon H_a^2 . Avec un vortex supplémentaire elle augmente en $(H_a - H_0)^2$ avec H_0 la valeur minimale de la parabole $L = 1$. Ce minimum H_0 est *a priori* différent de celui d'entrée du premier vortex H_e . La courbe $E(H)$ obtenue présente une rupture de pente à chaque entrée de vortex (figure 1.2.1).

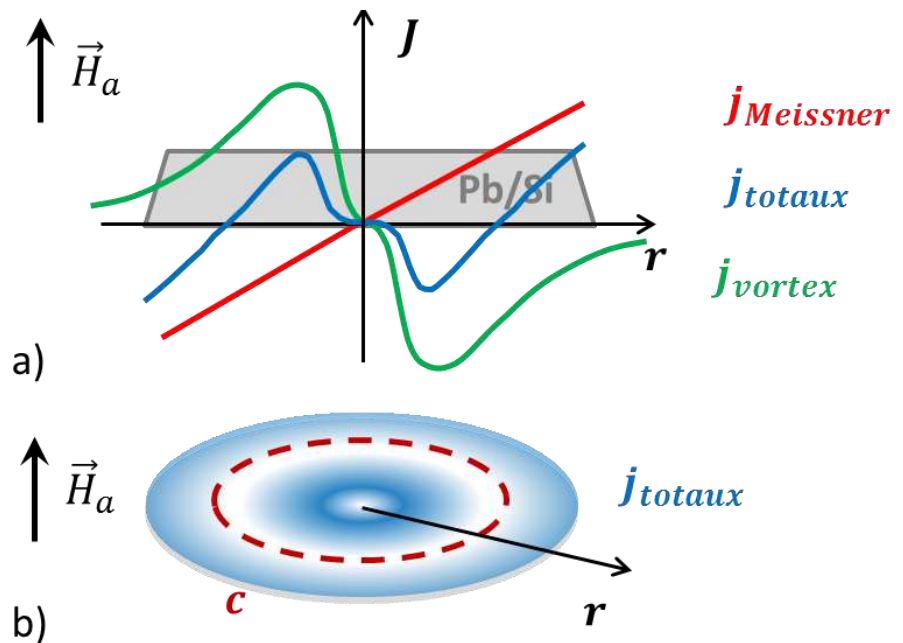


Figure 1.2.3 : Schéma de la distribution des courants dans un cylindre supraconducteur soumis à un champ magnétique parallèle à son axe. **a.** Profil. **b.** Vue de dessus. La ligne de courant nul est notée c , le flux traversant l'aire interne égale le quantum de flux.

La $n^{\text{ième}}$ parabole de la courbe $E(H)$ indique ainsi l'état de vortex à $L = n$. De part et d'autre du minimum de chaque parabole, les courants Meissner et de vortex se compensent mal (figures 1.2.3). La création d'un $i^{\text{ème}}$ vortex au champ H_{ei} est déterminée par l'interception entre les $i^{\text{ème}}$ et $i+1^{\text{ème}}$ paraboles. La ligne de plus basse énergie dite $E(H)$ est constituée des morceaux de ces courbes ayant les plus basses énergies. La transition dans l'état normal a lieu à $\Delta G = 0$, c'est-à-dire lorsque la courbe croise l'axe des abscisses. La courbe $E(H)$ présente donc des discontinuités à chaque changement de vorticité L .

Quantification du fluxoïd

Si en plus de son épaisseur, le système a ses dimensions latérales inférieures à la longueur de London, alors il n'existe pas de chemin

Le fluxoïd reste quantifié avec la réduction des dimensions latérales du supraconducteur en deçà de la longueur de London.

circulaire à l'intérieur du supraconducteur au-delà duquel les courants de vortex sont nuls, à la différence du vortex isolé dans un système macroscopique. Une quantification persiste cependant, la condition sur la phase étant une propriété intrinsèque de la fonction d'onde globale du condensat. Le fluxoïd défini en équation 1.2.6 est quantifié. Plus exactement, il existe toujours un cercle c de courant nul autour du cœur des vortex dans lequel la deuxième équation de Ginzburg-Landau garantit la quantification du flux. La surface traversée par le flux quantifié n'est pas constante mais évolue en fonction du champ magnétique appliqué de telle sorte que le flux la traversant est toujours égal au quantum de flux.

$$\Phi_{oïd} = \Phi + \oint_{c'} dl J$$

Equation 1.2.6 : Définition du fluxoïd. c' est le contour de l'échantillon et Φ est le flux à l'intérieur de ce contour.

La théorie du vortex géant

Historiquement, juste après que furent établies la théorie de Ginzburg-Landau et la description des vortex par Abrikosov dans les années soixante, Fink et Presson calculent l'occurrence possible du vortex géant dans la phase de vortex [Fink 1966]. Ils considèrent alors le vortex géant comme un état de surface pour lequel les courants circulent à la périphérie de l'échantillon et encerclent L quanta de flux et une seule singularité du paramètre d'ordre. Cette première approche inclut l'effet Meissner complet qui est la situation à $L = 0$. Le vortex géant est un vortex dont le paramètre d'ordre se déphase d'un nombre L fois 2π en faisant un tour complet autour du cœur (équation 2.3.1). Le vortex usuel est donc un vortex géant pour lequel $L = 1$. Pour calculer le domaine de stabilité du vortex géant, Fink et Presson sont partis de cette expression du paramètre d'ordre du vortex géant et ont résolu les équations de Ginzburg-Landau non linéaires. Ils en déduisent que le vortex géant est une phase qui apparaît dans des systèmes de petite taille à $\kappa \sim \sqrt{2}$, et se situe proche du champ critique H_{c2} dans le diagramme de phase.

Le vortex géant est ensuite défini de façon plus générale comme étant une solution analytique des équations de Ginzburg-Landau résolues dans un cylindre infini sous champ magnétique. Le vortex de Fink et Presson en est donc un cas particulier. L'ensemble de ces solutions a été calculé récemment par Moshchalkov et al pour un paramètre d'ordre Ψ quelconque (équations 1.2.7 et 1.2.8) [Moshchalkov 2011]. Ils obtiennent alors la courbe de plus basse énergie et trouvent que l'énergie est plus faible que celle des niveaux de Landau du cylindre macroscopique de

rayon infini. Par ailleurs, le paramètre β le long de cette courbe est inférieur à la limite autorisée dans le réseau d'Abrikosov, $\beta = |\Psi|^4 / (|\Psi|^2)^2$ et $\beta_{min} = 1,16$. La solution du vortex géant est donc stable sous la condition que le rayon du cylindre soit très petit devant la longueur de London.

$$\Psi(r, \varphi) = \Psi_0(r) e^{iL\varphi}$$

Le vortex géant est un vortex dont la vorticité est supérieure à 1.

Equation 1.2.7 : Paramètre d'ordre du vortex géant défini dans les années 60 [Saint James 1969].

$$\Psi(r, \varphi) = [r^L \gamma^{(L+1)/2} e^{-\gamma r^2/2} M(-N, L+1, \gamma r^2)] e^{\pm iL\varphi}$$

Equation 1.2.8 : Paramètre d'ordre du vortex géant défini dans les années 2000 [ref Moshchalkov 2011]. M est la fonction Kummer :

$$M(-N, L+1, \gamma r^2) = 1 + \frac{-N}{L+1} \gamma r^2 + \frac{-N(-N+1)}{(L+1)(L+2)} \frac{(\gamma r^2)^2}{2!} + \frac{-N(-N+1)(-N+2)}{(L+1)(L+2)(L+3)} \frac{(\gamma r^2)^3}{3!} + \dots$$

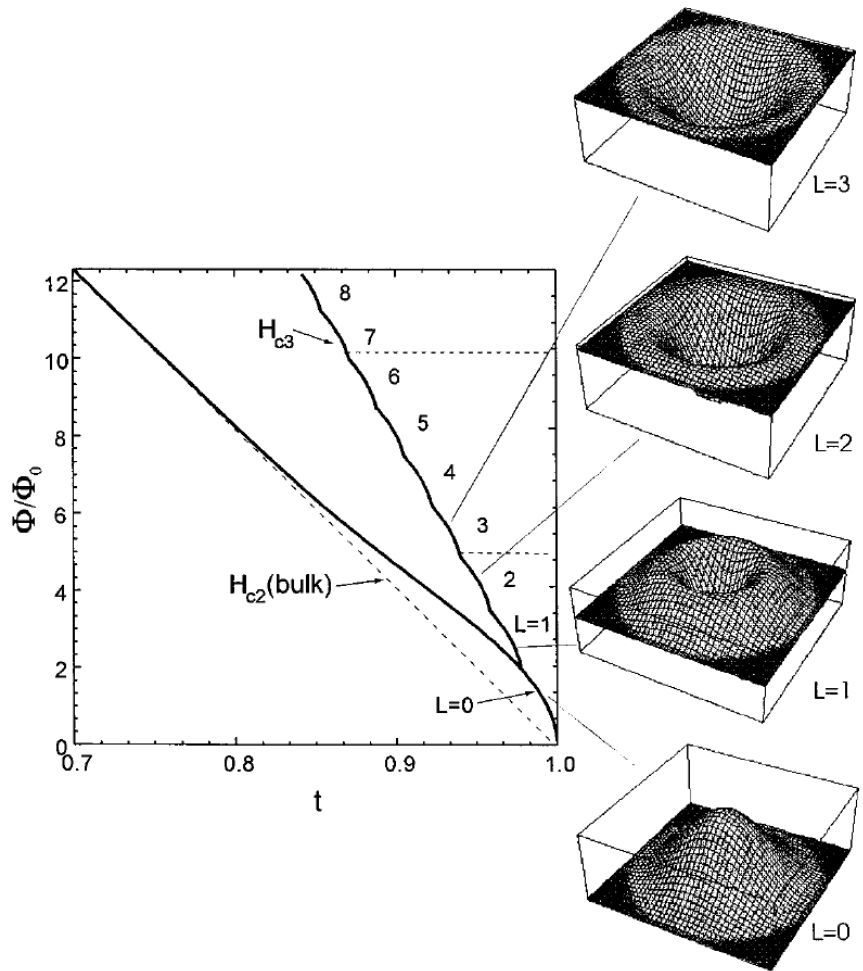


Figure 1.2.4 : Énergie libre et carte spatiale 3D de l'amplitude du paramètre d'ordre dans la phase vortex géant [Moshchalkov 1997]. $t = T/Tc$.

Les résultats obtenus par Fink et Presson d'une part et Moschalkov et al d'autre part se rejoignent dans le cas des cylindres infinis ou des disques infiniment fins devant la longueur de cohérence. La description analytique du vortex par Fink et Presson est obtenue dans un cadre moins général mais elle est plus pédagogique car elle fait apparaître explicitement le nombre quantique L . Je l'utiliserai donc pour décrire qualitativement les résultats expérimentaux du vortex géant.

Les nanostructures de Pb/Si(111)

Les îlots de plomb sont des supraconducteurs de type II. Pour y confiner les vortex, leurs dimensions latérales doivent être inférieures au micromètre et leur hauteur à une cinquantaine de nanomètres.

Dans un système macroscopique, le plomb est un supraconducteur de type I, la longueur de cohérence est $\xi_0 \cong 83 \text{ nm}$ et sa température critique est 7,2 K. Pour des épaisseurs inférieures à une centaine de nanomètre, il devient de type II et sa température critique diminue [Dolan 1973]. C'est le cas des îlots de plomb supportés par le substrat de silicium. Bien que la maille 7x7 du silicium est observée à travers les nanocristaux de plomb [Brun 2009], l'interface avec le silicium est suffisamment désordonnée pour diffuser les électrons. Le libre parcours moyen est alors limité par deux fois la hauteur d des îlots $l_e \cong 2d$. On trouve que pour des îlots d'une épaisseur inférieure à dix nanomètres, le libre parcours moyen est inférieur à la longueur de cohérence : $l_e < 20 \text{ nm}$, $l_e / \xi_0 = 20/83 \cong 0,24$. Les nanostructures de cette thèse ayant une épaisseur de quelques nanomètres, elles se trouvent donc dans la limite sale. La longueur de cohérence et la longueur de London sont alors calculées à partir des expressions de l'équation 1.3.1.

Comme : $\xi_0 = 83 \text{ nm}$, $\lambda_0 = 50 \text{ nm}$ et $k_B T_c / \Delta(300 \text{ mK}) \cong 3,96$ soit la température réduite $\sqrt{\tau} \cong 3,06/3,96 = 0,77$ (équation 2.4); alors : $\xi_{sale} \cong 0,855 \sqrt{\xi_0 l_e / |\tau|} \cong 30 \text{ nm}$ et $\lambda_{sale} = \lambda_0 \sqrt{\xi_0 / 1,33 l_e} \cong 125 \text{ nm}$.

Pour des nano-îlots de plomb d'une épaisseur inférieure à 10 nm, la longueur de London effective est $\Lambda_{eff} > 1,5 \mu\text{m}$ ($\Lambda_{eff} = \lambda_{sale}^2 / d$, équations 1.1.8 et 1.2.1). Comme les nanostructures synthétisées dans cette thèse sont larges de quelques dizaines de nanomètres, les dimensions latérales sont alors très petites devant la longueur de London effective, $D \ll \Lambda_{eff}$. Les courants Meissner ne créent donc pas un champ magnétique suffisant dans le supraconducteur pour compenser celui appliqué.

Pour observer les vortex dans les supraconducteurs de type II et les confiner par les contraintes géométriques en s'affranchissant de l'interaction magnétique entre vortex, il faut faire croître des îlots de quelques nanomètres de haut et quelques dizaines de nanomètres de large.

2. La théorie BCS

La théorie BCS est une description microscopique de la supraconductivité traitant un problème à un grand nombre d'électrons décrits par le Hamiltonien BCS, équation 2.1. Elle postule que celui-ci comporte un potentiel d'interaction attractif entre les électrons de conduction. Ce potentiel peut être vu comme une déformation du réseau cristallin polarisé localement par le passage d'un électron. Les phonons correspondant à cette polarisation doivent alors avoir une fréquence suffisamment basse pour qu'un deuxième électron soit sensible à cette déformation avant que la matrice n'ait relaxé. Le couplage intermédiaire au réseau cristallin est l'interaction coulombienne entre la charge négative de l'électron et positive du réseau ce qui explique le potentiel attractif. Pour que les électrons se couplent entre eux, il faut également que ce potentiel soit supérieur à la répulsion coulombienne entre leurs charges. Cette condition est assurée dès lors que l'interaction via les phonons est à longue portée. En effet les charges des électrons de conduction sont écrantées sur la longueur de Thomas-Fermi dans un métal volumique. Les électrons s'apparient alors deux par deux (le nombre étant limité par le principe d'exclusion de Pauli). Dans l'état fondamental, les paires ainsi formées dites de Cooper sont des bosons composites : elles se condensent et sont alors décrites par une fonction d'onde commune, avec $\Psi = |\Psi| \exp(i\varphi)$ où $n_s = |\Psi|^2$ est la densité de paire de Cooper et φ la phase macroscopique.

$$\mathcal{H} = \sum_{k,\sigma} \varepsilon(k) c_{k,\sigma}^\dagger c_{k,\sigma} + \sum_q \hbar\omega_q b_q^\dagger b_q + \frac{1}{\sqrt{\omega}} \sum_{k,q,\sigma} g(k,q) [c_{k+q,\sigma}^\dagger b_q c_{k,\sigma} + c_{k+q,\sigma}^\dagger b_{-q}^\dagger c_{k,\sigma}]$$

Equation 2.1 : Hamiltonien BCS.

Avec c^\dagger et c les opérateurs de création et d'annihilation en seconde quantification, la lettre c se rapportant aux électrons et la lettre b aux phonons. k et q sont leurs vecteurs d'onde respectifs, σ est le spin des électrons. g est le couplage entre les électrons et les phonons, au second ordre de la théorie des perturbations, il traduit l'échange de vecteur d'ondes et de spins par l'intermédiaire d'un phonon. Ce processus est schématisé par le diagramme de Feynman en figure 2.1.

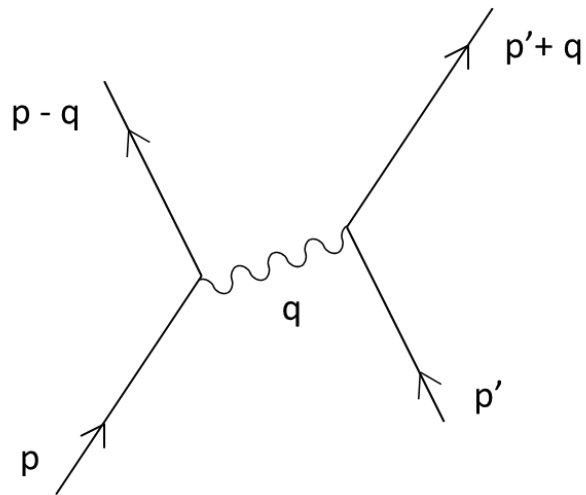


Figure 2.1 : Diagramme de Feynman décrivant l'interaction entre électron et phonon au deuxième ordre de la théorie des perturbations. Deux électrons de vecteurs d'onde p et p' échange un vecteur d'onde q par l'intermédiaire d'un phonon de vecteur d'onde q .

Dans l'étude de l'état fondamental BCS, les résultats des calculs thermodynamiques sont limités à des états de phase fixée dans l'ensemble grand canonique, c'est-à-dire que le nombre de particules n'est spécifié qu'en moyenne par un potentiel chimique.

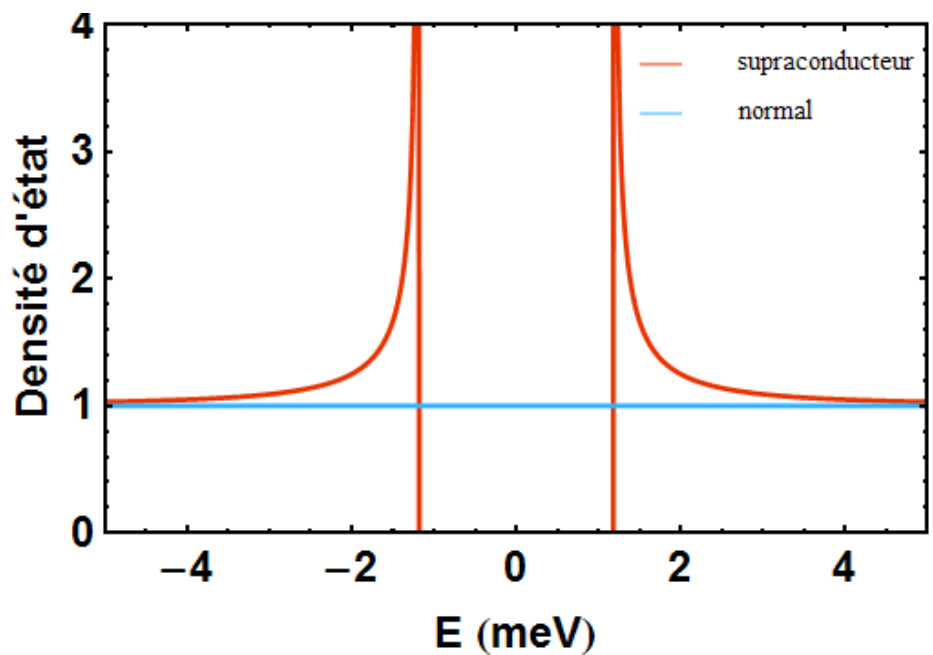


Figure 2.2 : Densité d'état électronique supraconducteur obtenue par la théorie BCS à partir de la densité d'état normal constante, à température nulle. Le gap en énergie est ici celui du plomb $\Delta_0 = 1,2 \text{ meV}$.

Un des résultats les plus importants de la théorie BCS est la densité d'excitations élémentaires du condensat.

$$n_s(E) = n_n(E_F) \frac{E}{\sqrt{E^2 - |\Delta|^2}} \quad \text{pour } E > |\Delta|$$

$$n_s(E) = 0 \quad \text{pour } E < |\Delta|, \quad \text{avec } E \equiv |\varepsilon - \varepsilon_F|$$

Equation 2.2 : Densité d'états électroniques BCS dans l'état supraconducteur à température nulle.

Cette équation prédit qu'il existe une fenêtre d'énergie $[-\Delta, +\Delta]$ autour du niveau de Fermi pour laquelle la densité d'état est nulle. Au bord de ce gap, la densité d'état présente deux singularités. Comme le nombre total d'états est conservé, ceux qui se trouvaient dans cette fenêtre d'énergie dans l'état normal sont « poussés » au-dessous et au-dessus de $\pm|\Delta|$. Lorsque la température augmente, une énergie thermique est fournie au condensat. Des paires de Cooper d'énergie comprise dans la fenêtre $[-\Delta, +\Delta]$ sont excitées ce qui se traduit en moyenne par l'arrondissement des pics et un remplissage progressif des états dans le gap en énergie.

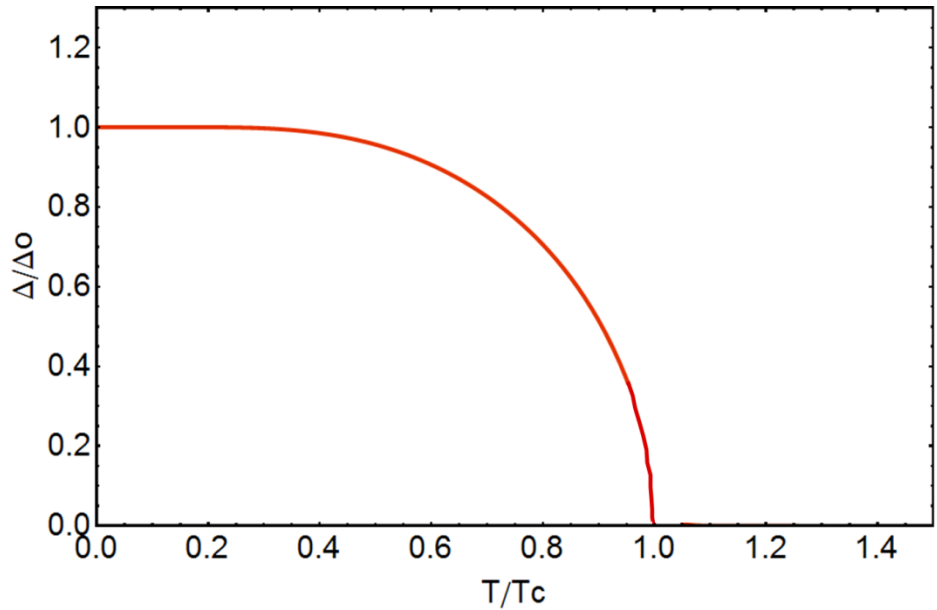


Figure 2.3 : Dépendance du gap en énergie avec la température d'après la théorie BCS. Elle est donnée par la relation auto-consistante (équation 2.3). La température critique du plomb est $T_c = 7,2$ K.

$$1 = n_n(\varepsilon_F) \int_0^{\hbar\omega_D} dE \frac{\tanh(\sqrt{E^2 + \Delta^2}/2k_B T)}{\sqrt{E^2 + \Delta^2}}$$

Equation 2.3 : Équation d'auto-consistance BCS. $\hbar\omega_D = 8.3$ meV est l'énergie de Debye des phonons du plomb, $n_n(\varepsilon_F) = 0.38$ la densité d'état normale au niveau de Fermi et $k_B = 1,38 \cdot 10^{-23}$ JK⁻¹ la constante de Boltzmann.

Théorie BCS et théorie de Ginzburg-Landau

Comme les deux sections précédentes le mettent en évidence, la théorie de Ginzburg-Landau décrit les systèmes macroscopiques à l'approche de la transition entre l'état supraconducteur et l'état normal à une température avoisinant la température critique de transition T_c . La théorie BCS est quant à elle développée à température nulle. Bien qu'elle puisse décrire les systèmes à température finie proche de zéro en faisant intervenir dans les équations la distribution de Fermi-Dirac, la théorie de Ginzburg-Landau est souvent utilisée pour décrire les phénomènes macroscopiques dans les supraconducteurs à des températures bien inférieures à la température critique. En effet, il est agréablement surprenant de constater que les équations de Ginzburg-Landau décrivent un grand nombre de systèmes loin de la température critique. De plus, sa simplicité permet d'aborder des situations où la supraconductivité n'est pas homogène, ce qui est difficile avec la théorie BCS.

La théorie BCS n'est utilisée dans cette thèse que pour décrire comment accéder au spectre d'excitation tunnel mesuré avec le microscope à effet tunnel.

Température réduite :	$\tau = \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)$
Gap en énergie :	$\Delta \cong 3,06 k_B T_c \sqrt{\tau}$
Longueur de cohérence de Pippard (BCS) :	$\xi_{BCS} \cong \xi_0 \frac{\sqrt{ \tau }}{0,74}$

Equation 2.4 : Expressions reliant les grandeurs BCS et Ginzburg-Landau. [Lévy 1997]

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

La spectroscopie tunnel présente des avantages uniques pour explorer le diagramme de phase des vortex dans des nanostructures. Elle permet de mesurer directement le spectre d'excitations local des surfaces supraconductrices. Outre la nécessité de travailler en dessous de la température critique supraconductrice, réduire la température permet d'améliorer la résolution en énergie. Par ailleurs, la surface de l'échantillon doit être parfaitement propre. Le microscope est ainsi entouré d'un système ultravide et d'un système cryogénique.

Ce chapitre présente le principe du microscope à effet tunnel, la mesure spectroscopique, l'outil expérimental et son environnement.

1. Le microscope à effet tunnel

Bien que le concept de l'effet tunnel soit apparu dès les fondements de la théorie quantique, et ait rapidement servi à interpréter des phénomènes variés (émission de champ, radioactivité α), la première observation d'un courant tunnel n'est reportée qu'en 1958 dans des jonctions de Germanium. A la fin des années 1960, Young et ses collaborateurs mettent au point une sorte de microscope à effet de champ, appelé le Topographe. Pourtant, ce n'est qu'en 1981 que G. Binnig et H. Röhrer mettent au point le microscope à effet tunnel (STM pour Scanning Tunneling Microscope en anglais), permettant d'obtenir l'image de la reconstruction 7×7 du silicium (111). Ceci leur vaut le prix Nobel en 1986. En effet, leur microscope va révolutionner le monde de la physique des surfaces dans la mesure où, pour la première fois, il permet d'obtenir une image directe d'une surface sans avoir à passer par le réseau réciproque, et ce, avec la résolution atomique.

1.1. Principe de l'effet tunnel

La sonde utilisée pour l'étude de cette thèse est le microscope à effet tunnel. Cette section fait le lien entre le courant tunnel et le spectre

d'excitations du condensat qui permet de comprendre comment l'information sur la supraconductivité est extraite du signal mesuré.

Lorsque deux métaux sont séparés par une couche mince d'oxyde ou de vide de quelques longueurs atomiques, les électrons ont une probabilité non nulle de traverser la barrière par effet tunnel. Le couplage par effet tunnel est traité par Thersoff et Hamann comme une petite perturbation du Hamiltonien total des électrons de conduction.

$$H = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k a_{k,\sigma}^\dagger a_{k,\sigma} + \sum_{p,\sigma} \varepsilon_p b_{p,\sigma}^\dagger b_{p,\sigma} + H_T$$

$$H_T = t \sum_{k,p,\sigma} a_{k,\sigma}^\dagger b_{p,\sigma} + t^* \sum_{k,p,\sigma} a_{k,\sigma} b_{p,\sigma}^\dagger$$

Equation 1.1.1 : Hamiltonien électronique de la jonction tunnel.

où c^\dagger et c sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation des électrons avec $c = a, b$ selon l'électrode considérée de part et d'autre de la barrière tunnel, t et t^* sont le coefficient de transmission tunnel entre les deux électrodes.

Le courant tunnel peut se décomposer en deux parties, l'une correspondant au courant allant d'une électrode a vers la deuxième électrode b et inversement pour l'autre partie (équation 1.1.2).

$$J = J_{a \rightarrow b} - J_{b \rightarrow a}$$

Equation 1.1.2 : Courant tunnel entre deux électrodes a et b .

En négligeant la dépendance en énergie de la transparence t , le flux d'électrons $J_{a \rightarrow b}$ allant d'une électrode a vers une électrode b s'exprime comme suit après application de la règle d'or de Fermi (équation 1.1.3).

$$J_{a \rightarrow b} = \frac{2\pi}{\hbar} e \sum_{k,p} |t|^2 f_a(\varepsilon_k - \mu_a) (1 - f_b(\varepsilon_p - \mu_b)) \delta(\varepsilon_k - \mu_a - \varepsilon_p + \mu_b)$$

Equation 1.1.3 : Courant tunnel de l'électrode a vers l'électrode b . f est la fonction de Fermi-Dirac électronique, elle indique le taux d'occupation des niveaux énergétiques en fonction de la température. L'indice i est là pour aider la compréhension des termes Le terme $(1 - f_i)$ restreint donc l'intégrale aux états inoccupés du côté i (accepteur d'électron) et f_j à ceux occupés de l'autre côté j (donneur d'électron).

A l'équilibre thermodynamique, il y a autant d'électrons qui circulent dans un sens que dans l'autre, le courant tunnel est donc nul en moyenne. Une différence de potentiel V entre les deux métaux maintient une différence de potentiel chimique : $\mu_a = -eV + \mu_b$.

Le courant tunnel dépendant de la densité d'états électroniques des deux

électrodes est donné sous forme intégrale en équation 1.1.4.

$$\begin{aligned}
 J &= \frac{2\pi}{\hbar} e \int d\varepsilon_k \int d\varepsilon_p |t|^2 n_a(\varepsilon_p) n_b(\varepsilon_k) f(\varepsilon_k) (1 - f(\varepsilon_p)) \delta(\varepsilon_k - \varepsilon_p - eV) \\
 &\quad - \frac{2\pi}{\hbar} e \int d\varepsilon_k \int d\varepsilon_p |t|^2 n_a(\varepsilon_p) n_b(\varepsilon_k) f(\varepsilon_p) (1 - f(\varepsilon_k)) \delta(\varepsilon_k - \varepsilon_p - eV) \\
 &= -\frac{2\pi}{\hbar} e \int d\varepsilon_k |t|^2 n_a(\varepsilon_k + eV) n_b(\varepsilon_k) [(f(\varepsilon_k + eV)(1 - f(\varepsilon_k)) - f(\varepsilon_k)(1 - f(\varepsilon_k + eV))]
 \end{aligned}$$

Equation 1.1.4 : Courant tunnel à l'équilibre thermodynamique.

La conductance différentielle est donnée par la dérivée du courant en fonction de la tension appliquée. Si on considère la densité d'états n_a constante, ce qui sera le cas pour la pointe du microscope, l'expression du courant tunnel se simplifie (équation 1.1.5).

$$\begin{aligned}
 \frac{dI}{dV} &= \frac{2\pi}{\hbar} e^2 \int d\varepsilon_k |t|^2 n_a n_b(\varepsilon_k) \frac{df(\varepsilon_k + eV)}{d\varepsilon_k} \\
 &\cong \frac{2\pi}{\hbar} e^2 |t|^2 n_a n_b(eV), \quad \text{à } T = 0
 \end{aligned}$$

Equation 1.1.5 : conductance tunnel à température finie et à température nulle. L'origine des énergies est prise au niveau de Fermi.

A très basse température, la conductance tunnel est proportionnelle à la densité d'états électroniques locale

Elle est donc proportionnelle au produit des densités d'états à température nulle. A température finie, la conductance tunnel est différente de la densité d'états locale, cette dernière est convoluée avec la dérivée de la fonction de Fermi-Dirac $df/d\varepsilon$ (équation 1.1.5). L'énergie thermique des électrons est alors donnée par $k_B T$ et correspond à un élargissement de $E_T \cong 3.5 k_B T$ des états à 300 mK. Les énergies des nanostructures supraconductrices de Pb/Si(111) que nous désirons mesurer sont de l'ordre de $10^{-3} eV$. Pour observer la signature spectroscopique associée, il est nécessaire de travailler à 300 mK : $E_T \cong 10^{-4} eV$ (figure 1.1.1).

La difficulté technique de la sonde STM est qu'on ne connaît *a priori* pas la densité d'états de la pointe. Les pointes STM sont donc faites en matériau « bon conducteur » dont la densité d'états est plate sur une gamme d'énergie de l'ordre de l'électron volt. Si la pointe a une densité n_a qui ne dépend pas de l'énergie, alors la densité d'états n_b de l'échantillon est déduite de la mesure de la conductance tunnel (équation 1.1.5).

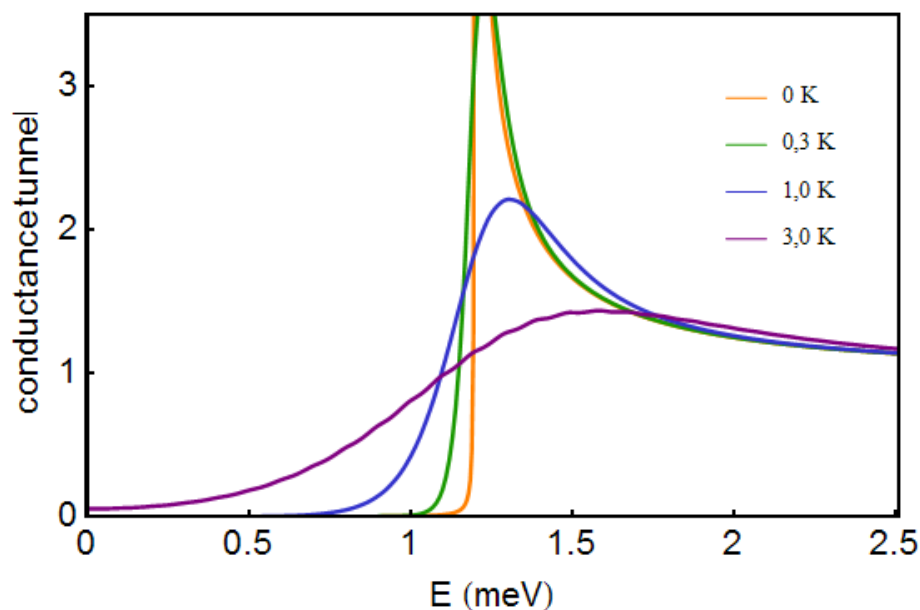


Figure 1.1.1 : Conductance tunnel calculée à partir de l'équation 1.2.2 entre une électrode normale et une électrode supraconductrice en fonction de la température. Le gap en énergie est celui du plomb à température nulle. La conductance tunnel est donnée en unité de densité d'état normal considérée constante.

1.2. Effet tunnel et densité d'états supraconductrice

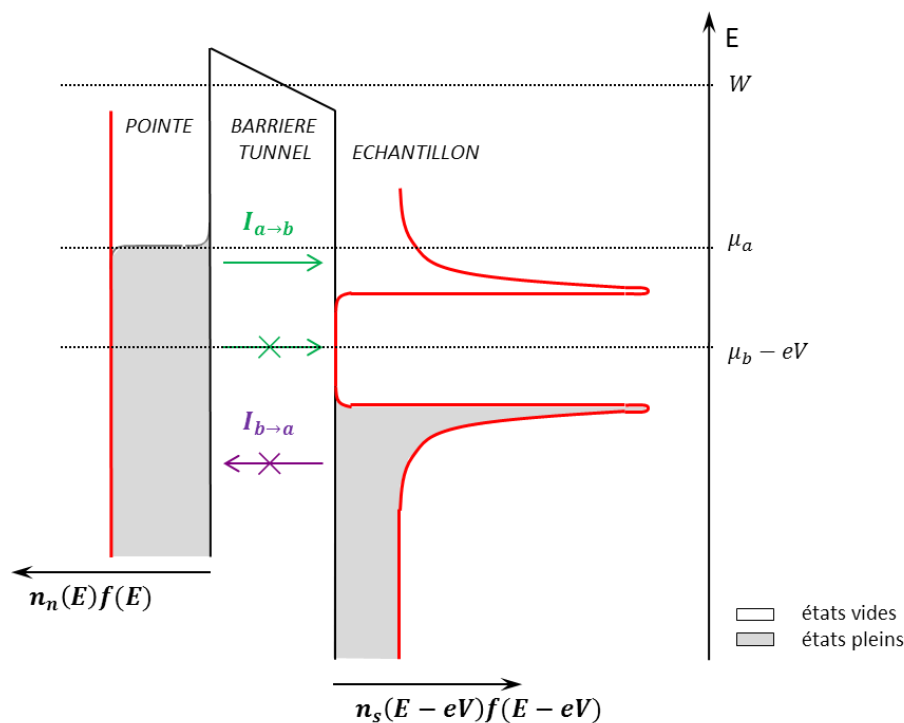


Figure 1.2.1 : Schéma de l'effet tunnel entre une pointe normale et un échantillon supraconducteur à très basse température.

Dans un métal supraconducteur, les électrons de conduction s'apparient en paires de Cooper. Il n'est pas possible de détecter des paires de Cooper dont

l'énergie est comprise dans la fenêtre $[-\Delta, +\Delta]$ autour du niveau de Fermi avec une pointe dans l'état normal. Celle-ci sonde les quasiparticules à un électron (figure 1.2.1). Dans la théorie BCS, la densité d'états correspondante présente un gap en énergie $|\Delta|$ (équation 12.1 et figure 1.2.1 du présent chapitre, équation 2.2 et figure 2.2 du chapitre I).

$$n_s(\varepsilon) = n_n(\varepsilon_F) \frac{\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon^2 - |\Delta|^2}}$$

Equation 1.2.1 : Densité d'états excités d'un supraconducteur conventionnel. ε_F est l'énergie de Fermi. n_n est la densité d'états du système dans l'état normal.

$$J_{ns} = \frac{2\pi}{\hbar} e^2 |t|^2 n_{pointe} n_n(\varepsilon_F) 2 \int d\varepsilon_k \frac{\varepsilon_k}{\sqrt{(\varepsilon_k + eV)^2 - |\Delta|^2}} \frac{df(\varepsilon_k + eV)}{d\varepsilon_k}$$

$$\frac{dI}{dV} = \frac{2\pi}{\hbar} e^2 |t|^2 n_{pointe} n_n(\varepsilon_F) 2 \frac{eV}{\sqrt{(eV)^2 - |\Delta|^2}}, \quad \text{à } T = 0$$

Equation 1.2.2 : Courant tunnel entre une électrode normale de densité d'états constante n_{pointe} et une électrode supraconductrice.

Le courant tunnel est nul pour une tension inférieure à l'énergie du gap, $U < \Delta/e$. Au-delà, il augmente et tend vers la loi d'Ohm linéaire (équation 1.2.3).

$$J_{ns} = J_{nn} = \frac{2\pi}{\hbar} e^2 |t|^2 n_{pointe} n_n V \Rightarrow J_{ns} \propto V$$

Equation 1.2.3 : Courant tunnel entre une électrode normale de densité d'états constante et une électrode supraconductrice.

Si le deuxième métal est lui aussi dans l'état supraconducteur, le courant s'exprime alors en fonction des deux densités d'états d'excitations.

$$J_{ss} = \frac{2\pi e^2}{\hbar} |t|^2 n_n^2 \int d\varepsilon_k \frac{\varepsilon_k}{\sqrt{\varepsilon_k^2 - \Delta_a^2}} \frac{\varepsilon_k + eV}{\sqrt{(\varepsilon_k + eV)^2 - \Delta_b^2}} \frac{df(\varepsilon_k + eV)}{d\varepsilon_k}$$

Equation 1.2.2 : Courant tunnel entre deux électrodes supraconductrices

1.3. La microscopie à effet tunnel

Le microscope est un outil remarquable, il permet de mesurer la topographie des surfaces conductrices, de manipuler des atomes ou molécules en surface et de connaître la densité d'états locale de surface, ce qui est spécifique à cette technique.

La dépendance exponentielle du courant tunnel avec la distance pointe-échantillon permet d'acquérir des cartes topographiques de la surface.

Les électrons passent à travers la barrière tunnel aux endroits où la transparence tunnel est la plus grande. Pour déterminer et contrôler cet endroit, les sondes STM sont façonnées en forme de cône. Sous l'hypothèse que les orbitales électroniques au bout de la pointe sont de symétrie s , on applique l'équation de Schrödinger à travers une barrière énergétique carrée de hauteur W et de largeur d . La probabilité de transmission est une exponentielle décroissante (équation 1.3.1).

$$|t| \propto e^{-2\sqrt{\frac{2m^*W}{\hbar}} d}$$

Equation 1.3.1 : Probabilité tunnel électronique à travers une barrière isolante carrée.

Pour des métaux comme l'or, le platine ou encore le tungstène couramment utilisés comme composant des pointes STM, le travail de sortie W est de l'ordre de quelques électrons-volts. Si $W \sim 4 \text{ eV}$, alors le vecteur d'onde est $k = \sqrt{2m^*W/\hbar} \sim 10 \text{ nm}^{-1}$. $k^{-1} \sim 0,1 \text{ nm}$ est l'échelle caractéristique.

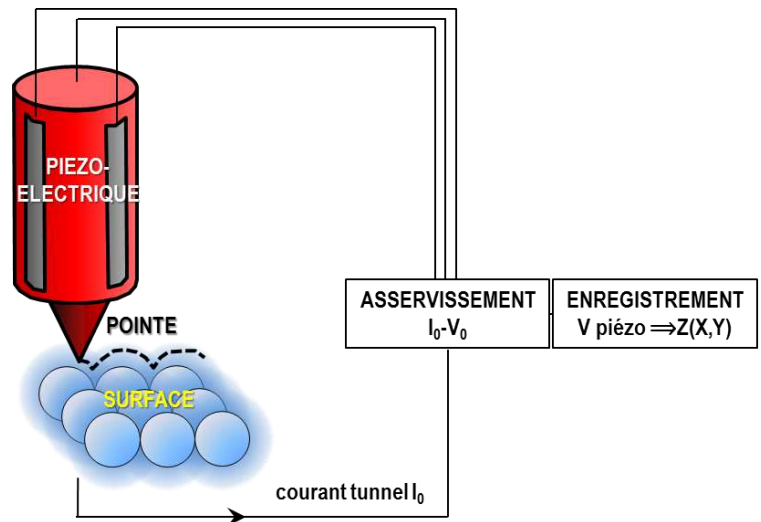


Figure 1.3.1 : Schéma de la mesure topographique du STM

Le microscope à effet tunnel permet de sonder la topographie des surfaces conductrices. Une pointe est fixée à un ensemble piézo-électrique qui permet le déplacement spatial sous commande électrique (figure 1.3.1). L'échantillon et cet ensemble sont reliés à un système d'asservissement. Celui-ci permet d'approcher la pointe de la surface. Si aucun courant n'est détecté entre la pointe et l'échantillon, le tube piézo-électrique s'étire. La résolution est très fine : pour une variation d'un Angström dans la direction Z , le courant varie typiquement d'un facteur 10.

Tout l'intérêt de la microscopie à effet tunnel réside dans le fait de balayer la surface avec la pointe tout en enregistrant les dénivelés en Z . En effet, la boucle d'asservissement maintient en temps réel la distance entre la pointe

et la surface de telle sorte que le courant mesuré reste constant. Lorsqu'une variation du courant est détectée, la boucle de contre-réaction approche ou éloigne la pointe afin de le maintenir égal au courant de consigne. La résolution latérale X - Y du microscope a été déterminée expérimentalement, elle est sub-picométrique. Les ajustements du tube piézo-électrique selon Z traduisent une hauteur locale topographique. On obtient ainsi une carte à trois dimensions de la topographie de la surface.

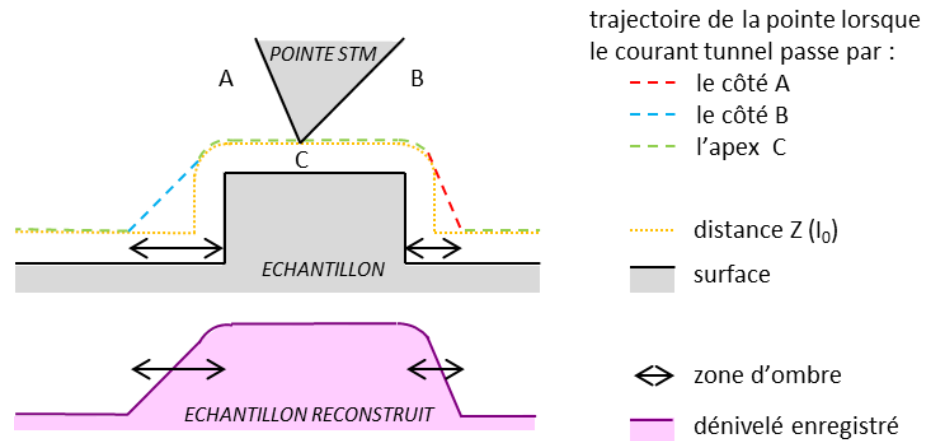


Figure 1.3.2 : Schéma de la topographie enregistrée par rapport à la topographie réelle.

Seules des surfaces planes avec de faibles aspérités peuvent être topographiées.

Par ailleurs, la pointe a un rayon de courbure non nul. Lorsque la pointe approche une aspérité, creux ou bosse, le canal de la pointe par lequel passe le courant tunnel change. Lorsque la pointe est au-dessus d'une surface plane, le canal est celui de l'apex C , c'est-à-dire l'atome le plus extrême de la pointe (figure 1.3.2). C'est en pratique la "bonne" pointe utilisée. Lorsque la pointe s'approche d'une aspérité, la distance est minimale entre un côté B de la pointe et le côté de l'aspérité. Si le côté CB de la pointe est moins pentu que le côté de l'aspérité, alors une zone de la surface est inaccessible pour la mesure, elle est dite zone d'ombre. L'étendue de ces zones d'ombre est déterminée par la hauteur des structures et les concavités relatives entre la pointe et les côtés des structures. Les aspérités proéminentes ont donc des dimensions apparentes plus larges qu'elles ne le sont en réalité et les aspérités creuses plus petites. Le système utilisé dans cette thèse est constitué d'îlots plats (aspérités proéminentes avec des bords relativement abruptes) sur une surface plane. Connaissant la structure cristalline de ces îlots, on en déduit l'îlot réel [Henry 2005].

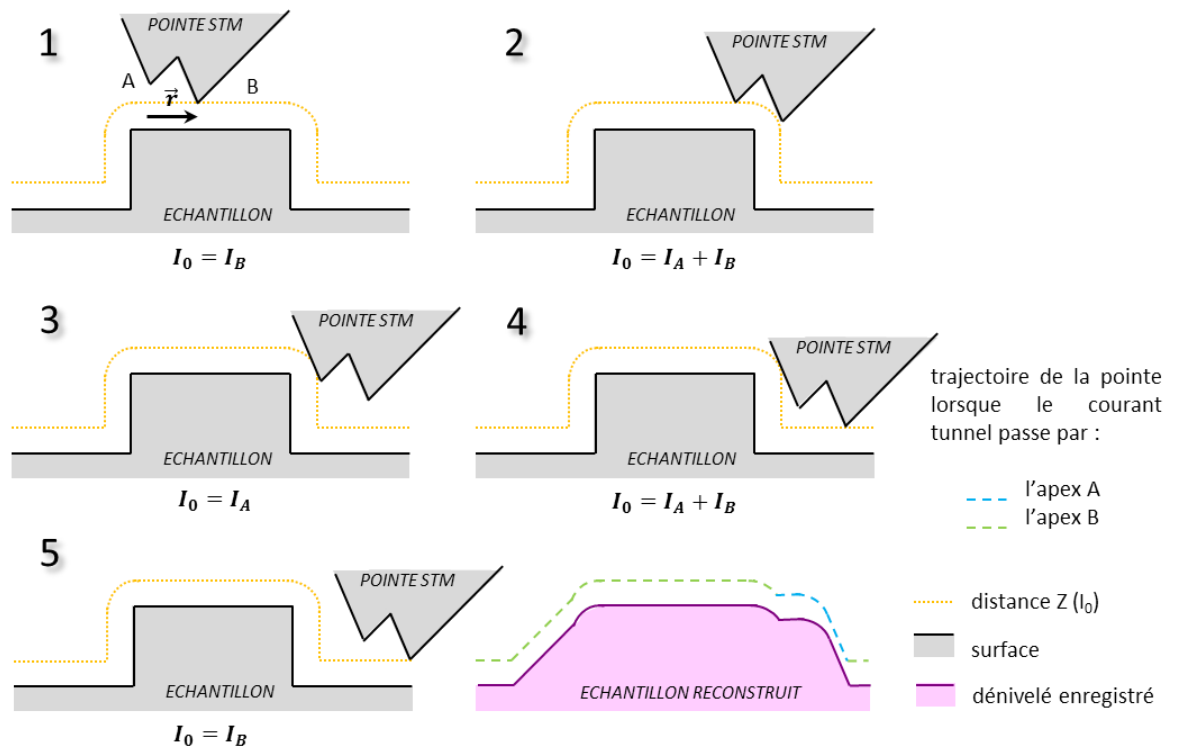


Figure 1.3.3 : Schéma de la topographie enregistrée avec une pointe multiple.

Un autre artéfact introduit avec des pointes STM non idéales concerne les pointes dites multiples. Lorsque plusieurs canaux tunnel sondent en même temps la surface par différents côtés de la pointe, le courant tunnel mesuré est la somme de ces multiples courants (figure 1.3.3). Si une pointe présente deux micro-pointes A et B espacées d'un vecteur r dans le plan de la surface, et si la surface présente une aspérité, une des deux micro-pointes sonde l'aspérité pour une position r_0 et la deuxième pour une position $r_0 + r$. La carte topographique possède alors deux aspérités au lieu d'une. Si par ailleurs les dimensions latérales de l'aspérité sont inférieures au vecteur r , alors la bosse résultant de la mesure apparaît unique mais plus étendue (figure 1.3.3). Il est possible de repérer une pointe multiple lorsque toutes les structures peuvent être regroupées en lot dont les motifs sont identiques ou lorsque toutes les structures sont le même motif étendu dans la même direction. L'élément du motif scanné avec l'apex le plus saillant (apex B figure 1.3.3) est dit « élément réel » et les autres « éléments fantômes » (apex A). La figure 1.3.4 montre deux exemples d'îlots de plomb mesurés avec une pointe multiple.

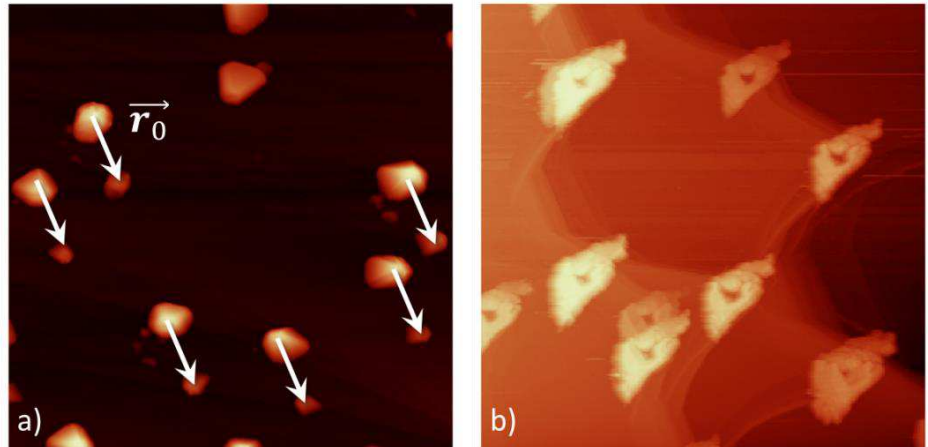


Figure 1.3.4 : Cartes topographiques de nanostructures de plomb illustrant les effets topographiques dûs à la forme de la pointe. **a)** Deux micro-pointes repérées par le vecteur r_0 imagent les îlots, les plus hauts de chaque paire sont vus par l'apex le plus saillant. ($2,3 \times 2,3 \mu\text{m}^2$, $-0,74 \text{ V}$, $0,095 \text{ nA}$, échelle en z : 0 à 70 nm). **b)** Les défauts à base de carbure sont plus petits et plus fins que l'apex de la pointe, le motif correspond à la forme de la pointe. ($1,0 \times 1,0 \mu\text{m}^2$, $-1,81 \text{ V}$, $0,140 \text{ nA}$, échelle en z : 0 à 30 nm).

Les pointes STM utilisées pour étudier la supraconductivité dans les îlots de plomb sont en platine-iridié.

Les pointes utilisées dans cette thèse sont en tungstène ou en platine iridiée.

Les pointes en tungstène sont préparées par attaque électrochimique dans une solution de soude (NaOH, 2 Molaires). Le courant injecté en continu est coupé pour un courant seuil afin d'avoir des pointes fines. Une fois introduites dans l'enceinte ultra-vide, les pointes sont flashées par courant direct afin d'ôter la couche d'oxyde qui les recouvre. Les pointes ainsi obtenues sont rigides et pointues. Nous les avons utilisées pour étudier les différentes phases de reconstruction du plomb sub-monocouche et les îlots de plomb de symétrie 5. Elles n'ont cependant pas servi aux études à basse température car nous avons constaté qu'elles avaient une densité d'état électronique non plate autour du niveau de Fermi due à la présence d'impureté ou d'oxyde. Par ailleurs, elles se déforment de façon irréversible lors d'un fort contact avec la surface. Elles prennent alors l'aspect d'un tire-bouchon ce qui favorise les effets de pointe multiple. De plus le courant tunnel était instable aux énergies de l'ordre du milli-électron volt, ce qui dénote un changement de configuration atomique de l'apex de ces pointes et les rendent inutilisable pour les mesures spectroscopiques.

Les pointes en platine iridié sont quant à elle découpées aux ciseaux. Les pointes obtenues sont en général plus régulières et plus stables que les pointes en tungstène, mais elles présentent beaucoup de micro-pointes. La densité d'états est constante et leur rayon de courbure reste suffisamment faible pour que la zone d'ombre autour des îlots n'excède pas quelques nanomètres.

1.4. La spectroscopie à effet tunnel

Le courant tunnel mesuré en fonction de la tension appliquée contient les propriétés électroniques locales de la surface.

Comme exposé dans la section précédente, le courant tunnel établi entre deux métaux dépend de la densité d'états de chacun (équation 1.1.3). Si une surface conductrice présente une zone de conductance différente, le courant tunnel détecté est alors plus faible ou plus élevé ce qui entraîne une régulation de la distance entre la pointe et la surface. On enregistre donc un dénivelé d'origine non topographique (figure 1.4.1). Il est impossible de s'affranchir des inhomogénéités de densité d'états électroniques dans la reconstruction d'une topographie.

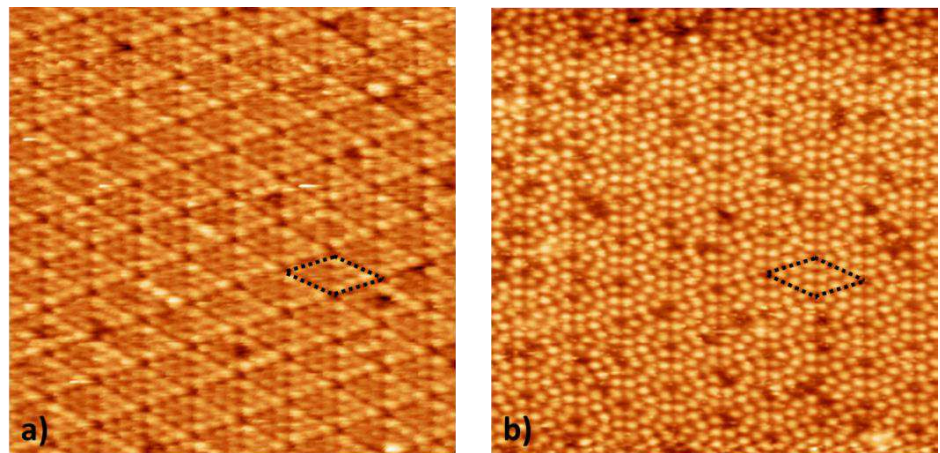


Figure 1.4.1 : Cartes topographiques d'une surface de silicium (111) reconstruite 7×7 mesurées à deux tensions différentes. Les atomes apparaissent comme des sphères claires. La maille élémentaire est tracée en pointillés noirs. La carte **a** présente un moiré triangulaire purement électronique et illustre bien la dépendance intrinsèque de l'imagerie STM aux propriétés électroniques de la surface (voir chapitre II). Les orbitales localisées ont une densité d'états différente selon le site atomique considéré, ce qui se traduit notamment par un contraste plus clair pour une moitié de la maille par rapport à l'autre à $-1,5$ V (carte **a**), contraste absent à $+1,5$ V (carte **b**). (23×23 nm², $0,98$ nA, **a**. $U = -1,5$ V, **b**. $U = 1,5$ V. Echelle Z : 0 à 2 nm).

Ainsi le microscope à effet tunnel n'est pas un outil parfait pour accéder à la topographie réelle des surfaces. Il permet par contre de mesurer les propriétés électroniques locales. Connaissant par ailleurs la topographie de la surface, on peut construire une carte de ses propriétés électroniques.

Mais mieux encore, d'après l'expression de la conductance tunnel (équation 1.1.4), il est possible de mesurer directement la densité d'états tunnel. Pour cela, on varie la tension appliquée et on enregistre le courant tunnel pour une distance fixe entre la pointe et la surface. Afin de varier la tension sans modifier cette distance, la boucle d'asservissement est ouverte le temps de la mesure d'un spectre. Le gap en énergie valant $\pm 1,2$ meV dans les nanostructures de Pb/Si(111), on fait varier la tension dans la gamme ± 5 mV. On applique un courant tunnel de consigne valant $0,35$ nA et une

tension égale à 5 mV. La pointe se situe alors à environ 3 Å de la surface.

Afin de mesurer les spectres en chaque point de la surface, l'équipe a développé une technique dite de « la machine à coudre ». Comme il n'est pas possible de mesurer la topographie à 3 Å de la surface sans l'endommager, la topographie est mesurée à un courant de consigne plus faible que celui utilisé pour la spectroscopie, 0,080 nA, et à une tension égale à la tension maximale, 47 mV (cette valeur est limitée par une tension maximale de 1 V et un pont diviseur par 21). La distance entre la pointe et la surface est alors d'environ 6 Å. Après avoir mesuré la topographie, la pointe est approchée en appliquant le courant de consigne de spectroscopie (0,080 nA). On attend ensuite que la pointe se stabilise et on effectue la mesure du spectre. La boucle d'asservissement est ensuite refermée, la pointe éloignée de la surface pour ensuite être déplacée et suivre ce cycle de mesure topographie-spectroscopie au point voisin. On obtient alors un bloc de donnée 5D (X, Y, Z, I, V) où figurent les spectres et la topographie de toute une zone de la surface.

Un exemple de protocole représentatif des mesures de cette thèse montre que l'obtention d'une carte est très longue. Un cycle à température 300 mK durant 32 heures, trois cartes ont été prises en moyenne par cycle. Une étude complète à basse température sur un îlot regroupe en moyenne six cartes spectroscopiques, deux spectroscopies en point ou en ligne, cinq condensations, trois transferts d'hélium, ce qui recouvre au total une semaine de mesure. Une série de mesure complète à basse température comporte ainsi plusieurs études sur le même échantillon et dure environ deux mois. Passé ce délai, la surface est contaminée par des adatoms adsorbés qui déstabilisent la pointe et introduisent du bruit dans les mesures.

EXEMPLE DE PROTOCOLE D'UNE CARTE SPECTROSCOPIQUE

nombre de points par spectre : 256

nombre de spectres : 256 x 256

taille numérique typique d'une carte *STS* : 33 000 ko

gamme d'énergie : -5 mV + 5 mV

résolution en énergie : 0,04 mV

temps par spectre : 0,5 s

temps par carte : 8 heures

Courant de consigne pour la topographie : 0,10 nA

Tension de consigne pour la topographie : - 47 mV

Courant de consigne pour la spectroscopie : 0,35 nA

Tension de consigne pour la spectroscopie : - 5 mV

L'enregistrement de ces cartes dure plusieurs heures, chacune contient au maximum 65 636 ko définis par le logiciel utilisé Scala.

La spectroscopie est prise en un point, en ligne ou en carte selon l'information recherchée.

Un autre type de mesure a été développé pour étudier le diagramme de phase des vortex dans les nanostructures : on effectue la spectroscopie en fonction du champ magnétique appliqué.

Les spectres peuvent être mesurés en un point de l'îlot en faisant varier le champ magnétique sur une gamme de valeur de l'ordre de un Tesla. Nous verrons au chapitre IV que cette technique nous informe sur le nombre de fluxoid dans l'îlot (appelé vorticit ).

Les spectres peuvent  galement  tre enregistr s le long d'une m me ligne en faisant varier le champ magn tique suffisamment lentement pour qu'il puisse  tre consid r  constant le long de cette ligne. Nous verrons toujours au chapitre IV que nous en d duisons le profil des vortex en plus de la vorticit .

Autrement, on mesure la spectroscopie sur toute une zone   une valeur fixe du champ magn tique. On trace alors des cartes de conductance. Pour une tension inf rieure   celle du gap, on visualise ainsi les parties supraconductrices, normales, les vortex, les courants supraconducteurs, etc. (chapitres IV, V et VI).

2. Traitement des donn es

2.1. Visualisation des donn es

La conductance $C(V)$ est obtenue en d rivant le courant tunnel mesur  $I(V)$. On obtient la d riv e num rique centr e du courant $dI/dV(V)$. Les spectres sont ensuite tous normalis s individuellement. Comme le spectre supraconducteur ne diff re du spectre normal que pour des  nergies inf rieures   environ $2|\Delta|$, la constante de normalisation choisie est la valeur de la conductance   une tension sup rieure $U_{norm} > 2\Delta/e$, en l'occurrence la fen tre spectrale est sup rieure   3mV. Ainsi les fluctuations d'un spectre   l'autre sont r duites. Un exemple de fluctuation est le suivant : comme les spectres sont mesur s avec la boucle de contr le ouverte, la distance entre la pointe et la surface peut fluctuer d'un spectre   l'autre. Les spectres sont pr sent s normalis s dans cette th se ; pour retrouver une unit  physique, le spectre tunnel est le produit de ce spectre normalis  et de la conductance moyenne.

Les cartes CFermi et CGap informent respectivement sur la densité locale d'énergie de condensation et d'énergie cinétique

Les cartes de conductance peuvent être construites de deux façons différentes. Dans un premier cas, la conductance choisie est celle à tension nulle, elle correspond au niveau de Fermi et la carte obtenue est ainsi appelée « CFermi » (figure 2.1.2). Dans le second cas, la conductance est sommée sur toutes les valeurs de conductance correspondant aux tensions inférieures à celle du gap, $U_{gap} = 1,2 \text{ mV}$ (figure 2.1.3). Les cartes sont alors appelées « CGap ». Le tracé des cartes spectroscopiques pour chacune des représentations s'est avéré idéal pour une même palette de couleur quelque soit l'expérience. Les deux palettes de couleur utilisées pour coder les types de cartes de conductance sont présentées en figure 2.1.1. La première en noir et blanc est utilisée pour la conductance à tension nulle CFermi. Elle permet de bien visualiser spatialement la position et la taille des cœurs de vortex. La seconde palette, en couleur, représente la conductance intégrée sur les énergies dans le gap CGap. Elle permet notamment de visualiser l'énergie cinétique du condensat. En effet les quasiparticules d'énergie cinétique non nulle se trouvent à une énergie additionnelle $\delta E_c \cong \vec{k} \cdot \vec{v}_s$ de celle du gap [de Gennes 1966, Kohen 2006]. Il faut fournir plus ou moins d'énergie autour de Δ pour détecter ces quasiparticules, le pic mesuré à Δ se trouve donc élargi.

Les cartes topographiques ne sont quant à elles pas toujours représentées avec la même palette de couleur. Les minimum et maximum sont indiqués en légende sous l'appellation « échelle z ».

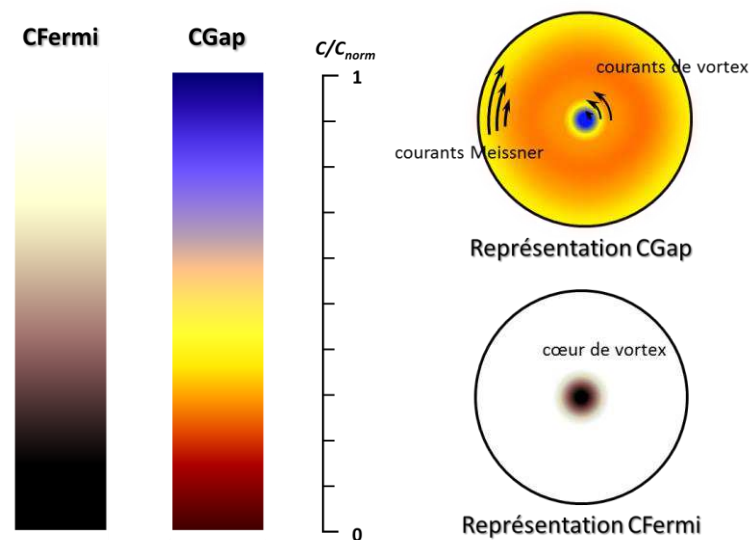


Figure 2.1.1 : A gauche : palettes de couleur utilisées pour la représentation de toutes les cartes spectroscopiques de la thèse. A droite : exemples d'utilisation. La représentation CGap met en évidence la densité de courant locale et le cœur normal des vortex. La représentation CFermi s'affranchit en grande partie des effets de courant et permet de distinguer avec plus de résolution spatiale les cœurs de vortex.

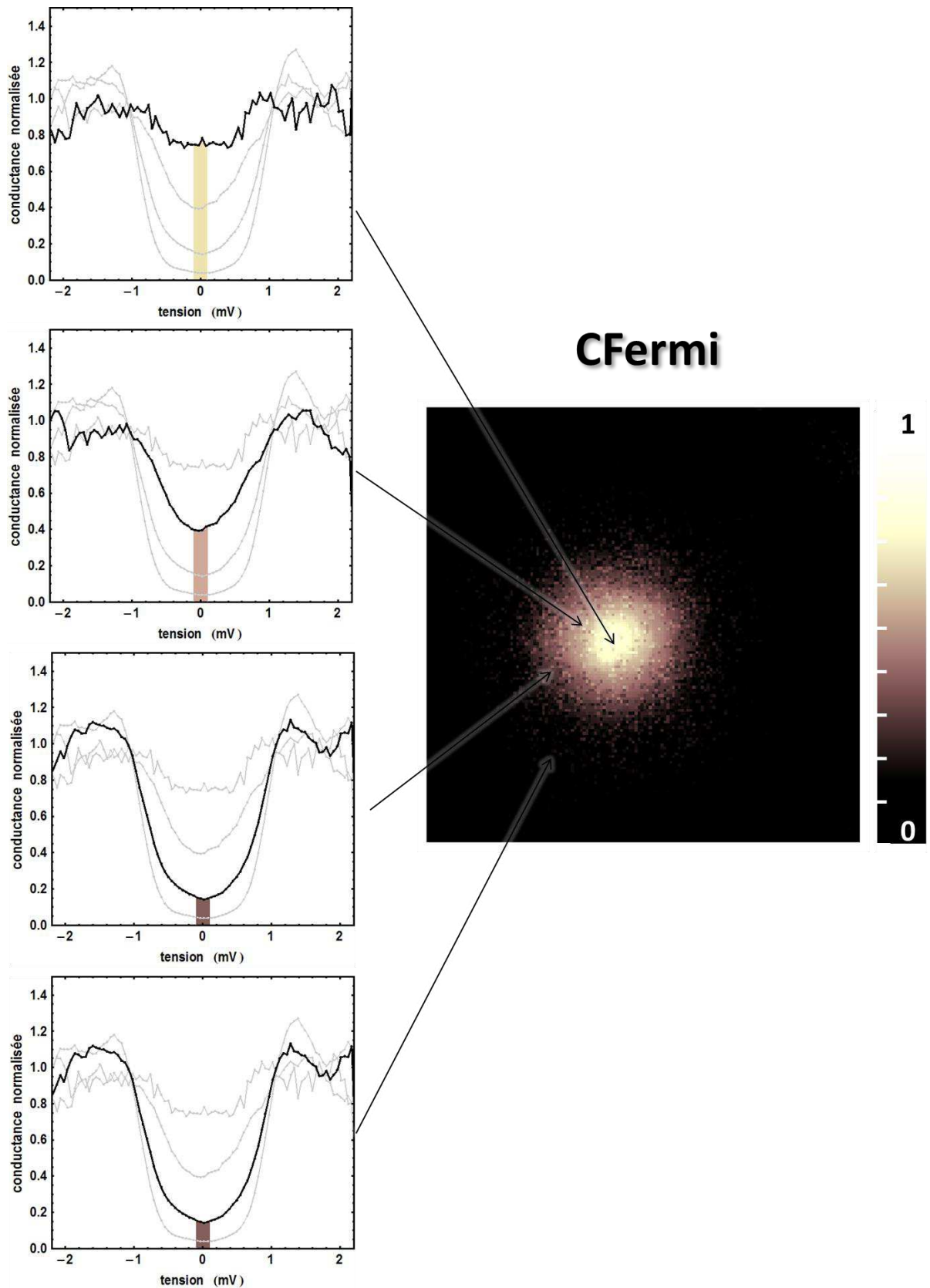


Figure 2.1.2 : Exemple d'une construction de carte de conductance en représentation CFermi. A gauche : quatre spectres à différentes distances du cœur du vortex. A droite : carte de conductance. La conductance à tension nulle relevée sur un spectre mesuré à la position (x,y) , est codée par une couleur donnée par la palette CFermi, puis reportée sur la carte à la position (x,y) .

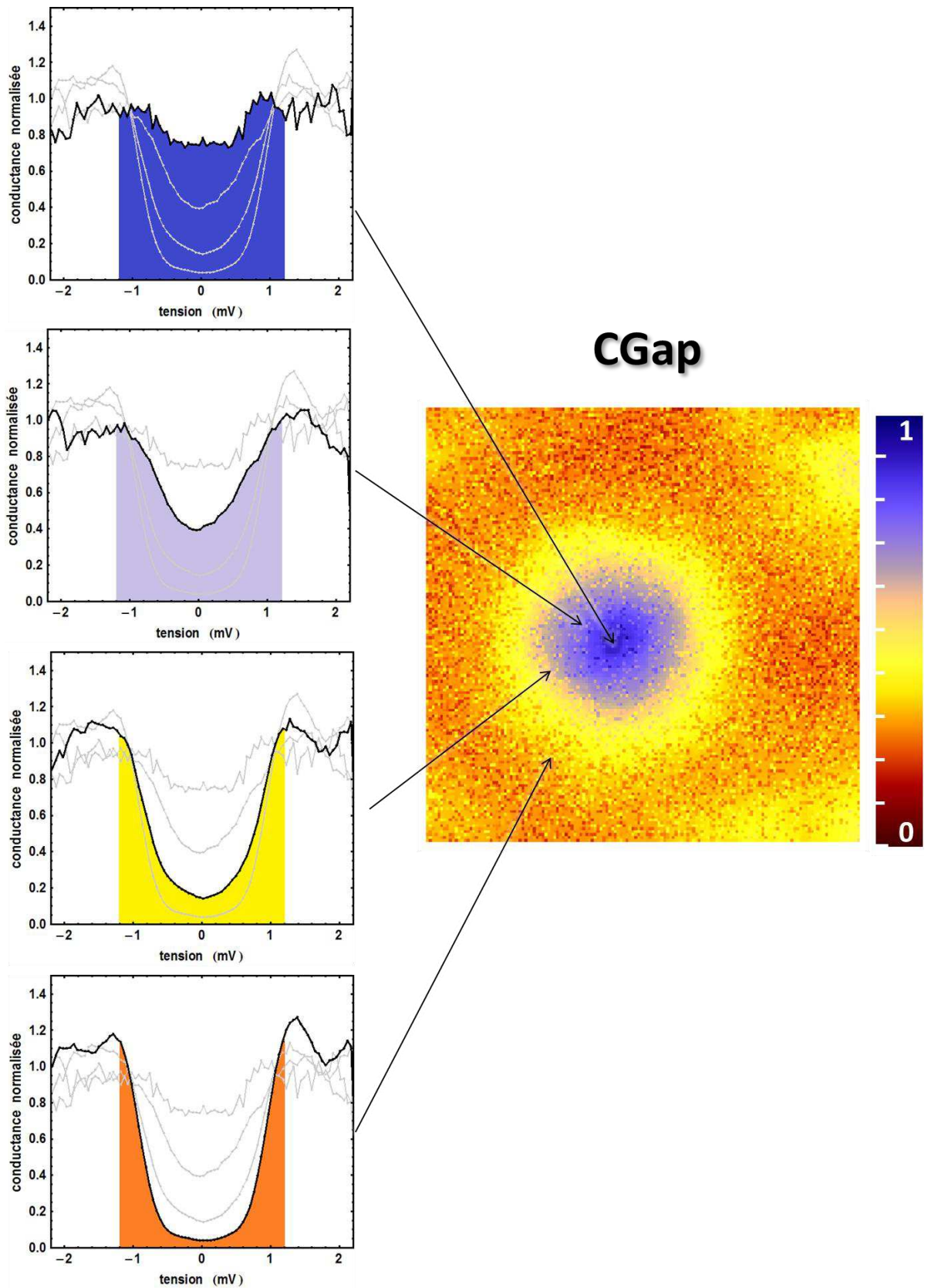


Figure 2.1.3 : Exemple d'une construction de carte de conductance en représentation CGap. A gauche : quatre spectres à différentes distances du cœur du vortex. A droite : carte de conductance. La moyenne des conductances relevées entre les tensions $2\Delta/e > U > -2\Delta/e$ sur un spectre mesuré à la position (x,y) , est codée par une couleur donnée par la palette CGap, puis reportée sur la carte à la position (x,y) .

2.2. Origine et traitement du bruit dans les données

La température électronique mesurée à 350 mK.

Comme nous le verrons à la section 3, la température minimale du microscope vaut 300 mK. La température effective peut cependant être légèrement différente de celle mesurée par le thermomètre. Les électrons peuvent en effet avoir une énergie thermique additionnelle due à un état hors équilibre, à un chauffage local par le courant ou à l'absorption de rayonnement électromagnétique. Cette température effective peut être extraite précisément des spectres tunnels dans des supraconducteurs conventionnels grâce à un fit BCS. Ainsi la température électronique effective est de 350 mK.

Le blocage de Coulomb dynamique doit être pris en compte pour extraire la densité d'état BCS des spectres I-V.

Les spectres de cette thèse ne correspondent pas tout à fait à ceux attendus pour une densité d'état BCS à température finie.

Tout d'abord, un effet spécifique au système modifie l'allure du spectre tunnel. Les îlots de plomb sont connectés aux électrodes uniquement via la couche de mouillage amorphe. On observe alors que le transport des électrons est affecté par l'effet Altshuler-Aronov. La première partie du chapitre IV est dédiée à l'étude de cet effet.

Les spectres sont fortement affectés d'un bruit électromécanique.

Un autre effet vient s'ajouter à cette signature, il est quant à lui dû à un problème technique. L'électronique utilisée pour le fonctionnement du STM induit une perturbation oscillante. L'oscillation détectée est mécanique mais excitée par une cause électronique. Le bruit est de type : $I_{\text{bruit}}(V) = I(V)\exp(a \cos(bV + c) + d)$ (figure 2.2.2). La forme exponentielle est due à la dépendance exponentielle du courant avec la distance entre la pointe et la surface (trace mécanique), la dépendance du cosinus est due à une fréquence excitant le système mécanique (cause électronique). De plus cette oscillation apparaît en phase avec le début de chaque spectre de certaines expériences. Il est alors impossible d'annuler ce bruit par moyennage. J'ai alors essayé mais sans succès de filtrer ce bruit spectre par spectre via un filtrage automatique mais les paramètres a , b et c ne sont pas les mêmes pour tous les spectres. Dans d'autres expériences, l'excitation se trouve déphasée d'une même valeur additionnelle d'un spectre à l'autre, elle a donc pu être atténuée plus aisément que dans le cas précédent.

Pour se faire, l'amplitude du bruit a été réduite sur chaque spectre par un filtre gaussien. Comme l'amplitude du bruit oscillant est d'autant plus forte que le courant est élevé, j'ai davantage filtré les valeurs au-delà du gap que dans le gap. Le bruit peut ensuite être réduit lors de la construction des cartes spectroscopique. Le filtre médian est appliqué sur un petit paquet de points voisins, puis seul les valeurs brutes très différentes des valeurs filtrées sont changées. Il en résulte que moins de quelques pourcents de points sont filtrés.

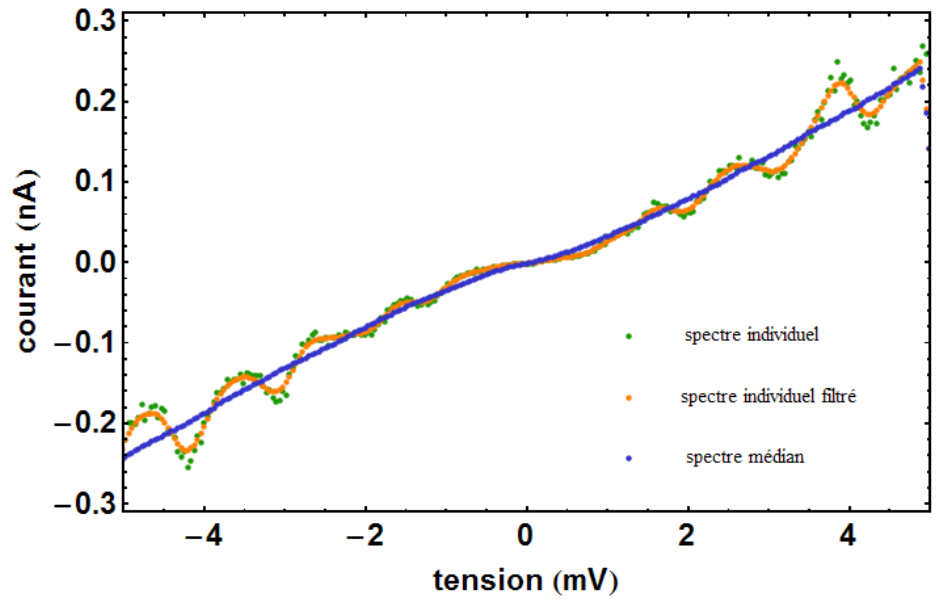


Figure 2.2.2 : Spectre I-V dans l'état normal avant et après filtrage du bruit oscillant. Le spectre médian est obtenu à partir de 3200 spectres.

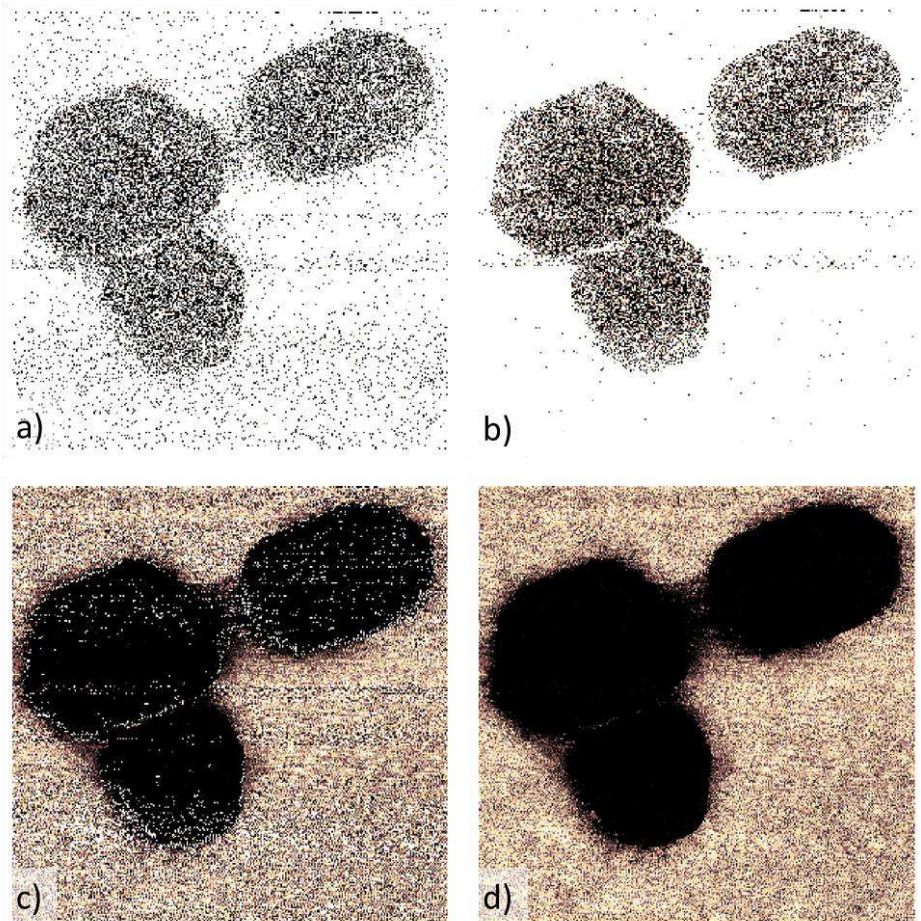


Figure 2.2.3 : Différentes étapes du filtrage d'une carte de conductance en représentations CFermi. **a.** sans filtrage. **b.** spectres filtrés en tension avec un filtre gaussien. **c.** spectres normalisés. **d.** carte filtrée spatialement avec un filtre gaussien et un filtre médian.

La figure 2.2.3 montre un exemple des différentes étapes du filtrage appliqué aux données spectroscopiques lors de la réalisation d'une carte de conductance. La carte **a** correspond aux données brutes. Un premier filtrage gaussien appliqué sur chaque spectre conduit à la carte **b**. La normalisation des spectres pris individuellement permet ensuite d'obtenir la carte **c**. Enfin, deux filtres spatiaux, gaussien et médian, amènent à la carte **d**.

3. Dispositif expérimental

L'équipement expérimental est développé par l'équipe depuis une dizaine d'années et fonctionne pleinement depuis le début de cette thèse. Il est d'une grande complexité, alliant le microscope à effet tunnel, l'ultravide nécessaire à la propreté des surfaces étudiées, la cryogénie permettant de descendre à des températures extrêmes, le champ magnétique atteignant 8 T et une chambre directement connectée et équipée pour préparer et caractériser *in situ* des surfaces et des pointes.

L'ensemble du dispositif repose sur trois pieds antivibratoires pneumatiques.

3.1. Chambres ultravides

La pression de base est 10^{-11} mbar. Une des deux chambres ultravides permet de préparer les échantillons *in situ*, l'autre contient le microscope.

Le dispositif est constitué de deux chambres sous ultravide et d'un sas d'introduction rapide (figure 1.1.1). La pression de base, 10^{-11} mbar, est maintenue par une pompe ionique et un sublimateur de titane dans chaque chambre après un étuvage à 150°C.

La chambre de préparation est connectée au sas d'introduction. La chambre de préparation contient un LEED-Auger, un canon à ion, un triple évaporateur, une balance à quartz, un spectromètre de masse et un pyromètre infrarouge (figure 3.1.2). Un bras manipulateur permet de transférer les échantillons d'une chambre à l'autre. Sur ce bras, les échantillons peuvent être chauffés par un four et refroidis grâce à un pot d'azote. Le four est interfacé pour faire des cycles de chauffage jusqu'à 800°C, la température est mesurée par un thermocouple type K. Un circuit électrique peut être connecté à l'échantillon pour le chauffer par courant direct et atteindre très rapidement des hautes températures. Ce chauffage par courant direct est utilisé dans cette thèse pour flasher le silicium jusqu'à 1200°C pendant quelques secondes. La température est mesurée avec le pyromètre infrarouge.

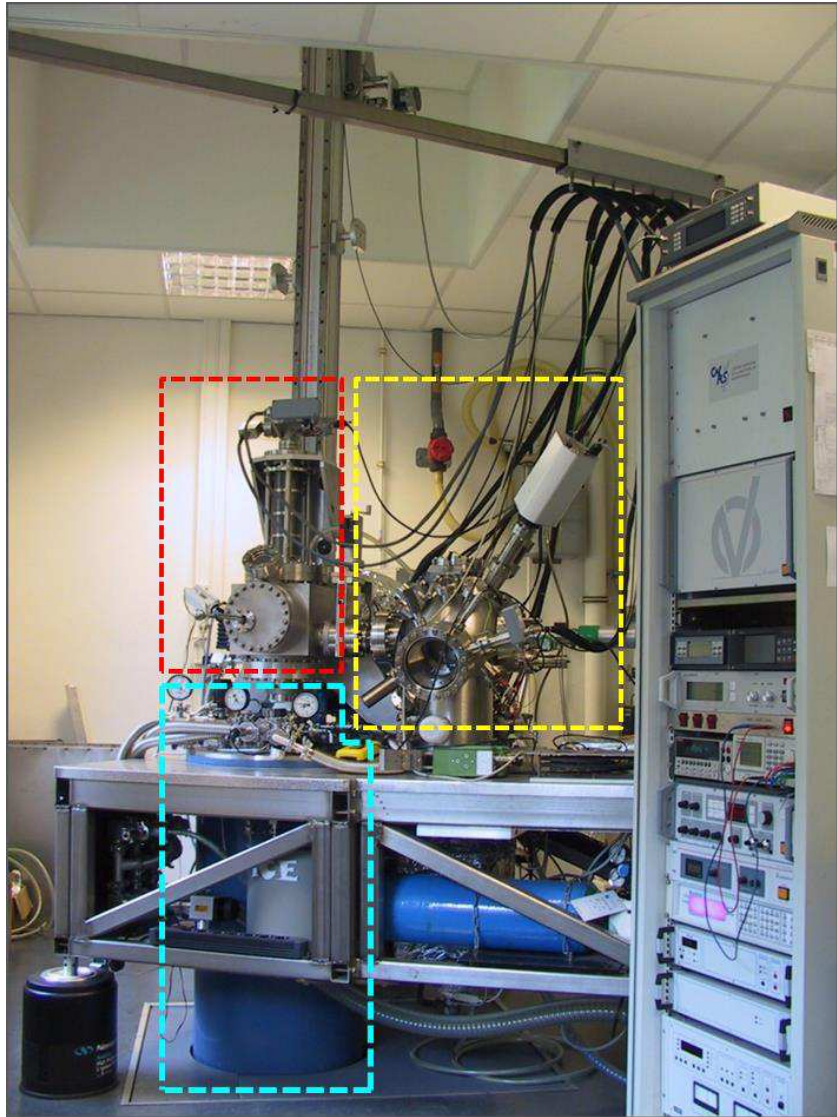


Figure 3.1.1 : Photographie du dispositif expérimental. En pointillés rouges : chambre ultravide contenant le microscope. En pointillés jaunes : chambre ultravide de préparation. En pointillés bleus : cryostat.

La seconde chambre ultravide est dédiée au microscope. Elle contient un carrousel de stockage d'échantillons et de pointes (figure 3.1.2). Sur un bloc de cuivre, l'échantillon peut être refroidi à 180 K avant d'être introduit dans le microscope. En position de mesure, le microscope est descendu dans le cryostat à l'aide d'une tige de translation de 1,8 m. Des échangeurs thermiques sont disposés tout le long de ce translateur afin de maintenir la partie haute du microscope à basse température.

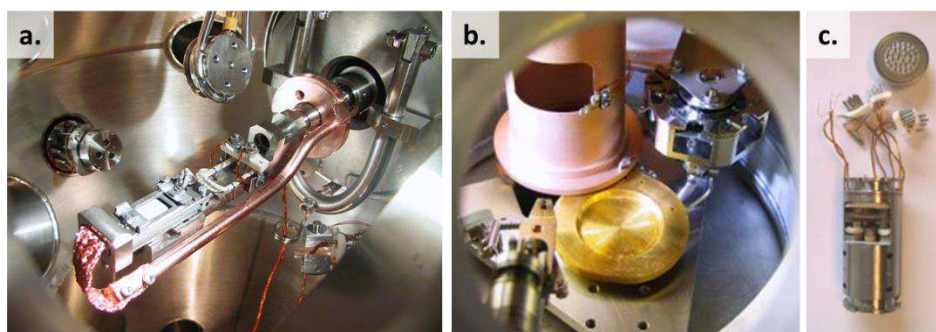


Figure 3.1.2 : a. Chambre de préparation. b. Chambre du microscope. c. Microscope à effet tunnel.

Dans la tête du microscope, l'échantillon est placé dans un tiroir en saphir pouvant se déplacer dans le plan $X-Y$. Le design du microscope est optimisé afin que lors du refroidissement, les compressions et dilatations thermiques des différentes pièces du microscope ne changent pas la position relative entre la pointe et l'échantillon au-delà de quelques micromètres. La zone maximale de scan est $6 \times 6 \mu\text{m}^2$ à température ambiante, et $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ à 300 mK.

3.2. Cryostat

Le cryostat permet de refroidir le microscope à 300 mK.

Le cryostat a une contenance de soixante litres pouvant accueillir de l'azote ou de l'hélium liquide. Il comprend une bobine supraconductrice et un système cryogénique à hélium 3. Le refroidissement du dispositif se fait en trois étapes. La première consiste à pré-refroidir le système avec de l'azote liquide. Après thermalisation à 77 K, l'azote est chassé par un flux d'hélium 4 gazeux. Une fois l'azote chassé, le cryostat est rempli d'hélium 4 liquide à 4,2 K. Le remplissage est ensuite renouvelé tous les trois jours. La dernière étape est la condensation d'hélium 3. Un circuit fermé d'hélium 3 passe à travers une enceinte dans la cuve à hélium 4 et amène le gaz vers une pompe à sorption (figure 3.2).

La pompe à sorption est constituée de couches successives de charbon actif et d'anneaux en cuivre. Le charbon actif absorbe le gaz d'hélium 3 en dessous de 40 K. Le cuivre favorise l'échange thermique avec l'enceinte interne. Une résistance permet de réchauffer la pompe. Au-delà de 40K, l'hélium 3 désorbe. Celui-ci se liquéfie au contact d'un pot maintenu à une température de 1,5 K si la pression est inférieure à celle de condensation. Les gouttelettes d'hélium 3 formées tombent au fond de l'enceinte interne. La pression de gaz diminue. Une fois une pression de 60 mbar atteinte, la pompe est refroidie et peut absorber à nouveau le gaz d'hélium 3. Elle

pompe ainsi le bain d'hélium 3 qui atteint une température d'équilibre, 300 mK. Une fois la liquéfaction effectuée, la température est maintenue pendant 36 h : l'hélium 3 s'évapore peu à peu, le fond de l'enceinte se réchauffe quand il n'y a plus de liquide.

Un circuit parallèle d'hélium 4 permet de refroidir la sorbe et le pot à 1,5 K. Un capillaire draine de l'hélium 4 liquide depuis l'enceinte à hélium 4 vers ce pot. Un pompage externe de ce pot permet de le refroidir à 1,5 K par une détente de Joule-Thomson.

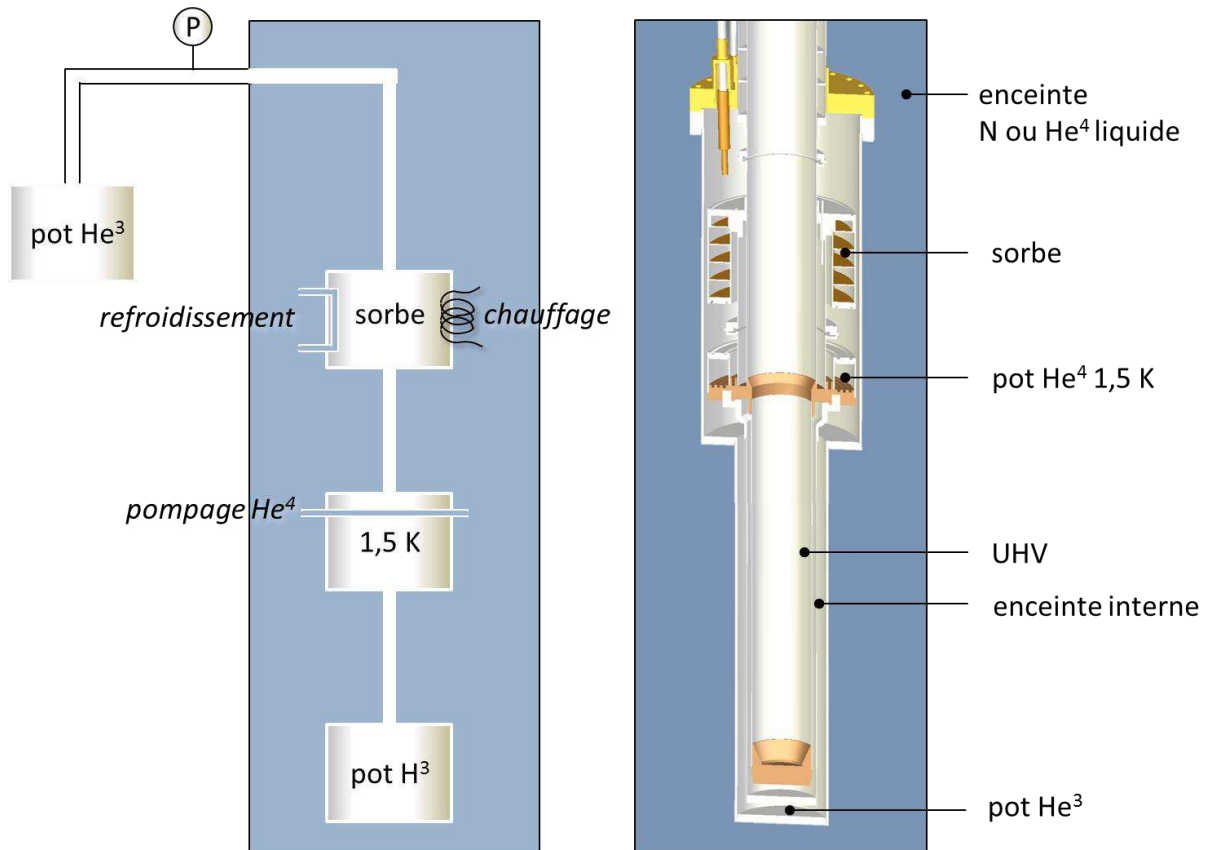


Figure 3.2 : Principe du fonctionnement du cryostat (à gauche) et coupe du cryostat (à droite).

Le microscope est connecté thermiquement au bain d'hélium 3. L'enceinte interne peut être pompée et isole ainsi le bain d'hélium 3 du bain d'hélium 4. Elle peut aussi être remplie de gaz d'hélium 4 pour pré-refroidir le microscope à 4,2 K avant une première condensation.

PRESENTATION DU SYSTEME Pb/Si(111)

Le système utilisé pour étudier les vortex confinés dans des nanostructures doit répondre à plusieurs contraintes. Elles sont fixées en premier lieu par la problématique posée, pouvoir observer les vortex d'un matériau supraconducteur. Elles sont également déterminées par la microscopie et spectroscopie à effet tunnel.

Nos besoins sont entre autres de bénéficier de :

- un supraconducteur conventionnel de type II avec une température critique bien supérieure à celle de mesure, $T_c \gg 300$ mK,
- des nanostructures de tailles et formes variables et contrôlables,
- un système observable par effet tunnel et stable tout au long des mesures.

Notre système de prédilection est le plomb déposé sur un substrat de silicium (111). Les structures de Pb/Si(111) font l'objet d'études depuis plus de vingt ans et leurs modes de croissance sont aujourd'hui bien répertoriés [Ganz 1991, Tringides 2005]. Nous préparons des nanostructures de Pb/Si(111) *in situ* au laboratoire.

1. Le système Pb/Si(111)

Afin d'étudier la supraconductivité confinée dans des couches minces et dans des îlots, il est nécessaire de partir d'un substrat répondant à un certain nombre de critères. Il faut premièrement que les îlots de plomb soient connectés à une électrode pour drainer le courant électrique, un substrat isolant est donc exclu. Cependant il ne doit pas être un très bon conducteur non plus afin de ne pas perturber par effet de proximité inverse les propriétés électroniques des nanostructures supraconductrices déposées à sa surface. Il ne doit pas répondre à l'excitation magnétique ni subir de modifications électroniques aux températures considérées.

1.1. Substrat de silicium

Nous avons choisi un substrat de silicium, ses propriétés sont bien connues

Le substrat de silicium (111) est reconstruit 7x7 en surface suivant une préparation *in situ*.

et répondent aux critères énoncés en introduction. Sa fabrication est bien maîtrisée, il est commercialisé sous forme de wafer de différentes tailles, épaisseurs et dopages. Comme il est écrit au chapitre II, il est facilement préparé sous ultravide. Deux échantillons de dopage au phosphore ont servi dans cette thèse, un premier peu dopé ($\sim 1 \Omega cm$) pour l'étude du confinement ultime des vortex et l'étude de l'effet de proximité, et un autre fortement dopé ($\sim 5 \cdot 10^{-3} \Omega cm$) pour l'étude des vortex Josephson.

Le silicium volumique a une structure "diamant". Nos échantillons ont une surface dont le plan est (111). Une fois le substrat flashé (1100-1200°C pendant 5s) dans la chambre de préparation, la surface est reconstruite 7x7. La carte topographique en figure 1.1.1 montre la résolution atomique du silicium (111) reconstruit 7x7 obtenue par STM.

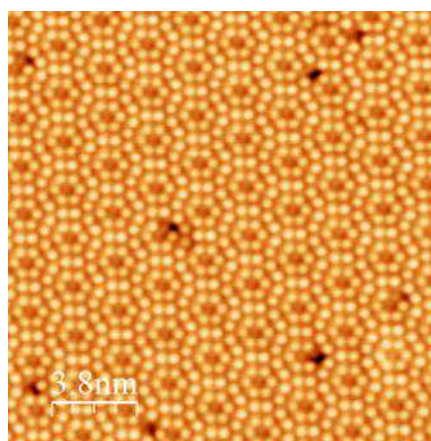


Figure 1.1.1 : Carte topographique du substrat de silicium reconstruit 7x7. ($19 \times 19 \text{ nm}^2$, $I = 0,98 \text{ nA}$, $U = 1,5 \text{ V}$. Echelle z : 0 à 2 nm).

Le plan apparent des wafer de silicium n'est jamais parfaitement aligné avec un plan (111), la surface compense ce léger angle par la formation de marches monoatomiques dont les bords en forme de zig-zag concordent avec la géométrie de la maille 7x7. Les pics d'un zig-zag d'une terrasse font face aux creux de ceux de la suivante (figure 1.1.2.b). Ils sont connectés par une dislocation de surface : deux domaines de reconstruction 7x7 s'y rejoignent et ont leur réseau translaté d'une fraction de maille l'un par rapport à l'autre. Par ailleurs, des dislocations de volume traversent l'échantillon mais n'influent pas sur la reconstruction de surface. Quelques impuretés de carbure de silicium sont ancrées en surface en faible densité. Elles provoquent des accumulations de marches sur des distances supérieures au micromètre, on parle de step bunching [Michailov 2011]. Il est cependant possible d'obtenir des surfaces propres, les marches de silicium sont alors monoatomiques, parallèles entre elles et régulièrement espacées (figure 1.1.2.b).

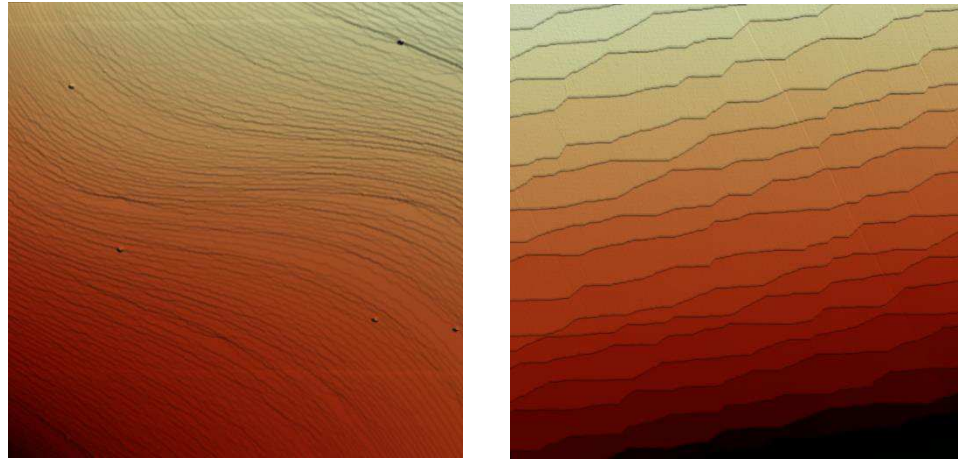


Figure 1.1.2 : Cartes topographiques de la surface de silicium à grande échelle. Sur l'image de gauche, l'inclinaison du plan de découpe par rapport au plan (111) est compensée par une accumulation de marches monoatomiques. ($5,8 \times 5,8 \mu\text{m}^2$, $-1,5 \text{ V}$, $0,053 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 87 nm). Sur l'image de droite la largeur des terrasses est régulière. ($1,8 \times 1,8 \mu\text{m}^2$, $-1,5 \text{ V}$, $0,066 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 7 nm).

1.2. Croissance du plomb sur le silicium (111)

Le plomb volumique a un réseau cristallin cubique face centrée. Dans le plan (111) les atomes sont espacés de 0,351 nm contre 0,384 nm pour le silicium, le désaccord de paramètre de maille est donc de 9 %, ce qui ne permet pas l'épitaxie. La relaxation du plomb se fait dès la première couche atomique près de l'interface. Les nanostructures gardent cependant la mémoire des axes cristallographiques du substrat.

Le plomb déposé sur le silicium (111) suit une croissance de type Stranski-Krastanov.

Selon les affinités entre deux matériaux, la croissance de l'un sur l'autre dépend des énergies de surface et d'interface ainsi que la dynamique de dépôt et de la température. Il existe deux modèles pour décrire les situations extrêmes ; dans celui de Franck Van der Merwe, les matériaux mouillent totalement et la croissance de l'un sur l'autre se fait couche par couche, tandis que dans celui de Volmer-Weber, ils ne mouillent pas et le matériau déposé croît sous forme d'îlots. Le plomb déposé sur le silicium (111) suit une situation intermédiaire, dite Stranski-Krastanov : une couche de mouillage recouvre le substrat sur deux ou trois monocouches selon la température puis le grand désaccord de maille entre les deux matériaux impose une croissance en îlots. Ceux-ci sont des monocristaux de forme triangulaire plate exhibant un plan (111) parallèlement au substrat. Cette face est plus stable énergétiquement que n'importe quelle autre face découpée dans le cube face centrée. Les bords des îlots sont donc formés par trois grands plans (111) et trois plans (100) plus petits (figure 1.2.1).

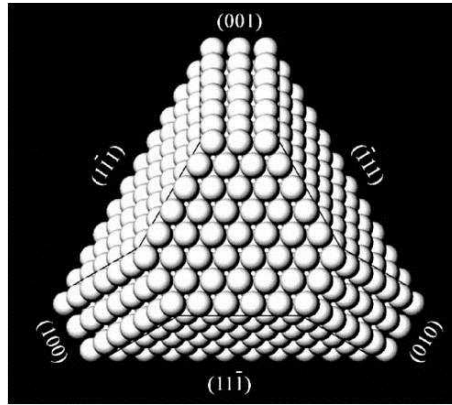


Figure 1.2.1 : Schéma du cristal cuboctaédrique tronqué [Tringides 2005].

La densité et la taille des îlots formés dépendent crucialement des conditions de préparation. Les principaux paramètres sont la qualité de la surface de silicium, la température, la quantité et le flux de matière déposée. En jouant sur ces paramètres, on contrôle le libre parcours moyen des atomes de plomb diffusant sur le silicium, leur énergie et les centres de nucléation à la surface. Par exemple, une basse température (~ 150 K) engendre des îlots petits et ronds. Des défauts de surface comme les marches atomiques de silicium et les impuretés à base de carbure bloquent la diffusion du plomb et favorisent la nucléation d'îlots sur ces défauts. Un flux élevé augmente la probabilité qu'ont les atomes de plomb de se rencontrer et de former des îlots spontanément sur la surface. La figure 1.2.2 présente une panoplie d'îlots dont la taille et la forme dépendent des conditions de croissance. Les îlots subissent ensuite une phase de mûrissement naturel qui peut durer plusieurs jours à température ambiante. Les îlots de petites tailles et mal facettés sont dépeuplés couche par couche de leur atome de plomb en faveur des îlots plus stables les avoisinants. Ces derniers croissent alors essentiellement en hauteur, les atomes supplémentaires forment une couronne à la périphérie de leur surface qu'ils remplissent dans un deuxième temps (figure 1.2.2.a et 1.2.2.b). [Fokin 2009]

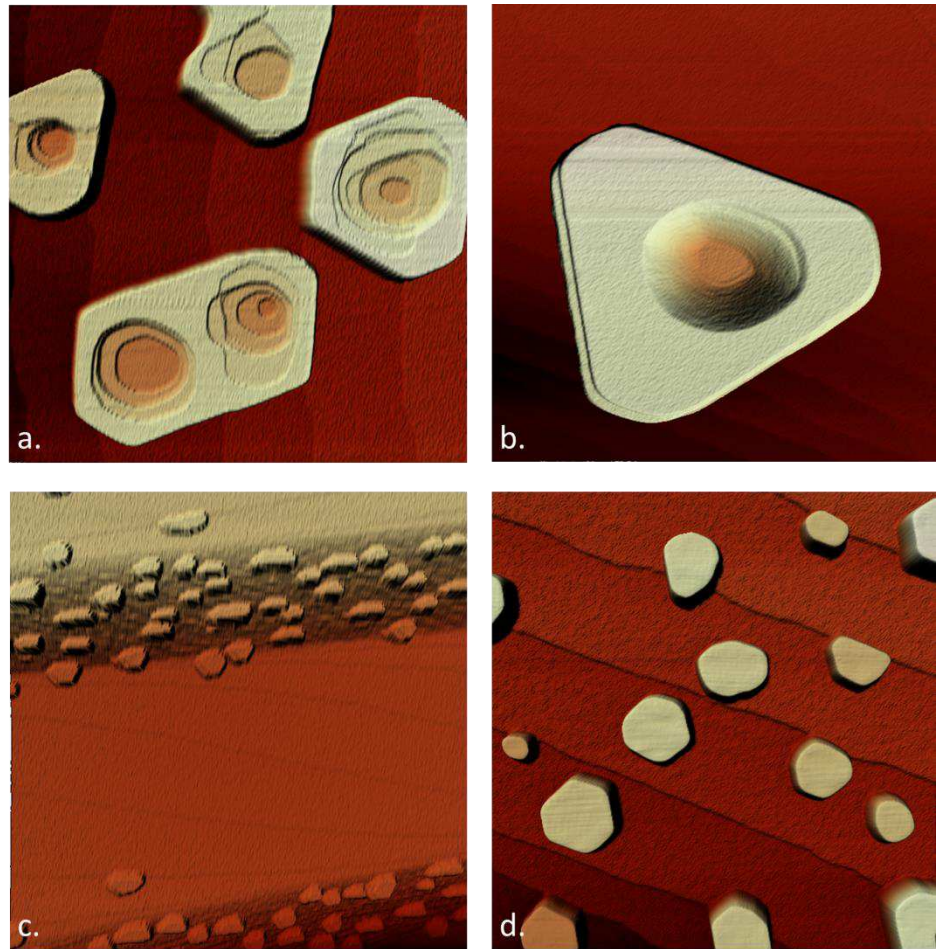


Figure 1.2.2 : Cartes topographiques d'îlots de plomb sur silicium (111) dans différentes conditions de préparation. **a.** 4,6 MC, 1,5 MC/min, 28°C. ($0,66 \times 0,66 \mu\text{m}^2$, $-0,30 \text{ V}$, $0,051 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 6 nm). **b.** 6,6 MC, 1,5 MC/min, 50°C. ($0,87 \times 0,87 \mu\text{m}^2$, $-0,67 \text{ V}$, $0,043 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 30 nm). **c.** 9,9 MC, 4,9 MC/min, 15°C. ($4,43 \times 4,43 \mu\text{m}^2$, $-0,81 \text{ V}$, $0,072 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 75 nm). **d.** Dépôt en deux étapes. 2,5 MC, 3 MC/min, -5°C . Puis 1,2 MC, 1,5 MC/min, -20°C . ($1,22 \times 1,22 \mu\text{m}^2$, $0,99 \text{ V}$, $0,15 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 6 nm).

Les îlots de Pb de la figure 1.2.2 sont considérés comme bidimensionnels du fait du ratio important entre leur hauteur de plusieurs nanomètres et leurs dimensions latérales de quelques centaines de nanomètres. Au-delà d'une taille critique, ils deviennent tridimensionnels, leur aspect change, les faces (100) sont trop importantes et coûtent trop d'énergie pour que le monocristal reste stable sous la forme précédente. Des faces réentrantes (111) apparaissent au niveau des faces (100), elles forment des encoches vers l'intérieur de l'îlot. Nous avons effectué des mesures par microscopie électronique à balayage. Une des images obtenues montre en figure 1.2.3 les faces réentrantes d'un îlot cristallin 3D. De tels îlots se prêtent difficilement à la mesure STM. En effet le rayon de courbure de la pointe est trop grand pour lui permettre d'accéder aux faces réentrantes. Et plus les nanostructures sont hautes, plus il est courant que des micro-pointes fantômes perturbent l'imagerie (chapitre II). De plus, contrairement à l'apex de la pointe, la forme des côtés de la pointe n'est pas contrôlée lors de la

fabrication des pointes. Par ailleurs, on a remarqué que la pointe a tendance à taper dans les structures 3D. Les îlots tridimensionnels de plomb d'une hauteur supérieure à une cinquantaine de nanomètres sont donc rarement étudiés par STM. Nous avons cependant réussi à imager par STM des îlots 3D de symétrie 5 qui sont présentés par la suite en section 2.

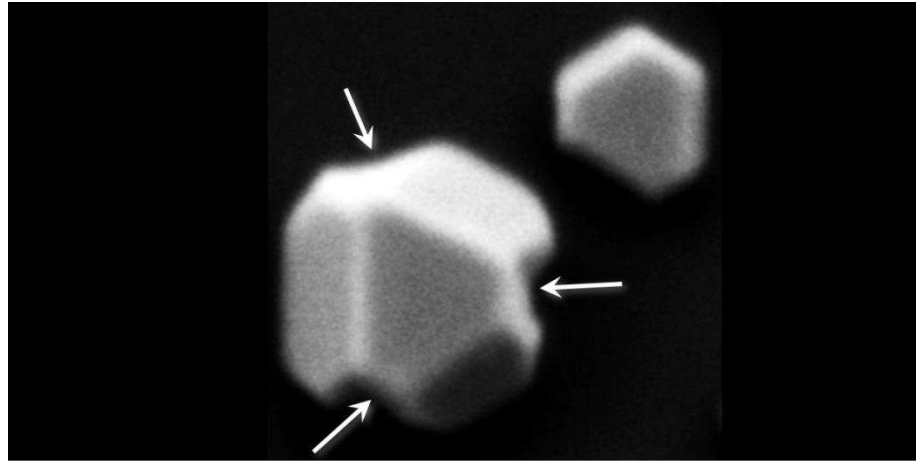


Figure 1.2.3 : Image MEB de deux îlots de plomb monocristallins sur Si(111). Les flèches désignent les faces réentrantes (111). ($1000 \times 500 \text{ nm}^2$).

1.3. Influence des états quantifiés sur la supraconductivité des nanostructures de Pb/Si(111)

Les îlots de plomb sont des puits quantiques pour les électrons, induisant une discrétisation des états visible dans le spectre tunnel.

Les couches minces de Pb/Si(111) possèdent une propriété électronique particulière à la différence d'autres métaux. Les deux surfaces parallèles au substrat confinent les électrons de conduction. Le potentiel est celui d'un puit quantique, il s'en suit une discrétisation des niveaux d'énergie (figure 1.3.1). La largeur de ce puit est très proche d'un multiple demi entier de la longueur d'onde des électrons au niveau de Fermi. Certaines épaisseurs de couche sont donc énergétiquement plus favorables que d'autres selon qu'elles correspondent à un entier ou un demi-entier de cette longueur d'onde. Des travaux expérimentaux expliquent en détail ce phénomène quantique [Michailov 2011].

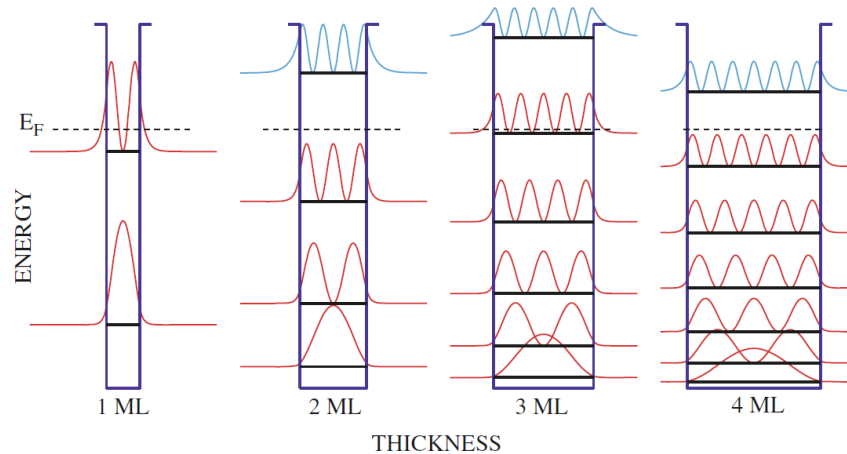


Figure 1.3.1 : Schéma de la fonction d'onde électronique des états confinés selon l'épaisseur dans des couches minces de Pb/Si(111) [Michailov 2011].

La figure 1.3.2 présente le spectre tunnel mesuré sur un îlot de 1,9 nm de hauteur (7 MC) au-dessus de la couche de mouillage. Deux pics d'états liés sont visibles, ils sont espacés de 0,66 eV (ils sont séparés de 0,58 V pour une hauteur de 2,2 nm soit 8 MC). En comparaison, les diagrammes établis dans les articles [Wei 2002, Eom 2006] montrent que l'épaisseur de 7 MC correspond à un espacement de 1,2 eV, et celle de 8 MC à 1,0 eV. L'espacement de 0,6 eV n'apparaît qu'entre 13 MC et 16 MC. L'épaisseur de la couche de mouillage reste une inconnue [Feng 2004], elle introduit donc une incertitude de l'ordre d'une monocouche dans l'évaluation de la hauteur des îlots mais cela n'explique pas l'écart observé en énergie. Les états liés présentés en figure 1.3.2 sont moins espacés que ceux de la littérature, ce qui signifierait que pour une même épaisseur, les électrons seraient moins confinés dans les îlots de cette thèse. Or le dopage utilisé par Eom et al et Wei et al est élevé ($\sim 5 \cdot 10^{-3} \Omega cm$) [Wei 2002, Eom 2006], tandis que celui de cette expérience est très faible ($\sim 1 \Omega cm$), ce qui pourrait signifier que la fonction d'onde électronique soit moins localisée dans le silicium moins dopé. Pour déterminer si le dopage joue un rôle dans l'espacement entre pics, d'autres expériences doivent être menées.

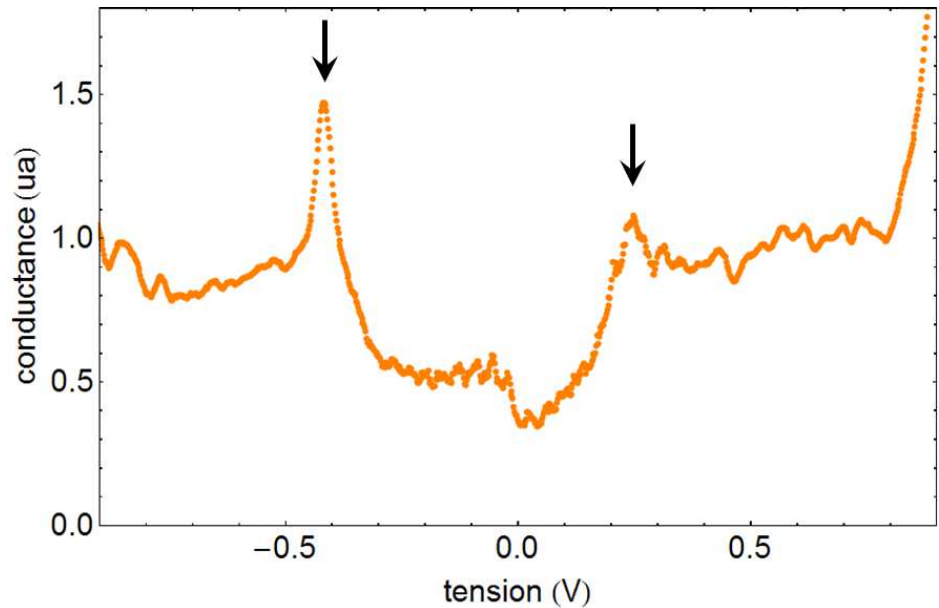


Figure 1.3.2 : Spectre de conductance tunnel mesuré à température ambiante sur un îlot de Pb/Si(111) de hauteur 1,9 nm. Les flèches indiquent la position des états liés à -0,42 V et 0,24 V.

Comme ces états liés concernent les électrons de conduction, ils ont donc un impact sur la supraconductivité. Au vue de l'amplitude relative des pics dans la densité d'états tunnels, ces variations en fonction de l'épaisseur devraient induire une variation violente dans la température critique. Mais les spectres tunnel sont sélectifs en vecteur d'onde, seuls les électrons de vecteur d'onde $k_{//} = 0$ sont détectés. La densité d'état n'est pas quantifiée dans la direction parallèle, l'amplitude relative des pics est donc en réalité beaucoup plus faible. Des études expérimentales observent ainsi que la température critique oscille en fonction de l'épaisseur des couches, mais les mécanismes à l'origine de ces oscillations font l'objet de fort désaccords [Michailov 2011]. Quelque soit l'origine de ces oscillations, l'ensemble des résultats montrent que leur amplitude n'excèdent pas 10% autour d'une valeur moyenne pour les couches les plus fines, c'est-à-dire d'épaisseur entre 5 et 10 MC. Elle augmente globalement avec l'épaisseur jusqu'à atteindre celle du volume, $T_c = 7,2 K$. D'après ces mesures, les îlots synthétisés dans cette thèse ont une température critique de $6,5 K \pm 0,5 K$, ce qui correspond à une largeur de gap à température nulle de $1,1 meV \pm 0,1 meV$.

Les spectres mesurés sur plusieurs îlots sont présentés en figure 1.3.3, la largeur du gap en énergie oscille effectivement avec l'épaisseur. Bien que le bruit présent sur chaque spectre individuel soit trop important pour déterminer le gap (chapitre II section 3), l'amplitude des variations du gap est mesurable et vaut 11% pour des îlots de hauteur comprise entre 1,9 nm et 2,8 nm (7 MC et 10 MC) (figure 1.3.4). Les spectres tunnel mesurés à

plus haute tension pour les épaisseurs 1,9 nm et 2,8 nm montrent que le niveau de Fermi se trouve entre deux états liés dans le premier cas et au niveau d'un état lié dans le deuxième. Ces résultats pourraient être interprétés par une oscillation du gap supraconducteur en fonction de l'épaisseur des îlots. Pour confirmer ou infirmer cette hypothèse, il faudrait enregistrer une plus grande collection de spectres. Il serait avantageux de les mesurer sur des couches minces plutôt que des îlots car, comme nous allons le voir au chapitre V, les spectres présentent un effet de blocage de Coulomb dû à la couche amorphe qui les entoure.

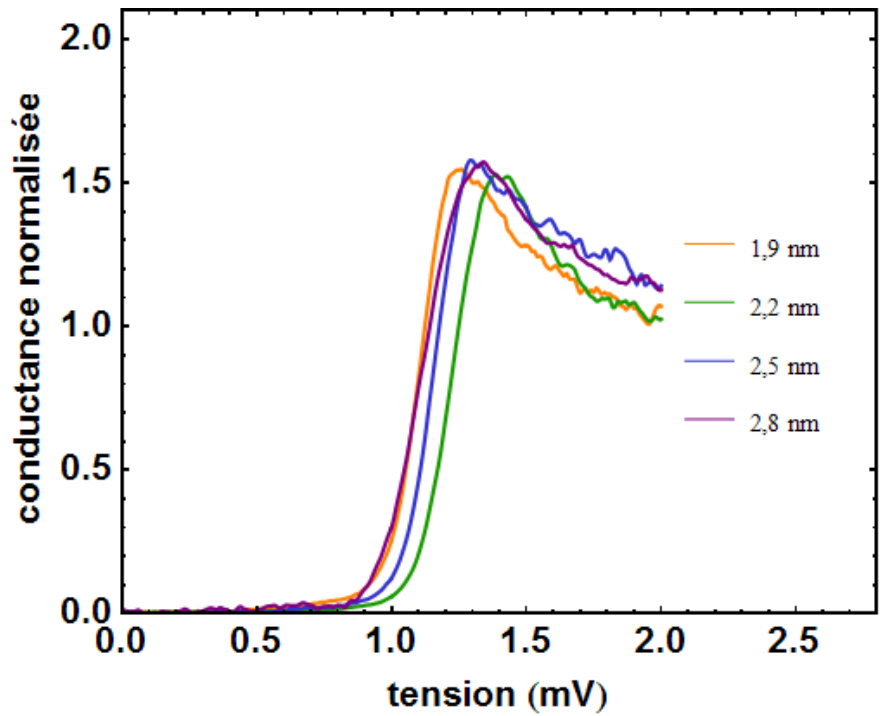


Figure 1.3.3 : Spectres de conductance tunnel en fonction de l'épaisseur des îlots. La largeur en énergie à l'unité de conductance normalisée vaut 1,12 mV pour 1,9 nm (7 MC), 1,25 mV pour 2,2 nm (8 MC), 1,18 pour 2,5 nm (9 MC) et 1,14 pour 2,8 nm (10 MC).

épaisseur	1,9 nm (~7 MC)	2,2 nm (~8 MC)	2,5 nm (~9 MC)	2,8 nm (~10 MC)
gap en énergie	1,18	1,3	1,24	1,2

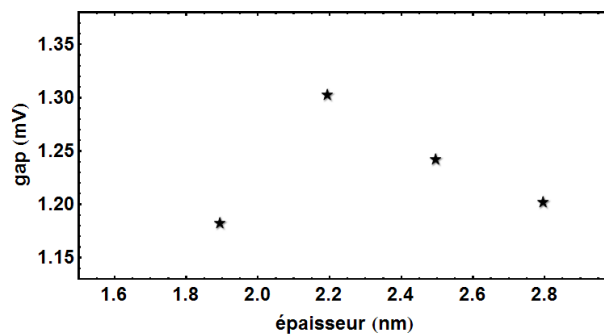


Figure 1.3.4 : Valeurs du gap en tension en fonction de l'épaisseur des îlots, extraites des spectres de la figure 1.3.3.

2. Une nouvelle phase dans le diagramme de croissance du plomb sur le silicium (111)

Bien que n'étant pas l'objet de mon sujet de thèse, je consacre une section à la caractérisation d'une nouvelle phase observée pour la première fois dans le plomb sur le substrat de silicium (111). Nous avons en effet identifié une structure d'îlots 3D de symétrie 5. Il nous a fallu comprendre quelles conditions favorisaient la croissance des monocristaux plats afin de pouvoir faire croître ces structures dont j'avais besoin pour confiner les vortex. Je propose dans cette section une description de la croissance de ces îlots à partir de l'observation expérimentale et de déductions qualitatives logiques inspirées par différents modèles.

2.1. L'icosaèdre tronqué à base pentagonale

Nous avons observé une nouvelle géométrie d'îlots. Celle-ci est une pyramide à base pentagonale (figure 2.1.1). Pour que cette structure de symétrie 5 existe dans la nature, il faut que son énergie libre totale soit plus petite que celle du cuboctaèdre tronqué.

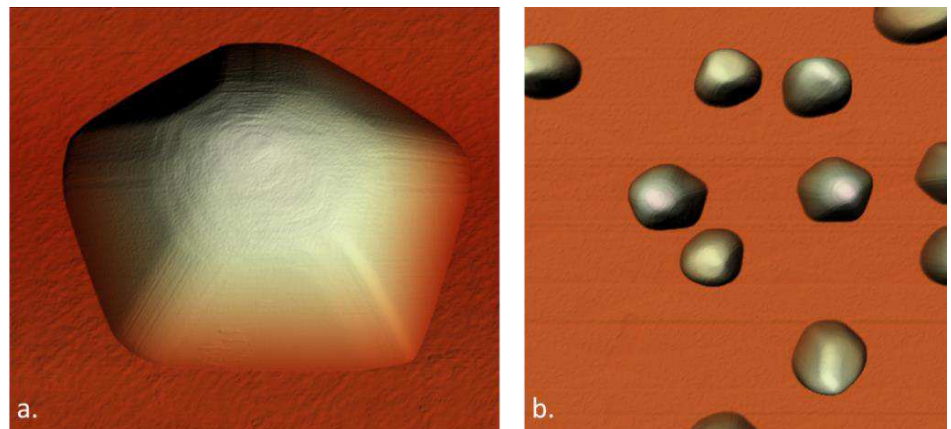


Figure 2.1.1 : Cartes topographiques d'îlots tridimensionnels pyramidaux à base pentagonale. **a.** ($233 \times 204 \text{ nm}^2$, $-0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 45 nm). **b.** ($1,02 \times 1,02 \mu\text{m}^2$, $-0,21 \text{ V}$, $0,079 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 42 nm).

Des calculs *ab initio* prédisent des domaines de stabilité et de transition de phase pour des particules libres de symétrie 5 et de symétrie 3 selon la quantité d'atomes et la température [Hendy 2001, Barnard 2006]. Les calculs sont inadaptés pour simuler nos résultats, il est en effet très difficile de travailler avec des structures contenant quelques dizaines de milliers à plusieurs milliards d'atomes. Inclure en plus une interface, ce qui équivaut à considérer deux natures chimiques d'atomes, est actuellement impossible.

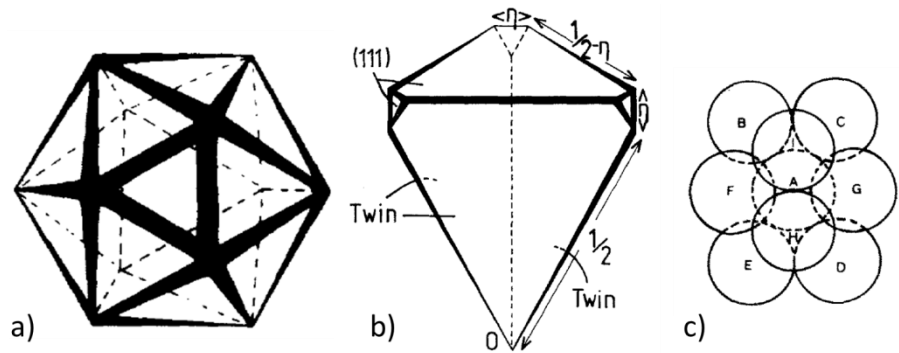


Figure 2.1.2 : Icosaèdre (a) et unité cristalline (b) du Modèle des Multiply Twinned Particles [Marks 1984]. c. Agrégat de treize atomes de symétrie indifférenciée [Gillet 1977].

La croissance des nanostructures de symétrie 5 se fait à partir de quelques atomes de plomb ayant nucléés spontanément sur la surface. En deçà d'une dizaine d'atome, cet agrégat est de symétrie encore indifférenciée icosaédrique ou cubique (figure 2.1.2.c) [Gillet 1977]. La pyramide croit ensuite couche par couche, ses cinq faces sont les plans (111) les plus favorables énergétiquement en surface. Cette pyramide étant de symétrie 5 ne peut pas être un monocristal. Elle peut être assimilée aux particules du modèle des Multiply Twinned Particles, elle comporterait cinq monocristaux juxtaposés comme les parts d'un gâteau [Ino 1966, Marks 1984, Marks 1994]. Le plomb étant un métal mou, les dislocations et les interfaces polycristallines coûtent peu d'énergie par rapport aux surfaces en contact avec le vide ou un autre matériau, ce qui explique le choix de ce modèle. Les interfaces entre les cinq unités monocristallines ne suivent aucun accord de maille ; on peut imaginer ce désaccord se propager uniquement sur deux plans monoatomiques sous forme de dislocation ou d'une interface liquide comme le montrent des calculs récents [Hendy 2001].

Les plans entre unités monocristallines rejoignent la surface au niveau des arêtes. En imageant les arêtes avec une résolution atomique, on a essayé d'obtenir des informations sur les dislocations du volume. Malheureusement, il est extrêmement difficile d'obtenir la résolution atomique sur ces îlots 3D avec une pointe STM. La pointe entre en contact avec la surface : on observe une brusque augmentation du courant tunnel ce qui induit un recul de la pointe de quelques dizaines de nanomètres jusqu'à ce que le fil de plomb qui se forme casse. On arrive cependant à observer des dislocations d'épaisseur inférieure au nanomètre se propageant à travers une face ou au pied de l'îlot (figure 2.1.3.b). Leur présence confirme l'hypothèse selon laquelle les pyramides sont constituées de monocristaux formant une face entière.

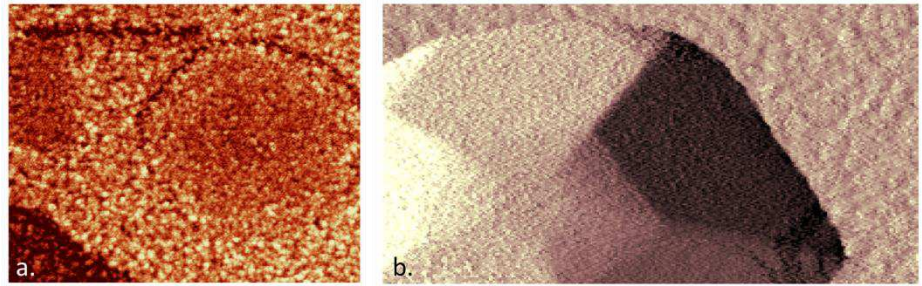


Figure 2.1.3 : **a.** Carte topographique d'une pyramide droite détruite par la pointe, à côté d'une empreinte triangulaire d'un îlot cuboctaédrique ayant mûri. ($148 \times 118 \text{ nm}^2$, $-0,42 \text{ V}$, $0,091 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 1 nm). **b.** Carte topographique d'un îlot pyramidal. Au pied de l'îlot, l'arrête est tronquée suivant une succession de marches atomiques. La troncature apparente du sommet correspond à l'arrondi de la pointe. ($94 \times 62 \text{ nm}^2$, $-0,64 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 28 nm).

Les images STM montrent qu'il y a un seul sommet par pyramide et qu'il est le point de concours des cinq arrêtes. Il est alors possible de s'affranchir de l'élargissement dû à la pointe et d'en déduire l'îlot réel. Pour cela, on part de l'hypothèse que l'îlot réel est une pyramide idéale. On construit alors cette pyramide idéale à partir du sommet réel mesuré et des angles des cinq faces considérés comme correctement mesurés loin du sommet. On en déduit que les faces mesurées sont translattées dans l'espace par l'effet de pointe (voir chapitre II). La figure 2.1.4 présente une superposition de l'îlot mesuré et de l'îlot réel. Le volume de la pyramide est évalué : il peut contenir jusqu'à 10^{10} atomes !

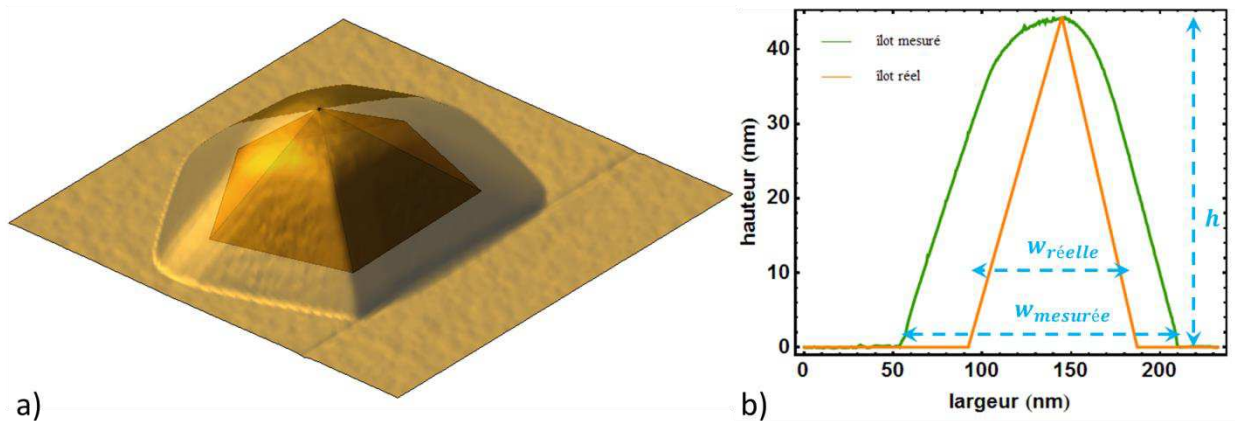


Figure 2.1.4 : **a.** Carte topographique 3D de l'îlot mesuré et de l'îlot réel reconstruit. ($233 \times 233 \text{ nm}^2$, $-0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 45 nm). **b.** Coupe horizontale passant par le sommet.

La pyramide observée est un icosaèdre tronqué (figure 2.1.4). En effet la mesure des angles diédraux (angles entre les différentes faces) correspond à la valeur attendue pour un icosaèdre idéal (équation 2.1.1).

$$\theta|_{th} = \pi \arccos\left(\sqrt{5/3}\right) \text{radian} \sim 138^\circ$$

$$\theta|_{exp} = (0,98 \pm 0,03)\theta|_{th}$$

Equation 2.1.1 : Angle diédral théorique de l'icosaèdre tronqué et valeurs expérimentales. La valeur expérimentale est une moyenne statistique et l'incertitude est donnée par l'écart type.

Comme la mesure des angles diédraux requiert une bonne résolution des cinq faces, elle n'a pu être calculée que sur très peu d'îlots. Une autre méthode peut être utilisée. Elle consiste à calculer le rapport entre la hauteur h et la largeur réelle de la base $w_{réelle}$, c'est-à-dire corrigée de l'effet de pointe (figure 2.1.4.b). En effet la valeur expérimentale du ratio entre la hauteur h et la largeur de la base w est une constante $C_{0|exp}$, égale à celle de l'icosaèdre tronqué $C_{0|th}$ (équation 2.1.2).

$$C_{0|th} = \frac{\sqrt{\frac{5-\sqrt{5}}{10}}}{1 - \frac{5-\sqrt{5}}{10}} + (3/4 - \sqrt{5-\sqrt{5}/10}) \cong 0,34549$$

$$C_{0|exp} = (1,02 \pm 0,09)C_{0|th}$$

Equation 2.1.2 : ratio hauteur sur largeur de l'icosaèdre tronqué théorique et valeur expérimentale. La valeur expérimentale est une moyenne statistique et l'incertitude est donnée par l'écart type.

Pour connaître la largeur réelle, une coupe d'un îlot est faite orthogonalement au substrat et passant par une arête. Une telle coupe est présentée en figure 2.1.4. L'arête et le côté opposé réels sont reconstruits à partir des pentes des côtés correspondant et la position du sommet réel. La largeur de la base est alors donnée par la distance les séparant au niveau du substrat. On constate une grande incertitude sur la mesure de la base, ce qui est la principale cause de l'importance de l'écart type de $C_{0|exp}$ (60%).

A la différence de la mesure des angles diédraux, cette méthode ne permet pas de s'affranchir d'une éventuelle inclinaison de l'icosaèdre avec le substrat.

Les résultats expérimentaux sont exposés sous forme de graphe en figure 2.1.5, le grand nombre d'îlots présents sur l'image STM en figure **b** rend possible l'étude statistique. Le graphe **a** montre que le ratio $h/w_{réelle}$ entre la hauteur et la largeur réelle des pyramides ne dépend pas de la hauteur des îlots.

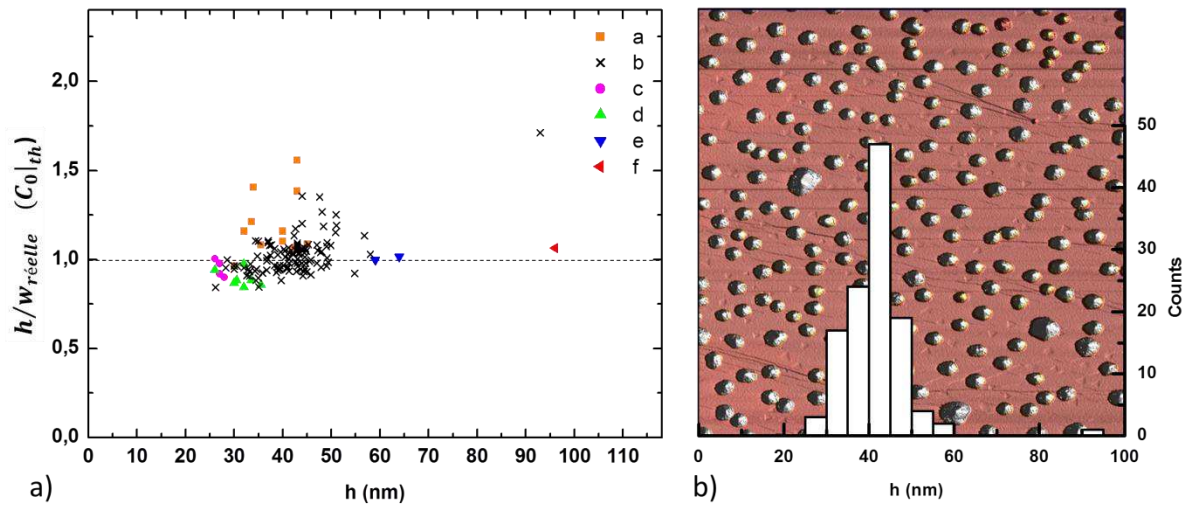


Figure 2.1.5 : a. Graphe des mesures de $h/w_{réelle}$ en fonction de la hauteur h pour différentes expériences notées a, b, c, d, e et f. b. Carte topographique et histogramme des hauteurs de l'expérience b. ($4,43 \times 4,43 \mu\text{m}^2$, $-0,32 \text{ V}$, $0,066 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 90 nm).

expériences	température de dépôt (°C)	durée du réchauffement à 23°C	quantité de plomb (MC)	Flux (MC/min)
a	-18	< 1 min	14,4	1,54
b	-15	15 h	12,7	0,71
c	-14	< 1 min	6,9	1,54
d	-7	qq min	6,1	1,36
e	20	-	6,9	1,54
f	-52	< 1 min	6,6	1,46

figure 2.1.6 : tableau des conditions de préparation des expériences a, b, c, d, e et f.

Des icosaèdres et des dodécaèdres tronqués sont actuellement synthétisés en laboratoire dans des solutions ioniques [Zhang 2009]. Les images MEB et TEM des particules en solution montrent qu'elles présentent des dislocations au niveau des arrêtes, les angles entre faces n'ont pas exactement les mêmes valeurs d'une face à l'autre, des faces supplémentaires (100) s'intercalent parfois entre deux faces (111) [Li 2011].

Dans ces cas, ce sont les surfactants adsorbés sur les faces externes qui permettent d'abaisser l'énergie des particules et rendent ainsi possible leur existence [Zhang 2008, Tsuji 2010]. Pour les particules synthétisées sur une surface, le substrat peut soit contraindre davantage l'interface, ou au contraire permettre de relaxer une partie des contraintes entre unités monocristallines. Comme la particule n'admet pas d'accord de maille avec le substrat, les contraintes augmentent avec sa taille croissante [Müller 2000, Henry 2005].

Quelques cas de nanoparticules de symétrie 5 ont déjà été observés par STM avec d'autres métaux nobles et d'autres substrats mais leur taille n'a jamais

excédé la quinzaine de nanomètres contrairement à celle d'une cinquantaine de nanomètres des îlots que nous avons mesurés ici [Silly 2005, Silly 2006, Silly 2009].

2.2. L'icosaèdre tronqué incliné et la pyramide à un seul plan de symétrie

Une variante des îlots de symétrie 5 croit aussi sur la surface de silicium. Il s'agit de pyramide dont les cinq faces ne sont pas équivalentes. La pyramide semble inclinée, elle possède un plan de symétrie passant par la plus petite arête et le milieu de la face opposée (figure 2.2.1.b). Les deux plus petites unités monocristallines sont alors plus contraintes que celles de la pyramide droite car le rapport surface sur volume est plus important, et inversement pour la plus grosse unité de la pyramide inclinée. En fonction du volume de ces pyramides, on s'attend à ce qu'elles soient stables pour des angles particuliers. Si γ est l'angle que fait la plus grande face avec le substrat, alors on en déduit l'angle d'inclinaison δ comme étant la différence entre l'angle $\gamma|_{exp}$ mesuré et l'angle $\gamma|_{th}$ d'une pyramide droite. Deux valeurs critiques sont ainsi mesurées, la première classe à un angle moyen face-substrat $\gamma_1|_{exp} = 21.8^\circ \pm 2.6^\circ$ (inclinaison : $\delta_1|_{exp} = 15.6^\circ \pm 2.6^\circ$) et la seconde $\gamma_2|_{exp} = 9.8^\circ \pm 2.1^\circ$ (inclinaison : $\delta_2|_{exp} = 27.6^\circ \pm 2.6^\circ$).

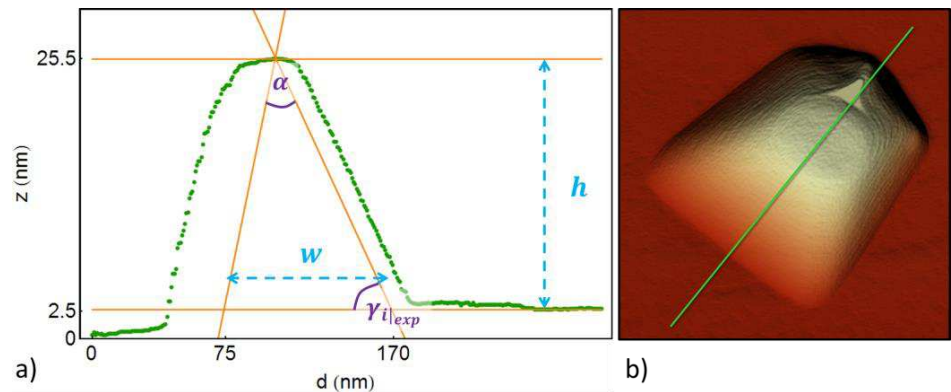


Figure 2.2.1 : Coupe d'un icosaèdre tronqué incliné. Les grandeurs indiquées sont celles relevées pour le calcul de la constante $C_0|_{exp}$ des icosaèdre tronqué droit, des angles $\alpha|_{exp}$ et $\gamma|_{exp}$. ($187 \times 187 \text{ nm}^2$, $-1,16 \text{ V}$, $0,095 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 25 nm).

Pour savoir si ces pyramides sont des icosaèdres inclinés et tronqués ou si elles ne présentent pas d'autre symétrie que celle du plan passant par le milieu de la grande face et l'arête opposée, on mesure l'angle au sommet dans ce plan. Celui-ci est donné par l'équation 2.2.1 pour une pyramide quelconque α et pour l'icosaèdre $\alpha|_{th}$.

$$\alpha(w_{réelle}, h, \gamma_i|_{exp}) = \arctan(w_{réelle}/h - \pi/2 + \gamma_i|_{exp}) + \pi/2 - \gamma_i|_{exp}$$

$$\alpha_{|th} = \arccos\left(\sqrt{4(5 - \sqrt{5})/30}\right) + \arccos\left(\sqrt{(5 - \sqrt{5})/10}\right) \cong 111^\circ$$

$$\text{avec } \gamma_{|th} = \arcsin\left(\frac{2}{\sqrt{3}}\sqrt{(5 - \sqrt{5})/10}\right) \cong 37,4^\circ$$

$$\alpha_{1|exp} = (1,10 \pm 0,05) \alpha_{|th}$$

$$\alpha_{2|exp} = (1,39 \pm 0,05) \alpha_{|th}$$

Equation 2.2.1 : Angle au sommet formé par une arête et la face opposé dans le plan de symétrie d'une pyramide quelconque (α) et d'un icosaèdre tronqué ($\alpha_{|th}$), et valeurs expérimentales ($\alpha_{1|exp}$ et $\alpha_{2|exp}$). $w_{réelle}$ est la largeur de la base reconstruite, h la hauteur de la pyramide et γ est l'angle entre la plus grande face et le substrat.

L'angle au sommet $\alpha_{1|exp}$ de la première classe de pyramide inclinée égale la valeur théorique de l'icosaèdre tronqué incliné à 10% près, tandis que celui $\alpha_{2|exp}$ de la seconde présente un écart important de 40%. La deuxième classe ne correspond donc pas à la troncature de biais d'un icosaèdre mais à la troncature d'un icosaèdre "irrégulier". Les images topographiques semblent montrer que seule la plus grande face est inclinée, tandis que les quatre autres conservent les angles de la pyramide droite. Elles sont malheureusement trop petites pour qu'on puisse calculer leur vecteur normal, ce qui ne permet pas de confirmer cette observation par une mesure quantitative. Comme les cinq monocristaux ne peuvent pas constituer un seul et même cristal, les unités s'arrangent entre elles de sorte à minimiser les contraintes dues aux interfaces jumelles. Il est alors possible que l'unité principale forme un cristal avec ses deux voisines ou avec le substrat à l'angle d'inclinaison $\delta_{2|exp}$.

2.3. L'icosaèdre tronqué présentant une arête

Une autre variante de l'icosaèdre tronqué a été observée dans quelques échantillons. Elle correspond à la troncature de l'icosaèdre selon un plan parallèle à une arête : l'îlot a deux sommets rejoint par une arête et huit faces (111) (figure 2.3.1). Cette géométrie est moins stable en termes d'énergie que l'icosaèdre tronqué à un sommet. En effet elle possède beaucoup plus d'unité monocristalline et donc souffre de plus de contrainte d'interface jumelle pour un même volume total. Tout comme la pyramide droite, elle fait partie des nano-îlots observés par Silly et al pour de l'argent et de l'or déposés sur un substrat de SrTiO3 [Silly 2009].

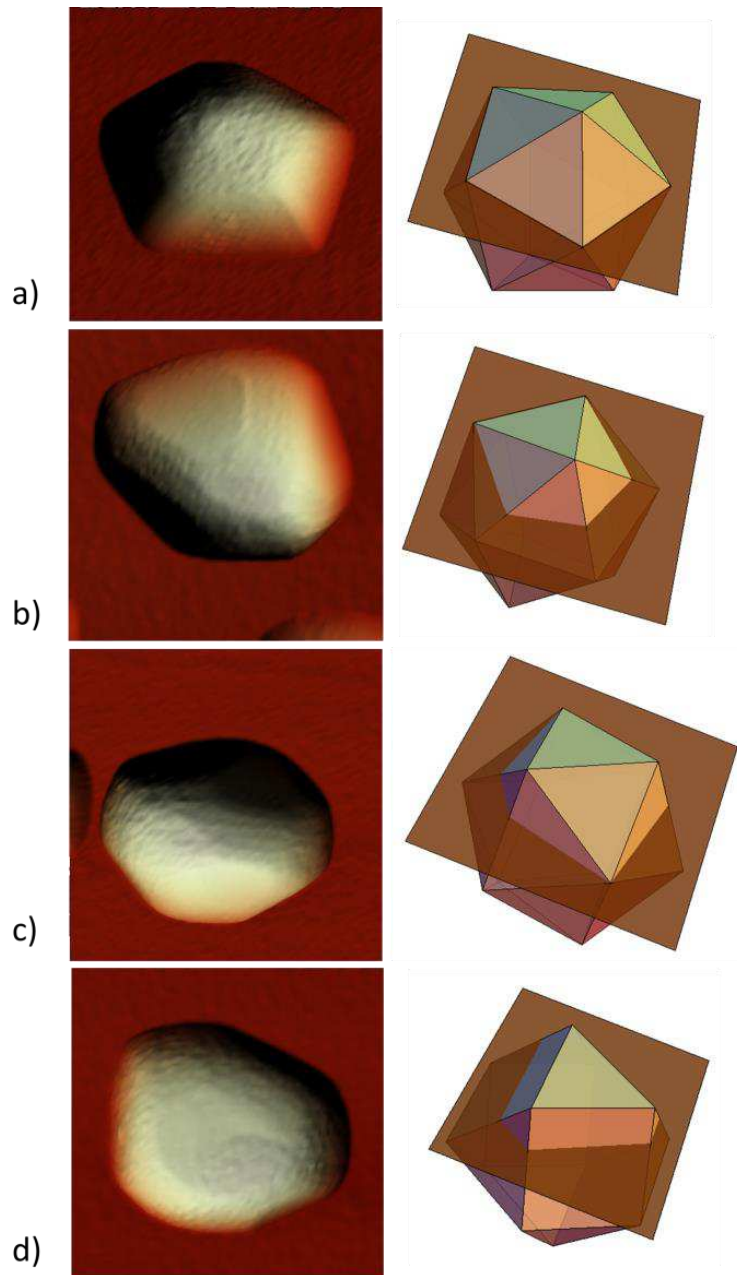


Figure 2.3.1 : Cartes topographiques des différentes pyramides de symétrie 5 et leurs modèles. **a.** Icosaèdre régulier tronqué selon une base pentagonal. ($233 \times 233 \text{ nm}^2$, $0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 45 nm). **b.** Icosaèdre régulier tronqué de biais. ($233 \times 233 \text{ nm}^2$, $0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 31 nm). **c.** Icosaèdre régulier tronqué parallèlement à une arête. ($195 \times 195 \text{ nm}^2$, $0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 38 nm). **d.** Cuboctaèdre tronqué ($195 \times 195 \text{ nm}^2$, $0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 26 nm).

2.4. Les différentes structures en compétition

Les monocristaux cuboctaédriques tronqués se forment lors du dépôt et suivent ensuite une phase de mûrissement. Leur nucléation est favorisée par des défauts de surface du silicium comme les marches, les lacunes ou les

impuretés atomiques. On observe que plus la surface est plane, propre et la structure 7x7 bien reconstruite, plus la probabilité de croître en pyramides augmente.

Durant la phase de mûrissement, beaucoup de petits îlots cuboctaédriques tronqués disparaissent au profit des îlots facettés et des pyramides. Ils laissent une empreinte dans la couche de mouillage (figures 2.1.3, 2.1.5, 2.4.1 et 2.4.2). Ces empreintes semblent être constituées de plomb avec la même rugosité que la couche de mouillage autour d'elles, mais avec une épaisseur plus faible (profils figure 2.4.1). Grâce à celles-ci, on peut connaître la stabilité des îlots des deux géométries en compétition. On constate qu'il y a très peu d'empreintes pentagonales mais qu'il y en a beaucoup de triangulaires, surtout autour des pyramides (figure 2.4.1). Durant la croissance, les nanostructures de symétrie 5 sont donc plus stables que les monocristaux cuboctaédriques sur le silicium. Leur nucléation semble exiger des conditions de pureté plus poussées, ce qui explique que les pyramides n'ont encore jamais été observées.

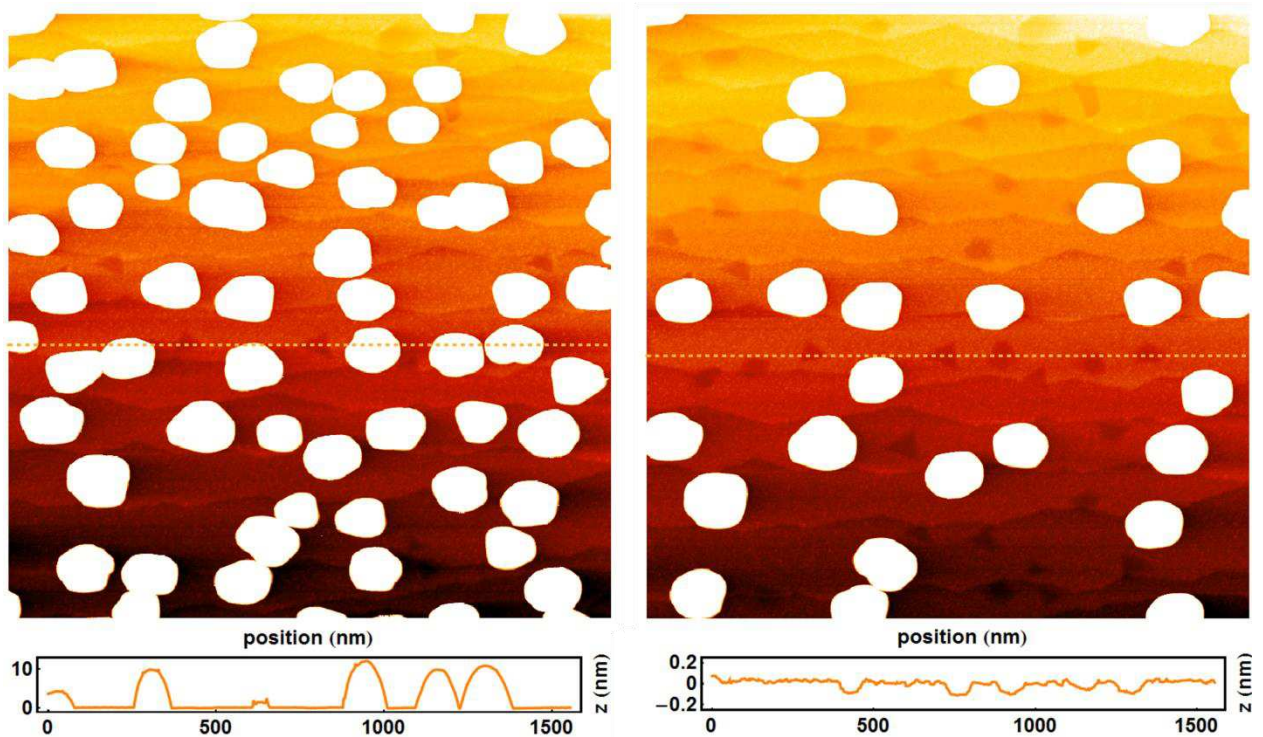


Figure 2.4.1 : Cartes topographiques d'une même zone prises au cours de la phase de mûrissement à température ambiante (les deux cartes sont mesurées à une vingtaine d'heure d'intervalle). La carte de droite montre les empreintes triangulaires et pentagonales laissée par les îlots plats et les pyramides instables ayant disparu de carte de gauche. Les profils d'une ligne montrent la hauteur des empreintes des îlots disparus. ($1,56 \times 1,56 \mu\text{m}^2$, $-0,21 \text{ V}$, $0,084 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 5nm).

J'ai varié la température de dépôt dans une gamme allant de -50°C à $+50^\circ\text{C}$, le flux de plomb de 0,1 MC/min à 10 MC/min, la quantité de plomb déposée de 4,5 MC à 14,4 MC ; les pyramides sont toujours présentes et en plus grand nombre que les îlots cuboctaédriques. De plus j'ai répété les

mêmes expériences sur différents échantillons de même dopage faible ($\sim 1 \Omega cm$) puis de très fort dopage ($\sim 5 \cdot 10^{-3} \Omega cm$). Les résultats sont les mêmes, les dopants présents à la surface du silicium ne jouent donc aucun rôle. Le paramètre crucial semble être la qualité de la source de plomb. (Le plomb est évaporé par bombardement électronique). Juste avant que le creuset ne se vide, l'expérience réalisée ne contient aucune pyramide ainsi que les expériences faites avec le renouvellement du plomb. Lorsque le plomb est légèrement pollué, les îlots croissent uniquement sous forme de monocristaux. Ceux-ci sont distordus, plats, mal facettés avec des couronnes et piscines ce qui prouve la présence d'impureté. Quand la source se purifie, il y a de plus en plus d'îlots triangulaires bien facettés et des pyramides apparaissent.

Un des échantillons a été extrait de l'enceinte ultravide pour être imagé par un microscope électronique à balayage. Le système est très robuste, il a résisté à la pression atmosphérique et l'oxydation a peu affecté la surface et les îlots. La surface de l'échantillon de dimension $5 \times 3 \text{ mm}^2$ a pu être entièrement imagée. Ces images ont fourni une information statistique supplémentaire. La répartition des différentes géométries est homogène sur l'échantillon tout comme la distribution des terrasses monoatomiques du substrat. On compte ainsi 22 % de cuboctaèdres tronqués, 35 % de pyramides droites, 22 % de pyramides inclinées et 20 % d'îlots tridimensionnels cuboctaédriques. La quantité importante d'îlots permet de dresser un histogramme des directions adoptées par les faces à la base des pyramides droites. L'histogramme obtenu en orange sur la figure 2.4.2.d ne montre pas de pic particulier. Dans le cas d'une orientation privilégiée selon les axes du substrat, on s'attendrait à voir des pics tous les 12° , mais l'incertitude sur les mesures est trop importante pour conclure. L'histogramme superposé en vert est celui relevé pour les cuboctaèdres tronqués. On constate trois directions seules séparées par 60° ce qui confirme que les cuboctaèdres tronqués gardent la mémoire de la structure du substrat, ces trois directions étant celles du silicium.

Ces images MEB montrent que des îlots 3D de hauteur supérieure à une cinquantaine de nanomètres gardent la symétrie 5 (figure 2.4.2).

Le bord de l'échantillon présente un fort gradient d'épaisseur qui se traduit par des accumulations de marches mono- ou pluri-atomiques (figure 2.4.2.c). Les îlots qui les recouvrent sont beaucoup plus nombreux que sur la surface de l'échantillon, et sont essentiellement des îlots triangulaires plats. On observe quelques pyramides mais aucun monocristal tridimensionnel. La densité et la hauteur des marches ont réduit considérablement la diffusion du plomb lors du dépôt et surtout lors de la phase de mûrissement. Les îlots triangulaires sont alors préservés, d'où leur taille plus petite et leur nombre plus grand.

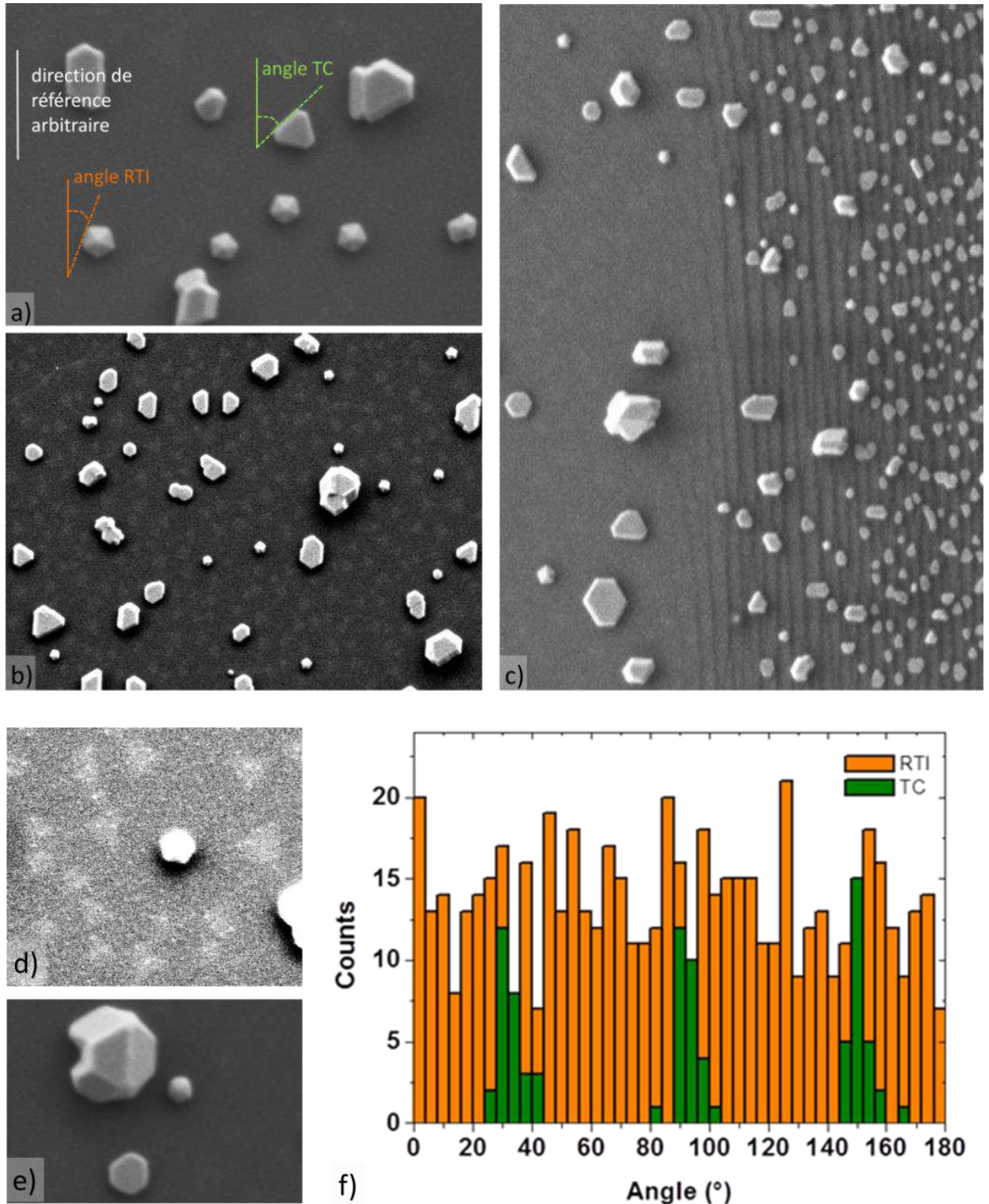


Figure 2.4.2 : images MEB et histogramme des angles formés par les bords des îlots et le bord horizontal de l'image. Les images **a** et **b** présentent la panoplie des différents types d'îlots et les empreintes sur la couche de mouillage. (**a** $1,7 \times 1,2 \mu\text{m}^2$, **b** $4,5 \times 3,1 \mu\text{m}^2$). L'image **c** est prise au bord de l'échantillon, les marches visibles sont pluri-atomiques. ($2,5 \times 3,6 \mu\text{m}^2$). **d**. Les empreintes sont majoritairement triangulaires sur la couche de mouillage. ($0,9 \times 1,0 \mu\text{m}^2$). **e**. L'icosaèdre tronqué à une arête apparente présente des faces réentrantantes lorsque sa largeur excède la centaine de nanomètre. ($650 \times 940 \text{nm}^2$). **f**. L'histogramme orange est celui des icosaèdres tronqués droits (RTI pour Regular Truncated Icosahedron) et le vert correspond aux cuboctaèdres tronqués (TC pour Truncated Cuboctahedron).

Pour tenter de n'obtenir que des îlots cuboctaédriques tronqués, le dépôt a été fait en deux étapes. La première consiste en un dépôt rapide de quatre monocouches à -20°C . Les deux-trois premières couches constituent la couche de mouillage, les suivantes permettent la nucléation des îlots plats. La quantité de plomb ne semble pas suffisante et le flux trop fort pour que les pyramides aient assez de matière et de temps pour nucléer face à la stabilisation des cuboctaèdres tronqués. S'il y a des agrégats, ceux-ci sont instables et après le premier dépôt, un recuit à température ambiante les fait disparaître. Une monocouche est alors déposée très lentement afin que le plomb diffuse et que s'accroissent, se stabilisent et se facettent les îlots déjà présents. Ce protocole n'est pas reproductible dans la mesure où lors de la préparation d'une autre série d'expérience, cette technique n'a abouti qu'à la croissance de pyramides.

CONFINEMENT DES VORTEX

Dans un matériau supraconducteur macroscopique, les vortex s'organisent en réseau triangulaire dit d'Abrikosov. Dès lors qu'ils sont confinés dans des nanostructures de dimensions comparables à la longueur de London et la longueur de cohérence, l'organisation des vortex devient sensible aux bords où circulent les plus forts courants Meissner. Plusieurs travaux théoriques effectués récemment montrent que cette organisation dépend fortement de la taille et de la forme du matériau [Moshchalkov 2011, Zadorosny 2012, Mel'nikov 2002]. Il est même prédit depuis 1966 qu'un vortex géant, c'est-à-dire un vortex à plusieurs quantum de fluxoid, peut être créé avec un confinement latéral extrême [Fink 1966, Baelus 2002, Pereira 2012]. Nous avons donc cherché à observer ce vortex géant dans des nanostructures de Pb/Si(111) dont les dimensions latérales n'excèdent pas quelques longueurs de cohérence et sont bien inférieures à la longueur de London. Nous nous sommes donc penchés sur la question de l'organisation des vortex dans ces nanostructures dans un cas de confinement extrême, puis nous avons cherché à positionner ces organisations dans le diagramme de phase supraconducteur sous champ magnétique.

La première partie de ce chapitre décrit le confinement ultime dans des nanostructures n'admettant que quelques vortex dont le vortex géant. La seconde partie traite de l'organisation des vortex dans des nanostructures plus larges. On verra également l'influence des défauts comme centres de piégeage des vortex, des centres pouvant servir dans la manipulation de vortex ou l'apparition de vortex géant ou antivortex [Liao 2003, Villegas 2003, Karapetrov 2005, Córdoba 2013].

1 Confinement ultime des vortex

Avant que ne débute ma thèse, l'équipe a entamé l'étude du confinement des vortex dans la situation la plus extrême : les effets de bords seraient tellement fort qu'un seul vortex pourrait entrer dans l'îlot [Cren 2009]. La recherche du vortex géant doit donc se faire dans des îlots de dimensions latérales un peu plus grandes.

1.0. Introduction : la boîte à un vortex et la boîte sans vortex

Afin d'entamer l'étude du diagramme de phase des vortex confinés, je présente brièvement dans cette section les résultats de la boîte à un vortex [Cren 2009].

L'îlot de la figure 1.0.1 est de forme hexagonale, il a une hauteur de 5,5 nm (19 MC) et un diamètre de 110 nm. Il possède une piscine au centre mais sa profondeur n'excède pas 3 MC et son diamètre 50 nm ($\sim \xi_{eff}(4,3K)$), la supraconductivité est donc homogène sur tout l'îlot. La longueur de cohérence calculée est d'environ 40 nm et celle de London est estimée à 4 μm à la température de cette étude 4,3 K.

La longueur de cohérence est connue à partir des calculs suivants :

$\xi(T) = \xi(0)/\sqrt{1 - T/T_c}$ or $\xi(0) = 83 \text{ nm}$ et $T_c = 7,2 \text{ K}$. Donc $\xi(4,3K) = 136 \text{ nm}$ et $\xi_{eff}(4,3K) \cong 0,855 \sqrt{\xi(4,3K)l_e/|\tau|} \cong 43 \text{ nm}$. Quant à la longueur de London : $\lambda_{eff}(4,3K) \cong 2 \lambda_0^2 \xi_{eff}(4,3K)/(1,33 l_e^2) \cong 1,35 \mu\text{m}$.

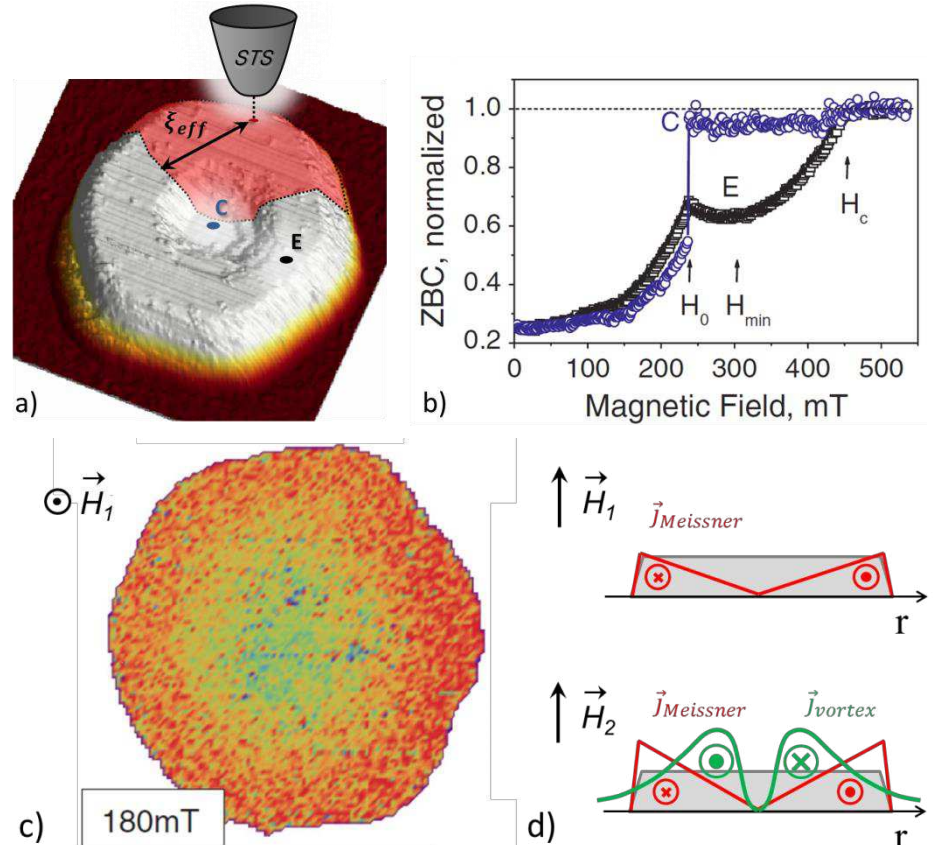


Figure 1.0.1 : a. Carte topographique d'un îlot de Pb/Si(111). ($150 \times 150 \text{ nm}^2$, échelle z : 0 à 5,5 nm). b. Courbes de conductance à tension nulle (ZBC pour Zero Bias Conductance) mesurées aux points E et C sur l'îlot. c. Carte spectroscopique à tension nulle et sous champ magnétique. d. Schéma d'une coupe XZ de l'îlot (gris). Les deux couleurs codent chacun des deux termes de la deuxième équation de Ginzburg-Landau : $\vec{j}(\vec{r}) = +\frac{2e}{m^*} |\Psi|^2 \hbar \vec{\nabla} \varphi(\vec{r}) - \frac{2e}{m^*} |\Psi|^2 2e \vec{A}(\vec{r})$, $\vec{j}(\vec{r})$ est la densité locale de courant. [Cren 2009]

La courbe de conductance (ZBC, figure 1.4.1.b) représente la conductance au niveau de Fermi en fonction du champ magnétique mesurée au point C au centre de l'îlot et en un point E au bord. La courbe au point E ressemble de près à la courbe théorique E(H) (figure 1.2.1 chapitre I). Les expériences étant réalisées à 4,3 K, le spectre supraconducteur tunnel présente à cette température une conductance de l'îlot non nulle au niveau de Fermi due à l'élargissement thermique (chapitre II). Lorsqu'on augmente le champ magnétique, une première discontinuité a lieu à 235 mT, en deçà le condensat est dans la phase Meissner. La conductance traduisant l'énergie locale du système augmente avec le champ au bord de l'îlot et forme une parabole ce qui est dû à la dépendance quadratique de la densité de courants Meissner avec le champ, à l'énergie thermique près (chapitre I). La conductance augmente aussi aux bords : la densité d'état tunnel mesurée correspond à celle des paires de Cooper mesurée sur un rayon ξ_{eff} près qui n'est rien d'autre que leur taille. Comme la taille de l'îlot est très petite ($D \sim 3\xi_{eff}$), on mesure au centre aussi l'énergie cinétique des paires de Cooper du bord (aire rouge figure 1.0.1.a), bien que la densité de courant Meissner soit proportionnelle au rayon et qu'elle s'annule en théorie au centre (chapitre I).

Au-delà de 235 mT, la conductance normalisée vaut 1 sur la courbe C : le vortex positionné au centre a un cœur dans l'état normal. La conductance au bord E suit quant à elle la forme d'une parabole. Elle atteint la valeur de la conductance normale à 500 mT : c'est le champ critique de transition vers l'état normal. La parabole admet un minimum à 300 mT : les courants du vortex compense au mieux l'effet Meissner, l'état de vortex est stable et réversible en champ autour de cette valeur. Entre 235 mT et 300 mT, l'énergie cinétique du vortex indépendante du champ domine dans le terme d'énergie cinétique totale. Entre 300 mT et 500 mT, l'énergie cinétique est due à l'effet Meissner croissant.

Le profil théorique du vortex géant a une largeur de $2\sqrt{L}\xi_{eff}$ (équation 1.2.7 chapitre I) soit 120 nm pour $L = 2$. Le diamètre étant de 110 nm, les dimensions latérales de l'îlot sont trop petites pour accueillir un vortex géant.

Des travaux montrent que des nanostructures de plomb sur silicium (111) d'épaisseur 9MC ($\sim 2,6$ nm) ne peuvent pas accepter de vortex pour des dimensions inférieures à $1,3 \xi_{eff}$ à 2 K ($\xi_{eff}(2K) \cong 32 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm} \rightarrow \xi_{eff}(2K) \cong 26 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$) (figure 1.0.2) [Nihio 2008].

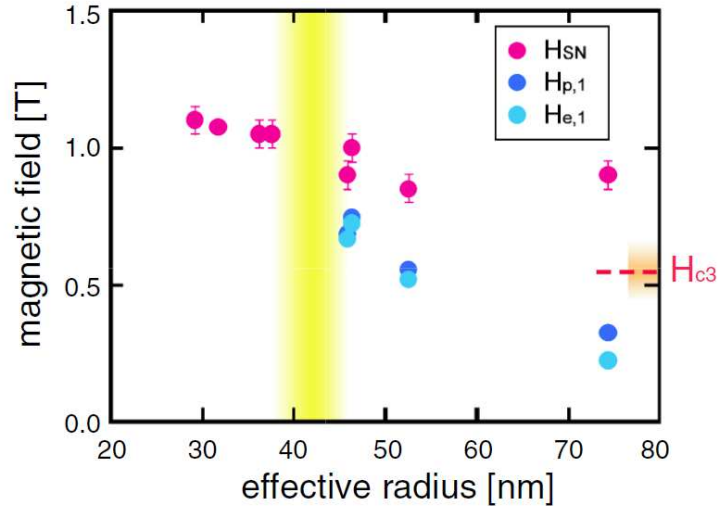


Figure 1.0.2 : Graphe expérimental représentant les champs critiques de transition vers l'état normal, d'entrée et de sortie du premier vortex en fonction de la taille des îlots. La ligne jaune délimite le rayon minimal empirique en dessous duquel aucun vortex ne pénètre dans l'îlot [Nishio 2008].

1.1. La mare de vortex

L'îlot dont la topographie est présentée en figure 1.1.1 et que l'on nommera Loup est sélectionné pour ses caractéristiques adéquates : largeur D équivalant à quelques longueurs de cohérence effectives ($D = 180 \text{ nm} \cong 6 \xi_{eff}$) pour une épaisseur bien inférieure ($d = 2,9 \text{ nm} \cong 0,1 \xi_{eff}$), régularité et symétrie de la forme hexagonale de l'îlot. Des cartes de spectroscopies ont été relevées à différentes valeurs du champ magnétique (figure 1.1.2). Elles couvrent quasiment toute la surface de l'îlot mais les bords n'ont pas été scannés pour augmenter la résolution spatiale et en énergie, et pour ne pas détériorer l'îlot ni la pointe.

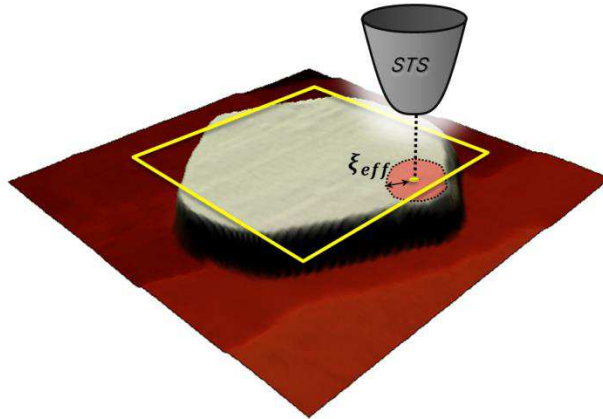


Figure 1.1.1 : Carte topographique de l'îlot Loup. Le cadre jaune délimite la zone de spectroscopie de la figure 1.2 et le point jaune celle de la figure 1.1.5. ($330 \times 330 \text{ nm}^2$, $0,091 \text{ nA}$, $28,1 \text{ mV}$, échelle z : $3,3 \text{ nm}$).

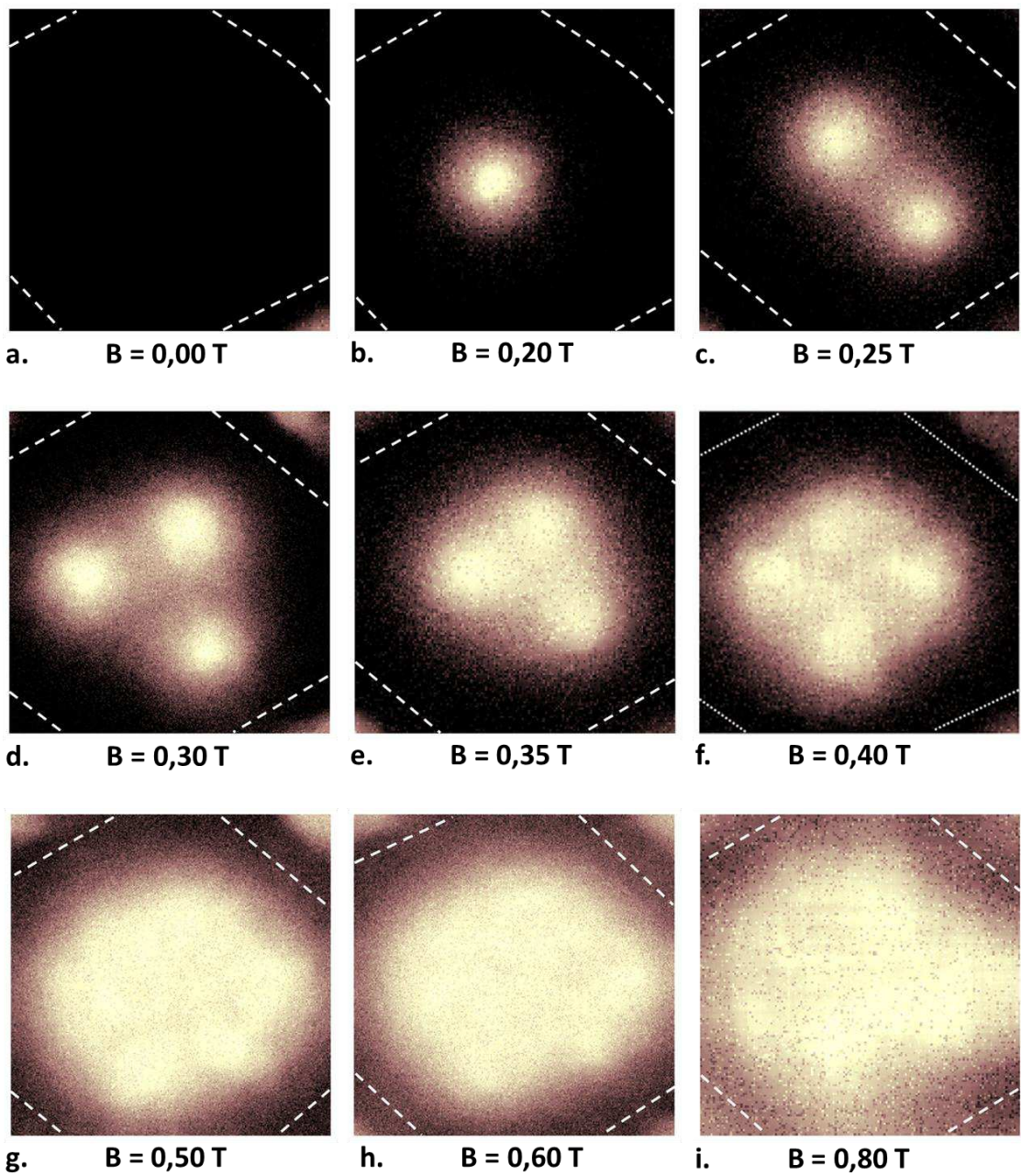


Figure 1.1.2 : Cartes spectroscopiques en représentation CFermi sous champ magnétique de l'îlot Loup (figure 1.1.1). Les bords de l'îlot sont indiqués en pointillés blancs. ($174 \times 174 \text{ nm}^2$).

Positions des vortex dans l'îlot

A champ nul, la carte **a** est entièrement noire, la densité d'états est celle d'un supraconducteur dans l'état fondamental avec un effet de proximité en plus (chapitre IV). Lorsque le champ magnétique augmente, un premier vortex pénètre dans l'îlot. Son cœur correspond à la zone blanche au centre de la carte **b**. Sur la carte **c** à 0,25 T, deux vortex apparaissent au centre de l'îlot espacés de 66 nm. On remarque ainsi que les deux vortex sont tous deux plus proches du centre de l'îlot que des bords. En effet, ils se placent de telle sorte à réduire les courants Meissner qui circulent à la périphérie de l'îlot. Comme les courants de vortex circulent dans le sens opposé aux courants Meissner, les paires de Cooper ont leurs vitesses locales réduites si elles sont soumises aux deux effets en chaque point (figure 1.0.1). Le condensat a donc tout intérêt à superposer vectoriellement les deux types de courant. En plaçant les vortex au centre, les lignes de courants à la périphérie du paquet de vortex se recouvrent presque parfaitement avec les lignes de courants Meissner (figure 1.1.3).

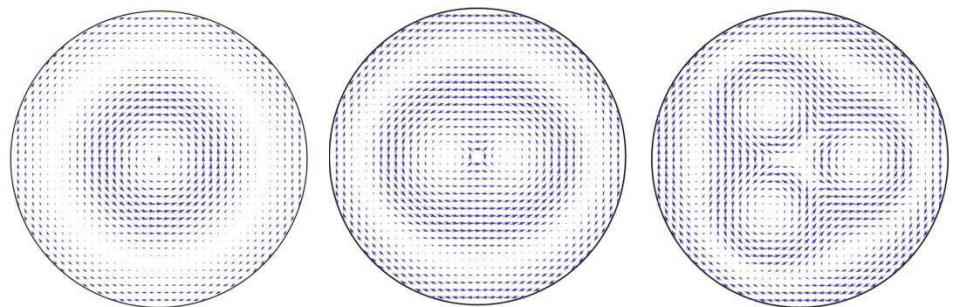


Figure 1.1.3 : Cartes de ligne de courants dans un disque en présence de vortex et sous champ magnétique perpendiculaire au plan, avec respectivement $L = 1$, $L = 2$ et $L = 3$. La direction des flèches correspond à celle des courants, et leur taille à l'amplitude des courants.

Sur la carte **d** à 0,30 T, trois vortex sont rentrés dans l'îlot et se disposent en triangle au centre. Quand on augmente le champ de 0,30 T à 0,35 T, aucun vortex ne pénètre à nouveau (carte **e**). Les trois vortex se sont cependant déplacés : ils se sont rapprochés les uns des autres. L'interaction entre vortex est pourtant répulsive; il est donc très surprenant de prime abord de les voir se rapprocher. Il faut considérer les effets de bord pour expliquer cette attraction apparente en champ : la densité de courants Meissner augmente proportionnellement avec le champ appliqué, $j_{Meissner} \propto B$. Comme les courants de vortex ne dépendent pas du champ au premier ordre, les vortex doivent changer de position pour compenser au mieux l'effet Meissner croissant. Les vortex sont ainsi repoussés vers le centre de l'îlot.

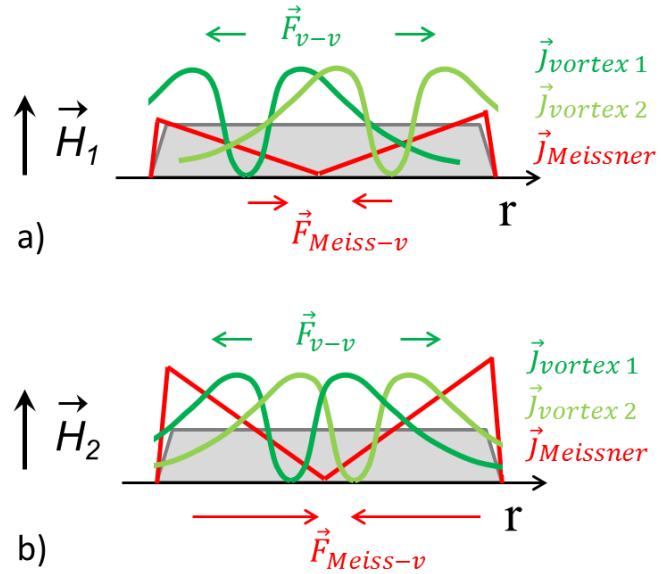


Figure 1.1.4 : Les courants Meissner ($J_{Meissner}$) et de vortex (J_{vortex}) déduits de la deuxième équation de Ginzburg-Landau sont représentés superposés sur une coupe d'un filot idéal. Avec l'augmentation du champ magnétique appliqué ($H_1 < H_2$), la densité de courant Meissner augmente mais pas celle des vortex. Pour réduire les courants sur l'ensemble de l'filot, les vortex se rapprochent donc du centre l'filot. Les courants Meissner exercent ainsi l'équivalent d'une force \vec{F}_{M-v} concentrant les vortex vers le centre de l'filot, tandis que les vortex se repoussent selon la force \vec{F}_{v-v} .

La distance la plus petite entre les trois cœurs de vortex présents dans l'filot à 0,35 T est contre toute attente inférieure à la distance minimale autorisée dans le réseau d'Abrikosov au champ critique de transition : $d_{v-v,min} = 42 \text{ nm} \approx 1,4 \xi_{eff}$ alors que $d_{Abrikosov}(B_{c2}) \approx 2,8 \xi_{eff} \sim 84 \text{ nm}$. L'effet est d'autant plus remarquable que pour les supraconducteurs en couche mince la répulsion entre cœur de vortex est à plus longue portée que dans les supraconducteurs macroscopiques (chapitre I).

Le champ critique H_{c2} étant défini comme le champ critique de transition d'un système macroscopique une fois la distance d'Abrikosov atteinte, il perd tout son sens dans de si petits systèmes.

A 0,40 T, le réseau formé par les quatre vortex est carré (carte f). On s'attend à ce que si un cinquième vortex pénètre à plus fort champ, celui-ci vienne compléter l'anneau à cinq vortex comme décrit par les calculs de Moshchalkov et al, figure 2 du chapitre Introduction [Moshchalkov 2011]. Mais à 0,50 T les vortex ne se distinguent pas les uns des autres (carte g). Plus la vorticit e augmente, moins les vortex sont visibles (cartes h et i) [Ning 2009]. Cette m elasse de vortex est entour ee d'une couronne supraconductrice qui s'apparente  a la supraconductivit e de surface. Bien qu'on ne distingue pas de vortex r egulier circulaire, des inhomog enit es subsistent, on voit notamment se dessiner cinq ou six ronds  a la p eriph erie de la zone normale, ce qui exclut la pr esence d'un vortex g eant.

Le champ critique de transition dans le cas d'une supraconductivité de surface calculé à partir de la longueur de cohérence effective vaudrait : $H_{c3} \sim 0,5 T$ (équation 1.1.17 chapitre I). Pourtant le système est toujours supraconducteur à 1 T. Il ne suffit donc pas de considérer uniquement la supraconductivité de surface usuelle dans des systèmes pour lesquels les dimensions latérales sont bien inférieures à la longueur de London. On en conclut que les effets de bords jouent un rôle crucial sur la supraconductivité pour des valeurs aussi élevées du champ magnétique. Pour des confinements ultimes, le champ critique de transition H_t dépend fortement du paramètre de Landau $\kappa = \lambda_{eff}/\xi_{eff}$ et du ratio D/λ_{eff} .

Mesure de la vorticit 

Pour conna tre la quantit  de vortex accept s dans l' lot, on mesure en un point les spectres en fonction du champ magn tique. La conductance mesur e au niveau des c urs de vortex  gale celle de l' tat normal. Pour mesurer l'entr e successive de plusieurs vortex sous champ croissant, la mesure doit donc  tre faite   la p riph rie de l' lot, l  o  aucun vortex ne se positionne. Les courbes de conductance en fonction du champ magn tique et int gr e dans le gap $C_{Gap}(H)$ ou au niveau de Fermi $C_{Fermi}(H)$ sont pr sent es en figure 1.1.5.

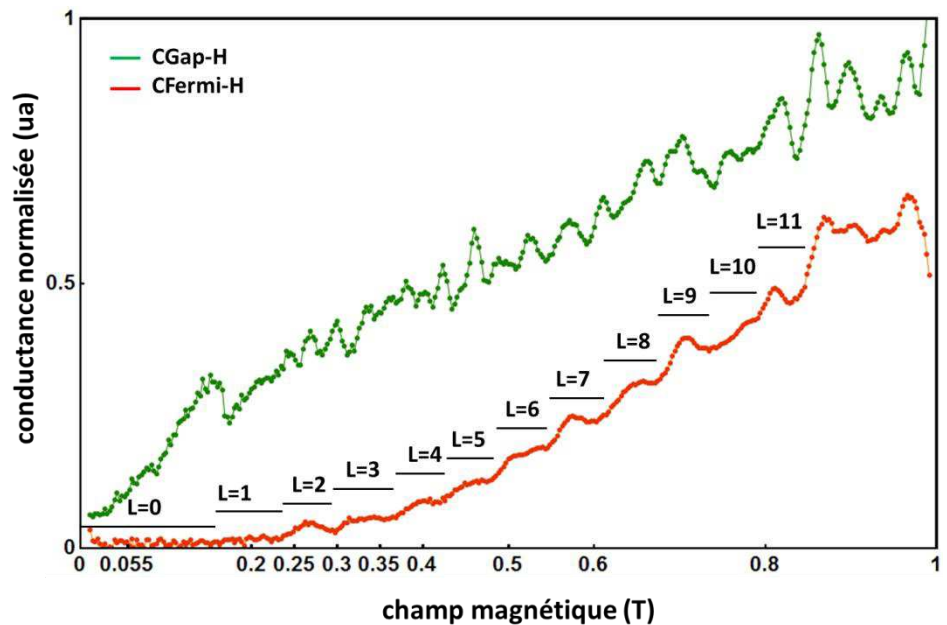


Figure 1.1.5 : courbes $C_{Fermi}(H)$ et $C_{Gap}(H)$ mesur es au bord de l' lot. La vorticit  L d duite de l'allure des courbes est indiqu e au-dessus de chaque plateau.

Comme la taille des paires de Cooper est de l'ordre ξ_{eff} , on mesure le spectre tunnel supraconducteur moyen sur un rayon de ξ_{eff} (aire rouge figure 1.1.1). La conductance tunnel locale   tension nulle, C_{Fermi} , est

donc sensible au paramètre d'ordre détruit dans l'ensemble de l'îlot, en l'occurrence au cœur des vortex, pour des îlots dont le diamètre vaut quelques ξ_{eff} . La courbe CFermi(H) permet ainsi de connaître les entrées de vortex sous champ magnétique. Le nombre de paires brisées entre chaque entrée de vortex restant constant, la courbe CFermi-H présente idéalement des marches de même hauteur (courbe rouge). Les marches à faible vorticit   apparaissent plus petites car la pointe de d  tectent que les quasiparticules contenues dans le diam  tre $2\xi_{eff}$ or l'  lot a un diam  tre sup  rieur    cette valeur.

On remarque que la largeur des plateaux n'est pas la m  me pour toutes les vorticit  s : elle d  cro  t tout d'abord    bas champ, $B < 0,3 T$, puis elle augmente    plus fort champ. Comme les vortex entrant ne peuvent pas se mettre tous au centre, point de compensation id  ale de l'effet Meissner pour un   lot    peu pr  s circulaire, l'effet Meissner est moins bien compens   pour des vorticit  s basses (ici $L < 4$). Les premiers vortex entrent donc pour des valeurs de champ de plus en plus resserr  es. A plus forte densit  , les vortex compensent au contraire mieux l'effet Meissner car la m  lasse qu'ils forment   pouse la forme circulaire de l'  lot. L'effet inverse est donc observ      plus forte vorticit   (ici, $L > 4$). L'entr  e en champ du $n^{i  me}$ vortex avoisine cependant la valeur telle que le flux total vaille environs n fois le quantum de flux, $\Phi \cong n \Phi_0$.

A la diff  rence de l'  lot    un vortex (figure 1.0.1), le rayon de l'  lot loup est sup  rieur    ξ_{eff} . La courbe CFermi n'est donc pas sensible    l'entr  e du premier vortex qui se place au centre de l'  lot,    une distance sup  rieure    ξ_{eff} de la pointe. Les courants Meissner   tant quant    eux fortement compens  s, la courbe CGap pr  sente un saut brutal. A plus haute vorticit  , m  me si les vortex entrants se positionnent    l'extr  mit   de l'  lot vis-  -vis de la position de la pointe, celle-ci d  tecte leur pr  sence via le repoussement des vortex pr  sents dans un rayon ξ_{eff} . Le d  compte de la vorticit   en fonction du champ magn  tique est alors d  duit des deux courbes conjointement (figure 1.1.5). On identifie clairement 11 vorticit  s. Les cartes spectroscopiques ont   t   prises au champ magn  tique correspondant aux diff  rentes vorticit  s $L = 0, 1, 2, 3, 3, 4, 6, 8$ et 11.

Tout comme la courbe th  orique $E(H)$ (figure 1.2.1 chapitre I), la courbe CGap(H) comprend une augmentation progressive de la conductance avec le champ, une forme parabolique due    l'  nergie cin  tique Meissner    vorticit   nulle $L = 0$, et un affaissement de la conductance    l'entr  e du premier vortex $L = 0 \Rightarrow L = 1$ (courbe verte). A plus fort champ, les paraboles ne sont plus visibles : il est possible que les vortex changent de place.

Avec l'étude de ce premier système, on montre que l'effet Meissner permet aux vortex de s'approcher davantage entre eux que la limite d'Abrikosov ne le permet dans un système macroscopique. On observe alors que les vortex s'interpénètrent et sont entourés d'une supraconductivité de surface. On peut considérer cette mélasse comme une phase à part entière que j'appelle la 'mare de vortex' dans le diagramme des organisations de vortex confinés. Est-il possible de créer un vortex géant en confinant davantage cette mélasse de vortex ?

1.2. Le vortex géant

Nous venons de voir trois vortex se rapprocher dans l'îlot Loup, mais le confinement n'était pas assez fort pour qu'ils fusionnent en un vortex géant. On choisit donc des îlots de dimensions latérales plus petites. Ceux de la figure 1.2.2 sont assez bien facettés et de forme régulière. Leurs caractéristiques géométriques sont présentées dans le tableau ci-dessous (figure 1.2.1).

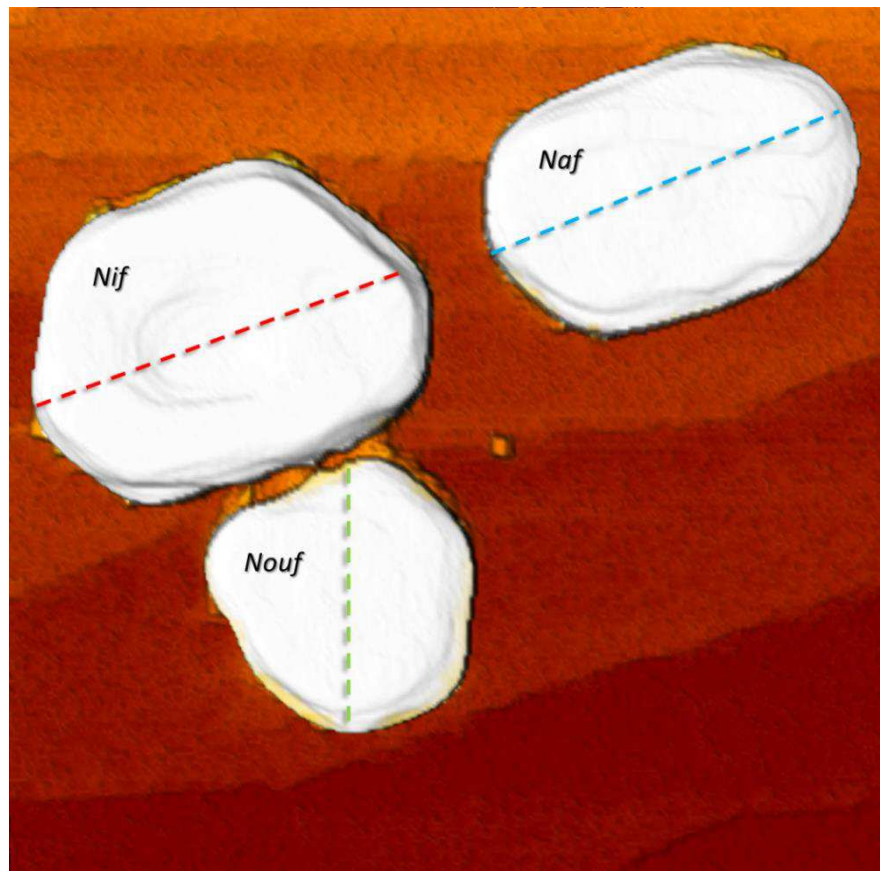


Figure 1.2.0 : Carte topographique des trois îlots Nif, Naf et Nouf. En pointillés sont tracées les lignes des spectroscopies présentées en figure 1.2.5, 1.2.6 et 1.2.7. (355x355 nm², 25,4 mV, 0,078 nA, échelle z : 0 à 3,2 nm)

	hauteur (nm)	largeur (nm)	forme
<i>Nif</i>	2,8 (~10 MC)	140 (~ 4,5 ξ_{eff})	quasi hexagonale
<i>Naf</i>	2,3 (~8 MC)	80-130 (~ 2,5-4,5 ξ_{eff})	allongé
<i>Nouf</i>	2,3 (~8 MC)	80 (~ 2,5 ξ_{eff})	hexagonale

Figure 1.2.1 : Tableau des caractéristiques géométriques des îlots Nif, Naf et Nouf.

Cartes spectroscopiques sous champ magnétique

Des cartes spectroscopiques à champ magnétique fixe ont été mesurées simultanément pour les trois îlots (figure 1.2.4). Pour chacune des cartes, la conductance est intégrée dans le gap, $CGap$, afin de visualiser les courants Meissner et les cœurs de vortex.

La figure 1.2.2 présentent les spectres caractéristiques extraits de ces cartes spectroscopiques : celui des îlots dans l'état supraconducteur ($H_a = 0$), celui des îlots dans l'état normal ($H_a = 1,8 T$) et celui dans la couche de mouillage (relevé à une distance supérieure à 50 nm des îlots).

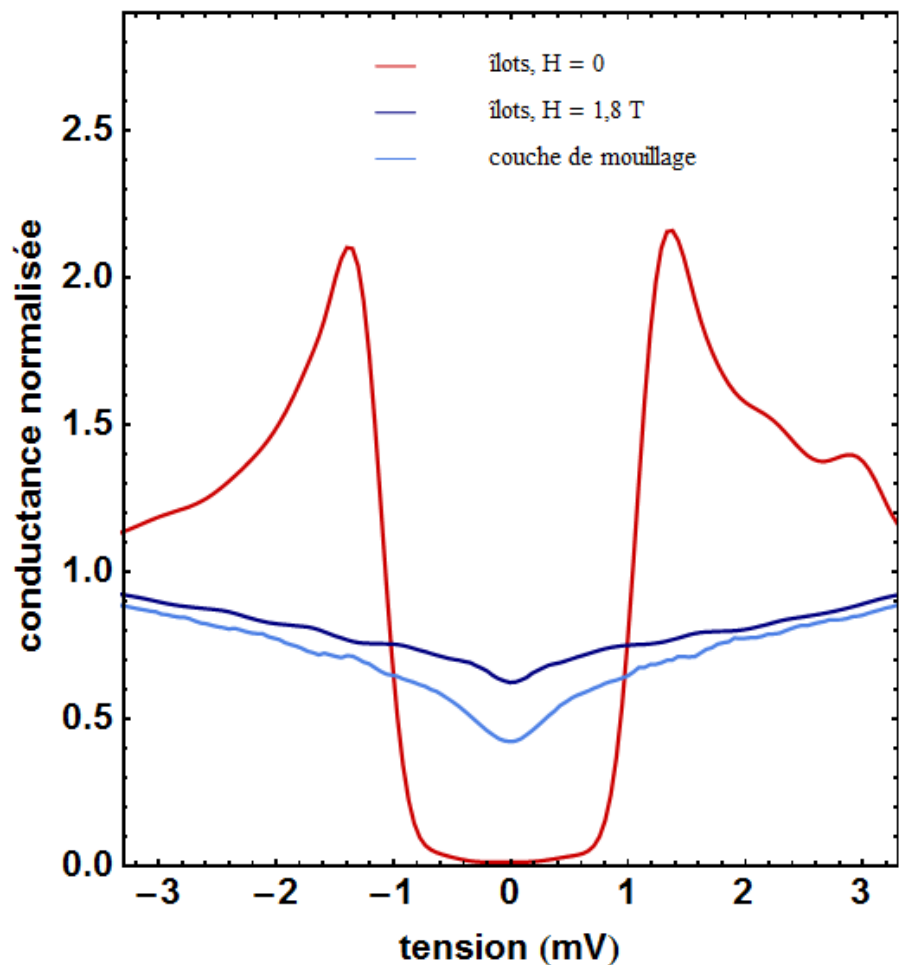


Figure 1.2.2 : Spectres caractéristiques des trois îlots et de la couche de mouillage les entourant. Les spectres des îlots est une moyenne des spectres mesurés sur Nif, Naf et Nouf. Celui de la couche de mouillage est identique quelque soit le champ appliqué.

Sur la première carte **a** à champ nul de la figure 1.2.4, les trois îlots sont dans l'état fondamental supraconducteur et apparaissent entièrement rouges. Sur la carte **b** à 0,2 T, l'îlot Nif est plus jaune que les deux autres îlots. Les courants Meissner y sont donc plus élevés. Comme la densité de courant croît linéairement avec la distance au centre dans un disque (chapitre I), plus un îlot est large, plus les courants Meissner sont élevés aux bords (figure 1.2.3). L'îlot le plus large, Nif, crée donc des vortex à des valeurs de champ magnétique plus faibles que les deux autres. C'est ce que confirme la carte **c** à 0,4 T.

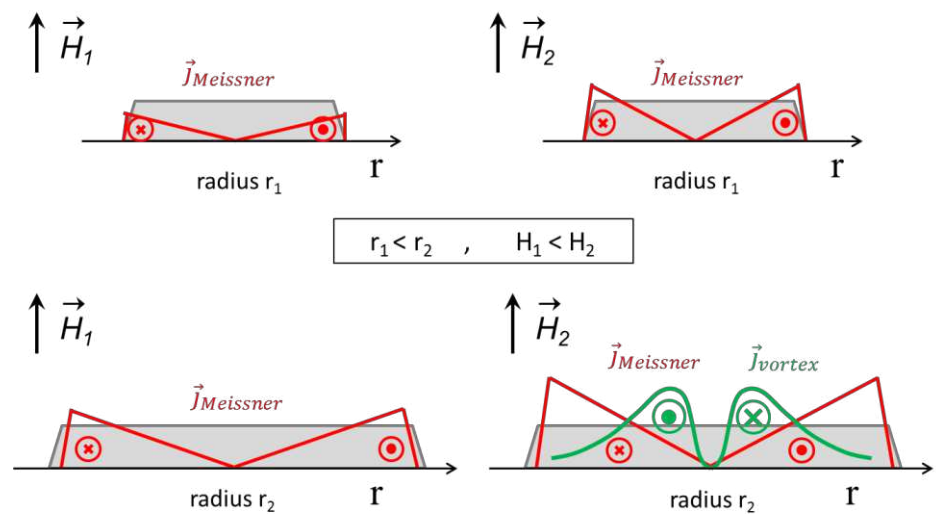


Figure 1.2.3 : Schémas du profil de deux îlots idéaux de différents rayons et de la densité de courant Meissner et de vortex sous champ magnétique.

Comme nous venons de le voir avec l'îlot Loup, les cartes spectroscopiques effectuées sur les trois îlots Nif, Naf et Nouf ne suffisent pas à déterminer la vorticité dans chacun des îlots. Il faut une mesure complémentaire. Afin de différencier le vortex géant de la mare de vortex en plus de connaître les changements de vorticité avec le champ magnétique, des spectres ont été enregistrés non pas en un seul point au bord de chaque îlot comme décrit en section 1.1 mais le long d'une ligne en travers de chaque îlot (figure 1.2.0). L'information supplémentaire recherchée est alors l'évolution du profil du vortex en fonction de la vorticité. Les cartes de conductance à tension nulle, en CFermi, sont tracées en figure 1.2.5.c (Nouf) 1.2.6.c (Nif) et 1.2.7.c (Naf). Cette représentation a été choisie afin de comparer les profils de vortex avec les équations 1.2.1 et 1.2.2. La couleur code l'intensité de la conductance, l'axe des ordonnées suit l'augmentation du champ magnétique et l'axe des abscisses correspond à la position x sur la ligne. Le profil moyen pour chaque vorticité L est présenté en figures 1.2.5.c, 1.2.6.c et 1.2.7.c.

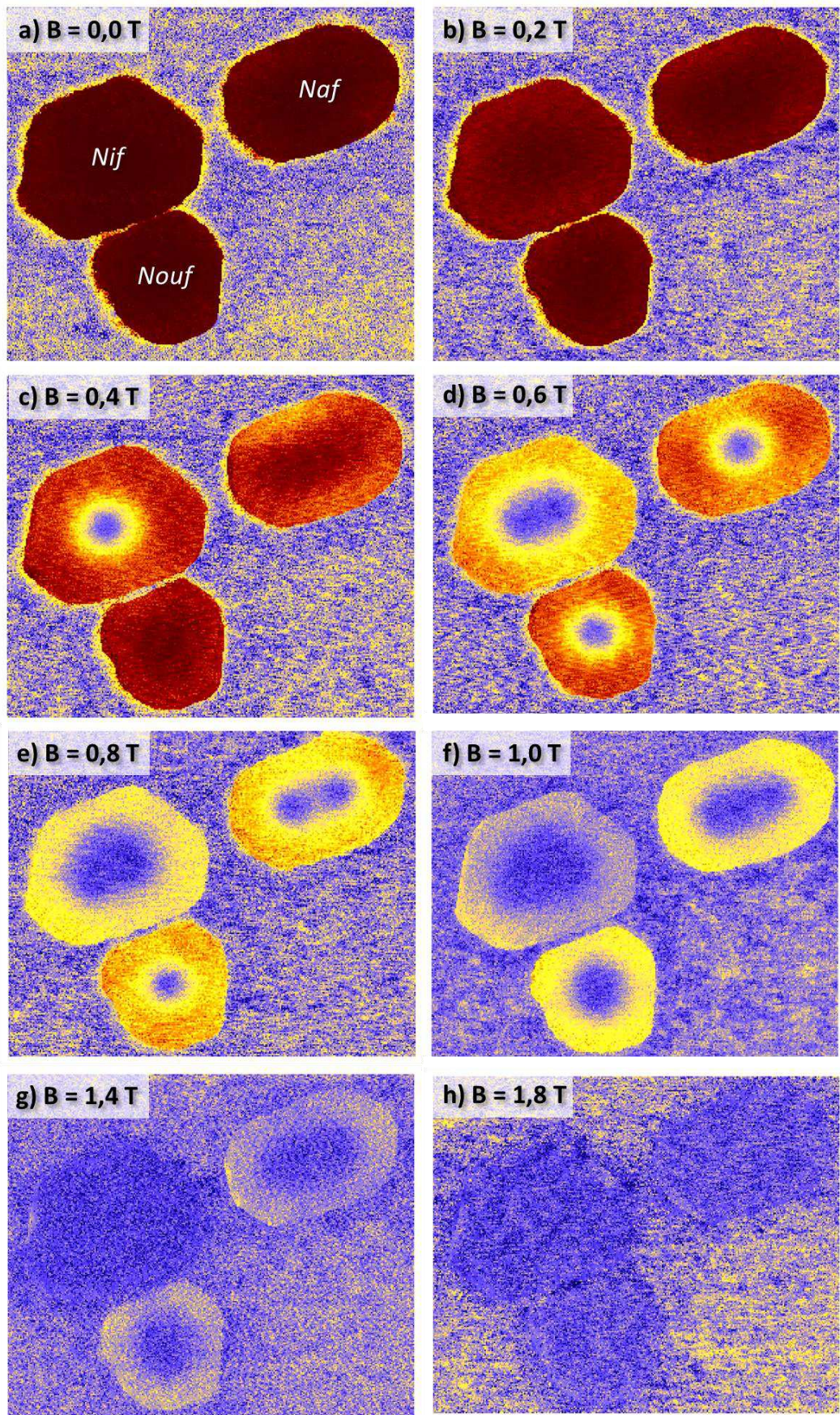


Figure 1.2.4 : Cartes spectroscopiques CGap sous champ magnétique des îlots Nif, Naf et Nouf. (figure 1.2.0). ($355 \times 355 \text{ nm}^2$)

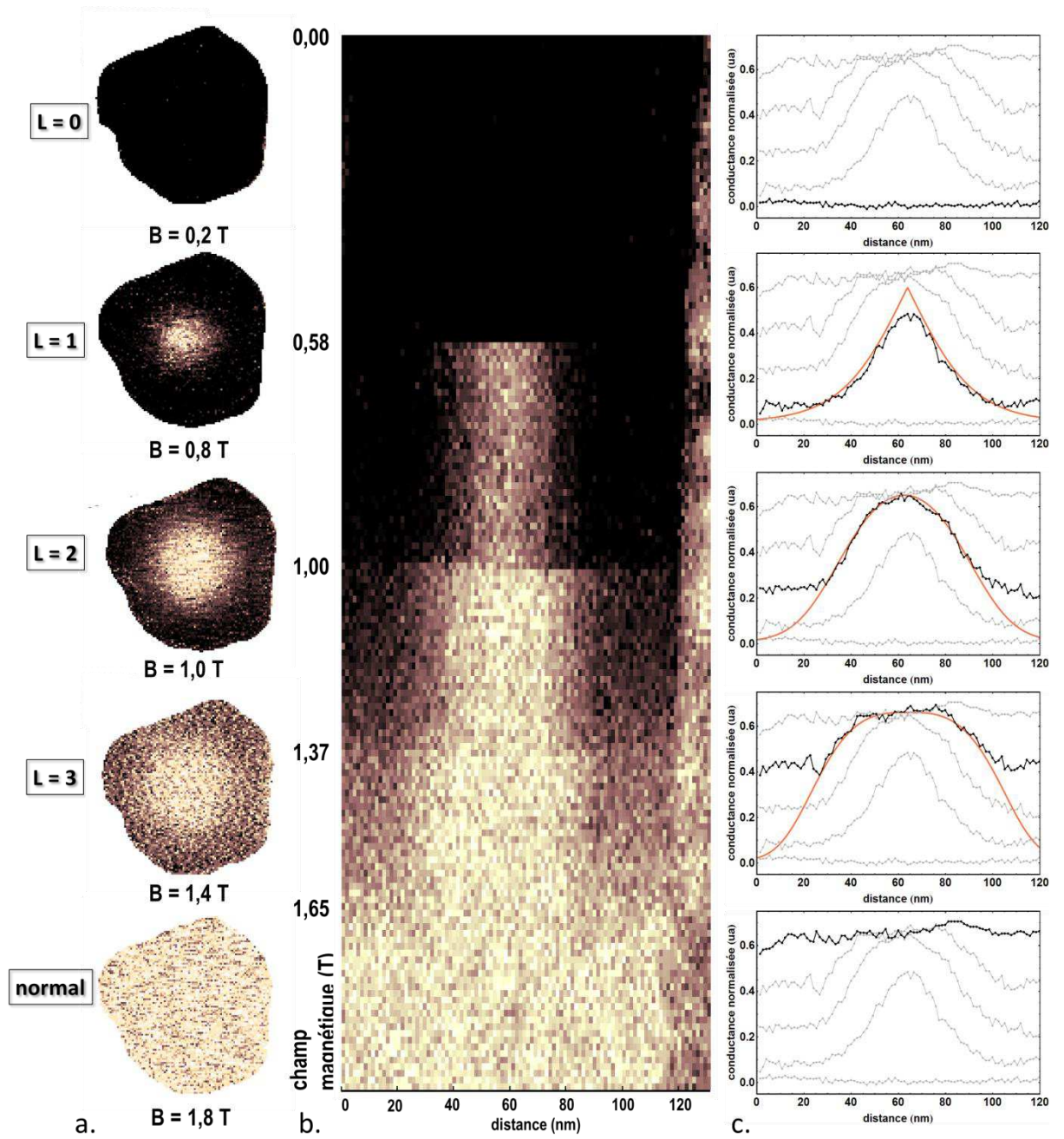


Figure 1.2.5 : Nouf. a. Cartes spectroscopiques du vortex géant à différentes valeurs du champ magnétique. b. Carte spectroscopique en ligne en augmentant le champ magnétique de 0 à 2 T. La ligne suivie est indiquée par le tracé vert en figure 1.2.0. (133 nm). c. Profils de conductance extraits de la carte b. Les profils de conductance sont extraits de la carte b pour chaque vorticit , les profils th oriques du vortex g ant sont repr sent s en rouge ( quation 1.2.2).

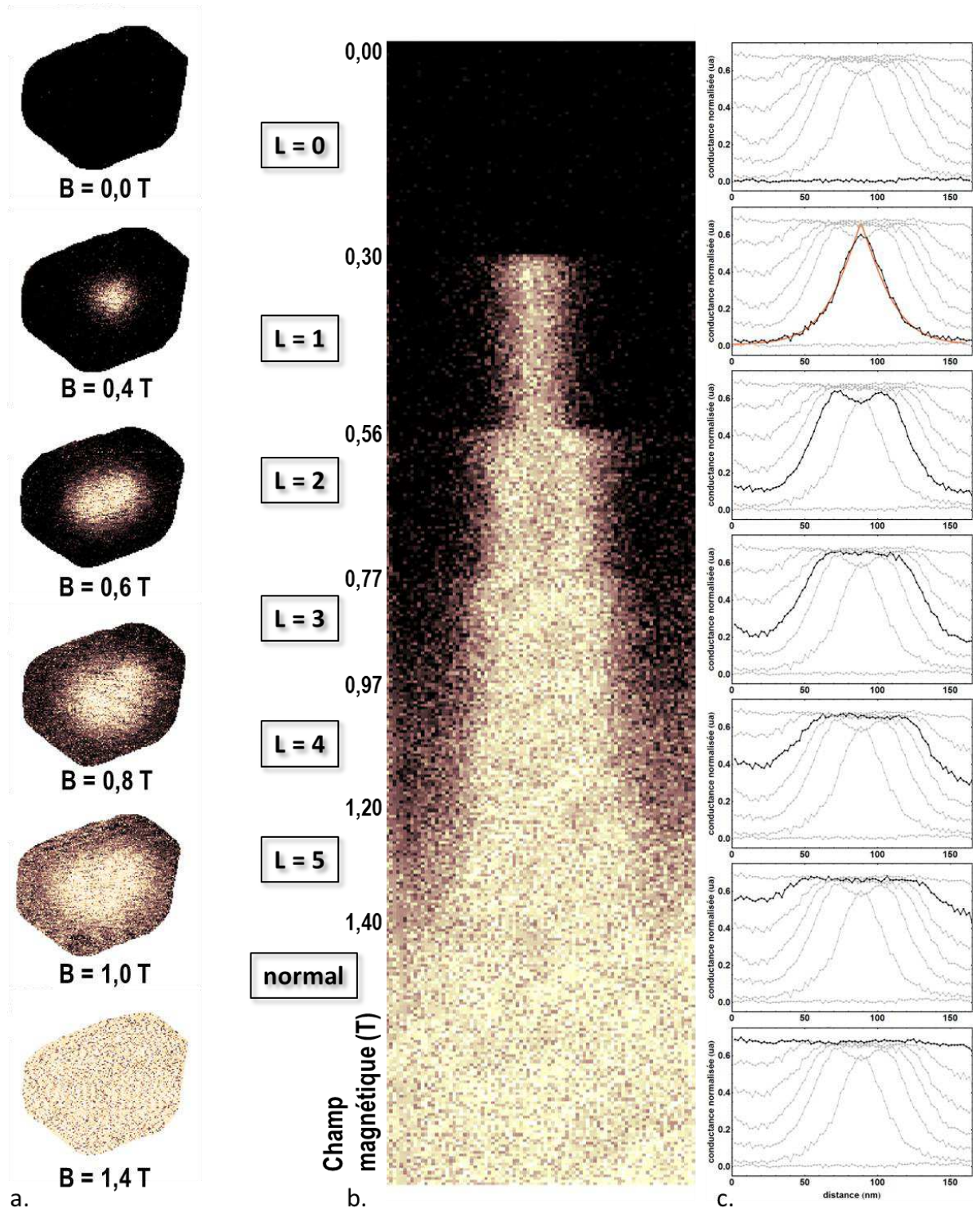


Figure 1.2.6 : Nif. **a.** Cartes spectroscopiques à différentes valeurs du champ magnétique. **b.** Carte spectroscopique en ligne en augmentant le champ magnétique de 0 à 2 T. La ligne suivie est indiquée par le tracé rouge en figure 1.2.0 (200 nm). **c.** Les profils de conductance sont extraits de la carte **b** pour chaque vorticité, le profil théorique du vortex unique est représentée en rouge pour la vorticité $L = 1$ (équation 1.2.1).

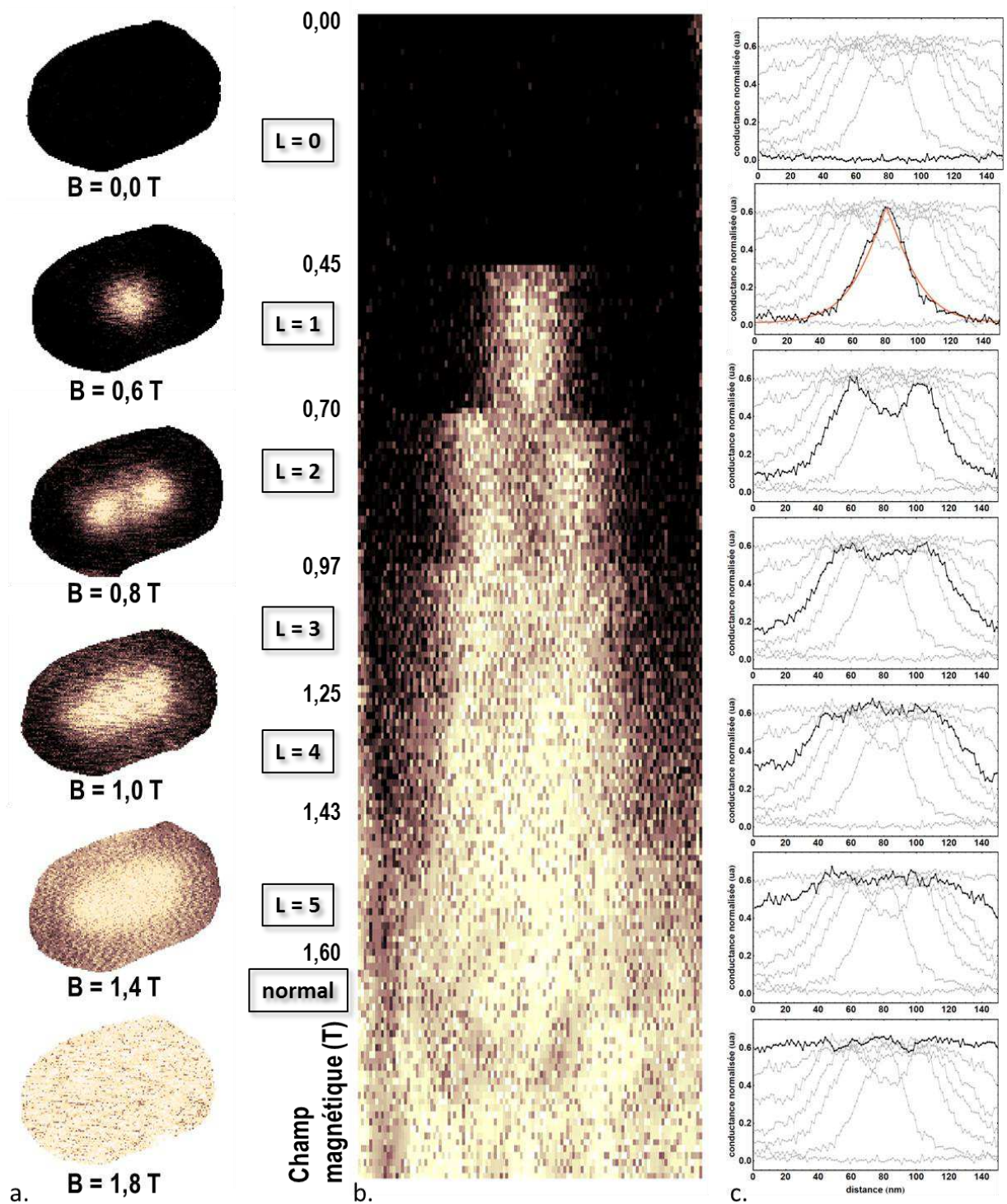


Figure 1.2.7 : Naf. **a.** Cartes spectroscopiques à différentes valeurs du champ magnétique. **b.** Carte spectroscopique en ligne en augmentant le champ magnétique de 0 à 2 T. La ligne suivie est indiquée par le tracé bleu en figure 1.2.0 (185 nm). **c.** Les profils de conductance sont extraits de la carte **b** pour chaque vorticit , le profil th orique du vortex unique est repr sent e en rouge pour la vorticit  $L = 1$ ( quation 2.1.1).

L'îlot Nouf

L'îlot Nouf est dans un régime intermédiaire entre la situation de la boîte à un vortex présenté en introduction [Cren 2009] et celle de l'îlot Loup à plusieurs vortex (chacun portant un quantum de fluxoïd) présenté en section 1. Il est donc un candidat potentiel au vortex géant. A 0 T, l'îlot est entièrement noir, le condensat supraconducteur est dans l'état fondamental $L = 0$ (figure 1.2.5). A 0.8 T, l'îlot présente un vortex de vorticité $L = 1$. Les cartes spectroscopiques à 1,0 T et 1,4 T ne font apparaître qu'un seul objet circulaire au centre de l'îlot pour des vorticités respectives $L = 2$ et $L = 3$. A la différence des résultats de la mare de vortex présentés en section 1.1, le vortex ne présente pas d'inhomogénéité spatiale et sa largeur augmente avec la vorticité. La zone claire où le gap se ferme est bien ronde, et pourtant la vorticité extraite de la carte 1.2.5.b est $L = 2$ puis 3. Il doit s'agir d'un vortex géant.

Le profil du vortex $L = 1$ présente un état de cœur normal ce qui confirme que les nanostructures de cette thèse sont dans la limite sale (section 1 chapitre I). Le profil de la conductance à tension nulle peut alors être approché par l'équation empirique 1.2.1.

$$C(r) = C_0 + (1 - C_0) \left(1 - \tanh\left(\frac{r}{\xi_{eff}}\right) \right), \quad C_{norm}(r) = C(r)/C_0$$

Equation 1.2.1 : Asymptote du profil de conductance d'un vortex dans la limite sale [Eskildsen 2002]. r est la distance au cœur, C_0 est la conductance dans l'état normal.

Les profils des vortex $L = 2$ et $L = 3$ sont en forme de cloche. Afin de comparer ces profils à ceux attendus dans le cas d'un vortex géant, la conductance théorique est tracée pour chaque vorticité (équation 1.2.2). Un seul paramètre libre est à ajuster pour chacun : la longueur de cohérence effective ξ_{eff} . Pour les trois vorticités, les profils théoriques et expérimentaux s'ajustent parfaitement, et le paramètre libre obtenu pour chacun est bien le même, $\xi_{eff} = 28 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$. L'ajustement des courbes théoriques avec les profils expérimentaux divergent au centre. La formule utilisée ici est empirique et ne tient pas compte du profil parabolique très près du centre du vortex, mais elle est bonne ailleurs [Eskildsen 2002]. Le profil dans son ensemble peut être calculé plus justement avec l'expression donnée par Silaev et al [Silaev 2013]. La conductance des profils expérimentaux augmente aux bords des îlots car les équations 1.2.1 et 1.2.2 sont calculées pour un vortex isolé, elles ne tiennent pas compte de l'affectation du paramètre d'ordre dû à l'effet Meissner [Zharkov 2001].

$$C(r) = C_0 + (1 - C_0) \left(1 - \tanh \left(\frac{r}{\sqrt{L} \xi_{eff}} \right) \right)^L, \quad C_{norm}(r) = C(r)/C_0$$

Equation 1.2.2 : Asymptote du profil de conductance du vortex géant de vortacité L [Cren 2011]. r est la distance au cœur, C_0 est la conductance dans l'état normal.

Ce résultat est la première observation directe du cœur des vortex géants. Quelle que soit la vortacité, l'amplitude du paramètre d'ordre a une symétrie circulaire autour d'un point unique dans l'état normal. Elle suit au premier ordre une loi de puissance de la vortacité L prédite par Saint James et al en 1969, $\Psi \propto r^L$ [Saint-James 1969].

L'îlot Nif

Pour valider pleinement l'observation du vortex géant, des mesures spectroscopiques ont été relevées sur l'îlot Nif dont les dimensions latérales apparentent cet îlot à l'îlot Loup étudié en section 1.1. La carte en ligne et les profils de vortex sont présentées en figure 1.2.5. Comme attendu, la vortacité est plus élevée lors de la transition dans l'état normal. A $L = 2$, deux objets sont visibles et sont distants de $34 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$. Pour les vorticités supérieures à 2 ($L > 2$), les vortex ne se distinguent pas mais n'ont pas fusionnés en un vortex géant. L'îlot est dans la phase 'mare de vortex'. En effet, le profil à $L = 3$ diffère de celui du vortex géant dans Nouf à même vortacité. Dans le cas présent, il est formé d'un plateau de conductance normale et non d'une forme en cloche. Ce plateau est également présent à $L = 4$ et $L = 5$. On remarque que les bords sont aussi abrupts que ceux du vortex unique : on en déduit qu'il s'agit d'un agrégat de L vortex uniques très serrés. La courbe théorique du vortex géant ne s'ajuste pas à ces profils (équation 1.2.2).

De l'ajustement entre la courbe théorique et le profil expérimental, on en déduit que la longueur de cohérence vaut $\xi_{eff} = 28 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$. La distance entre les deux vortex est donc là encore bien inférieure à la limite macroscopique au champ critique de transition : $d = 1,2 \xi_{eff} < 2,8 \xi_{eff}$.

L'îlot Nif présente une piscine monoatomique, c'est-à-dire un creux d'épaisseur 1MC au centre de l'îlot. Le paramètre d'ordre est le même en tout point de la surface. En effet, des spectres tunnel ont été mesurés sur un îlot de dimensions similaires et montrent que le gap est identique entre les zones de différentes hauteurs (figure 1.2.8).

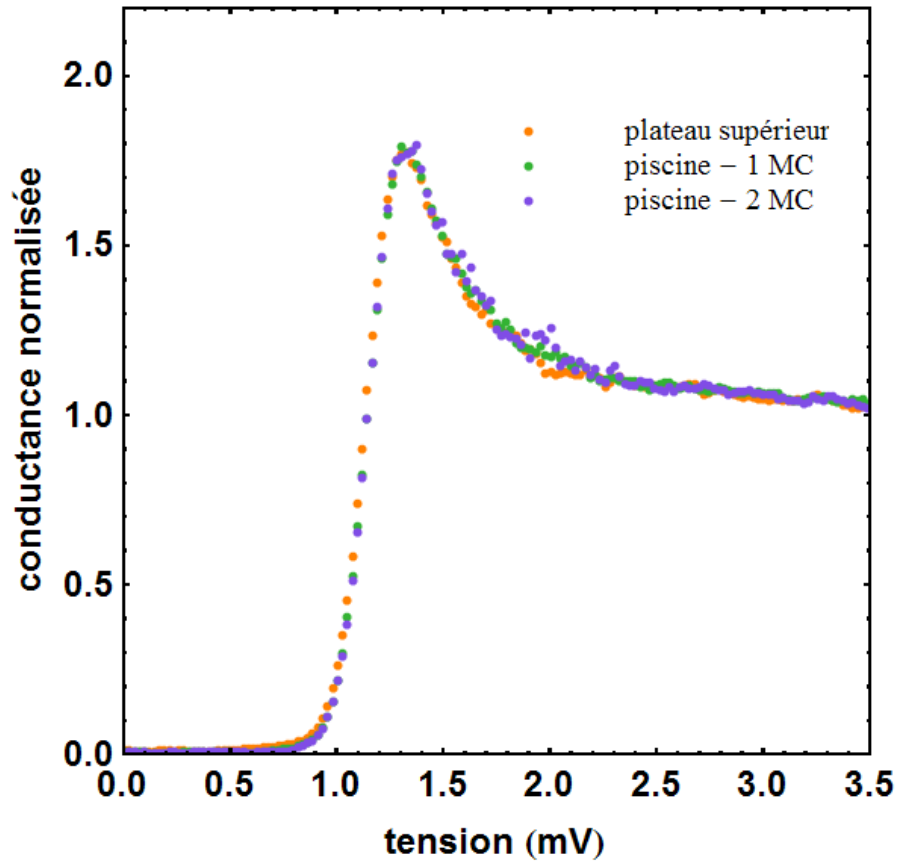


Figure 1.2.8 : Spectres tunnels mesurés sur les différentes terrasses monoatomiques d'une piscine dans un îlot de dimensions similaires à celles de Nif.

L'îlot Naf

Le troisième îlot Naf a la même dimension latérale que l'îlot Nif dans une direction et la même que l'îlot Nouf dans l'autre. Les coupes spectroscopiques en fonction du champ magnétique sont également enregistrées et tracées en figure 1.2.7. Tout comme Nif, le système transite dans l'état normal avec une vorticité $L = 5$. La longueur de cohérence effective déduite de la courbe théorique est $\xi_{eff,Naf} = 26 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm}$. A $L = 2$, on distingue très bien deux vortex. En augmentant le champ dans la phase $L = 2$, les deux vortex distants de $45 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$ à 0,70 T se rapprochent jusqu'à être espacés de $33 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$ à 0,97 T. A 0,97 T, un troisième vortex entre mais on ne distingue plus les vortex les uns des autres, la forme globale épouse celle de l'îlot (carte **f** figure 1.2.4). Le profil associé présente un plateau inhomogène dans l'état normal et des bords aussi abrupts que ceux du vortex à $L = 1$, la phase est celle de la 'mare de vortex'. Le confinement latéral dans une seule direction ne suffit donc pas à favoriser le vortex géant, le confinement doit être fort dans les deux directions du plan.

1.3. Calculs dans la phase multivortex

Les théoriciens Pereira et al ont développé un modèle de calcul basé sur les équations de Ginzburg-Landau. Ils les résolvent pour des systèmes de très petites tailles et de formes quelconques. Ils déduisent ainsi le nombre de vortex et leur position spatiale en fonction du champ magnétique. Pour valider leur méthode, ils l'ont appliquée dans la géométrie de Nif. Je présente dans les paragraphes qui suivent ces résultats théoriques [Pereira 2012].

Pour calculer les vortex dans de telles nanostructures, les théoriciens résolvent tout d'abord les équations de Ginzburg-Landau linéarisées dans un disque. Ils utilisent ensuite les solutions de la distribution spatiale du paramètre d'ordre comme base pour y développer les solutions d'un polygone quelconque. La composante normale des courants doit être nulle aux bords. La jauge choisie est celle pour laquelle la composante normale du potentiel vecteur \mathbf{A} est elle aussi nulle aux bords, $\mathbf{A}|_{bords} = \mathbf{0}$. Cette jauge est dite supraconductrice fixe, ou encore jauge symétrique dans le cas particulier du disque. La figure 1.3.1 présente le potentiel vecteur pour la géométrie de l'îlot Nif.

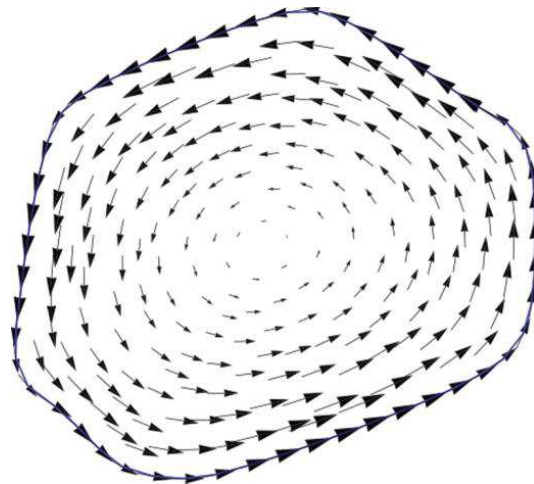


Figure 1.3.1 : Carte de la distribution du potentiel vecteur \mathbf{A} correspondant à un champ magnétique perpendiculaire homogène dans tout l'îlot [Pereira 2012]. Le sens des flèches montre la circulation du potentiel vecteur et leur taille son amplitude. Dans la jauge supraconductrice, elles sont colinéaires aux bords de l'îlot.

Les cartes de la densité d'états supraconductrice simulées reproduisent parfaitement les résultats expérimentaux (figure 1.3.2).

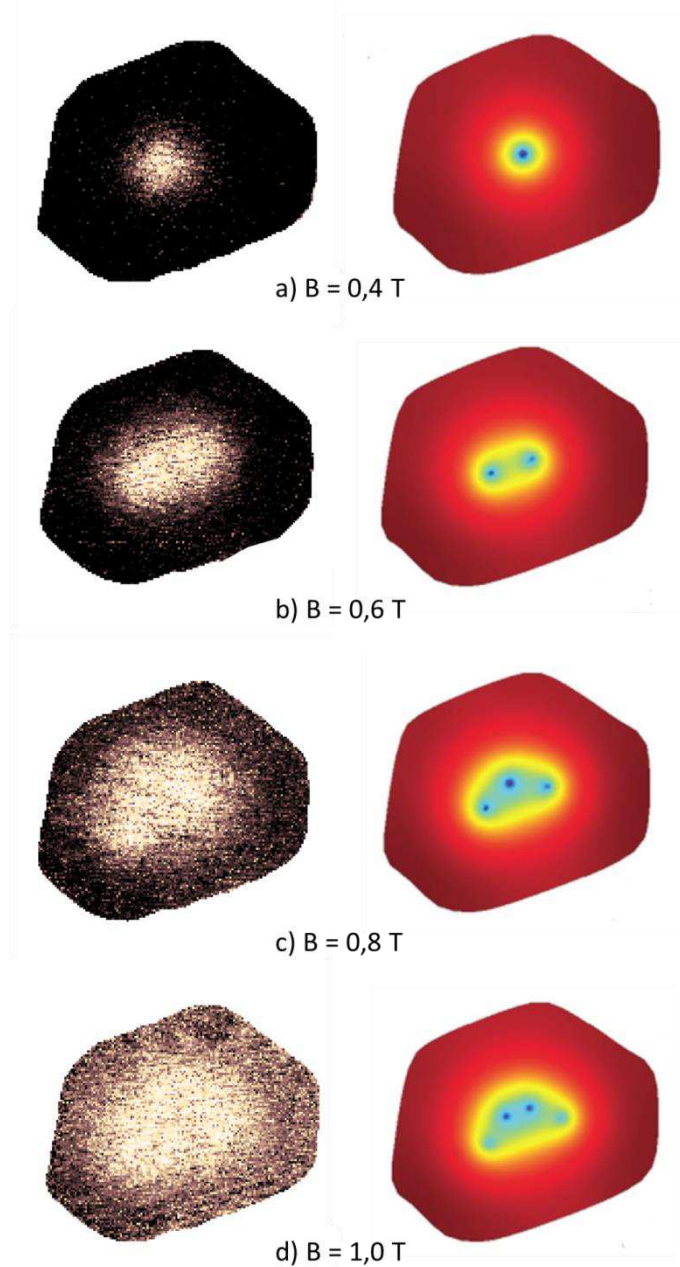


Figure 1.3.2 : Cartes spectroscopiques sous champ magnétique (à gauche) et cartes de la densité d'états électronique calculée par les théoriciens (à droite) [Cren 2010, Pereira 2012].

Il existe cependant une petite différence dans des valeurs d'entrée des vortex en champ magnétique entre l'expérience et les calculs (tableau 1.3.1). Elle est certainement due à une surestimation de la surface de l'îlot par les théoriciens. En effet celle-ci a été extraite des cartes de notre article sans tenir compte d'un effet de pointe double et de l'effet d'ombrage (chapitre III). Si D est le diamètre apparent et d le diamètre réel, pour déduire la surface réelle de la surface mesurée, cette dernière doit être réduite d'un facteur $(1 - d/D)^2$, en l'occurrence $20\% \pm 5\%$ ce qui revient à réduire le flux du même taux. Pour la première carte a à 0,4 T, le rapport Φ/Φ_0 vaut $2,17 \pm 0,05$ contre 2,53 dans les calculs,

soit $14\% \pm 2\%$ de moins. En corrigeant les flux équivalents calculés, on trouve les changements de vorticit  aux valeurs donn es dans le tableau de la figure 1.3.2. Les r sultats exp rimentaux et th oriques concordent parfaitement except  pour la derni re valeur qui correspond   une vorticit  suppl mentaire $L = 6$ dans les calculs et   la transition vers l' tat normal dans l'exp rience.

$$\frac{\Phi}{\Phi_0} = \frac{BS}{h/2e} = \frac{11,500 \cdot 10^{-15} B}{2,068 \cdot 10^{-15}} = 5,56 B$$

Equation 1.3.1 : Calcul du flux en unit  de quantum de flux. S est la surface de l' lot, h la constante de Planck et e la charge  lectrique.

vorticit�	Φ/Φ_0 <i>th corrig�</i>	B <i>th corrig�</i> (T)	B <i>exp</i> (T)
L=1	1,7	0,31	0,30
L=2	3,0	0,54	0,56
L=3	3,9	0,70	0,77
L=4	5,3	0,96	0,97
L=5	6,3	1,13	1,20
L=6	8,7	1,56	1,40

Figure 1.3.2 : Tableau des entr es de vortex sous champ magn tique. Les valeurs en unit  de flux magn tique sont issues de l'exp rience et des calculs [Cren 2010, Pereira 2012].

Nous nous sommes appuy s sur les  quations de Ginzburg-Landau pour expliquer la physique des vortex confin s de cette th se, les travaux de Pereira et al confirment le choix de ce point de vue. Nous avons par la suite collabor  avec le th oricien Milorad Milo evi  pour simuler l'organisation des vortex dans des  lots plus larges et pr sentant des centres de pi geage. Ces r sultats exp rimentaux et th oriques font l'objet de la section suivante.

2. Organisation des vortex   un quantum de flux

L' tude effectu e sur les  lots Nif, Naf, Nouf et Loup montre qu'  vorticit   gale, la phase de vortex diff re. En fonction du confinement lat ral, on obtient un vortex g ant, la mare de vortex ou des vortex d'Abrikosov distincts. Cette  tude montre aussi que les vortex isol s, qui correspondent chacun   un quantum de fluxoid, ne se positionnent pas de la m me fa on selon la forme de l' lot. Ainsi,   $L = 3$, les trois vortex de l' lot allong  Naf sont align s tandis que ceux de l' lot hexagonal Loup se disposent en triangle (figures 1.2.3.f et 1.1.2.d). La premi re partie de cette section pr sente l'impact de la forme et de la taille des

nanostructures sur l'organisation de vortex dans des îlots acceptant une dizaine de vortex distincts.

Par ailleurs, l'îlot Nif et celui de la boîte à vortex ont une piscine au centre. Celle-ci de faible épaisseur ne joue pas un rôle prédominant dans l'organisation et le confinement des vortex. On voit en effet en figure 2.1.1.c que le vortex de l'îlot N4 n'est pas au centre, cela est dû au piégeage. Mais on constate qu'à plus fort champ magnétique sur la figure 2.1.1.d, ces lacunes n'influencent pas l'organisation des vortex. Nous traitons donc en première partie l'organisation des vortex sans tenir compte des piscines. Nous verrons en deuxième partie comment intervient la modification de l'organisation des vortex par ces défauts.

2.1. Du réseau d'Abrikosov à la mare de vortex

Les îlots montrés en figure 2.1.1 ont une épaisseur au bord comprise entre 14 MC et 17 MC et des dimensions latérales variant de 300 à 500 nm (carte a figure 2.1.1). Les bords sont mal facettés. Tous les îlots ont au centre des piscines. Elles ont une profondeur équivalant à sept monocouches au plus et forment des marches mono- ou bi- atomiques. Le gap supraconducteur reste cependant homogène sur tout l'îlot et ne varie pas d'un îlot à l'autre quelque soit leur épaisseur moyenne. La longueur de cohérence estimée à partir des hauteurs moyennes est $\xi_{eff} \cong 31 \text{ nm}$ et la longueur de London $\Lambda_{eff} \cong 3 \mu\text{m}$.

Des cartes spectroscopiques en champ sont présentées en figure 2.1.1. Elles correspondent à la conductance intégrées sur tout le gap, en représentation CGap. Les valeurs de champ 0,00 T, 0,06 T, 0,12 T, 0,18 T et 0,36 T balayent une grande quantité de configurations dans ces îlots. A champ nul, les îlots sont tous entièrement rouges, les condensats supraconducteurs sont dans l'état fondamental, il n'y a ni courant ni vortex. A 0,06 T, les îlots les plus larges et les plus hauts admettent un ou deux vortex en leurs centres. A 0,12 T, tous les îlots sont dans la phase multivortex. A 0,18 T, le nombre de vortex dans chaque îlot a quasiment doublé par rapport à la situation à 0,12 T. Et à 0,36 T quasiment tous les îlots sont dans la phase mare de vortex, soit supraconductivité de surface.

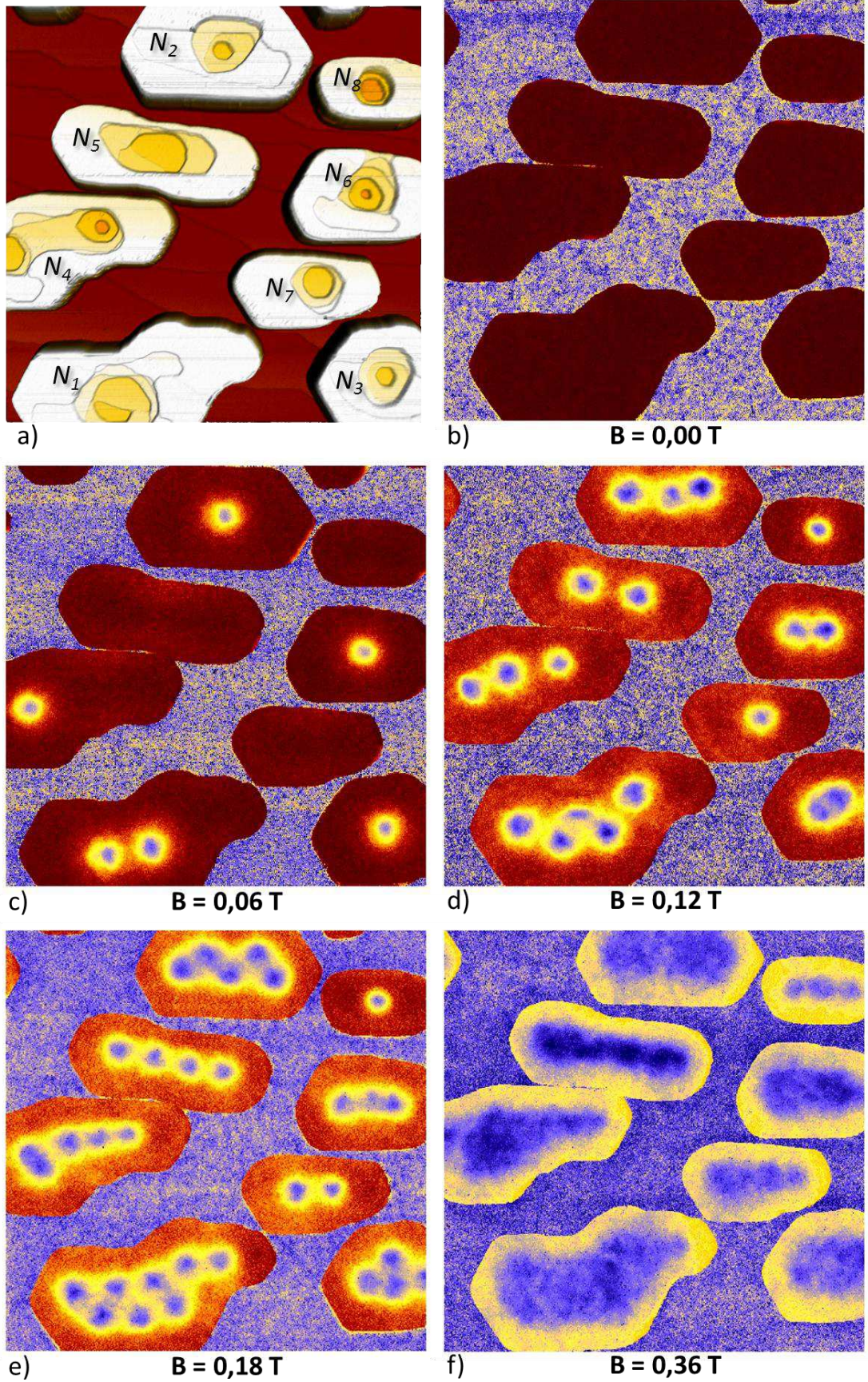


Figure 2.1.1 : **a.** Carte topographique. **b-f.** Cartes spectroscopiques en CGap sous champ magnétique. ($1,06 \times 1,06 \mu\text{m}^2$, 24 mV, 0,061 nA, échelle z : 0 à 7,3 nm)

Pour aider la comparaison entre les cartes spectroscopiques de la figure 2.1.1, le nombre de vortex et leur organisation sont répertoriés dans les tableaux 2.1.1, 2.1.2 et 2.1.3. Les îlots sont catégorisés en trois groupes selon leurs caractéristiques géométriques. Le premier est constitué des îlots les plus larges et hauts N_1 , N_2 et N_3 . Le deuxième regroupe les îlots allongés N_4 , N_5 et N_6 . Le dernier comporte les îlots restants qui sont les plus petits et ovales N_7 et N_8 .

D'après les cartes spectroscopiques de la figure 2.1.1, les réseaux triangulaires sont adoptés par les îlots dont les dimensions latérales sont supérieures à 230 nm ($\sim 7 \xi_{eff}$) dans les deux directions du plan (groupe des îlots larges). L'îlot N1 présente un tel réseau triangulaire à 0,12 T et 0,18 T (cartes **d** et **e**). Il en est de même pour N2 à 0,18 T (carte **e**). On remarque que dans ces trois cas le réseau triangulaire est légèrement déformé et que son contour suit la forme des bords de l'îlot.

On constate ensuite que pour les îlots dont une des deux dimensions latérales est inférieure à 230 nm, les vortex s'alignent le long des bords de l'îlot (groupes des îlots minces plus ou moins allongés). On voit par exemple que les quatre vortex de l'îlot N5 à 0,18 T sont alignés et régulièrement espacés (carte **c**).

Lorsque la densité de vortex augmente et que les îlots sont dans la phase mare de vortex (îlots N1 à N7 carte **f**), une frontière nette se dessine entre la couronne de supraconductivité de surface et la mare de vortex. On peut aisément estimer une échelle caractéristique de la supraconductivité de surface : l'épaisseur des couronnes vaut en moyenne $70 \text{ nm} \pm 10 \text{ nm}$ ($\sim 2 \xi_{eff}$) sur l'ensemble des îlots dans la phase mare de vortex.

	R (nm)	D_{Meissner} (nm)	L_{th}	L_{exp}
Nif	68	40	2,2	2
Naf	60	25	2,6	2-3
Loup	90	40	6,9	5-6

Tableau 3.1 : Valeurs de vorticit  auxquel es s'op ere la transition entre la phase o  les vortex se distinguent de celle mare de vortex. D_{Meissner} est la l' paisseur de la couronne de supraconductiv  de surface.

champ magnétique	0,06 T	0,12 T	0,18 T	0,36 T
Vorticité L				
N1	2	5	8	?
N2	1	3	5	?
N3	1	2	4	?
Organisation				
N1	vortex isolés	réseau triangulaire	réseau triangulaire	mare de vortex
N2	vortex isolé	ligne	réseau triangulaire	mare de vortex
N3	vortex isolé	vortex isolés	carré	mare de vortex

Tableau 2.1.1 : Tableau de la quantité de vortex et de leur organisation pour le groupe des îlots larges.

champ magnétique	0,06 T	0,12 T	0,18 T	0,36 T
Vorticité L				
N4	1	3	5	?
N5	0	2	4	?
N6	1	2	3	?
Organisation				
N4	vortex isolé	ligne	ligne	mare de vortex
N5		vortex isolés	ligne	mare de vortex
N6	vortex isolé	vortex isolés	ligne	mare de vortex

Tableau 2.1.2 : Tableau de la quantité de vortex et de leur organisation pour le groupe des îlots minces et allongés.

champ magnétique	0,06 T	0,12 T	0,18 T	0,36 T
Vorticité L				
N7	0	1	2	?
N8	0	1	1	4
Organisation				
N7		vortex isolé	vortex isolés	mare de vortex
N8		vortex isolé	vortex isolé	ligne

Tableau 2.1.3 : Tableau de la quantité de vortex et de leur organisation pour le groupe des îlots minces et peu allongés.

La figure 2.1.4 illustre l'effet de la taille sur le nombre de vortex pénétrant l'îlot en fonction du champ magnétique. Les valeurs sont extraites des cartes spectroscopiques de la figure 2.1.1.

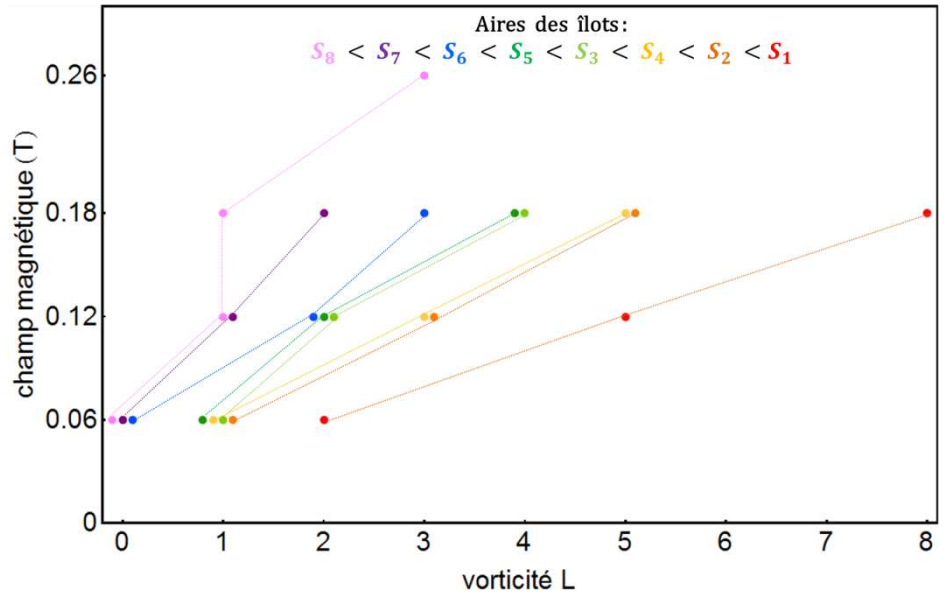


Figure 2.1.5 : Effet de taille. Aux valeurs du champ magnétique des cartes spectroscopiques de la figure 2.1.1, sont associées celles du nombre de vortex présents dans chacun des îlots N1 à N8. L'aire des îlots, S_i , est indiquée en légende. On constate qu'à champ fixe, plus l'îlot est grand, plus il contient de vortex. En effet chaque $L^{\text{ième}}$ vortex pénètre dans l'îlot à peu près à L fois le quantum de flux, or le flux magnétique étant proportionnel à l'aire, $\Phi = B S$, la vorticité croît avec celle-ci.

Transition vers la mare de vortex

On ne distingue pas les vortex dans la mare de vortex pour différentes raisons. Tout d'abord, il est prédit que le paramètre d'ordre est très affecté (module proche de 0) dans la mare de vortex [Sandier 2007, Fournais 2009]. C'est également le cas lorsqu'on est proche du champ critique H_{c2} dans les systèmes macroscopiques. Il varie donc très peu spatialement entre les vortex espacés de moins de 1 à $2 \xi_{eff}$. De plus les courants dus aux vortex et à l'effet Meissner sont tellement élevés que la densité d'états tunnel est soumise à un fort effet Doppler, ce qui conduit à réduire encore l'amplitude des variations spatiales de la conductance mesurée dans la mare. Ces variations sont en deçà de la résolution du microscope, un traitement de données de corrélations spatiales ne permettrait pas non plus d'extraire plus d'informations que celles présentées dans la figure 2.1.1.

Une autre hypothèse peut être émise. Les fluctuations thermiques sont négligeables à la température de l'expérience, $T = 300$ mK [Pogosov 2005]. Outre les fluctuations classiques qui affectent le paramètre d'ordre à basse température, le rôle des fluctuations quantiques peut être important. Autrement dit, l'incertitude quantique sur l'état du système est donnée par les 'inégalités' d'Heisenberg entre la phase φ et la densité d'états $n_s = |\Psi|^2$, $\Delta n_s \times \Delta \varphi \sim 1$ [Tinkham 2004]. On en déduit que si le paramètre d'ordre Ψ est très affecté alors la phase est quant à

elle très mal définie, si $\Delta|\Psi|^2 \ll 1$ alors $\Delta\varphi \gg 1$. Comme le vortex est défini par un déphasage $\Delta\varphi = 2\pi L$ de la fonction d'onde autour d'un point, on ne peut plus parler de vortex dans la mare de vortex où le paramètre d'ordre est très affecté. La densité d'états supraconductrice étant restaurée dans la couronne de supraconductivité de surface, la phase est alors mieux définie à la périphérie des mares de vortex et on peut observer des boules de conductance normale qui s'apparenteraient à des vortex.

Malheureusement, le modèle théorique développé par M. Milosevic ne prend pas en compte les fluctuations thermiques ni quantiques, leur rôle dans la phase mare de vortex reste donc une question ouverte.

On peut définir empiriquement un champ critique de transition H_{mare} entre la phase où les vortex se distinguent et celle mare de vortex. Il peut être déduit de la distance minimale entre vortex. Prenons le cas de Nif et Naf. Sur les cartes spectroscopiques en ligne en fonction du champ magnétique (figures 1.2.6 et 1.2.7), on voit les deux vortex de Naf se rapprocher dans la configuration $L = 2$. La distance minimale est alors de $33 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$, soit 1,3 fois la longueur de cohérence effective, $\xi_{eff,Naf} = 26 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm}$. Les deux vortex de Nif dans la configuration à $L = 2$ ne se rapprochent pas avec l'augmentation du champ, ils restent distants de $34 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$, soit 1,2 fois la longueur de cohérence effective, $\xi_{eff,Nif} = 28 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm}$. La distance minimale entre vortex serait donc $d_{v-v,min} = 1,2 \xi_{eff}$.

Si on généralise ce résultat, on peut alors connaître le nombre de vortex à partir duquel la mare apparaît. Il serait donné par le rapport entre la surface disponible et le disque de rayon $d_{v-v,min}/2$: $L_{min,mare} \cong S_{mare} / \pi(d_{v-v,min}/2)^2$. Le champ critique H_{mare} serait atteint lorsque la vorticité serait égale au nombre maximal de vortex distincts. $L_{mare} = \alpha S_{mare} / (\pi(1,2 \xi_{eff}/2)^2) \cong 0,8 S_{mare} / \xi_{eff}^2$, où $\alpha = \pi/(2\sqrt{3})$ est le taux de surface occupée par des disques.

Si on approxime l'épaisseur de la couronne Meissner $D_{Meissner}$ à la longueur de cohérence effective, la mare de vortex apparaît alors à la vorticité : $L_{mare} = \alpha \pi(R_{\text{îlot}} - D_{Meissner})^2 / (\pi 0,36 \xi_{eff}^2)$ pour un îlot sphérique, et: $L_{mare} = \alpha 1,2 \xi_{eff} (2R_{\text{îlot}} - 2D_{Meissner}) / (\pi 0,36 \xi_{eff}^2)$ pour un îlot allongé. Si on applique ces expressions aux îlots de cette thèse sans piscines piégeant les vortex, et présentant la mare de vortex, Nif, Naf et Loup, on obtient à peu près les valeurs expérimentales (tableau 3.1).

2.2. Influence des défauts topographiques sur l'organisation des vortex

Bien que les modulations de l'épaisseur des îlots ne semblent pas induire de variations spatiales notables du gap supraconducteur à leur surface, des défauts topographiques peuvent cependant piéger les vortex [Özer 2006]. En effet, le cœur du vortex se place préférentiellement aux endroits défavorables à la supraconductivité. Des grandeurs volumiques comme la densité de courant ou l'énergie de décondensation au cœur des vortex sont aussi amplement modifiées dans le cas d'importantes variations d'épaisseurs.

Nous avons vu que la densité de vortex et la taille des îlots permet de choisir une configuration de vortex, il est à présent utile de savoir comment obtenir d'autres configurations en contrôlant les centres de piégeages. Selon les conditions de préparation adoptées, les nanostructures peuvent avoir des piscines de différentes tailles et profondeurs (figure 2.2.1). A la différence du défaut créé dans l'îlot Loup abordé en section 2.4, celles-ci présentent l'avantage d'être cristallines. Le piégeage des vortex ne se fera pas par destruction de l'ordre supraconducteur via celui de la structure atomique mais par réduction du libre parcours moyen.



Figure 2.2.1 : Carte topographique. ($1,06 \times 1,06 \mu\text{m}^2$, 24 mV , $0,061 \text{ nA}$, échelle z : 0 à $7,3 \text{ nm}$).

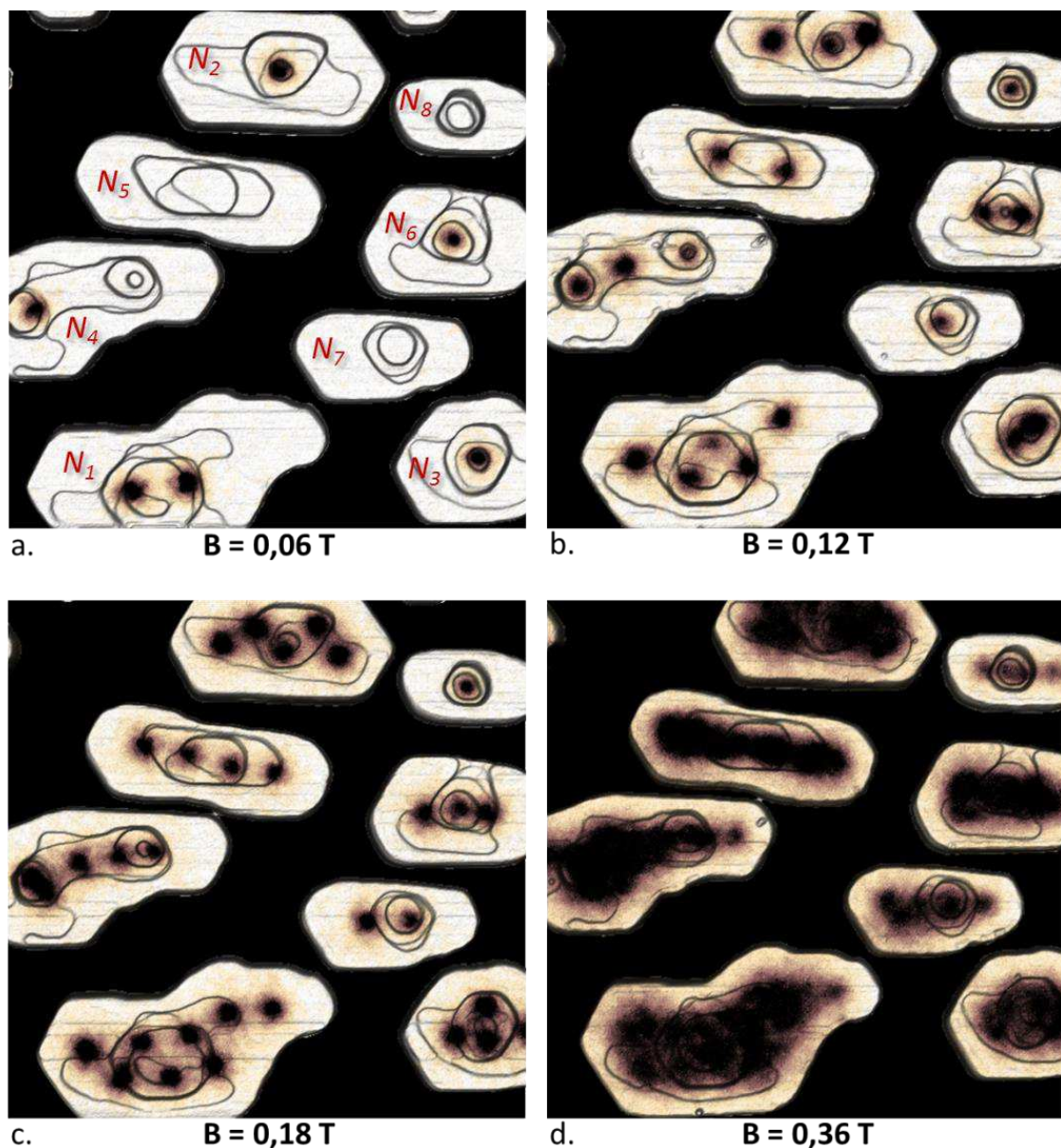


Figure 2.2.2 : Cartes en champ magnétique jumelant la spectroscopie CFermi en code couleur et la topographie en représentation 3D ombrée (figure 2.1.1). La palette de couleur CFermi est inversée afin de distinguer l'ombre des bords des piscines. Un masque noir recouvre la couche de mouillage. ($1,06 \times 1,06 \mu\text{m}^2$, 24 mV , $0,061 \text{ nA}$, échelle z : 0 à $7,3 \text{ nm}$)

La figure 2.2.2 combine les données spectroscopiques codées en couleur et les données topographiques codées en représentation 3D ombrées. Les bords des piscines et des îlots sont ainsi ourlés d'un contour noir. La représentation CFermi, utilisée ici pour le calcul de conductance, permet de visualiser la position et la taille des cœurs de vortex en s'affranchissant des effets de courants dans la valeur de la conductance mesurée.

On constate sur la figure 2.2.2 que dans la phase $L = 1$, chaque vortex est localisé dans la piscine de plus grande profondeur même si celle-ci est décentrée (cas de N_4 carte **a**). A $L = 2$, les vortex restent confinés dans les piscines plutôt que d'occuper plus d'espace dans l'îlot (îlots N_3 et N_6

carte **b**). Lorsque la densité de vortex augmente, ceux-ci s'organisent en réseau triangulaire ou en ligne selon les dimensions de l'îlot sans tenir compte des piscines (îlots N1 carte **b**, îlot N1 à N5 carte **c**).

Les distances entre vortex piégés dans les piscines sont inférieures à la limite d'Abrikosov. Elles peuvent également être inférieures aux distances dans le réseau adopté à plus fort champ. C'est le cas de l'îlot N3 où l'on voit les quatre vortex (carte **c**) s'éloigner en se dépiégeant par rapport à la configuration à deux vortex (carte **b**). L'énergie de décondensation gagnée au cœur des vortex dans les piscines est donc bien plus grande que la forte répulsion entre vortex.

Bien que les spectres supraconducteurs semblent identiques au sein d'un même îlot et d'un îlot à l'autre, les vortex n'ont pas la même taille. On constate ainsi que ceux présents dans les piscines apparaissent plus petits que ceux localisés sur les plateaux des îlots, et ce quelque soit l'îlot. Plus particulièrement, les vortex piégés dans les plus petites piscines de N3 et N6 à 0,06 T, N4 et N8 à 0,12 T sont plus petits que les vortex localisés au niveau des terrasses et des plateaux. De plus, à 0,18 T, le vortex initialement piégé dans la plus petite piscine à droite dans N4 se trouve sur la terrasse supérieure. Il conserve une plus petite taille que les deux autres situés sur une terrasse qui lui est encore supérieure. La taille du vortex semble donc augmenter avec l'épaisseur locale de l'îlot. Les vortex des îlots N2 et N5 à 0,12 T (carte **c**) ont au contraire la même taille mais les aires des piscines sont beaucoup plus grandes. Les courants de vortex sont probablement plus concentrés autour des cœurs piégés dans des piscines de dimensions latérales plus grandes que la longueur de cohérence effective. Ainsi l'énergie cinétique par unité de volume augmente et le profil de conductance du vortex s'élargit.

Pour pouvoir évaluer l'effet de piégeage des piscines à faible densité de vortex et confirmer le dépiégeage lors de l'augmentation de la densité avec le champ, nous avons collaboré avec le théoricien M. Milosevic pour simuler l'organisation des vortex dans des îlots avec et sans piscines.

2.3. Organisation et piégeage des vortex : calculs en parallèle des expériences

Pour calculer la position des vortex dans des nanostructures, le théoricien Milorad Milošević a développé une méthode basée sur les

équations de Ginzburg-Landau dépendantes du temps. Il peut déterminer le diagramme de phase pour une géométrie quelconque et plusieurs îlots. Il a ainsi collaboré aux travaux de cette thèse en simulant la position des vortex dans chacun des îlots de la figure 2.1.1. Pour cela, il a calculé la distribution de l'amplitude du paramètre d'ordre et des courants en utilisant les données topographiques expérimentales. Les résultats qu'il a obtenus sont exposés en figure 2.3.1. On constate que les vortex (disque rouge) se trouvent à peu près aux mêmes positions que celles données par l'expérience (figure 2.1.1). La théorie de Ginzburg-Landau permet donc de calculer la supraconductivité dans des systèmes mésoscopiques à basse température. Et nous pouvons donc l'utiliser pour prédire de nouvelles configurations. Nous avons alors demandé à Milorad Milošević de calculer quelle serait la phase de vortex dans ces mêmes îlots en l'absence de piscine. Ces résultats permettraient d'illustrer l'impact de ces variations d'épaisseurs sur le piégeage des vortex.

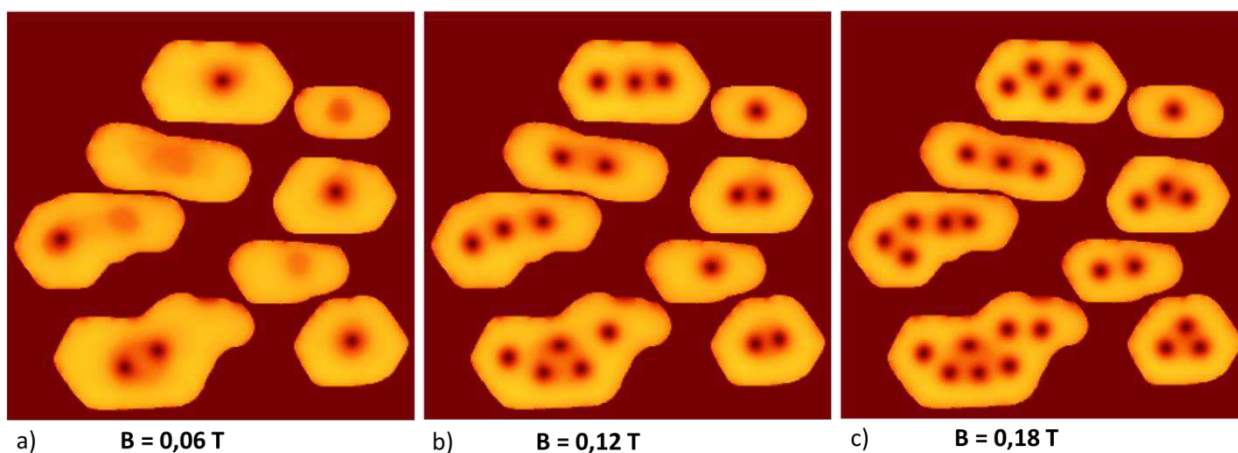


Figure 2.3.1 : Cartes de la densité d'états calculée en Ginzburg-Landau avec le champ magnétique. ($1,2 \times 1,2 \mu\text{m}^2$).

2.4. Créer un défaut topographique avec la pointe STM pour piéger les vortex

Au cours de l'expérience réalisée sur l'îlot Loup abordé en section 1.1, un défaut s'est créé sous l'effet des spectroscopies mesurées successivement en un point. Un trou déjà présent et dont la profondeur est inférieure à la monocouche, se creuse et est couronné progressivement par du plomb initialement libre à la surface et balayé par la pointe (carte 2.4.1.a et 2.4.1.b). Lorsqu'on fait varier localement le champ électrique proche de la surface, des atomes de plomb mobiles sont systématiquement attirés sous la pointe, ils se stabilisent en général au bord des îlots. A 0,40 T quatre vortex sont présents dans l'îlot. On

constate que lorsque le défaut se modifie, un des vortex se retrouvent piégés en carte 2.4.1.d. alors qu'il ne l'est pas en carte 2.4.1.c. Le trou résultant d'une lacune de quelques atomes reste favorable à l'ordre supraconducteur et ne piège pas de vortex, tandis qu'un peu de désordre supplémentaire créé par la pointe suffit pour que le système gagne de l'énergie de condensation en y plaçant le cœur d'un vortex.

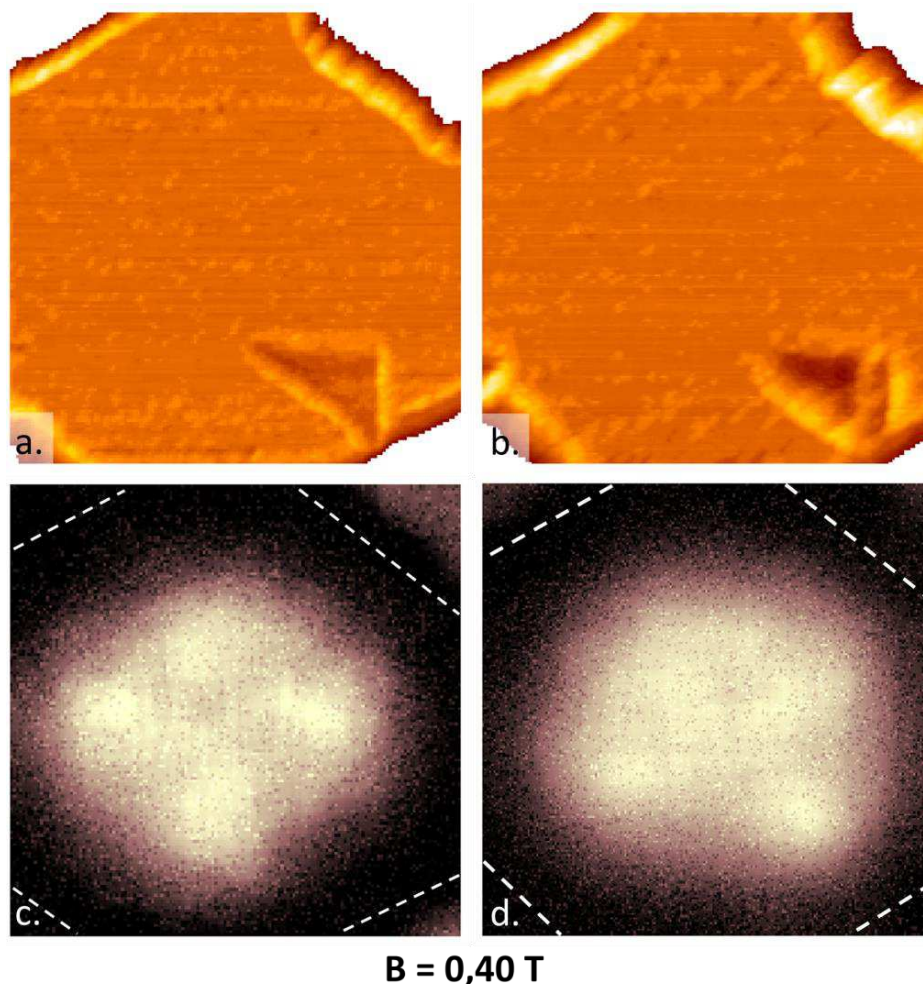


Figure 2.4.1 : Cartes topographiques (**a** et **b**) et spectroscopiques (**c** et **d**) de l'îlot Loup sous champ magnétique. Les cartes **b-d** ont été mesurées après plusieurs spectroscopies effectuées à la suite des cartes **a-c**, le défaut à la surface de l'îlot (triangle au sud-est) s'est modifié. Un vortex est alors piégé au niveau de ce défaut en carte **d**. Un masque blanc recouvre la couche de mouillage sur les cartes topographiques. ($174 \times 174 \text{ nm}^2$, échelle z entre la surface plane de l'îlot et les protubérances de plomb : 0 à 1,7 nm).

Comme on peut le voir sur l'image topographique 1.1.1, l'îlot Loup repose sur trois terrasses monoatomiques de silicium (figures 1.1.1 et 2.4.2). Tout comme les piscines d'une profondeur de quelques monocouches piègent les vortex, cette variation d'épaisseur au niveau du substrat est susceptible d'influencer l'organisation des vortex.

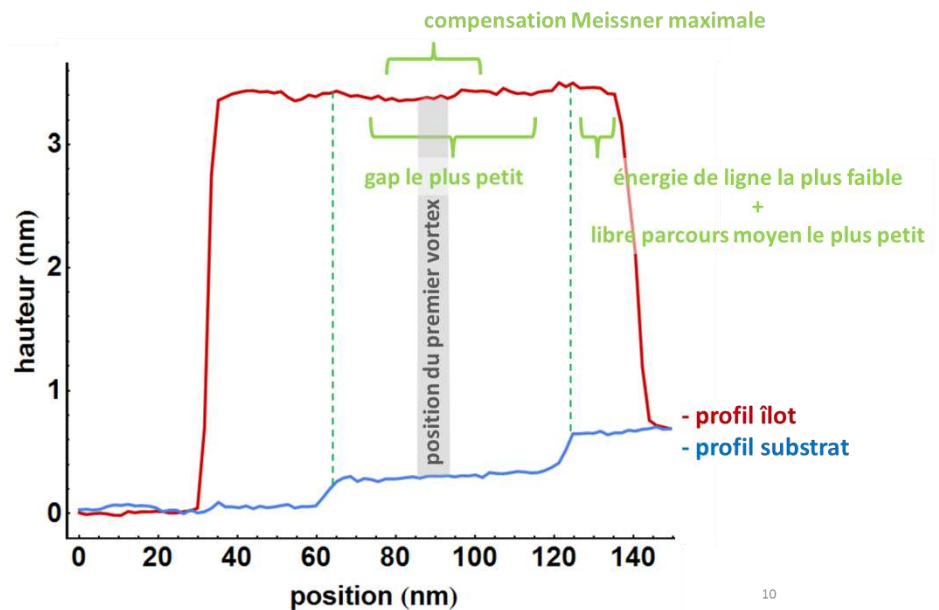


Figure 2.4.2 : Schéma d'une coupe de l'îlot traversé par un vortex. Le vortex se positionne de telle sorte à réduire l'énergie de décondensation et l'énergie cinétique totale (terme en vert).

Nous avons vu au chapitre III que la température critique dépendait de l'épaisseur de l'îlot du fait des états quantifiés. Les vortex pourraient donc se positionner sur la partie de l'îlot de plus petit gap, c'est-à-dire là où l'énergie de brisure de paires de Cooper est la plus faible. D'après l'évolution du gap en énergie en fonction de la hauteur des îlots (figure 1.3.2 chapitre III), le plus petit gap est obtenu pour l'épaisseur 2,9 nm, les deux autres hauteurs étant 2,5 nm et 3,1 nm. La partie correspondant à cette épaisseur favorable recouvre les deux tiers de l'îlot et le traverse de part en part englobant la partie centrale. Une coupe de l'îlot et du substrat est représentée en figure 2.4.2.

Une autre considération énergétique est celle des courants : le centre de l'îlot est la zone favorable pour compenser l'effet Meissner dans le cas d'un disque dont le diamètre ne fait que quelques longueurs de cohérence.

Comme nous l'avons vu précédemment avec l'étude des vortex piégés dans les piscines, le libre parcours moyen intervient dans le bilan énergétique. Il est alors possible de réduire l'énergie de cœur de vortex en réduisant la longueur de cohérence effective. Puisque le libre parcours moyen est de l'ordre de deux fois la hauteur de l'îlot, la longueur de cohérence a sa plus petite valeur au niveau de l'épaisseur la plus petite de 2,5 nm. Cette situation permet également de réduire l'énergie de ligne puisqu'elle est proportionnelle au volume.

Les premiers vortex se placent au centre de l'îlot. A la différence de l'effet observé avec les piscines, le piégeage par les marches monoatomiques de silicium ne domine pas l'organisation des vortex à faible densité. C'est donc l'énergie cinétique qui gouverne la position des

vortex. On peut imaginer que le piégeage serait efficace pour des terrasses de plus de trois monocouches pour un îlot de quelques monocouches d'épaisseur.

Les travaux menés par Nishio et al montrent le même résultat quant aux marches monoatomiques de silicium [Nishio 2008].

3. Diagramme de phase des vortex

Le schéma de la figure 3.1 récapitule les différentes phases de vortex observées dans cette thèse en fonction du confinement latéral et du champ magnétique appliqué.

A faible densité de vortex, ceux-ci se positionnent au centre des îlots de surface plane ou sont piégés dans les piscines les plus profondes s'il y en a. A plus forte densité, ils sont dépiégés. Ils s'organisent en réseau triangulaire dans les îlots de dimensions latérales supérieures à $7 \xi_{eff}^2$. Ils s'alignent le long des bords si la dimension est inférieure à cette valeur dans une des deux directions du plan. A densité extrême, les vortex s'interpénètrent quelque soient les caractéristiques géométriques de l'îlot et forment une mare de vortex entourée de la supraconductivité de surface.

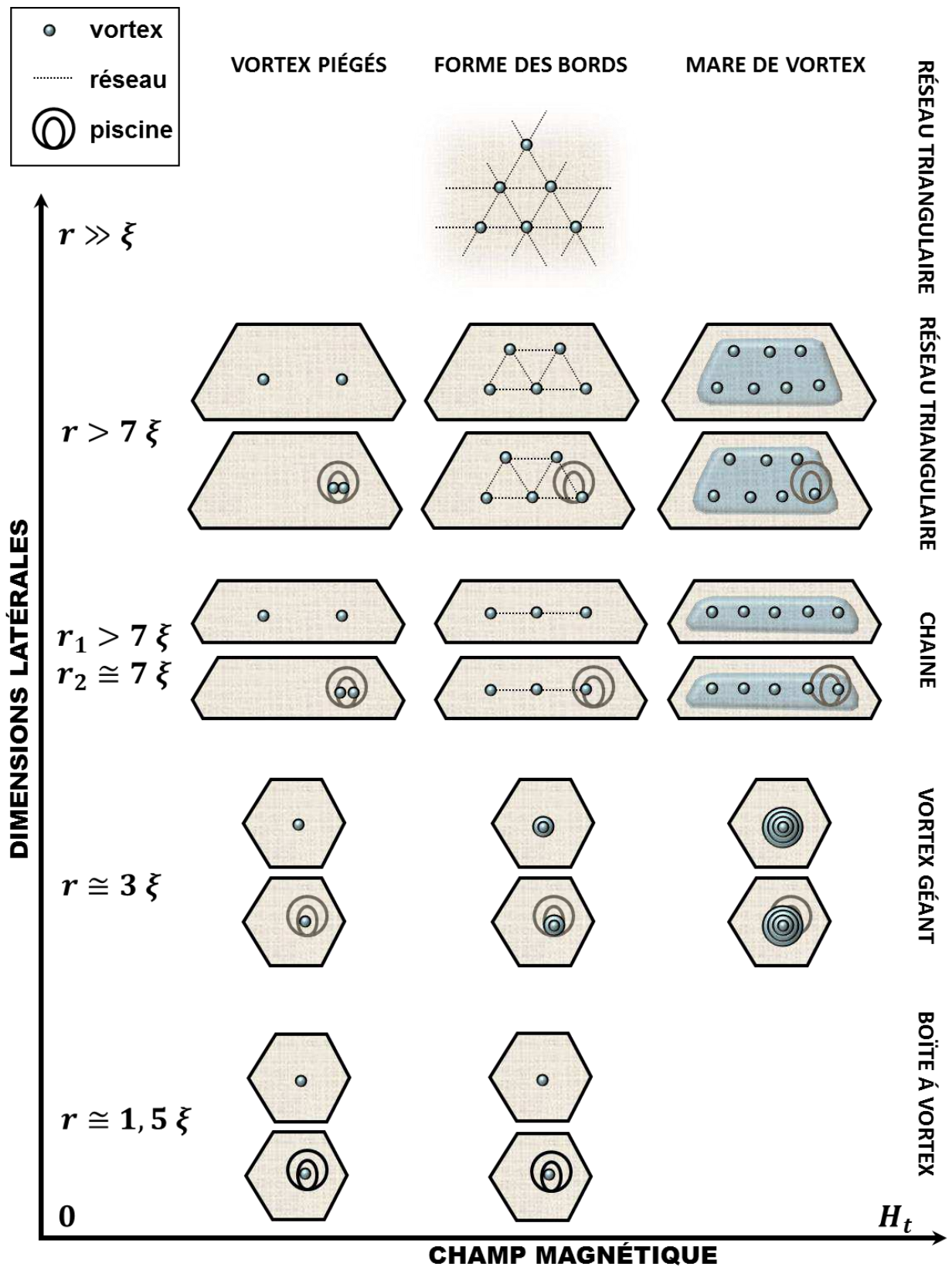


Figure 3.1 : Diagramme de phase des vortex confinés par le champ magnétique, les dimensions latérales et les piscines.

EFFET DE PROXIMITÉ ET VORTEX JOSEPHSON

En 1963 Rowell constate que lorsqu'une jonction tunnel est soumise à un faible champ magnétique perpendiculaire au plan de la jonction, son courant critique (courant supraconducteur maximal traversant la jonction) oscille avec le champ suivant une figure de diffraction de type Fraunhauffer [Levy 1996, Tinkham 2004]. Cet effet a depuis été observé dans de nombreuses jonctions formées par un métal normal entre deux supraconducteurs [Goldman 1967, Angers 2008, Clem 2010]. On observe qu'un courant superfluide circule dans la tranche normale par effet de proximité [Golubov 1994, Moussy 2001, Guéron 1997, Lesueur 2007, Cuevas 2006, Chiodi 2012]. Cet effet d'interférence quantique est une conséquence de la modulation spatiale de la différence de phase supraconductrice à travers la jonction. Ce déphasage génère des courants locaux entre les deux électrodes supraconductrices, qui circulent dans des directions opposées selon la position dans la jonction. Ces régions enferment des quanta de flux magnétique et sont appelées vortex Josephson par analogie avec les vortex d'Abrikosov dans les supraconducteurs de type II. Les phénomènes d'interférences quantiques observées dans les mesures de transport effectuées dans les jonctions longues sont alors interprétés en termes de vortex Josephson. La question de leur observation locale reste ouverte. Quelle serait leur signature spectrale dans les jonctions de proximité ? Sont-elles semblables à des vortex d'Abrikosov dans les supraconducteurs ?

Nous avons tout d'abord commencé par sonder l'effet de proximité autour des îlots de Pb supraconducteurs. Nous avons observé une signature de type Altshuler-Aronov dans les spectres tunnel mesurés dans la couche de mouillage loin des îlots. Cet effet montre une forte interaction Coulombienne entre les électrons qui peut limiter considérablement la propagation des paires de Cooper dans la couche normale. Nous nous sommes donc posé les questions suivantes : sur quelles distances les paires de Cooper se propagent-elles dans ce métal très diffusif ? Est-il ensuite possible de créer une jonction de proximité dans cette couche entre les îlots de Pb ?

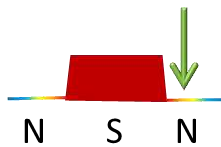
La première section de ce chapitre expose les caractéristiques

électroniques de la monocouche amorphe non supraconductrice et l'effet de proximité autour des îlots supraconducteurs. La deuxième section est consacrée aux jonctions et vortex Josephson.

1. Effet de proximité

Nous avons commencé par étudier l'effet de proximité présent autour des îlots supraconducteurs dans la couche de mouillage normale.

1.1. Approches théoriques



Le contact entre un métal supraconducteur et un métal normal change leurs propriétés électroniques au voisinage de l'interface. Tandis que le gap supraconducteur est affaibli, les corrélations supraconductrices se propagent dans le métal normal. Le métal acquiert ainsi une partie des propriétés supraconductrices jusqu'à une distance $L_n = \sqrt{\hbar D/E}$. D est le coefficient de diffusion et E est l'énergie caractéristique liée au mécanisme limitant la propagation des corrélations supraconductrices (énergie thermique, minigap induit, ...).

Comme nous l'avons vu au chapitre II, il n'existe pas d'états à un électron dans la densité d'états excitoniques du supraconducteur à l'intérieur du gap. Le transfert d'électrons d'énergie inférieure à l'énergie de gap peut cependant se faire en considérant des processus de second ordre, c'est-à-dire à deux particules.

La théorie la plus commune pour traiter l'effet de proximité est la description semi-classique, la réflexion d'Andreev. Le processus d'Andreev convertit les paires de Cooper venant du supraconducteur en paires électrons-trous dites d'Andreev dans le métal normal. Dans cette description, un trou incident est réfléchi à l'interface en un électron de spin et de vecteur d'onde opposés, d'où l'appellation « réflexion ». De l'autre côté de l'interface, une paire de Cooper est annihilée. La charge, le vecteur d'onde et le spin sont ainsi conservés. Le processus est réversible, un électron incident est réfléchi sous forme d'un trou et d'une paire de Cooper qui se propage dans le supraconducteur. La phase du trou et de l'électron est intimement liée à celle du supraconducteur proche de l'interface. La paire d'Andreev existe tant que les deux quasi-

particules, électron et trou, restent cohérentes, elle propage ainsi les corrélations supraconductrices sur la longueur caractéristique L_n . C'est l'effet de proximité direct. De façon réciproque, la paire de Cooper créée côté supraconducteur propage les corrélations électroniques du métal normal. Le gap en énergie est alors affecté sur une distance caractéristique L_s . C'est l'effet de proximité inverse.

La longueur de cohérence effective ξ_n qui caractérise la portée de l'effet dans le métal normal est définie comme étant la taille d'une paire d'Andreev, tout comme celle dans le supraconducteur ξ est la taille des paires de Cooper.

Si l'approche d'Andreev permet de comprendre les mesures effectuées par transport à travers une jonction de proximité, elle ne permet pas de décrire les spectres tunnel mesurés dans une zone de proximité. Il vaut mieux alors utiliser le traitement quantique exact à partir de l'équation de Bogoliubov-De Gennes, des fonctions de Green ou encore des matrices aléatoires. Les équations de Bogoliubov-De Gennes permettent de décrire de façon exacte l'évolution des propriétés supraconductrices dans des systèmes où le gap en énergie varie spatialement. Cependant, elles ne sont pratiques à utiliser que pour décrire l'effet de proximité dans des systèmes balistiques. C'est pourquoi, Eilenberger, Larkin, Ovchinnikov et Eliashberg généralisent l'approximation d'Andreev aux systèmes pour lesquels la durée de vie des quasi-particules est finie. Les équations développées sont alors plus simples que celles issues de la théorie microscopique et permettent de décrire correctement les propriétés physiques du système sur des distances plus grandes que la longueur de Fermi. C'est l'approximation quasi-classique. Cette théorie généralisée couvre l'ensemble des phénomènes spécifiques à la supraconductivité inhomogène. Les équations quasi-classiques peuvent aussi être réécrites dans le formalisme plus compact des fonctions de Green. Elles sont un formalisme très pratique pour traiter les systèmes à N corps en interaction : elles font évoluer dans le temps et dans l'espace les grandeurs physiques moyennes du système sans avoir à décrire les fonctions d'onde de chaque particule.

Dans les systèmes désordonnés, le milieu est considéré en général comme isotrope et par conséquent la dépendance angulaire des fonctions de Green est faible. En première approximation, il est donc possible de les développer sur la base des harmoniques sphériques. Dans la limite diffusive où le libre parcours moyen des électrons de conduction est beaucoup plus petit que la longueur de cohérence, Usadel obtient alors une nouvelle équation différentielle de second ordre non-linéaire qui porte son nom [Usadel 1970].

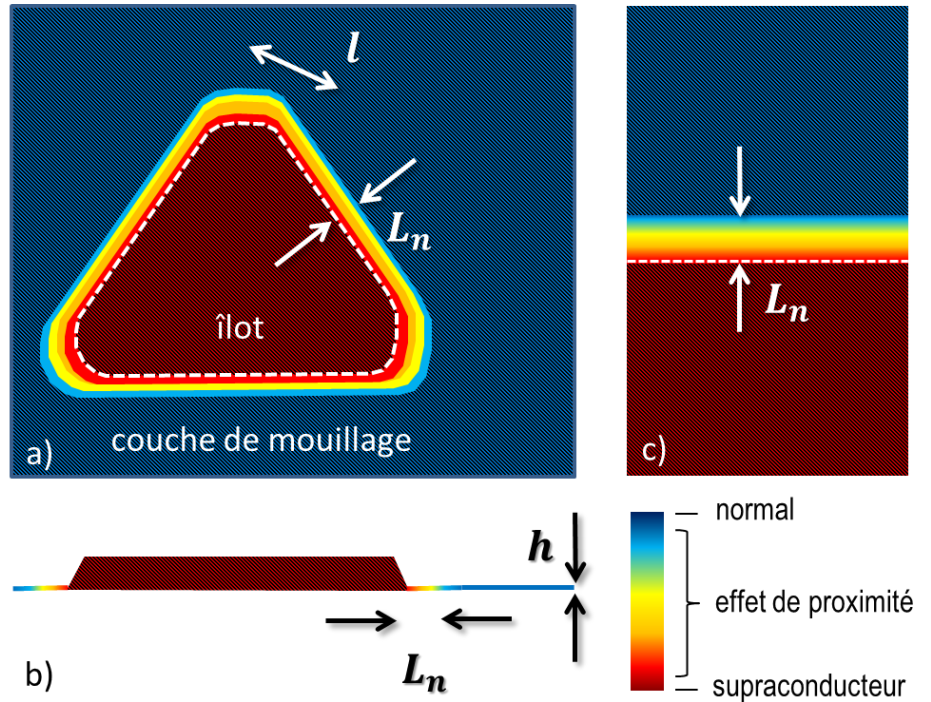


Figure 1.1.1 : Schéma de l'effet de proximité dans la couche de mouillage de Pb normale (bleue) depuis un îlot de Pb/Si(111) supraconducteur (rouge). c est la longueur sur laquelle les spectres de proximité ne varient quasiment pas le autour d'un coin de l'îlot, et l le long d'un bord droit. L_n est l'échelle caractéristique de l'effet de proximité. **a.** Vue de dessus **b.** Vue de profil. **c.** Approximation 1D des équations d'Usadel, $h \ll L_n$ et $l \gg L_n$.

Dans cette thèse, les îlots correspondent au métal supraconducteur, la couche de mouillage au métal normal. Pour modéliser l'effet de proximité, il est plus aisé d'utiliser l'approximation unidimensionnelle si le système le permet (figure 1.1.1.c). Elle est valable lorsque le système est bidimensionnel, ce qui est notre cas puisque la hauteur h de la couche de mouillage est négligeable devant la longueur caractéristique de l'effet de proximité L_n (figure 1.1.1.b). Ensuite, il faut que la largeur du film normal soit inférieure à la longueur L_n ou que les deux métaux aient la même dimension latérale. Ces deux parties n'ont pas exactement la même dimension latérale puisque la couche de mouillage borde toute la périphérie de chaque îlot (figure 1.1.1.a). Elles peuvent cependant être considérées comme telles puisque les variations curvilignes de l'interface sont plus lentes que l'évolution de l'effet de proximité ($l > L_n$). En effet les îlots ont des bords droits sur une centaine de nanomètres de large, $l \cong 100 \text{ nm}$, tandis que l'état est normal à une cinquantaine de nanomètres des îlots, $L_n \cong 50 \text{ nm}$.

La résolution des équations d'Usadel dépend des conditions aux bords. Pour un gap induit Δ et une transparence parfaite de la transmission à l'interface avec un film normal infini, les solutions

numériques des équations d'Usadel dans la partie normale sont représentées par la série de courbes en figure 1.1.2. Elles ne dépendent plus que d'un seul paramètre libre : le coefficient de diffusion D . Ce dernier est directement lié à la longueur de cohérence effective dans le métal normal, $\xi_n = \sqrt{\hbar D/\Delta}$. Les graphes sont donc exprimés en unité de longueur de cohérence ξ_n . Le spectre à l'interface est celui de l'état supraconducteur, sa forme évolue continûment avec la distance et rejoint celle de l'état normal du métal lorsqu'il est isolé.

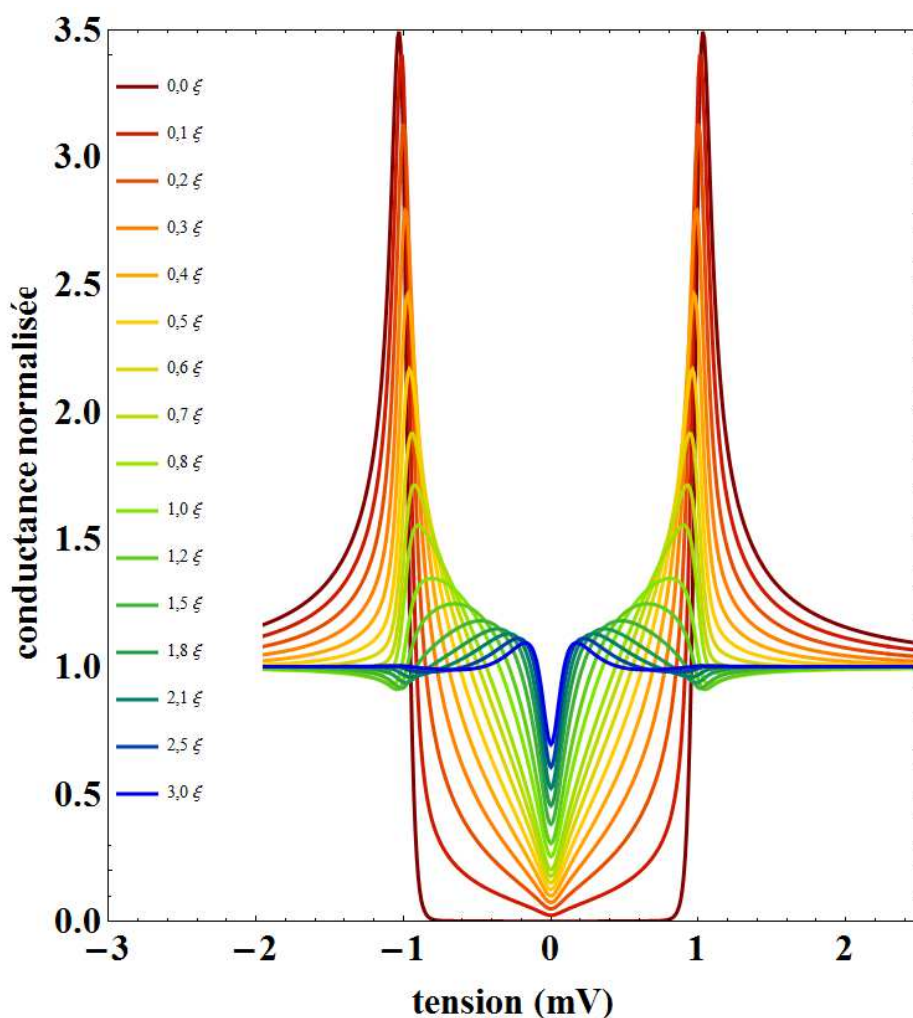


Figure 1.1.2 : Courbes théoriques de la densité locale d'état en fonction de la distance à l'îlot, calculées par Juan-Carlos Cuevas à partir de l'équation d'Usadel unidimensionnelle. L'effet de proximité inverse n'est pas considéré. Le gap en énergie à l'interface est celui du plomb $\Delta = 1,2 \text{ meV}$ et la taille du métal normal est $L = 100 \xi_n$, il est connecté à un réservoir normal. La température est $T = 300 \text{ mK}$.



1.2. Blocage de Coulomb dynamique

Avant d'aborder l'effet de proximité entre la couche de mouillage et les îlots, il est nécessaire de connaître les propriétés électroniques de chacune des deux parties indépendamment.

L'état supraconducteur des îlots de plomb est celui décrit en section 1 du chapitre III : La densité d'états est celle d'un supraconducteur conventionnel selon la théorie BCS, le gap en énergie est homogène sur tout l'îlot et vaut de 1,2 meV à 300 mK. La longueur de cohérence effective est d'une trentaine de nanomètres. Cette valeur est extraite des mesures de profil des vortex.

La figure 1.2.1 présente une carte topographique de la couche de mouillage loin des îlots et la carte spectroscopique de la conductance au niveau de Fermi, en représentation CFermi, de la même zone (figure 1.2.2). La couche apparaît amorphe en surface, des grains ronds sont espacés de 1 à 2 nm et leur hauteur vaut environ 0,2 nm, soit 0,7 MC (largeur à mi-hauteur de l'histogramme 1.2.1). La conductance est elle aussi inhomogène $C_{Fermi} \pm C_{\sigma, Fermi} = 23 \text{ nS} \pm 4 \text{ nS}$, mais varie sur une échelle spatiale environ deux fois plus grande.

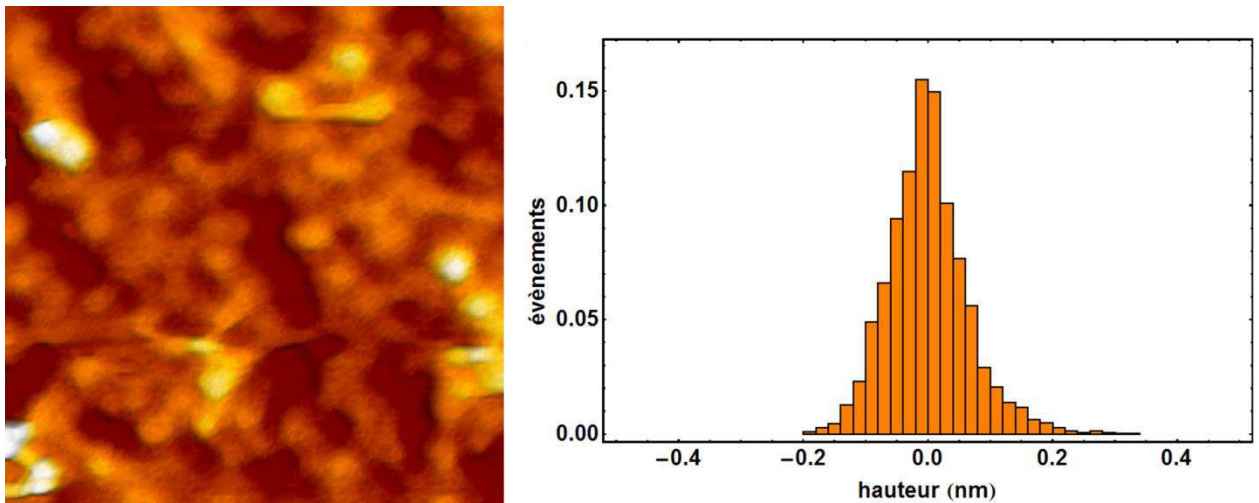


Figure 1.2.1 : Carte topographique de la couche de mouillage et histogramme des hauteurs. ($20 \times 20 \text{ nm}^2$, $-47,6 \text{ mV}$, $0,076 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à 0,53 nm).

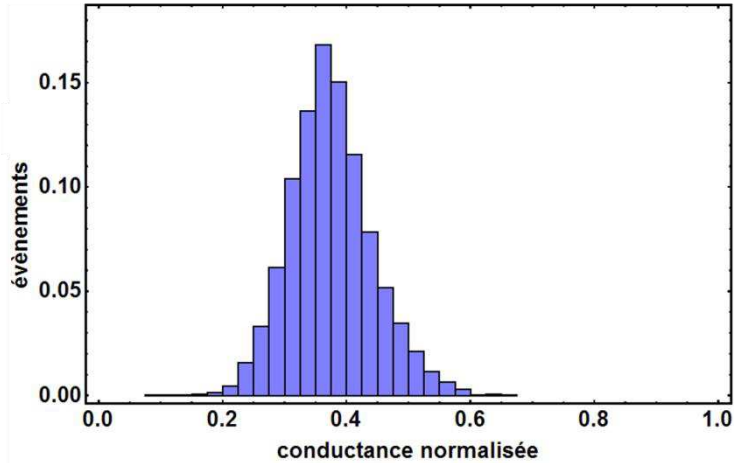
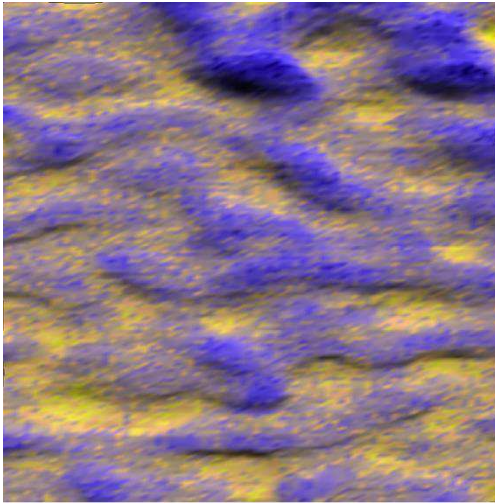


Figure 1.2.2 : Carte spectroscopique de la couche de mouillage et histogramme de la conductance normalisée. ($20 \times 20 \text{ nm}^2$, $C_{max} = 0,66 C_{norm}$, $C_{normal} = 60 \text{ nS}$).

Le spectre moyenné sur toute la région est présenté en figure 1.2.3. Il ne correspond pas à une densité d'états constante autour du niveau de Fermi attendue pour un métal tel que le plomb. En effet, le spectre moyen présente un creux au niveau de Fermi et les courbes symétriques de part et d'autre de ce creux ont un aspect en aile de mouette. Cette allure est assez typique de ce qui est prédit par Altshuler et Aronov pour un métal avec un faible libre parcours moyen [Altshuler 1985].

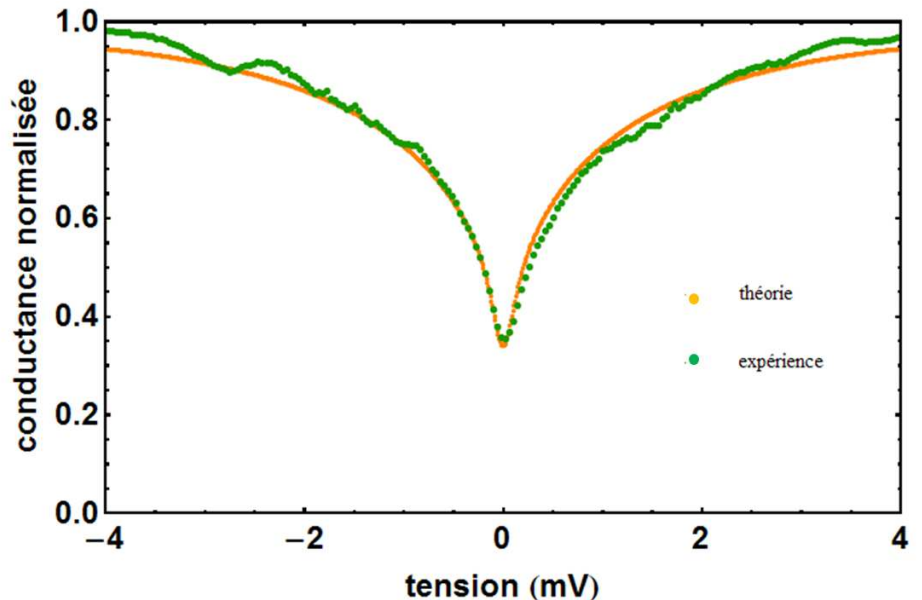


Figure 1.2.3 : Spectre expérimental moyen de la couche de mouillage et spectre théorique issu du modèle de blocage de Coulomb dynamique (équation 1.2.1).

Rollbühler et Grabert montrent que l'effet Altshuler-Aronov dans un système bidimensionnel désordonné est similaire à celui du blocage de Coulomb dynamique dans les jonctions ultrafines couplées à un environnement ohmique [Rollbühler 2001].

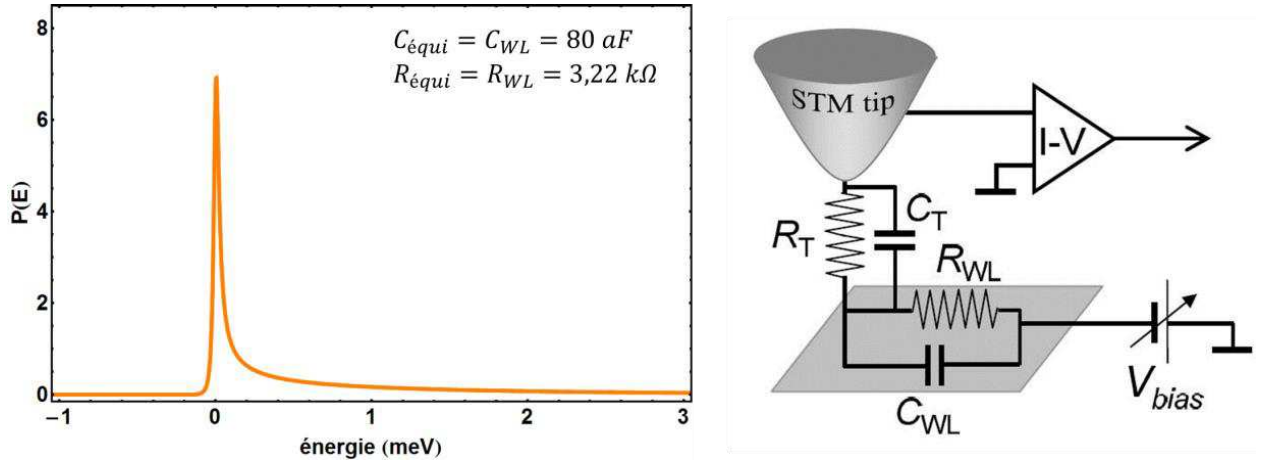


Figure 1.2.4 : Fonction $P(E)$ ajustée pour la courbe théorique en figure 2.2.3, et schéma du circuit RC équivalent du modèle du blocage de Coulomb dynamique.

Pour simuler le spectre expérimental mesuré sur la couche de mouillage, nous avons collaboré avec Juan-Carlos Cuevas, du Département de Physique de la Matière Condensée de l'Université de Madrid. Nous nous sommes inspirés du formalisme développé dans la thèse de S. Guéron [Guéron 1997]. Juan-Carlos Cuevas a utilisé le résultat de Rollbühler et Grabert pour développer un modèle simple décrivant le transport à travers la couche de mouillage et la jonction tunnel du STM comme un circuit RC équivalent. L'impédance de ce circuit équivalent est donnée en équation 1.2.1. Une fonction $P(E)$ déterminée par cette impédance décrit la probabilité qu'ont les électrons de conduire à transmettre une énergie E à l'environnement électromagnétique [Ingold 2005]. Dans le cas d'un métal sans blocage de Coulomb dynamique, l'expression mathématique de $P(E)$ est la fonction Dirac.

$$\begin{aligned}
 P(E) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{K(t)+iEt/\hbar} \\
 K(t) &= 2 \int_0^{+\infty} \frac{d\omega}{\omega} \frac{\Re e[Z(\omega)]}{R_K} \\
 &\quad \times \left(\coth\left(\frac{\hbar}{2k_B T}\right) [\cos(\omega t) - 1] - i \sin(\omega t) \right) \\
 Z(\omega) &= \frac{1}{i\omega C_{\text{équi}} + 1/R_{\text{équi}}}
 \end{aligned}$$

Equation 1.2.1 : Fonction $P(E)$ issue du modèle de blocage de Coulomb dynamique.

Cette fonction $P(E)$ est ensuite introduite dans l'expression du courant tunnel sous forme de convolution (équation 1.2.2).

$$I(V) \propto \Gamma_{a \rightarrow b} - \Gamma_{b \rightarrow a}$$

$$\Gamma_{a \rightarrow b} = \frac{1}{e^2 R_T} \int d\varepsilon_k \int d\varepsilon_p n_a(\varepsilon_k) n_b(\varepsilon_p) \times f(\varepsilon_k) (1 - f(\varepsilon_p)) \underline{P(\varepsilon_k - \varepsilon_p - eV)}$$

Equation 1.2.2 : Courant tunnel incluant la fonction $P(E)$ du blocage de Coulomb dynamique. n_a est la densité d'états de la couche de mouillage et n_b de la pointe STM.

Si on émet l'hypothèse que la densité d'états de la couche de mouillage est constante, le meilleur ajustement de la courbe théorique avec la courbe expérimentale est alors obtenu pour les valeurs de résistance et capacité équivalentes $C_{\text{équi}} = 80 \text{ aF}$ et $R_{\text{équi}} = 3,22 \text{ k}\Omega$ (figures 1.2.3 et 1.2.4). La capacité de la jonction tunnel est en général de l'ordre de l'atto-Farad, elle peut donc être négligée. La résistance de la jonction tunnel est quant à elle supérieure à la résistance équivalente. C'est donc celle de la couche de mouillage qui est à l'origine de l'affaissement de la conductance à tension nulle. La résistance équivalente calculée est proche mais inférieure au quantum de résistance, ce qui justifie l'utilisation du modèle de blocage de Coulomb dynamique comme substitut macroscopique au modèle d'Altshuler-Aranov. La capacité équivalente de la couche de mouillage est quant à elle mille fois plus grande que celle calculée pour les nano-grains topographiques individuels constituant la couche de mouillage $C_{\text{topo}} = 5 \cdot 10^{-2} \text{ aF}$ (figure 1.2.1). Il n'est donc pas possible d'assimiler les grains à des sphères chargées et connectées pareillement entre elles. D'après la valeur de la capacité, l'échelle caractéristique est de l'ordre du micron et non du nanomètre $C_{\text{équi}}/ee_0 \sim 800 \text{ nm}$. Cette capacité effective relève donc d'un phénomène collectif plus complexe. L'approximation d'un circuit équivalent RC est cependant une bonne approche pour décrire simplement le spectre tunnel mesuré sur la couche de mouillage même s'il ne permet pas de décrire ce qu'il se passe à l'échelle microscopique ou particulière.

Le spectre tunnel mesuré dans les îlots est lui aussi affecté par le blocage de Coulomb dynamique : les électrons de conduction injectés dans l'îlot depuis la pointe par effet tunnel sont ensuite transmis dans la couche de mouillage par la périphérie des îlots et sont enfin évacués vers l'électrode finale [Brun 2012]. Pour mesurer le spectre tunnel de l'état normal dans l'îlot, on applique un champ magnétique supérieur au champ critique de transition. Le spectre obtenu est alors directement comparable à celui de la couche de mouillage. Plusieurs spectres ont été relevés sur des îlots de différentes tailles et sur des substrats de différents dopages ($1 \text{ }\Omega\text{cm}$ et $5 \cdot 10^{-3} \text{ }\Omega\text{cm}$). Deux d'entre eux sont présentés en figure 1.2.5.

Nous avons constaté que les spectres mesurés sur les îlots ont globalement un effet de blocage de Coulomb dynamique moins prononcé que ceux sur la couche de mouillage.

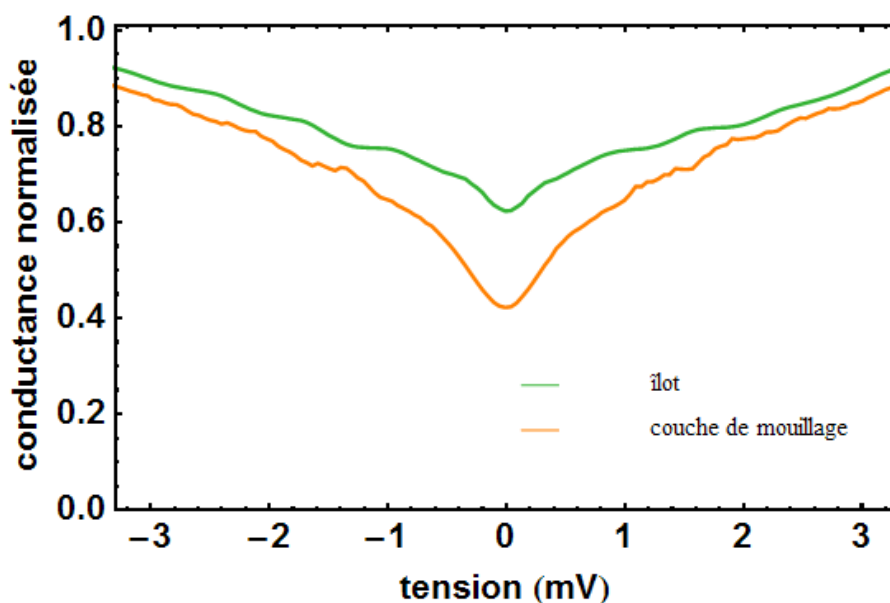


Figure 1.2.5 : Spectres affectés du blocage de Coulomb dynamique mesuré sur la couche de mouillage et sur un îlot dans l'état normal ($B = 1,8 T$). Les deux spectres proviennent d'une même mesure spectroscopique. La normalisation est faite à $\pm 5mV$.

Une hypothèse relative au blocage de Coulomb dynamique a été émise par C. Brun et al.: la capacité effective extraite du modèle ajusté aux courbes expérimentales mesurées sur les îlots dépendrait de leur taille [Brun 2012]. Les spectres de la figure 1.2.5 proviennent de la carte 1.2.4.h au chapitre IV. Il s'avère que les spectres relevés sur les trois îlots de cette même carte sont identiques, nous n'observons donc pas d'effet de la taille ni de forme sur le blocage de Coulomb dynamique dans cette expérience. En effet la capacité effective mesurée ne peut pas être uniquement celle des îlots, elle dépend également de la couche de mouillage puisque les électrons évacués la traversent et que l'échelle caractéristique du blocage de Coulomb dynamique, $C_{\text{équi}}/ee_0 \sim 800 \text{ nm}$, est supérieure à la taille des îlots, $D \sim 100 \text{ nm}$. Il n'a d'ailleurs pas été possible de trouver de couple R et C tel que la courbe théorique reproduise les courbes expérimentales sur les îlots. Le modèle du blocage de Coulomb dynamique du système îlots-couche de mouillage, requiert la considération d'un environnement plus complexe qu'un simple circuit RC pour décrire le transport via les îlots.

On pourrait supposer que l'effet du blocage de Coulomb est plus ou moins présent selon la zone de l'échantillon, c'est-à-dire la nature de l'environnement avoisinant l'îlot en question (densité d'îlots, qualité de la couche de mouillage, densité de marches monoatomiques de silicium,

etc). Des mesures spectroscopiques sont à faire pour développer cette idée.

Bien que l'énergie caractéristique du blocage de Coulomb dynamique soit le meV, l'effet mesuré au niveau de la couche de mouillage s'étend au-delà de 5 mV. En fait, l'effet serait encore visible à des énergies bien plus grandes que 5 meV. Il n'est alors pas évident de savoir quelle serait la valeur de la conductance à cette énergie-là en l'absence d'effet Altshuler-Aronov. Il n'est donc pas aisé de trouver une normalisation adéquate.

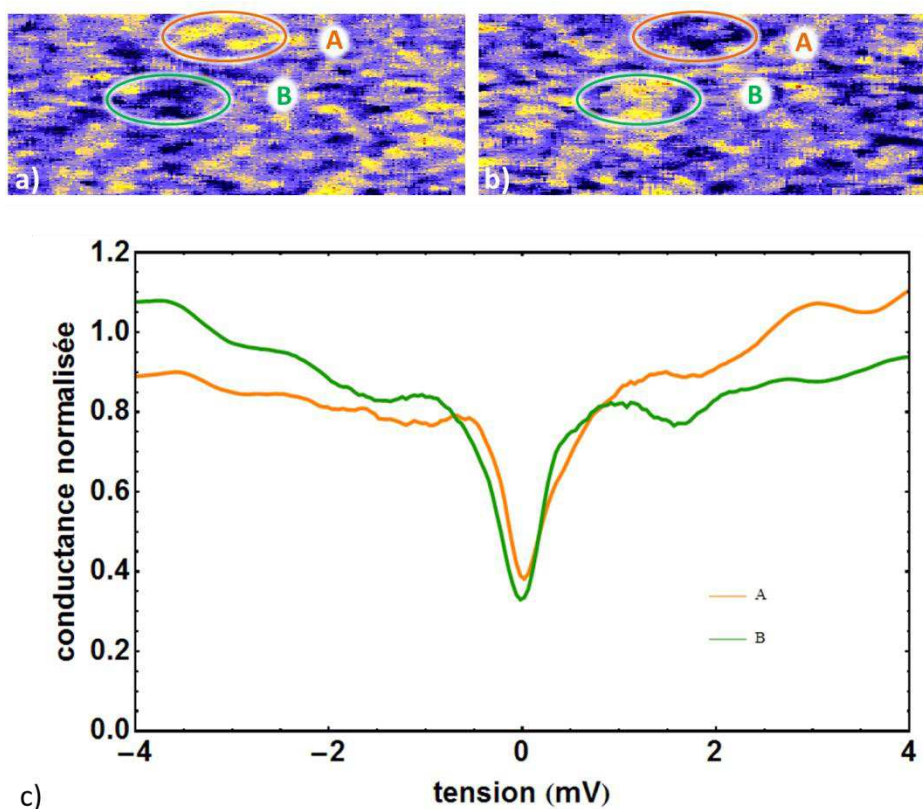


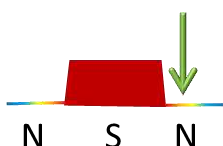
Figure 1.2.6 : **a.** et **b.** Cartes spectroscopiques mesurées sur la couche de mouillage à deux tensions différentes. **c.** Spectres relevés dans les zones A et B. La carte **a** est en CGap entre 4,0 et 4,2 mV. La carte **b** est en CGap entre - 4,0 et -4,2 mV. ($21 \times 55 \text{ nm}^2$, $C_{max} = 1,35 C_{norm}$, $C_{norm} = 60 \text{ nS}$).

De plus, on remarque que des zones incluant plusieurs grains de quelques nanomètres de diamètre, n'ont pas une conductance symétrique avec la polarisation de la tension, et que pour d'autres zones, cette asymétrie s'inverse (figure 1.2.6). Ces variations spatiales reflètent un phénomène microscopique complexe multi-échelle que cette première étude ne permet pas d'appréhender en détail.

Suivant les conditions de dépôt et le dopage du substrat, la structure de la couche de mouillage et les propriétés de transport ne sont *a priori* pas les mêmes pour toutes les expériences. Le blocage de Coulomb

dynamique apparaît légèrement plus faible dans l'échantillon plus dopé : le dopage de la couche modifie probablement une partie des propriétés électroniques, notamment celle de mieux écranter les charges. L'étude des propriétés supraconductrices et les calculs de DFT des monocouches cristallines $\sqrt{7} \times \sqrt{3}$ Pb sur Si(111) très dopé montrent que les fonctions d'onde électronique ne s'étendent pas loin dans le silicium [Hansmann 2013]. Le transport peut toutefois être modifié à l'interface en fonction des dopants présents à proximité. On peut penser que ceux-ci écrantent plus ou moins les charges, ce qui modifierait l'environnement électromagnétique, élément clé de la théorie du blocage de Coulomb dynamique appliquée aux systèmes désordonnés bidimensionnels.

1.3. Effet de proximité dans la couche désordonnée



Comme nous venons de le voir, la couche de mouillage est très désordonnée et les interactions entre électrons y sont fortes. Lorsque la couche de mouillage est cristalline, son état est supraconducteur à 300 mK (la température critique est de l'ordre du kelvin) [Qin 2009, Zhang 2010, Erez 2010], tandis que la couche amorphe ne l'est pas. L'ordre supraconducteur est-il dû à la structure ou au désordre ? En effet, le désordre peut amener à la destruction de la supraconductivité dans le scénario de Finkelstein. L'interaction coulombienne conduit à la répulsion entre électrons de conduction tandis que l'interaction supraconductrice est attractive. Le désordre réduit considérablement le libre parcours moyen, ce qui implique une diminution de la longueur de cohérence de l'état supraconducteur. Dans certains cas, la répulsion entre électrons augmente jusqu'à la suppression du gap induit dans la zone de proximité.

Malgré ce fort désordre, les corrélations supraconductrices se propagent-elles dans la couche de mouillage à proximité des îlots ? A l'inverse, les interactions entre électrons affectent-elles le paramètre d'ordre au bord des îlots ? Quelles sont les échelles d'énergie et de longueur mises en jeu dans un tel système ?

Les cartes spectroscopiques à proximité des îlots

Sur toutes les cartes spectroscopiques tracées à une tension inférieure à celle du gap, apparaît une auréole de conductance plus faible autour des îlots que partout ailleurs sur la couche de mouillage, ce qui traduit l'existence d'un gap induit autour du niveau de Fermi. Cette auréole

s'étend sur une vingtaine de nanomètres : malgré les fortes interactions répulsives entre électrons, les corrélations supraconductrices s'étendent donc dans la couche amorphe située autour des îlots supraconducteurs.

Cet effet de proximité a été étudié en détail au bord de l'îlot dont la topographie est présentée en figure 1.3.1. Il a une hauteur de 2,2 nm et une largeur de 120 nm ($D \cong 4 \xi_{eff}$). Plusieurs cartes spectroscopiques mesurées dans la zone encadrée de pointillés sont présentées en figure 1.3.2 à différentes tensions.

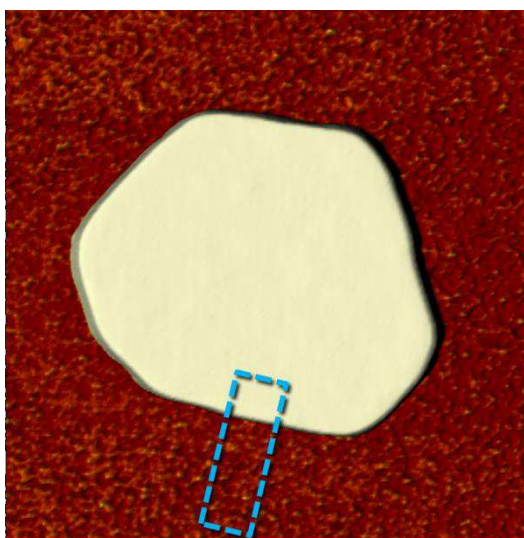


Figure 1.3.1 : Carte topographique. ($215 \times 215 \text{ nm}^2$, $47,6 \text{ mV}$, $0,069 \text{ nA}$, échelle z : de 0 à $2,1 \text{ nm}$).

Sur la carte **b** à tension nulle de la figure 1.3.2, la conductance sur l'îlot est celle de l'état supraconducteur (couleur rouge homogène). Loin de l'îlot, la conductance varie assez faiblement et sur une petite échelle spatiale (de 2 à 5 nm). Elle a pour valeur moyenne 0,6 en unité de normalisation à cause de l'anomalie de conductance à tension nulle du blocage de Coulomb dynamique. Entre les deux régions, la conductance sur la couche de mouillage varie progressivement du rouge proche de l'îlot au bleu loin de celui-ci : les paires de Cooper se propagent sur cette longueur caractéristique. Dans cette zone de proximité, la conductance a donc deux échelles de variation spatiale. D'une part, elle fluctue à courte distance, comme sur la zone loin de l'îlot. Ceci est dû à l'effet Altshuler-Aronov. D'autre part, elle évolue progressivement sur une distance de quelques dizaines de nanomètres, ce qui est dû à l'effet de proximité. A plus haute énergie (carte **c**), la zone rouge et jaune à proximité de l'îlot s'étend sur une distance plus courte. La plage d'énergie sur laquelle est sommée la conductance est plus élevée ($\pm 0,2-0,4 \text{ mV}$). La distance caractéristique sur laquelle les corrélations supraconductrices disparaissent dépend donc de l'énergie considérée.

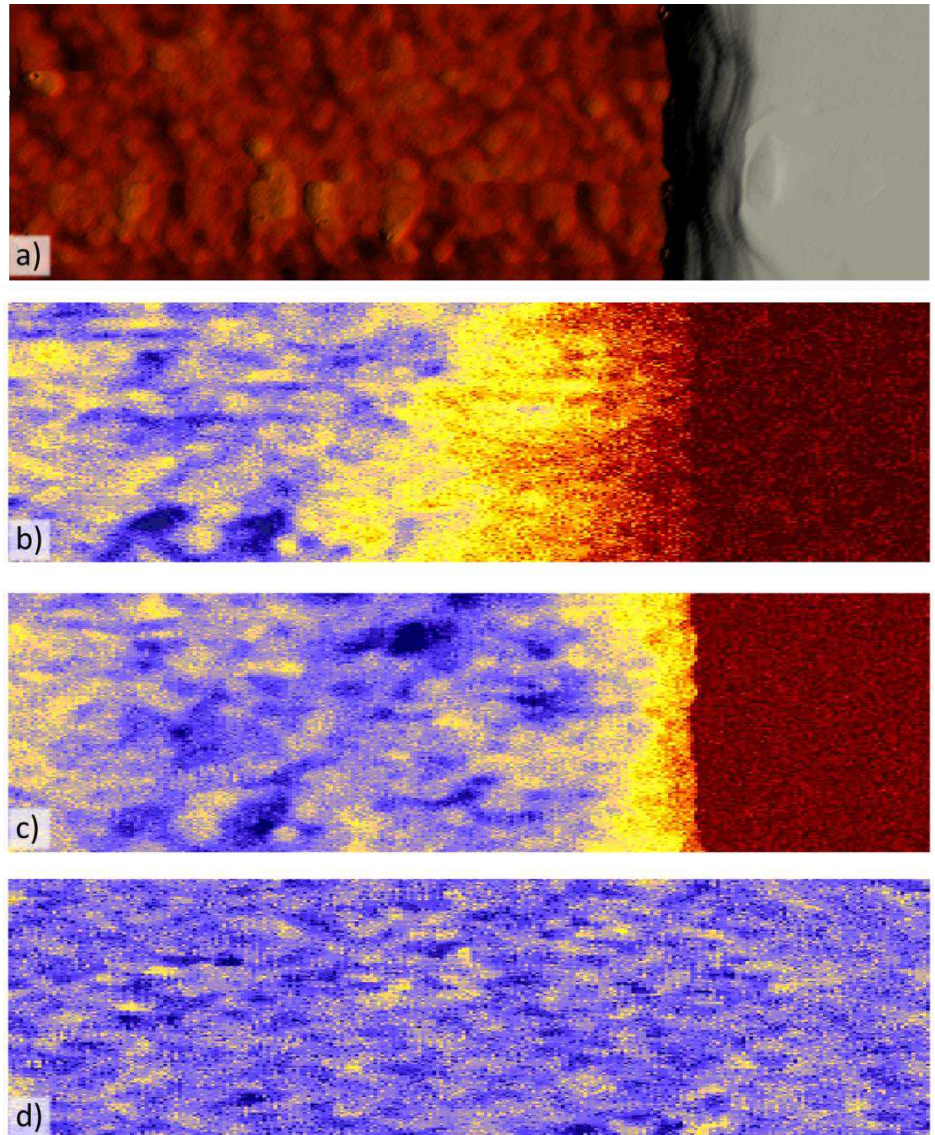


Figure 1.3.2 : **a.** Carte topographique de la zone d'étude ($21 \times 67 \text{ nm}^2$, $V = 48 \text{ mV}$, $I = 0,076 \text{ nA}$, échelle en z : de 0 à 2,1 nm). **b-d.** Cartes spectroscopiques en représentation CGap. **b.** Spectroscopie entre 0 et 0,2 mV. **c.** Spectroscopie entre 0,4 et 0,6 mV. **d.** Spectroscopie entre 4,0 et 4,2 mV.

Au-delà de 4 mV, la conductance est la même sur l'îlot et sur la couche de mouillage. L'énergie sondée est supérieure au gap supraconducteur et au gap induit par proximité. Contrairement à ce qu'on attend pour des structures cristallines, la conductance apparaît inhomogène sur l'îlot. Il est possible que la surface de l'îlot ait été détériorée par les mesures spectroscopiques comme semble le montrer l'image topographique.

Les spectres

L'évolution des spectres entiers en fonction de la distance à l'îlot est donnée par le graphe tridimensionnel en figure 1.3.3. La distance à l'îlot

évolue selon la verticale, la tension appliquée selon l'horizontale et le dernier axe correspond à la conductance normalisée. Les positions négatives correspondent à celles sur l'îlot, les spectres y sont identiques et reflètent la densité d'états BCS des îlots de Pb/Si(111). Au bord de l'îlot, on constate qu'un gap et des pics de quasiparticules sont présents dans le spectre. Contrairement au spectre supraconducteur, il a une forme en V plutôt qu'en U, mais les pics de quasiparticules ont la même amplitude et se trouvent aux mêmes énergies $\pm\Delta \cong 1,2 \text{ mV}$. Avec la distance, le spectre passe progressivement et continûment du spectre induit vers celui de l'état normal affecté du blocage de Coulomb dynamique. Les pics de quasiparticules induits décroissent sur une quinzaine de nanomètres et le gap induit se referme sur une quarantaine de nanomètres. Notons que le gap induit près de l'interface semble plus petit que le gap supraconducteur, mais une zone d'ombre qui s'étend sur 3 nanomètres autour de l'îlot ne permet pas de mesurer le gap induit à l'interface même.

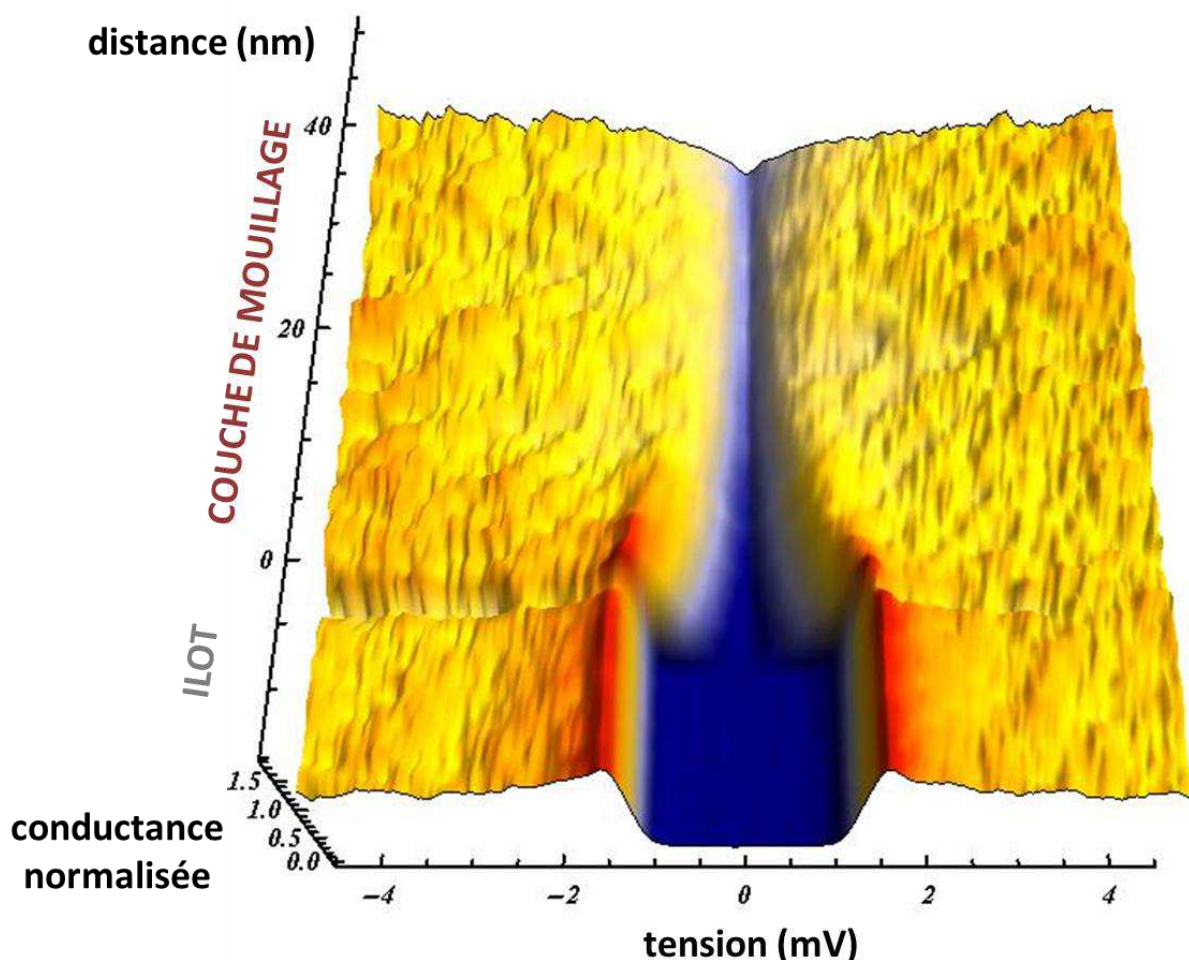


Figure 1.3.3 : Spectres en fonction de la distance à l'îlot. L'origine est placée au bord de l'îlot.

L'évolution de la conductance à tension nulle est souvent représentée en fonction de la position pour caractériser un effet de proximité. La

courbe obtenue pour un métal normal sans désordre en contact avec un supraconducteur BCS, suit une loi exponentielle du type : $C_{fermi}(x) = C_{fermi}(0)e^{-x/L_n}$ où L_n est la longueur caractéristique de l'effet de proximité [Guéron 1997]. On suppose ici que l'interface a une transparence quasi totale et que le paramètre d'ordre est nul dans la zone normale. On constate que dans le cas de la couche désordonnée de plomb, la conductance ne suit pas cette loi habituelle, mais une loi linéaire jusqu'à une trentaine de nanomètres de l'îlot (figure 1.3.4). Pour modéliser correctement l'effet de proximité, nous sommes contraints de tenir compte du blocage de Coulomb dynamique.

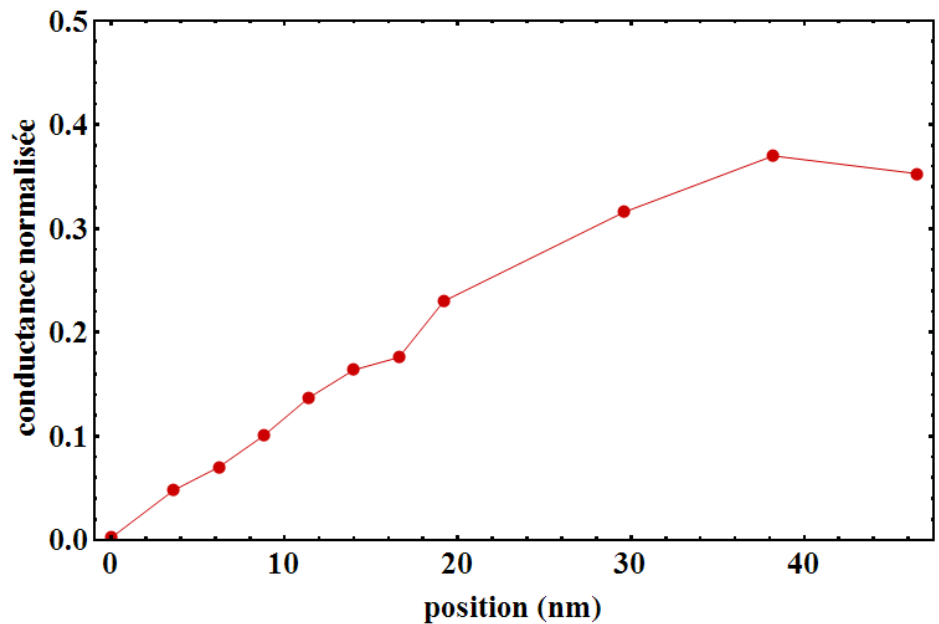


Figure 1.3.4 : Conductance à tension nulle (C_{Fermi}) de l'effet de proximité en fonction de la distance à l'îlot. L'origine est placée au bord de l'îlot. La valeur de l'état normal affectée du blocage de Coulomb dynamique est 0,4 en unité normalisée.

La modélisation

Nous avons simulé l'effet de proximité à partir du modèle d'Usadel unidimensionnel et du blocage de Coulomb dynamique [Usadel 1970, Ingold 2005].

Comme nous observons que le spectre de l'îlot le plus proche du bord présente un gap quasiment identique à celui dans le supraconducteur loin de l'interface (résolution spatiale : 1 nm, en tension : 0,05 mV), nous pouvons négliger l'effet de proximité inverse sur l'îlot. La résolution de l'équation d'Usadel s'en trouve simplifiée : nous ne la calculons que dans la partie métallique. Pour cela il nous faut connaître le gap induit à l'interface et la transparence de la barrière. Après plusieurs simulations, nous avons trouvé que la valeur du gap induit égale celle du

supraconducteur, $\Delta_{induit} = 1,2 \text{ meV}$ pour une transparence totale, $t = 1$. En supposant ensuite que le blocage de Coulomb est identique sur l'ensemble de la couche de mouillage, nous avons utilisé la fonction $P(E)$ déterminée précédemment loin des îlots (équation 1.2.1) et nous l'avons combinées aux solutions de l'équation d'Usadel comme une correction de la densité d'états (équation 1.3.1).

$$I(V) \propto \Gamma_{tip \rightarrow sample} - \Gamma_{sample \rightarrow tip}$$

$$\Gamma_{tip \rightarrow sample} = \int_{-\infty}^{+\infty} dE \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{sample, Usadel}(E) f(E)(1 - f(E - \varepsilon + eV))P(\varepsilon) d\varepsilon$$

Equation 1.3.1 : Expression du courant tunnel dans la couche de mouillage à proximité des îlots supraconducteurs. $\rho_{sample, Usadel}$ est la densité d'états obtenue après résolution de l'équation d'Usadel unidimensionnelle. $P(E)$ est la fonction simulant le blocage de Coulomb dynamique dont les paramètres ont été ajustés loin des îlots (voir section 1.1).

Les spectres tunnel théoriques sont représentés en figure 1.3.5 en parallèle des spectres expérimentaux issus de la figure 1.3.3. Ils ne dépendent plus que d'un seul paramètre ajustable, le coefficient de diffusion. Celui-ci est relié directement à la longueur de cohérence dans la couche normale : $\xi_n = \sqrt{\hbar D / \Delta}$.

On constate que les spectres théoriques reproduisent relativement bien l'évolution globale des spectres expérimentaux, à l'exception de la largeur des pics de quasiparticules qui sont systématiquement plus larges dans les mesures expérimentales pour des raisons que nous ne comprenons pas pour l'instant [Feigel'man 2012]. Plusieurs signatures sont notables lors de l'évolution de la forme des spectres et permettent d'ajuster avec précision la longueur de cohérence effective ξ_n dans la couche de mouillage.

Lorsqu'on éloigne la pointe de l'îlot, on voit que les pics de quasiparticules s'affinent mais que la distance qui les séparent reste la même $U_{pic-pic} = 2,4 \text{ mV}$. La conductance dans la fenêtre $[-1,2 \text{ mV}; +1,2 \text{ mV}]$ augmente : des états de quasi-particules apparaissent dans le gap induit. La valeur au niveau de Fermi reste cependant très faible. Par ailleurs, on observe un pic réentrant à $0,2 \text{ mV}$ (spectres rouges à $3,6 \text{ nm}$ pour l'expérience et à $0,35 \xi_n$ pour les calculs). A des distances plus grandes, les pic des quasiparticules diminuent peu à peu et la distance entre les pics se réduit. A $11,4 \text{ nm}$ et $0,80 \xi_n$, la forme en U dans le gap devient une forme en V. Au-delà d'une distance valant 18 nm dans l'expérience et $1,00 \xi_n$ dans les calculs, les pics de quasiparticules sont dominés par le creux du blocage de Coulomb dynamique, leur présence est encore perceptible grâce à l'inflexion visible à $1,2 \text{ mV}$.

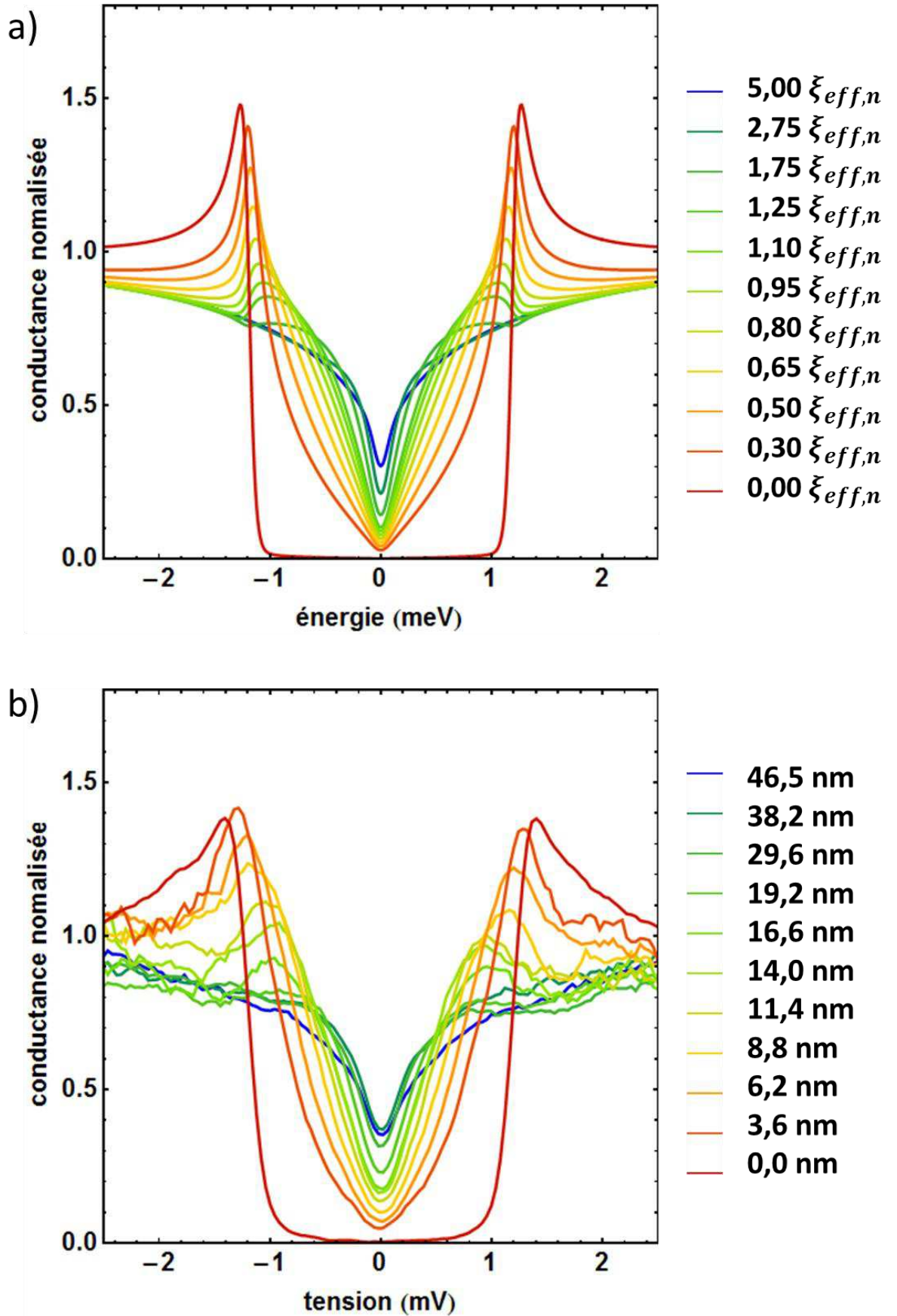


Figure 1.3.5 : Spectres tunnel théoriques calculés par Juan-Carlos Cuevas (a) et expérimentaux (b) de l'effet de proximité dans la couche de mouillage désordonnée en fonction de la distance à l'îlot supraconducteur.

L'effet de proximité devient indétectable à environ 45 nm à cause de l'élargissement de la forme en V et l'allure des spectres correspondant à ceux de la couche normale loin des îlots affectés du blocage de Coulomb dynamique.

La valeur de la longueur de cohérence est extraite de l'ajustement des données $\xi_n = 17 \text{ nm} \pm 3 \text{ nm}$. Elle est plus petite que la valeur obtenue pour une couche cristalline dans l'état normal, $\xi_{n,cristal} \cong 22 \text{ nm}$ [Kim 2012]. Le coefficient de diffusion D vaut alors pour la couche désordonnée 4,1 cm²/s, ($\xi_n = \sqrt{\hbar D / \Delta_{induit}}$). Cette valeur est en accord avec les mesures de transport réalisées dans une couche de mouillage similaire par Pfennigstorf et al [Pfennigstorf 2002]. Elle est cent fois plus petite que celle des métaux conventionnels, ce qui confirme que la couche de mouillage est un métal très désordonné.

Une question posée en début de cette section reste en suspens : quel est l'effet des interactions entre électrons sur l'ordre supraconducteur ? Quelle piste prendre pour modéliser ce type d'interactions et l'intégrer dans les équations quasi-classiques d'une interface entre un supraconducteur et un tel métal désordonné ? Les solutions de ces équations suffiraient-elles alors à corriger le ratio entre les courbes de conductance au niveau de Fermi ? Pourraient-elles donner un sens plus intuitif à la capacité effective obtenue dans la couche de mouillage ?

1.4. Effet de proximité sous champ magnétique

Nous avons étudié tout au long du chapitre IV la supraconductivité dans les îlots sous champ magnétique. Nous avons vu que des courants Meissner circulent aux bords, que leur densité s'accroît avec l'augmentation du champ magnétique, et qu'elle est réduite lors de la pénétration de vortex. Lorsque ces courants sont élevés, ils peuvent également affecter le paramètre d'ordre. Puisque le champ magnétique influe sur le condensat dans les îlots supraconducteurs, qu'en est-il de l'effet de proximité ? L'énergie cinétique acquise par les paires de Cooper réduit-elle la longueur caractéristique sur laquelle elles se propagent dans la couche de mouillage ? Le paramètre d'ordre affecté aux bords des îlots diminue-t-il l'amplitude du gap induit ?

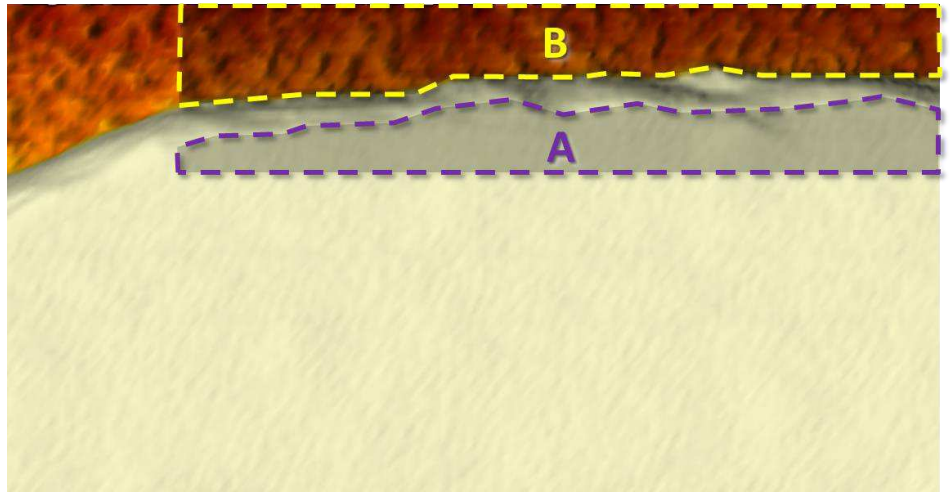


Figure 1.4.1 : carte topographique du bord d'un îlot. Sa hauteur est de 2,1 nm, sa forme est allongée avec pour grand axe 140 nm et petit axe 60nm. ($86 \times 43 \text{ nm}^2$, 24 mV, 0,078 nA, échelle z : de 0 à 2,1 nm).

Pour comprendre l'effet du champ magnétique, nous avons procédé à des mesures spectroscopiques au bord d'un îlot dont la topographie est présentée en figure 1.4.1. Les spectres moyens obtenus dans les zones A et B sont exposés en figure 1.4.2 et 1.4.3.

Les spectres au bord de l'îlot (zone A) voient leurs pics de quasi-particules diminuer et le gap en tension se refermer sous l'effet des courants Meissner [Kohen 2006]. L'entrée du premier vortex induit un saut dans la figure spectrale entre 0,60 T et 0,66 T : la conductance au niveau de Fermi n'est plus nulle (figure 1.4.4).

Les spectres à proximité de l'îlot (zone B) ont quant à eux une réduction progressive du gap induit. Etant relevée à une distance de 10 nm de l'îlot, la conductance moyenne au niveau de Fermi n'est jamais nulle (figure 1.4.4). Elle augmente d'environ 0,2 en unité de normalisation. On notera bien que les spectres sont mesurés tous les 0,11 T, à l'exception du spectre à 0,63 T. En effet, la conductance au niveau de Fermi varie brutalement entre les spectres à 0,62 T et 0,63 T. Ce petit saut, bien visible sur la figure 1.4.4, correspond à l'entrée du vortex dans l'îlot.

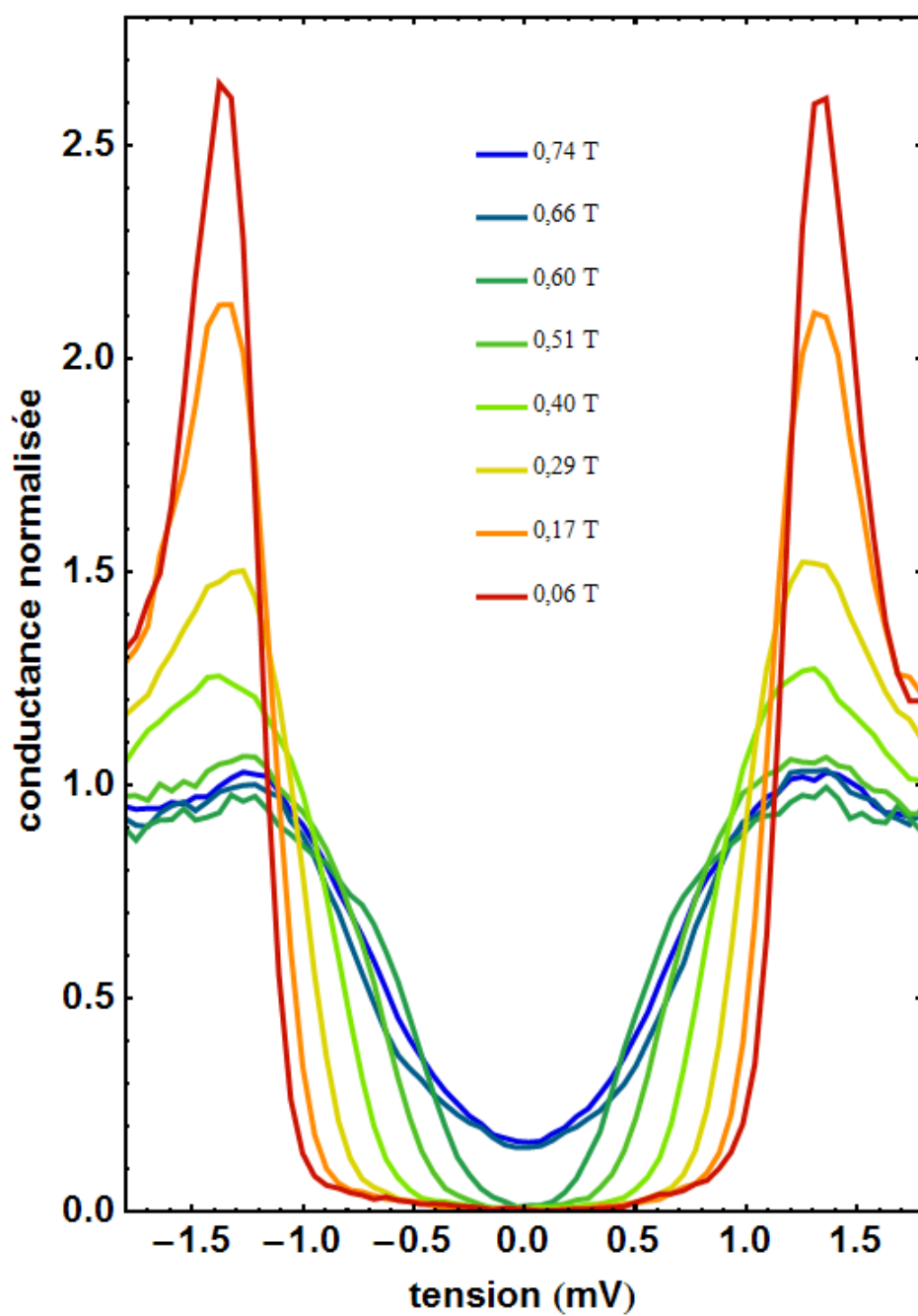


Figure 1.4.2 : Spectres moyens mesurés sur l'îlot dans la zone A (figure 2.4.1) en fonction du champ magnétique.

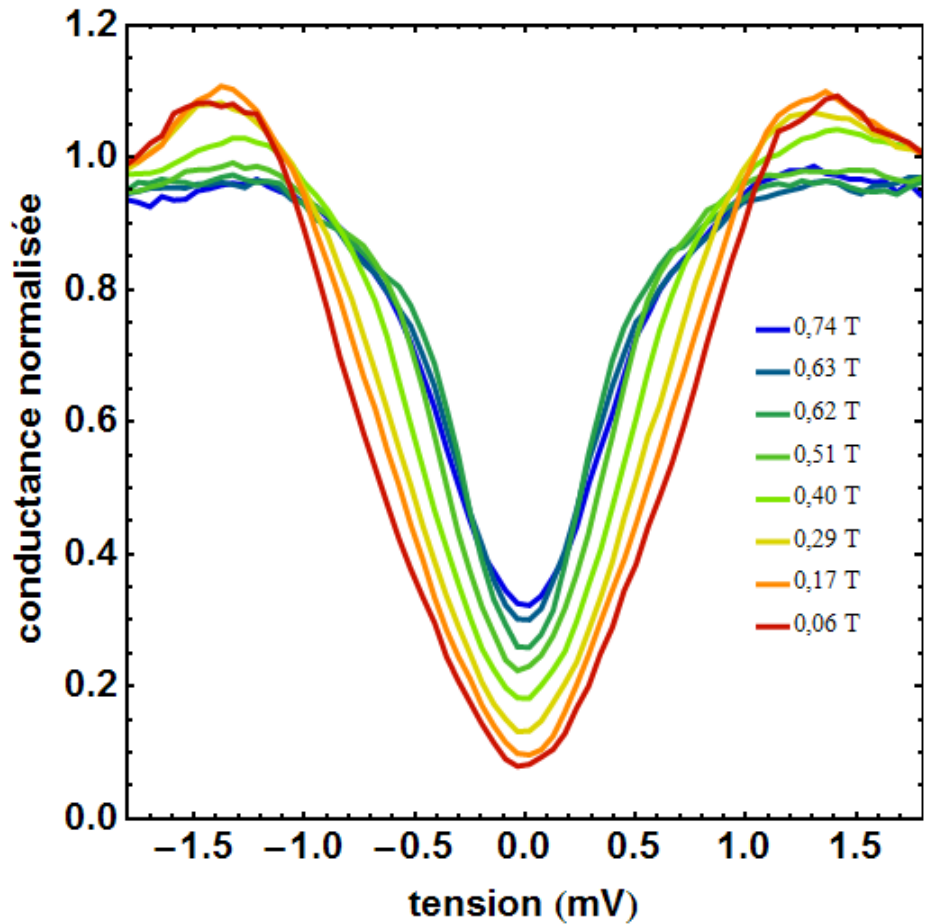


Figure 1.4.3 : Spectres moyens mesurés à proximité de l'îlot dans la zone B (figure 2.4.1) en fonction du champ magnétique.

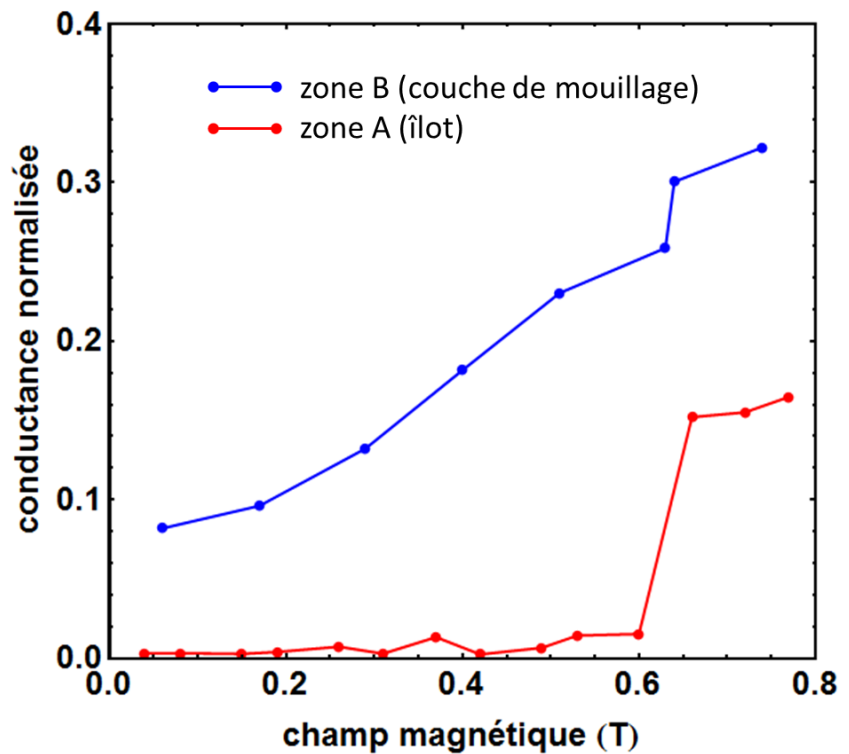
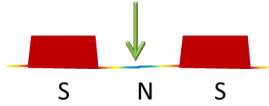


Figure 1.4.4 : Conductance au niveau de Fermi en fonction du champ magnétique appliqué, à proximité de l'îlot (courbe bleue) et au bord de l'îlot (courbe rouge). (figure 1.4.2 et 1.4.3).



2. Vortex Josephson

Comme nous venons de le voir, l'effet de proximité autour des îlots de Pb/Si(111) s'étend sur quelques longueurs de cohérence de la couche ξ_n . De fait, on comprend bien que lorsqu'on trouve deux îlots séparés de cette distance, les effets de proximité autour de chacun se recouvrent et forment une jonction de proximité dite Josephson. Nous avons sondé ces jonctions longues, en l'absence de champ magnétique dans un premier temps. Puis nous les avons utilisées pour générer des vortex Josephson sous champ magnétique. Les vortex Josephson sont des objets dont l'existence même du cœur a fait l'objet d'un vif débat. Nous avons donc cherché à sonder ces vortex expérimentalement.

2.1. Introduction

Considérons deux électrodes supraconductrices séparées par une fine couche isolante. Des deux côtés de la barrière d'énergie, les électrons forment des paires de Cooper au niveau de Fermi. Deux électrons d'une paire de Cooper sont donc transférés par effet tunnel simultanément et de façon cohérente entre les deux supraconducteurs. Si la phase des deux fonctions d'onde de chaque condensat est différente, alors un courant supraconducteur lié à la différence des phases traverse la jonction. B. Josephson a montré en 1962 que ce courant supraconducteur s'exprimait en fonction de la différence de phase $\Delta\varphi_{inv}$ à l'aide des relations suivantes 2.1.1 et 2.1.2 [Lévy 1997, Tinkham 2004].

$$\Delta\varphi_{inv} = \Delta\varphi - \left(\frac{2\pi}{\Phi_0}\right) \int_c \mathbf{A} \cdot d\mathbf{S}$$

Equation 2.1.1 : Différence de phase locale invariante de jauge. Le terme dépendant du potentiel vecteur consiste en une intégrale de chemin entre les deux électrodes de la jonction.

$$J = J_c \sin(\Delta\varphi_{inv})$$

Equation 2.1.2 : Relation Josephson. J est le courant Josephson entre deux points de part et d'autre de la jonction. J_c est le courant critique et $\Delta\varphi$ est le déphasage invariant de jauge entre les fonctions d'onde des deux condensats supraconducteurs.

On constate que le courant entre deux points de part et d'autre de la jonction oscille avec la différence de phase. Cette différence de phase peut avoir différentes causes comme l'application d'un champ

magnétique à travers la jonction ou encore la circulation de courants à la périphérie des deux supraconducteurs.

Sous l'application d'un champ magnétique, l'expression du courant critique J_c intégrée sur toute la jonction prend la forme d'une figure d'interférences comme celle de l'intensité lumineuse diffractée par une fente optique (équation 2.1.3, figure 2.1.2). Quel que soit le déphasage loin de la jonction, le courant J s'annule à chaque fois que le flux traversant est un multiple d'un quantum de flux $\Phi_0 = h/2e$. Chaque minimum de courant est alors interprété en terme de nucléation d'un vortex Josephson dans la partie isolante.

$$J_c = J_{c0} \operatorname{sinc}\left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)$$

Equation 2.1.3 : Expression du courant lorsqu'un champ magnétique traverse la zone isolante. Φ est le flux magnétique à travers la jonction et Φ_0 est le quantum de flux.

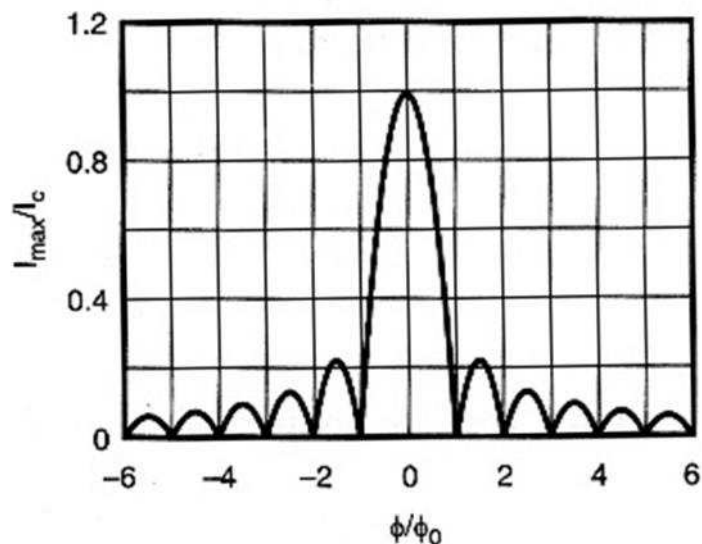


Figure 2.1.2 : Courant critique Josephson J_c lorsqu'un champ magnétique traverse une jonction longue.

L'effet Josephson reste valable lorsqu'on remplace la fine couche isolante par un métal normal. En effet, nous venons de voir dans la section 1 qu'un effet de proximité dans la zone normale permet de propager les corrélations supraconductrices sur une longueur caractéristique de quelques dizaines de nanomètres. On peut donc tenter de créer des vortex Josephson dans des jonctions de proximité et venir les sonder avec un microscope à effet tunnel.

2.2. Jonction Josephson

Nous avons créé des jonctions Josephson en augmentant la densité d'îlots jusqu'à ce que l'espacement entre eux soit plus petit que quelques longueurs de cohérence dans la couche ξ_n , où $\xi_n \cong 17 \text{ nm}$. Voyons à présent comment se présentent ces jonctions Josephson en l'absence de champ magnétique.

Commençons par une jonction dont l'image topographique STM est présentée en figure 2.2.1 et la conductance tunnel au niveau de Fermi en figure 2.2.2. Deux îlots sont distants de 45 nm, soit $3 \xi_n$. On constate qu'ils sont « connectés » à travers la couche de mouillage normale : un pont de conductance nulle (en rouge) les relie de part et d'autre de la jonction.

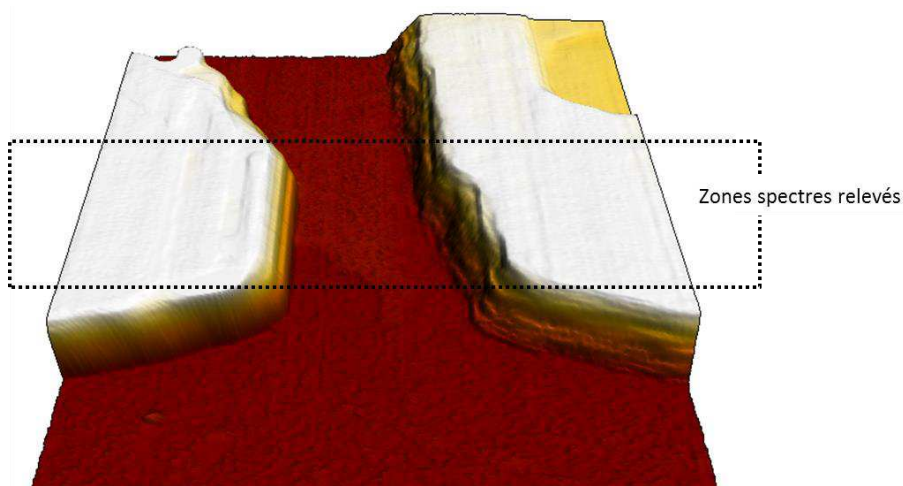


Figure 2.2.1 : Carte topographique 3D d'une jonction Josephson longue. ($348 \times 155 \text{ nm}^2$; 24 mV ; $0,060 \text{ nA}$; échelle z : de 0 à $4,3 \text{ nm}$).

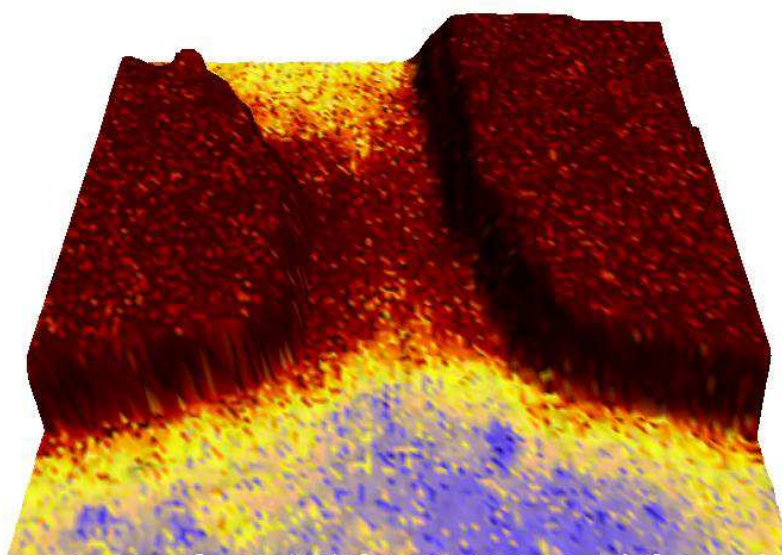


Figure 2.2.2 : Carte spectroscopique 3D, en représentation C_{fermi} , de la jonction Josephson longue (figure 3.2.1). ($348 \times 155 \text{ nm}^2$).

Une représentation en couleur des spectres mesurés dans cette zone (encadré en pointillés, figure 2.2.1) est donnée en figure 2.2.3. L'axe des ordonnées correspond à la tension appliquée et l'axe des abscisses à la position dans la jonction. Enfin la perspective 3D et la couleur codent la conductance. Le rouge, haute conductance, indique la position des pics de quasiparticules dans les supraconducteurs, le bleu, basse conductance, le gap supraconducteur et le gap induit.

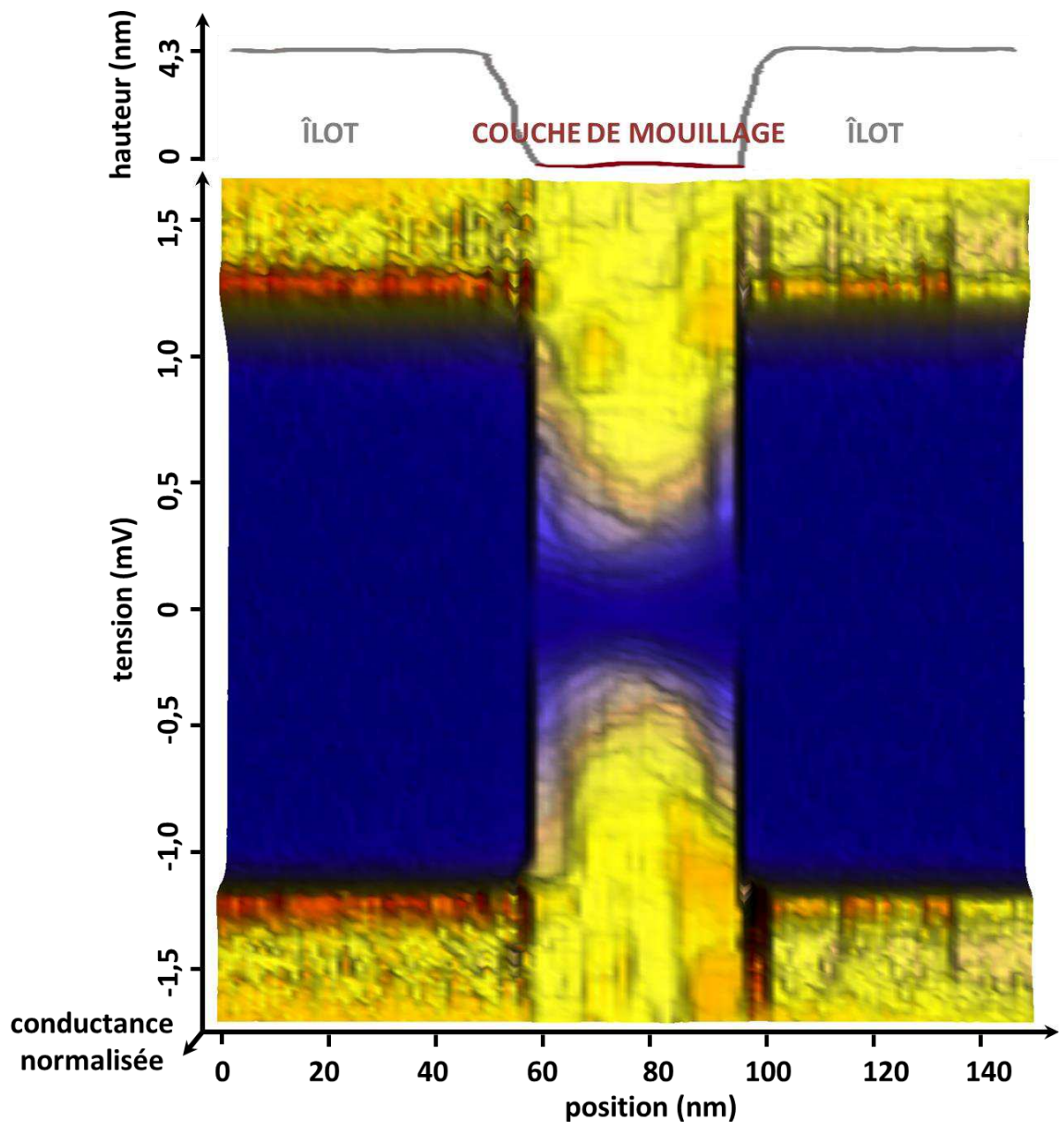


Figure 2.2.3 : Spectres tunnel 3D en fonction de la position le long de la jonction Josephson (figure 3.1.1).

On remarque que les spectres sur les deux îlots sont identiques. Les pics de quasiparticules ont la même amplitude et se trouvent à la même énergie ($\Delta = 1,2 \text{ mV}$). Aux bords des deux îlots, les spectres ne semblent pas affectés par l'effet de proximité inverse. Au niveau de la couche de mouillage, le gap induit évolue le long de la jonction mais ne

se referme pas. Une zone d'ombre due à la pointe STM empêche de connaître sa forme juste aux pieds des îlots (chapitre II). Le gap induit diminue progressivement avec la distance aux îlots jusqu'à atteindre sa valeur minimale au centre de la jonction. Les spectres sont relativement symétriques de part et d'autre du centre de la jonction.

Les spectres en fonction de la position dans la jonction sont superposés sur la figure 2.2.6. Les spectres théoriques calculés par Juan-Carlos Cuevas sont exposés en figure 2.2.4 et 2.2.5. A la différence de l'effet de proximité sans jonction (figure 1.1.2), on constate qu'un mini gap est présent sur l'ensemble des spectres. Il se dessine clairement sur le graphe qui ne tient pas compte du blocage de Coulomb dynamique, où il se trouve délimité par deux pics de quasiparticules au milieu de la jonction, $x = 0.5 L$. La valeur extraite est $\Delta_{induit} \cong 0,6 meV$.

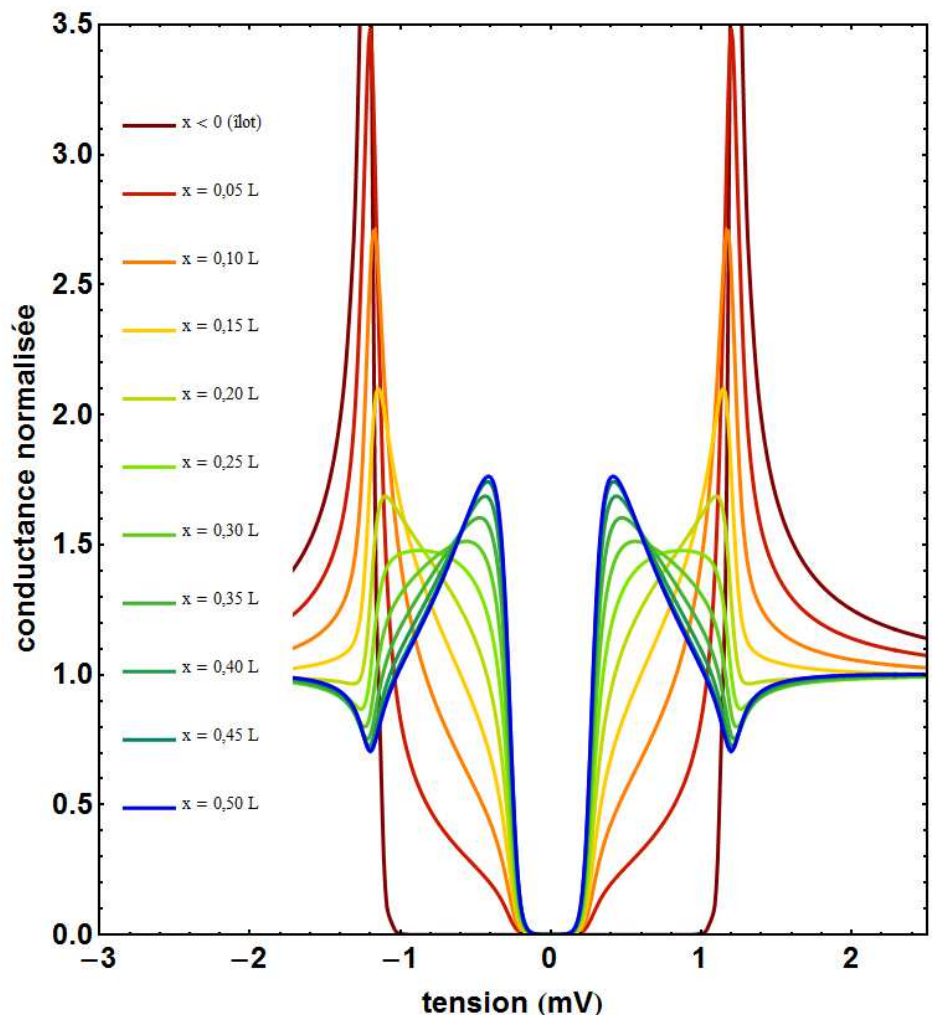


Figure 2.2.4 : Spectres tunnel calculés par J.-C. Cuevas sans tenir compte du blocage de Coulomb dynamique, en fonction de la position x le long de la jonction Josephson (figure 3.1.1). En comparant la forme des pics de quasiparticules et la largeur du mini gap à $x = 0,5 L$ entre calculs et expérience, le meilleur ajustement de l'ensemble des spectres a été obtenu pour une longueur $L = 3,5 \xi$.

Les spectres théoriques sont relativement similaires aux spectres expérimentaux (figure 2.2.5 et 2.2.6). Une variation brusque entre les spectres expérimentaux à $x = 0$ et $x = 1,3$ nm ne semble pas être reproduite dans les spectres théoriques. La zone d'ombre qui s'étend sur environ 3 nm au bord de l'îlot ne permet pas de connaître l'origine exacte des positions de l'effet de proximité, ni la présence ou non d'un effet de proximité inverse sur cette distance.

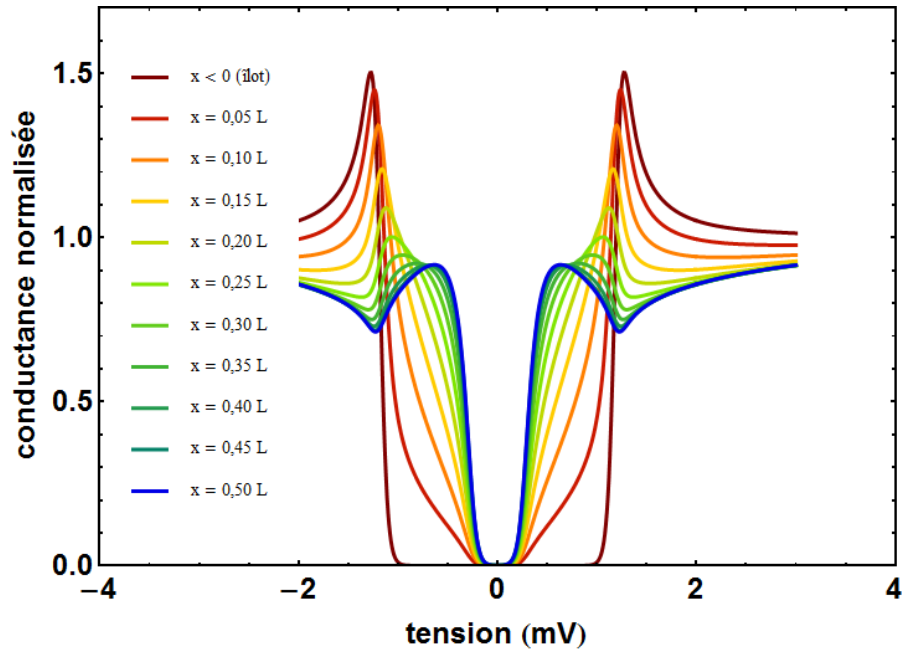


Figure 2.2.5 : Spectres tunnel calculés par J.-C. Cuevas en tenant compte du blocage de Coulomb dynamique comme expliqué en section 1.2, en fonction de la position le long de la jonction Josephson de longueur $L = 3,5 \xi$.

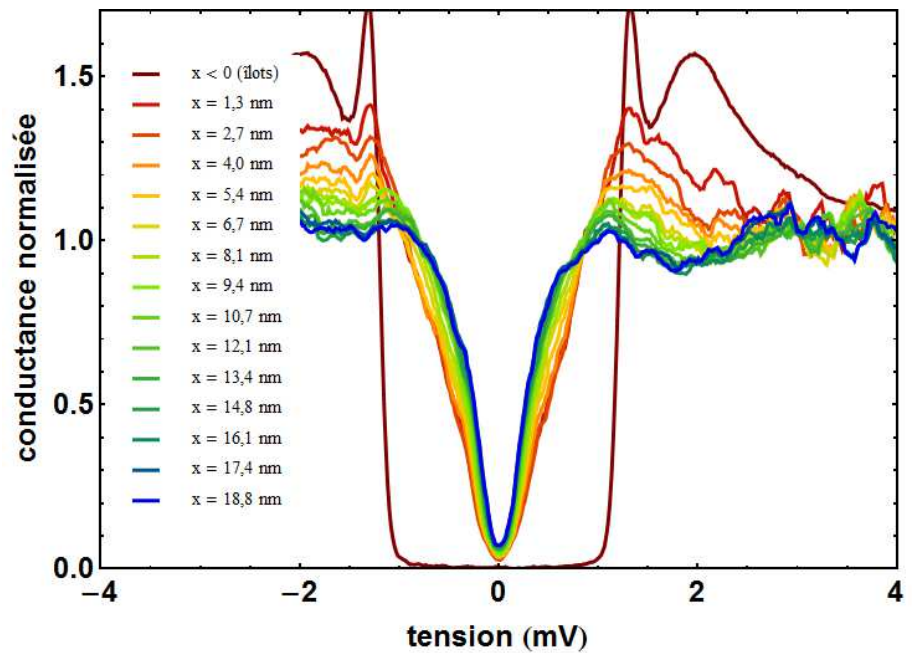


Figure 2.2.6 : Spectres tunnel expérimentaux en fonction de la position x le long de la jonction Josephson de longueur $L = 45 \text{ nm}$ (figure 2.2.3). Les pics à $\pm 2 \text{ mV}$ sont très certainement des états liés à la pointe.

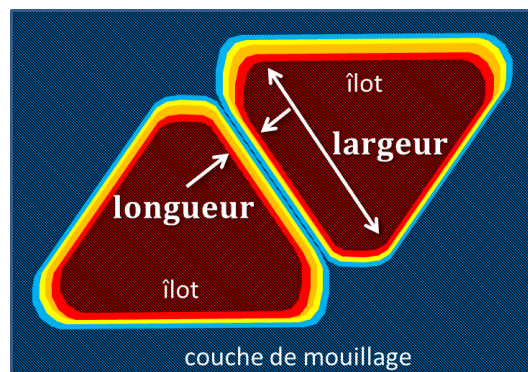
On constate que les spectres dans les îlots ne semblent pas affectés par la jonction. En effet, les calculs en Ginzburg-Landau (en cours) montrent que les organisations des vortex dans les îlots sans couplage est identique à celles observées expérimentalement. Les îlots sont donc faiblement couplés, ce qui fait qu'on a pu analyser l'organisation des vortex au chapitre IV en négligeant les jonctions et les îlots voisins. Clairement, les îlots se comportent comme des réservoirs vis-à-vis de la jonction. Ceci n'est guère surprenant car ils sont très massifs comparés à la couche de mouillage. S'ils avaient été plus fins, de l'ordre de trois monocouches, on aurait sans doute commencé à voir un effet de proximité inverse.

2.3. Vortex Josephson

Description des jonctions Josephson en l'absence de champ magnétique

Dans l'expérience présentée en figure 2.3.1 (carte **a**), les îlots sont tous de forme allongée suivant la même direction, celle des marches monoatomiques du substrat. Ils admettent chacun au moins un îlot voisin à moins de 30 nm ($\cong 2 \xi_n$).

Les caractéristiques géométriques et spectrales des différentes jonctions Josephson sont répertoriées dans le tableau 2.3.1.



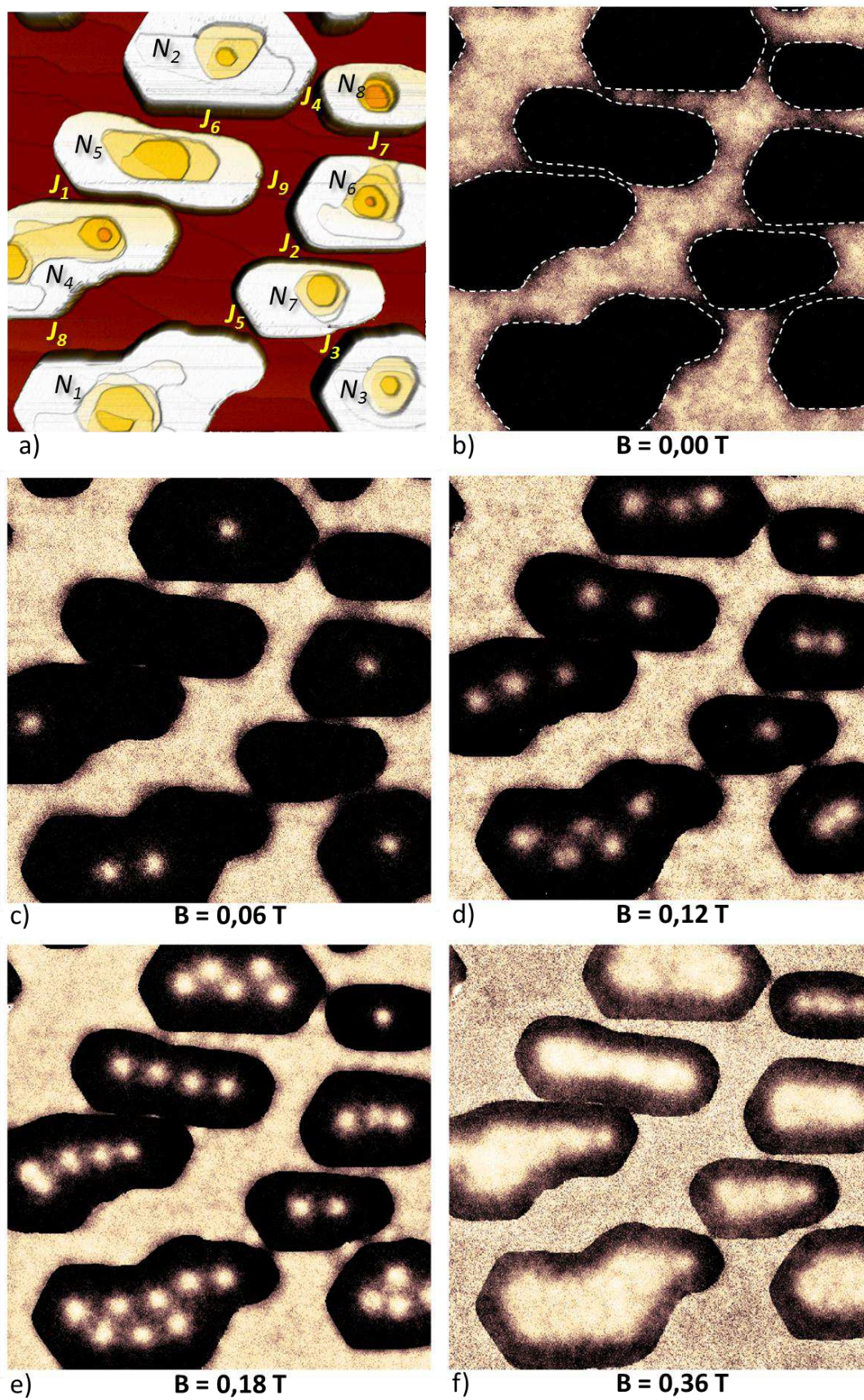


Figure 2.3.1 : a. Carte topographique. b-f. Cartes spectroscopiques en CFermi sous champ magnétique. La périphérie des îlots est indiquée par un tracé en pointillés blancs sur la carte à zéro champ. ($1063 \times 1063 \text{ nm}^2$, 24 mV , $0,06 \text{ nA}$, échelle z : 0 à $7,3 \text{ nm}$).

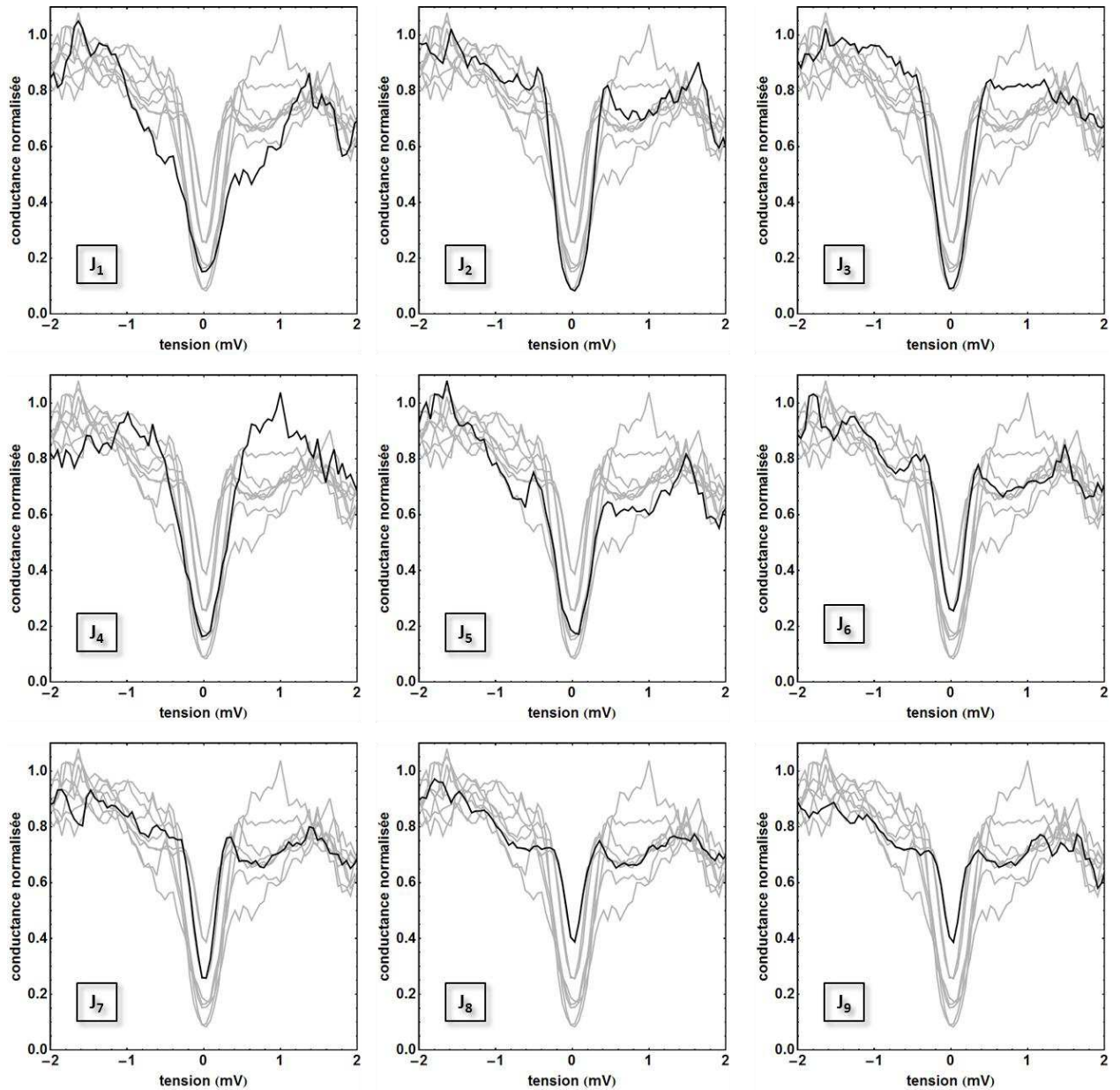


Figure 2.3.2 : Spectres tunnel relevés au centre de chaque jonction Josephson (figure 3.2.1).

jonction	longueur	largeur	forme	CFermi	Gap à mi-hauteur
J1	10 nm	300 nm	ligne	< 15 %	> 0,58 meV
J2	25 nm	220 nm	ligne	8 %	0,55 meV
J3	25 nm	200 nm	coin	8 %	0,52 meV
J4	20 nm	90 nm	coin	16 %	0,58 meV
J5	20 nm	90 nm	coin	17 %	0,52 meV
J6	40 nm	300 nm	ligne	25 %	0,32 meV
J7	60 nm	120 nm	ligne	25 %	0,29 meV
J8	95 nm	20 nm	coin	38 %	0,19 meV
J9	110 nm	20 nm	coin	38 %	0,19 meV

Tableau 2.3.1 : Caractéristiques géométriques et spectrales des jonctions Josephson (figures 2.3.1 et 2.3.2)

Dans le tableau 2.3.1, nous définissons la longueur des jonctions comme étant la distance la plus courte entre deux îlots (voir schéma page 148). La largeur des jonctions est quant à elle la distance sur laquelle s'étend le pont supraconducteur parallèlement aux bords. Sur la carte spectroscopique **b** à champ nul, des ponts foncés montrent bien les différentes jonctions. On distingue deux catégories de jonctions, celles formées entre deux côtés parallèles d'îlots et celles formées entre deux coins. La forme des premières est appelée linéaire et celles des secondes en coin.

Pour faciliter la lecture du tableau, on a surligné en marron les cases pour lesquelles la longueur de la jonction est inférieure à deux fois la longueur de cohérence ξ_n , et en bleu celles pour lesquelles la largeur est supérieure à deux fois la longueur de cohérence. Les cases sont surlignées en gris lorsque la forme est une ligne.

Des spectres relevés au centre de chacune de ces jonctions sont exposés en figure 2.3.2. Les jonctions ont été numérotées selon la largeur du gap induit au milieu de la jonction. La conductance au niveau de Fermi et la largeur du gap induit à mi-hauteur (50% de la conductance normalisée) sont reportées dans les deux dernières colonnes du tableau 2.3.1.

On constate que globalement, plus la longueur de la jonction est grande, plus le gap induit est petit. Il existe plusieurs mécanismes possibles responsables de la perte de cohérence dans un métal normal diffusif. La propagation des corrélations est associée à une énergie qui est celle du mécanisme dominant. Dans notre cas, les énergies en compétition sont le gap induit par proximité, $\Delta_n \cong 1,2 \text{ meV} \sim 10^0 \text{ meV}$, et l'énergie thermique, $k_B T \cong 0,03 \text{ meV} \sim 10^{-1} \text{ meV}$. Dans les systèmes diffusifs, les énergies sont souvent reliées à une longueur caractéristique, $l = \sqrt{\hbar D/E}$, où D est le coefficient de diffusion et E l'énergie dont il est question. On trouve ainsi que la longueur de cohérence induite, $\xi_n \cong 17 \text{ nm}$, est plus petite que la longueur thermique, $l_T \cong 100 \text{ nm}$. Les paires de Cooper sont donc fortement diffusées dans la couche, ce qui se traduit par un affaissement des pics de quasiparticules sur la distance ξ_n (figure 2.2.4). Mais les corrélations supraconductrices se propagent au-delà, jusqu'à la longueur caractéristique expérimentale L_N , plus généralement appelée L_ϕ , et qui correspond ici en ordre de grandeur à la longueur thermique l_T . Les îlots espacés de plus de deux fois cette distance ne présentent pas de pont supraconducteur en CFermi ni de vortex Josephson de proximité sous champ magnétique (par exemple les îlots N5 et N7, figure 2.3.1). On comprend bien qu'une jonction longue admet un gap induit plus petit au centre qu'une jonction courte (J2 et J6).

On remarque également que plus les coins des îlots sont anguleux et plus le gap induit au centre de la jonction est réduit (J3 et J5). En effet, le spectre local dépend de ce qu'il se passe dans un rayon de quelques ξ_n . Or le pont de proximité est de plus en plus faible avec la distance croissante entre les deux îlots. La signature des corrélations au centre de la jonction diminue donc.

Description des jonctions Josephson en présence de champ magnétique : observation des vortex Josephson

Afin de répondre à la question de la présence ou non d'états de cœur dans les vortex Josephson, des cartes spectroscopiques ont été mesurées à différentes valeurs du champ magnétique : 0,06 T, 0,12 T, 0,18 T et 0,26 T (figure 2.3.1).

Ces cartes sont celles exposées en représentation CGap au chapitre IV, lors de l'étude de l'organisation des vortex dans les îlots. Comme expliqué en section précédente 2.2, les îlots sont faiblement couplés entre eux. L'étude de l'organisation des vortex, appelés par la suite de Pearl par opposition aux vortex Josephson de proximité, a donc pu être analysée sans tenir compte des effets de proximité.

Sur la carte à plus bas champ (carte **c**), un vortex Josephson est présent dans la jonction J6. Ce vortex apparaît comme une ellipse normale (blanche) traversant de part en part la jonction. Il est localisé au centre de la jonction, c'est la zone où l'effet de proximité dans cette région est le plus faible. Il est sans doute affecté par un défaut limitant la propagation des corrélations supraconductrices.

A 0,12 T, la jonction en coin J3 possède elle aussi un vortex (carte **d** figure 2.3.1 et carte **b** figure 2.3.3). Celui-ci ressemble également à une ellipse normale joignant les deux îlots. Il n'est pas situé au centre de la jonction malgré l'absence de défaut, mais sur une aile de la jonction. Pour minimiser l'énergie Josephson, c'est-à-dire l'énergie cinétique des courants qui traversent la jonction, le pont supraconducteur est maintenu là où les îlots sont les plus proches. A 0,18 T, le deuxième vortex se place sur l'autre aile de la jonction (carte **e** figure 3.2.1 et carte **c** figure 2.3.3). Il en est de même pour les autres jonctions en coin J4 et J5.

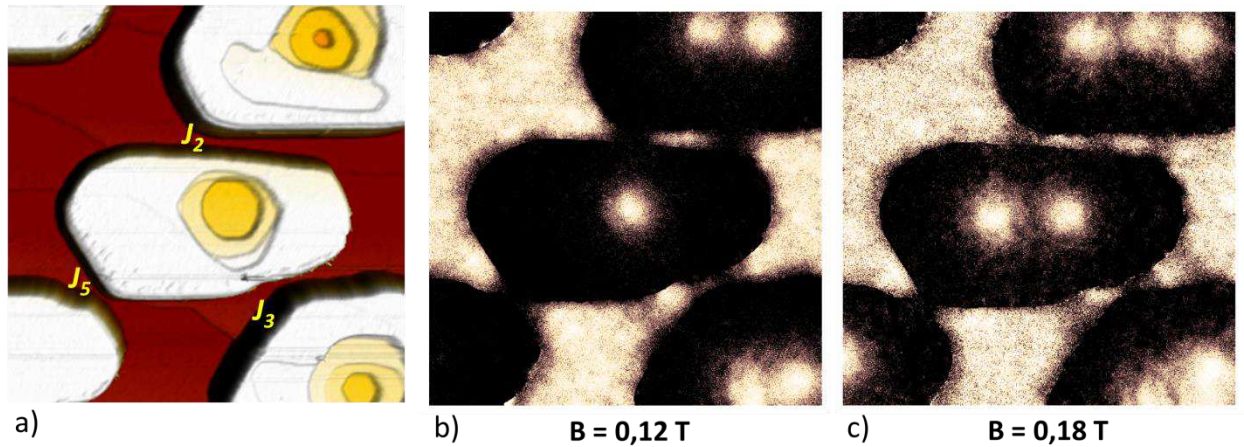


Figure 2.3.3 : **a.** Carte topographique. **b-c.** Cartes spectroscopiques en CFermi sous champ magnétique des jonctions J₂, J₃ et J₅. ($490 \times 490 \text{ nm}^2$, 24 mV , $0,061 \text{ nA}$, échelle z : 0 à $7,3 \text{ nm}$).

En somme, les jonctions J₁ à J₇ admettent des vortex (cases en violet dans le tableau 2.3.1). Les jonctions J₈ et J₉ ne semblent pas en avoir, mais la mesure n'est pas assez sensible pour le savoir.

Afin de caractériser davantage les vortex Josephson, des spectres tunnel sont mesurés en leur cœur (figure 2.3.4). Les spectres de référence suivants, mesurés à champ nul, sont reportés sur le même graphe : celui supraconducteur sur les îlots, celui normal sur la couche de mouillage, et celui Josephson au centre de la jonction J₂. On constate que le spectre au cœur du vortex Josephson est identique au spectre dans l'état normal et à celui relevé aux cœurs des vortex créés dans les îlots. On en déduit qu'au centre du vortex Josephson, les corrélations supraconductrices sont détruites et la densité d'états électroniques normale est restaurée.

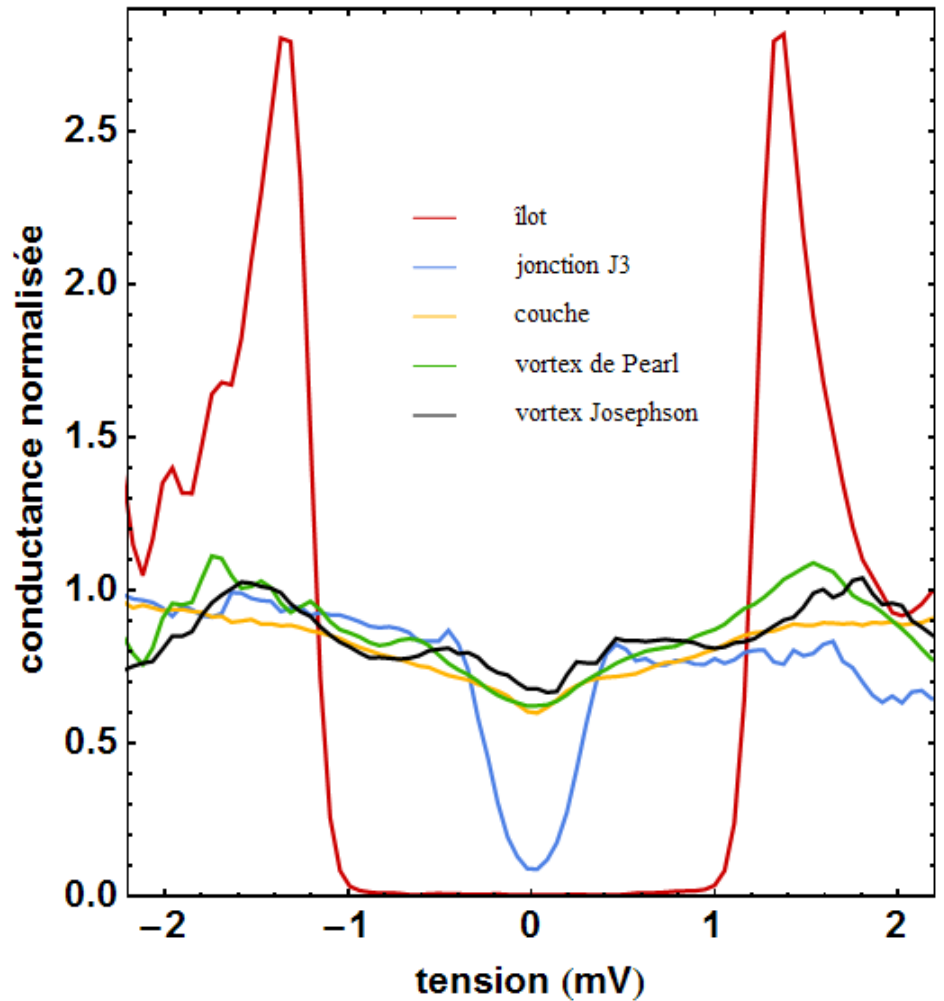


Figure 2.3.4 : Spectres tunnel relevés sur les îlots supraconducteurs (rouge), sur la couche de mouillage dans l'état normal (jaune), au centre de la jonction J3 (bleu), au cœur des vortex de Pearl (vert) et au cœur des vortex Josephson (noir) (figure 2.3.1).

Nous allons maintenant discuter des mécanismes qui conduisent à la formation des vortex Josephson dans les jonctions de proximité. Comme nous allons le montrer, l'origine du phénomène peut être comprise en termes de différence de phase locale invariante de jauge à travers la jonction (équations 2.1.1 et 2.3.1). Pour cela, l'équation 2.3.1 a été construite en considérant la propagation des corrélations supraconductrices comme une onde évanescente émise depuis le bord des îlots. En chaque point de coordonnées (x,y) est calculé $Proxi(r)$ la superposition des ondes issues des bords d'îlots à proximité. Les deux premiers termes de cette fonction correspondent à la perte de cohérence avec la distance aux îlots, le deuxième terme est un terme d'interférence. En première approximation, le courant Josephson peut ainsi être considéré localement comme proportionnel à $\sin(\Delta\varphi_{inv}(x,y) + \varphi_0)$, où φ_0 est la phase de référence libre. Par conséquent, aucun courant ne circule dans les endroits où la différence

de phase est égale à un nombre entier de fois π , $\Delta\varphi_{inv}(x, y) = n\pi$. Par ailleurs, cette équation montre que le pont de proximité est maximal lorsque le déphasage vaut un nombre entier de fois 2π , $\Delta\varphi_{inv}(x, y) = n2\pi$, ce qui correspond au terme d'interférence constructive. En continuant le raisonnement, le pont est détruit pour $\Delta\varphi_{inv}(x, y) = (2n + 1)\pi$. Ces zones normales correspondent aux cœurs des vortex Josephson.

$$\Delta\varphi_{inv}(\mathbf{r}) = \varphi(\mathbf{r}_a) - \varphi(\mathbf{r}_b) - \frac{2e}{\hbar} \int_{\mathbf{r}_b}^{\mathbf{r}_a} \vec{A} \cdot d\vec{l}$$

$$C_{Fermi\ Josephson} = C_{Fermi\ normal} \times Proxi(\mathbf{r})$$

$$Proxi(\mathbf{r}) = \left| \psi_0 e^{-\frac{|r-r_a|}{2\xi_n}} \right|^2 + \left| \psi_0 e^{-\frac{|r-r_b|}{2\xi_n}} \right|^2 + 2\psi_0^2 \sin(\Delta\varphi_{inv}(\mathbf{r}) + \varphi_0)$$

Equation 2.3.1 : Conductance tunnel calculée $C_{Fermi\ Josephson}$ dans la jonction Josephson. a et b sont les indices relatifs aux deux îlots de la jonction. ψ_i est la densité d'états locale à la périphérie des îlots, elle est issue du calcul en Ginzburg-Landau. ξ_n est la longueur de cohérence de proximité. r_i est la position du bord le plus proche de r . r est la coordonnée spatiale du point considéré dans la jonction. $\Delta\varphi$ le déphasage invariant de jauge en ce point. φ_0 la phase de référence libre. Cette dernière permet de positionner le cœur du vortex Josephson en un endroit précis de la jonction.

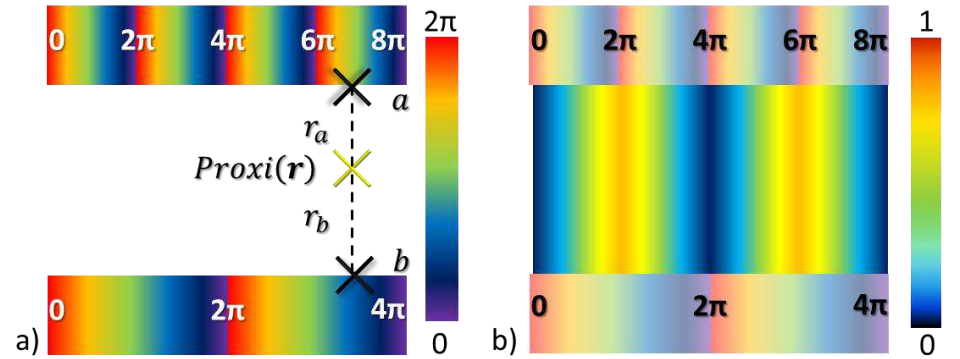


Figure 2.3.5 : Simulation simplifiée des vortex Josephson. **a.** Portrait de phase arbitraire aux bords de deux îlots. **b.** Fonction Proxi(r) simplifiée calculée en chaque point \mathbf{r} dans la jonction, $Proxi(\mathbf{r})_{simplifiée} = 2\psi_0^2 \sin(\Delta\varphi_{inv}(\mathbf{r}) + \varphi_0)$ et $\Delta\varphi_{inv}(\mathbf{r}) = \varphi(\mathbf{r}_a) - \varphi(\mathbf{r}_b)$. Ont été négligés dans cet exemple la décroissance exponentielle de l'effet de proximité avec la distance aux îlots et le déphasage dû au potentiel vecteur dans la jonction.

La phase à la périphérie des îlots est déterminée par la présence de vortex et des courants Meissner. Le portrait de phase dans les îlots a été calculé par Milorad Milošević. Il est présenté en carte a de la figure 2.3.5. Pour obtenir l'effet de proximité sous champ dans les différentes jonctions, il a calculé tout d'abord le déphasage invariant de jauge en

chaque point de la jonction. On en a déduit la conductance tunnel à partir de l'équation 2.3.1. La décroissance exponentielle reflète l'effet de proximité.

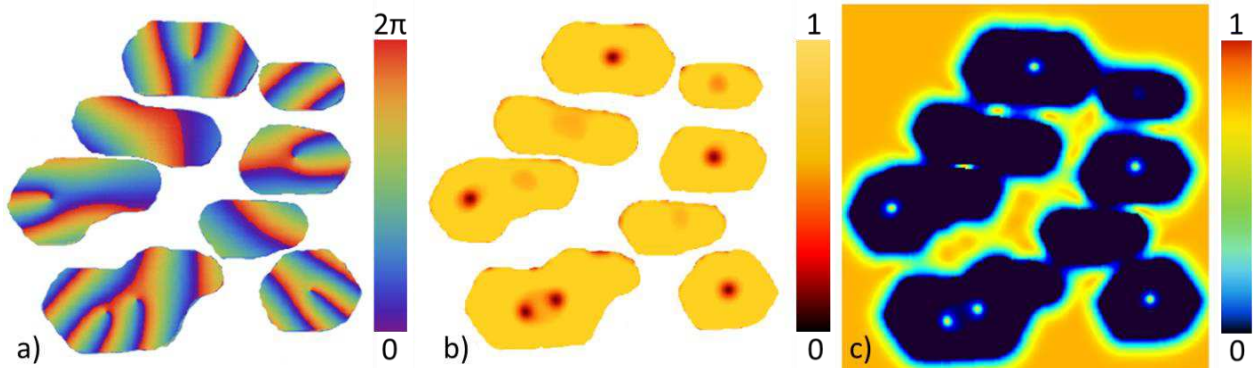


Figure 2.3.5 : Simulation des vortex Josephson à 0,060 T (figure 2.3.1.c). a. Portrait de phase dans les îlots, calculé en Ginzburg-Landau par Milorad Milošević dans la jauge centrale. b. Module du paramètre d'ordre dans les îlots calculé en Ginzburg-Landau Milorad Milošević. c. Corrélations supraconductrices dans toute la région calculée à partir de l'équation 2.3.1 : celle dans les îlots est donnée directement par la carte b, et celle entre les îlots est calculée à partir de l'équation 2.3.1 et de la carte b.

On constate sur les cartes spectroscopiques mesurées et simulées que la forme des vortex Josephson n'est pas cylindrique et que la taille du cœur varie. Elles dépendent toutes deux des caractéristiques géométriques de la jonction et du portrait de phase à la périphérie des îlots. Il en est d'ailleurs de même pour le nombre de vortex dans la jonction. Par contre, le vortex Josephson admet une quantification du fluxoïd tout comme les vortex dans les îlots. Cette quantification peut se retrouver aisément à partir de la seconde équation de Ginzburg-Landau intégrée le long d'un circuit fermé dont la circulation du courant est nulle. Le calcul de la quantification du fluxoïd est donné par les équations 2.3.2, 2.3.3, 2.3.4 et 2.3.5. Trois exemples de circuits sont indiqués en pointillés blancs sur la figure 2.3.6.

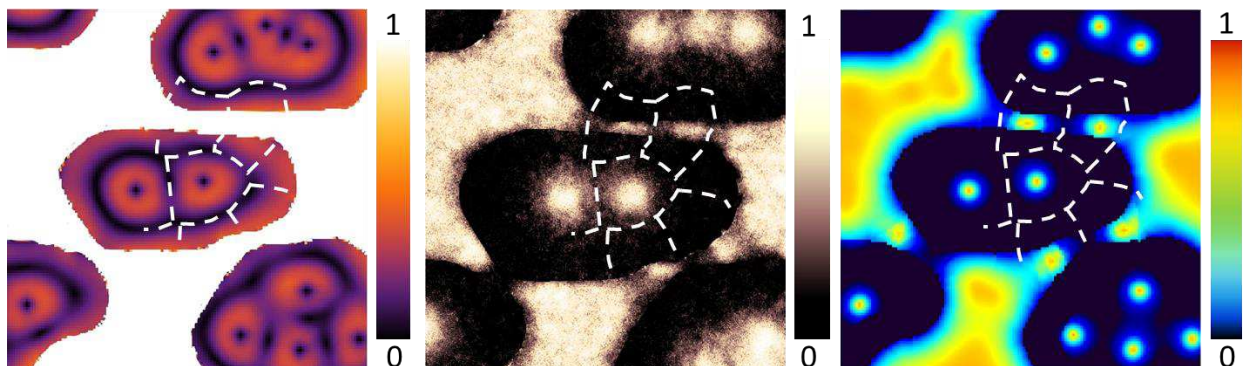


Figure 2.3.6 : Détermination des circuits de circulation de courants nulle à partir des calculs en Ginzburg-Landau à 0,180 T. Trois de ces circuits sont indiqués à titre d'exemple en pointillés blancs autour des deux vortex Josephson de la jonction J3 et d'un des deux vortex de Pearl de l'îlot N7. a. Densité de courant, en valeur absolue, dans les îlots calculée à partir des cartes de portrait de phase et du paramètre d'ordre de Milorad Milošević. b. Carte spectroscopique en CFermi (zoom figure 2.3.1.e). c. Corrélations supraconductrices.

$$\oint_c \mathbf{dl} \mathbf{J} = \frac{e^*}{m^*} \oint_c \mathbf{dl} |\Psi(\mathbf{r})|^2 (\hbar \nabla \varphi(\mathbf{r}) - e^* \mathbf{A}(\mathbf{r}))$$

$$\Rightarrow 0 = \hbar \oint_c \mathbf{dl} \nabla \varphi(\mathbf{r}) - 2e \oint_c \mathbf{dl} \mathbf{A}(\mathbf{r})$$

Equation 2.3.2 : Intégration de la seconde équation de Landau le long d'un circuit fermé entourant un vortex. s est la surface délimitée par le cercle c .

Comme la fonction d'onde est univaluée, la phase est définie à n fois 2π près en chaque point. La circulation du gradient de la phase le long du chemin c vaut donc $2n\pi$.

$$\oint_c \mathbf{dl} \nabla \varphi(\mathbf{r}) = 2n\pi, \quad \text{avec } n \in \mathbb{N}$$

Equation 2.3.3 : L'uniévaluation de la fonction d'onde en un point du condensat est à l'origine de la quantification du flux.

De plus le potentiel vecteur est relié au champ magnétique par la relation de Maxwell-Ampère qui, intégrée sur le cercle c , s'écrit sous la forme de l'équation 2.3.4.

$$\oint_c \mathbf{dl} \mathbf{A}(\mathbf{r}) = \int_s \mathbf{ds} \mathbf{B} = \Phi$$

Equation 2.3.4 : Théorème de Maxwell-Ampère et théorème de Green-Ostrogradski appliqués au chemin c entourant la surface s .

En remplaçant les deux termes des égalités 2.2.3 et 2.2.4 dans la seconde équation de Ginzburg-Landau intégrée en équation 2.3.2, on obtient la quantification du flux.

$$\mathbf{0} = \hbar 2n\pi - 2e \Phi$$

$$\Leftrightarrow \frac{\Phi}{\Phi_0} = n$$

Equation 2.3.5 : Quantification du flux au niveau d'un vortex Josephson entouré par un chemin sur le lequel la circulation des courants est nulle, présenté sur la figure 2.3.6.

Le vortex Josephson est donc bien un vortex dans sa définition quantique moderne : ce sont des singularités de la phase autour desquelles un déphasage d'un nombre entier de fois 2π de la fonction d'onde existe. Nous nous sommes alors posé la question de savoir s'il était possible de créer un vortex Josephson géant. Nous avons donc supposé qu'il devait en exister dans un trou, la situation étant alors similaire à l'effet Little Parks bien connu dans les anneaux [Lévy 1996, Tinkham 2004].

Vortex Josephson dans un trou

Nous venons de définir le vortex Josephson entre deux îlots. Qu'en est-il maintenant du vortex Josephson dans un trou d'un îlot ?

Pour répondre à cette question, un îlot troué a été sélectionné (figure 2.3.7). A la différence des piscines déjà évoquées précédemment, ce trou présente des bords abrupts et facettés tout comme les côtés extérieurs de l'îlot. Il traverse entièrement l'îlot, laissant apparaître la couche de mouillage amorphe avec les mêmes propriétés que celle autour des îlots.

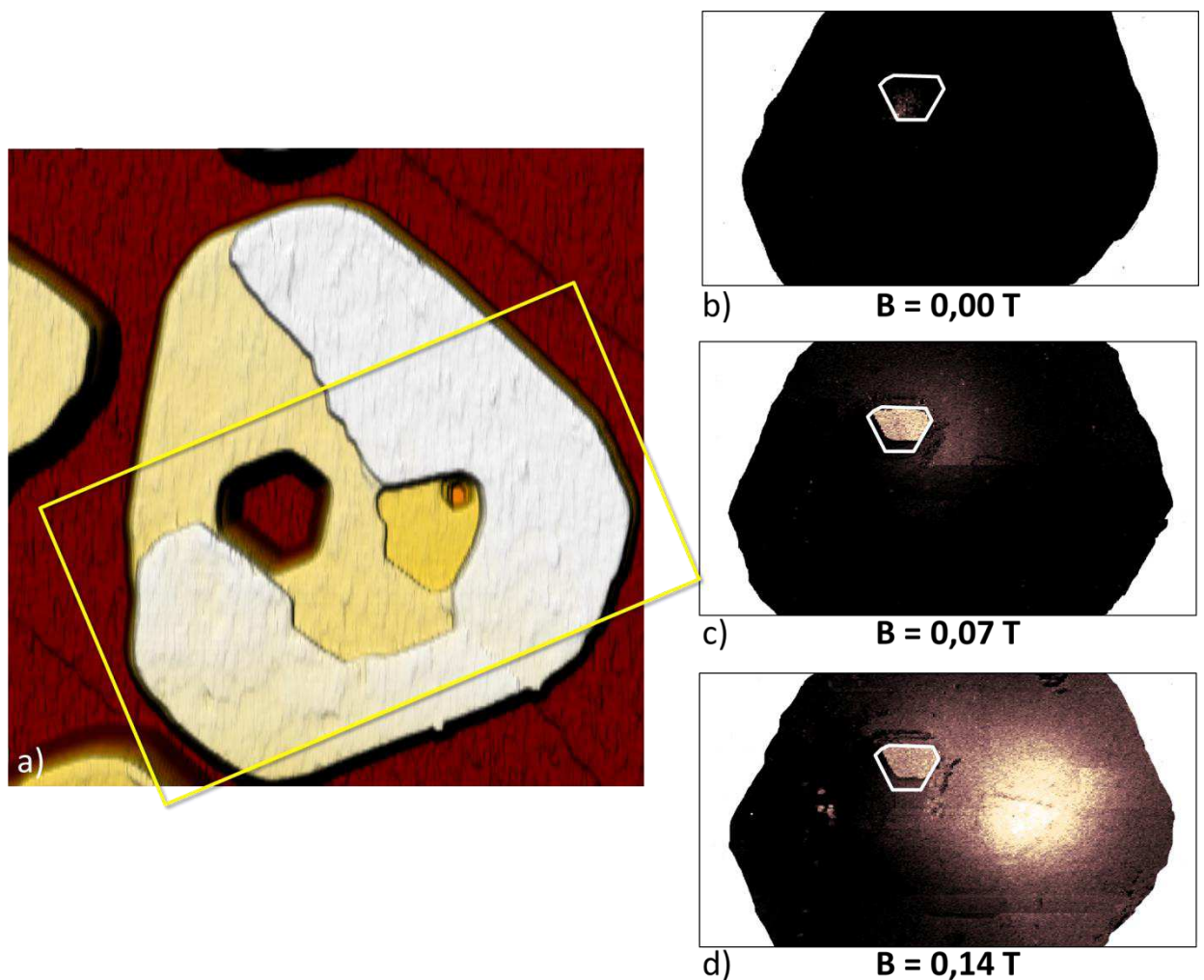


Figure 2.3.7 : **a.** Carte topographique d'un îlot présentant un trou. **b.** Cartes spectroscopiques en représentation CFermi de la zone encadrée. Le trou est délimité par les lignes blanches. La proximité à l'extérieur de l'îlot n'est pas représentée, elle est recouverte d'un cache blanc. (*a.* $345 \times 345 \text{ nm}^2$, 48 mV , $0,051 \text{ nA}$, échelle z : 0 à 6 nm . **b.-d.** $172 \times 290 \text{ nm}^2$).

En l'absence de champ, l'effet de proximité recouvre entièrement le trou et le trou apparaît noir sur la carte **b**. A $0,07 \text{ T}$, un vortex Josephson est créé dans le trou. A $0,14 \text{ T}$, un vortex de Pearl est piégé au niveau de la piscine en bas à droite. Les lignes spectroscopiques en

champ ont été mesurées sur l'îlot et en travers du trou entre 0 et 0,4 T. Elles ne sont pas présentées ici car la qualité de ces mesures est mauvaise, due à une pointe multiple supraconductrice. Ces mesures nous permettent cependant de connaître la vorticit  dans cette gamme de champ magn tique (tableau 2.3.2). Dans le premier cas   0,07 T, $L = 1$, le vortex Josephson porte un quantum de fluxo d. Dans le deuxi me cas   0,14 T, $L = 3$. Au vue des dimensions lat rales de l' lot ($D \cong 200 \text{ nm}$), le vortex dans la piscine ne peut pas  tre un vortex g ant mais un vortex de Pearl   un quantum de fluxo d. On en d duit donc que le vortex Josephson est quant   lui un vortex G ant   deux quanta de fluxo d.

Vorticit� L	B_e (T)	Φ/Φ_0
1	0,05	2,0
2	0,09	3,6
3	0,12	4,7
4	0,17	6,7
5	0,22	8,7
6	0,26	10,3
7	0,29	11,5
8	0,32	12,6
9	0,35	13,8
10	0,37	14,6

Tableau 2.3.2 : Vorticit s en fonction du champ magn tique appliqu . Elles sont extraites des lignes spectroscopiques non pr sent es. Le flux Φ est calcul    partir de l'aire de l' lot ($S \cong 81\,000 \text{ nm}^2$).

Nous avons confirm  par l'observation directe et spatiale des vortex Josephson, qu'ils r sultent bien d'interf rences entre les corr lations supraconductrices de part et d'autre de la jonction. Plus pr cis ment, si la phase varie le long des bords des  lots, alors un d phasage invariant de jauge appara t entre les deux c t s de la jonction et un courant supraconducteur circule   travers la jonction. Nous avons mis en  vidence que le c ur des vortex Josephson poss de une densit  d' tats normale comme l'a pr dit Juan-Carlos Cuevas [Cuevas 2007].

Nous avons observ  plusieurs vortex Josephson dans une jonction lin aire et un vortex Josephson g ant dans une jonction circulaire. On pourrait imaginer cr er des vortex Josephson uniques dans un trou de forme allong e et les faire fusionner en faisant tendre cette forme vers un cercle.

ENVOI AUX FUTURS THÉSARDS

Plusieurs questions ont été posées au début du travail de thèse et sont restées sans réponse. Les résultats obtenus ont soulevé par ailleurs d'autres interrogations. Voici une liste des questions que je me pose après ce travail de thèse et que j'adresse à de futurs thésards.

Structure Pb/Si(111)

Nous avons observé une nouvelle structure d'îlots de Pb/Si(111), des nanostructures de symétrie 5. A partir de l'observation de leur surface, nous avons interprété leur structure selon le modèle des Multiply Twinned Particles. Mais quelles sont leurs structures réelles en volume, la nature des contraintes, et l'organisation atomique au niveau des interfaces entre les cinq unités cristallines ?

La couche de mouillage amorphe de plomb autour des îlots reste aussi une inconnue quant à l'organisation atomique et à la nature chimique de l'interface avec le substrat. Cette couche est-elle constituée uniquement de plomb ou d'un mélange de plomb, de silicium et de dopants ? Un ordre cristallographique existe-t-il ?

Supraconductivité dans les nanostructures de Pb/Si(111)

Les nanostructures de symétrie 5 sont très certainement supraconductrices à 300 mK. Quelles valeurs auraient leurs températures critiques et leurs gaps supraconducteurs en fonction de leur géométrie et de leur taille ?

Dans les îlots cuboctaédriques, la largeur du gap supraconducteur dépend de l'épaisseur de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres. Une étude statistique serait nécessaire afin de confirmer cette dépendance.

A partir de quelle taille les effets de quantification des niveaux d'énergie apparaissent-ils avec la réduction de la taille des îlots et détruisent-ils la supraconductivité ?

Pour un supraconducteur macroscopique conventionnel, les fonctions d'ondes de millions de paires de Cooper se recouvrent dans le volume d'une paire ξ^3 . Qu'advient-il lorsque la densité de paires passe à une pour ξ^3 comme dans les films ultraminces désordonnés ?

Vortex dans les îlots de Pb/Si(111)

Nous avons observé le vortex Géant dans un cas de confinement extrême (dimension latérale : $D \sim 3\xi_{eff} \ll \Lambda_{eff}$). Nous avons par ailleurs mis en évidence l'effet du piégeage des vortex dans des piscines

relativement profondes vis-à-vis de l'épaisseur des îlots. Serait-il possible de créer un vortex Géant dans de profondes piscines dans une situation de confinement fort sans être extrême (dimension latérale : $10 \xi_{eff} < D \ll \Lambda_{eff}$) ?

A l'approche de la transition vers l'état normal sous l'application du champ magnétique, les vortex s'interpénètrent dans les îlots fortement confinés. Quels critères déterminent cette transition entre une phase de vortex distincts et la mare de vortex ?

En admettant qu'on puisse mesurer la spectroscopie tunnel sur les nanostructures 3D de symétrie 5, sur quelle face se positionnerait le premier vortex sous champ magnétique ? Nous avons mis en évidence que les barrières d'énergie de surface pour les vortex sont très faibles dans les îlots cuboctaédriques tronqués. On a ainsi pu changer les configurations de vortex sous l'effet du champ électrique de la pointe STM. Comme les cinq faces sont équivalentes dans le cas de la pyramide à base pentagonale, serait-il possible de modifier la position d'un vortex d'une face vers une autre face avec la pointe STM ?

Effet de proximité entre îlots et couche de mouillage de Pb/Si(111)

Nous avons mesuré un gap de Coulomb dans les spectres tunnel de la couche de mouillage amorphe. Celui-ci révèle une forte interaction entre les électrons. En modifiant le dopage du substrat de silicium, comment évoluerait ce gap ? Le substrat dopé p au bore est connu pour une migration des dopants vers la surface lors d'un chauffage au-delà de 1000°C. Ces charges renforceraient-elles l'effet Altshuler-Aronov ou au contraire écranteraient-elles les charges bloquées ?

L'effet de proximité autour des îlots ne semble pas affecter le gap supraconducteur aux bords, ni l'organisation des vortex. Quant serait-il si on réduisait l'épaisseur des îlots à 2 ou 3 MC ?

Lorsque la couche de mouillage est cristalline, l'effet de proximité s'étend sur une échelle caractéristique plus grande autour des îlots. De plus, de nombreuses reconstructions atomiques de ces couches existent. Quelle serait la dépendance de l'effet de proximité avec l'ordre cristallin ? Certaines de ces couches ordonnées sont supraconductrices avec une T_c de l'ordre du Kelvin. Quelle serait l'allure de l'effet de proximité entre ces couches 2D et les îlots de plomb ?

Vortex Josephson

Les vortex Josephson dans les jonctions de proximité sont créés par des déphasages du paramètre d'ordre supraconducteur aux bords d'électrodes supraconductrices. Ces déphasages sont intimement liés aux courants supraconducteurs. Nous avons étudié les vortex Josephson en appliquant un champ magnétique. Il serait tout-à-fait possible de les créer en ne faisant passer qu'un courant de sens opposé dans deux fils supraconducteurs se faisant face.

Un vortex Josephson Géant a été formé dans un trou d'un îlot sous champ magnétique. Serait-il possible de faire fusionner des vortex Josephson uniques dans un trou très allongé en réduisant la taille ou en modifiant la forme du trou vers celle d'un cercle ?

Serait-il aussi favorable pour le système de créer des vortex Josephson Géant dans une jonction Josephson « en étoile » connectant de nombreux îlots ?

Dans les travaux de cette thèse, nous avons observé les vortex Josephson dans la couche de mouillage de Pb fortement diffusive. Si ce métal normal était remplacé par un matériau ne limitant pas l'effet de proximité par diffusion, serait-il possible de créer des vortex Josephson de taille micrométrique dans une limite balistique ?

Supraconductivité

- [Caroli 1964] C. Caroli, P. G. de Gennes et J. Matricon, *Bound fermion states on a vortex line in a type II superconductor*, Phys. Lett. 9, 307 (1964).
- [de Gennes 1966] P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*, W.A. Benjamin, Inc., New York, (1966).
- [Dolan 1973] G. J. Dolan, J. Silcox, *Critical thickness in superconducting thin films*, Phys. Rev. Lett. 30, 603 (1973).
- [Kohen 2006] A. Kohen, Th. Proslie, T. Cren, Y. Noat, W. Sacks, H. Berger, D. Roditchev, *Probing the superfluid velocity with a superconducting tip: the Doppler shift effect*, Phys. Rev. Lett. 97, 027001 (2006).
- [Lévy 1997] L.-P. Lévy, *Magnétisme et supraconductivité*, Savoirs actuels InterÉditions/CNRS Éditions, 1997
- [Maki 1965] K. Maki, P. Fulde, *Equivalence of different pair-breaking mechanisms in superconductors*, Phys. Rev. 140, A1586 (1965).
- [Renner 1991] Ch. Renner, A. D. Kent, Ph. Niedermann, Ø Fischer, *Scanning tunneling spectroscopy of a vortex core from the clean to the dirty limit*, Phys. Rev. Lett 67, 1650 (1991).
- [Saint-James 1963] D. Saint-James et P. G. de Gennes, *Onset of superconductivity in decreasing fields*, Phys. Lett. 7, 306 (1963).
- [Tinkham 2004] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity*, Dover (2004).

Pb/Si(111), croissance et propriétés électroniques

- [Brun 2009] C. Brun, I-P. Hong, F. Patthey, I. Y. Sklyadneva, R. Heid, P. M. Echenique, K. P. Bohnen, E. V. Chulkov et W. D. Schneider, *Reduction of the superconducting gap of ultrathin Pb islands grown on Si(111)*, Phys. Rev. Lett. 102, 207002 (2009).
- [Eom 2006] D. Eom, S. Qin, M.-Y. Chou, C. K. Shih, *Persistent superconductivity in ultrathin Pb films: a scanning tunneling spectroscopy study*, Phys. Rev. Lett. 96, 027005 (2006).

- [Feng 2004] R. Feng, E. H. Conrad, M. C. Tringides, C. Kim et P. F. Micelli, *Wetting-layer transformation for Pb nanocrystals grown on Si(111)*, Appl. Phys. Lett. 85, 3866 (2004).
- [Fokin 2009] D. Fokin, *Nano-îlots de Pb/Si : structure et supraconductivité confinée*, thèse (2009).
- [Ganz 1991] E. Ganz, I.-S. Hwang, F. Xiong, S. K. Theiss et J. Golovchenko, *Growth and morphology of Pb on Si(111)*, Surface Science 257, 259 (1991)
- [Michailov 2011] M. Michailov, *Nanophenomena at surfaces, fundamentals of exotic condensed matter properties*, Springer (2011) :
 Chapter 3. M. C. Tringides, M. Hupalo, K. L. Man, M. M. T. Loy et M. S. Altman, *Wetting layer super-diffusive motion and QSE growth in Pb/Si*.
 Chapter 4. Y. Jia, M. M. Özer, H. H. Weitering et Z. Zhang, *Quantum size effect in the growth and properties of ultrathin metal films, alloy, and related low-dimensional structures*.
 Chapter 11. S. S. Kosolobov et A. V. Latyshev, *Step bunching on silicon surface under electromigration*.
- [Tringides 2005] M. C. Tringides, M. Hupalo et M. Yakes, *Novel diffusion pathways in low temperature self-organization of nanostructures*, Physica A 357, 216 (2005).
- [Wei 2002] C. M. Wei, M. Y. Chou, *Theory of quantum size effects in thin Pb(111) films*, Phys. Rev. B 66, 233408 (2002).

Nanoparticules de symétrie 5 et croissance sur substrat

- [Barnard 2006] A. S. Barnard, *A thermodynamic model for the shape and stability of twinned nanostructures*, J. Phys. Chem B 110, 24498 (2006).
- [Gillet 1973] E. Gillet et M. Gillet, *Formation et croissance des édifices atomiques présentant des arrangements pentagonaux*, Thin Solid Film 15, 249 (1973).
- [Hendy 2001] S. C. Henry et B. D. Hall, *Molecular-dynamics simulations of lead clusters*, Phys. Rev. B 64, 085425 (2001).
- [Henry 2005] C. R. Henry, *Morphology of supported nanoparticles*, Surf. Sci. 50, 92 (2005).
- [Ino 1966] S. Ino, *Epitaxial growth of metals on rocksalt faces cleaved in vacuum. II. Orientation and structure of gold particles formed in ultrahigh vacuum*, J. Phys. Soc. Jpn. 21, 346 (1966).
- [Li 2011] C. R. Li, N. P. Lu, Q. Xu, J. Mei, W. J. Dong, J. L. Fu et Z. X. Cao, *Decahedral et icosahedral twin crystals of silver: formation and morphology evolution*, Journal of Crystal Growth 319, 88 (2011).

- [Marks 1984] L. D. Marks, *Surface structure and energetics of multiply twinned particles*, Philos. Mag. A 49, 181 (1984).
- [Marks 1994] L. D. Marks, *Experimental studies of small particle structures*, Rep. Prog. Phys. 57, 603 (1994).
- [Müller 2000] P. Müller et R. Kern, *Equilibrium nano-shape changes induced by epitaxial stress (generalised Wulf-Kaishew theorem)*, Surf. Sci. 457, 229 (2000).
- [Silly 2005] F. Silly et R. Castell, *Growth of Ag icosahedral nanocrystals on a SrTiO₃(001) support*, Appl. Phys. Lett. 87, 213107 (2005).
- [Silly 2006] F. Silly et M. R. Castell, *Bimodal growth of Au on SrTiO₃(001)*, Phys. rev. Lett. 96, 086104 (2006).
- [Silly 2009] F. Silly et M. R. Castell, *Temperature-dependent stability of supported five-fold twinned copper nanocrystals*, ACS Nano 3, 901 (2009).
- [Tsuji 2010] M. Tsuji, M. Ogino, R. Matsuo, H. Kumagae, S. Hikino, T. Kim et S.-H. Yoon, *Stepwise Growth of Decahedral and Icosahedral Silver Nanocrystals in DMF*, Crystal Growth 10, 296 (2010).
- [Zhang 2008] W. Zhang, Y. Liu, R. Cao, Z. Li, Y. Zhang, Y. Tang et K. Fan, *Synergy between crystal strain and surface energy in morphological of five-fold-twinned silver crystals*, J. Am. Chem. Soc. 130, 15581 (2008).
- [Zhang 2009] Q. Zhang, J. Xie, J. Yang et J. Y. Lee, *Monodisperse icosahedral Ag, Au, and Pd nanoparticles: size control strategy and superlattice formation*, ACS Nano 3, 139 (2009).
- [Ensbarth 2009] M. Engbarth, M. V. Milošević, S. J. Bending et F. Nasirpouri, *Geometry-guided flux behaviour in superconducting Pb microcrystals*, Journal of Physics: Conference Series 150, 052048 (2009).

Confinement des vortex et vortex géant

- [Baelus 2002] B. J. Baelus et F. M. Peeters, *Dependence of the vortex configuration on the geometry of mesoscopic flat samples*, Phys. Rev. B 65, 104515 (2002).
- [Buisson 1990] O. Buisson, P. Gandit, R. Rammal, Y. Y. Wang et B. Pannetier, *Magnetization oscillations of a superconducting disk*, Phys. Lett. A 150, 36 (1990).
- [Buzdin 1994] A. I. Buzdin et J. P. Brison, *Vortex structures in small superconducting disks*, Phys. Lett. A 196, 267 (1994).
- [Connolly 2009] LM. R. Connolly, M. V. Milošević, S. J. Bending, J. R. Clem, T. Tamegai, *Continuum vs. discrete flux behaviour in large mesoscopic Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} disks*, EPL 85, 17008 (2009).

- [Cren 2009] T. Cren, D. Fokin, F. Debontridder, V. Dubost, D. roditchev, *Ultimate vortex confinement studied by scanning tunneling spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. 102, 127005 (2009).
- [Cren 2011] T. Cren, L. Serrier-Garcia, F. Debontridder, D. Roditchev, *Vortex fusion and Giant Vortex states in confined superconducting condensates*, Phys. Rev. Lett. 107 097202 (2011).
- [Eskildsen 2002] M. R. Eskildsen, M. Kugler, S. Tanaka, J. Jun, S. M. Kazakov, J. Karpinski, Ø Fischer, *Vortex imaging in the π band of magnesium diboride*, Phys. Rev. Lett. 89, 187003 (2002).
- [Fetter 1980] A. L. Fetter, *Flux penetration in a thin superconducting disk*, Phys. Rev. B 22 3 (1980).
- [Fink 1966] H. J. Fink, A. G. Presson, *Magnetic irreversible solution of the Ginzburg-Landau equations*, Phys. Rev. 151, 219 (1966).
- [Fournais 2009] S. Fournais, A. Kachmar, *Nucleation of bulk superconductivity close to critical magnetic field*, arXiv: 0909.5451v1 [math-ph] (2009).
- [Geim 2000] A. K. Geim, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, K. S. Novoselov, F. M. Peeters, V. A. Schweigert, *Non-quantized penetration of magnetic field in the vortex state of superconductors*, Nature 407 (2000).
- [Kanda 2004] A. Kanda, B. J. Baelus, F. M. Peeters, K. Kadowaki, Y. Ootuka, *Experimental evidence for Giant Vortex states in a mesoscopic superconducting disk*, Phys. Rev. Lett. 93, 257002 (2004).
- [Mel'nikov 2002] A. S. Mel'nikov, I. M. Nefedov, D. A. Ryzhov, I. A. Shereshevskii, V. M. Vinokur et P. P. Vysheslavtsev, *Vortex states and magnetization curve of square mesoscopic superconductors*, Phys. Rev. B 65, 140503 (2002).
- [Milošević 2011] M. V. Milošević, F. M. Peeters, B. Jankó, *Vortex manipulation in superconducting films with tunable magnetic topology*, Supercond. Sci. Technol. 24 024001 (2011).
- [Moshchalkov 1997] V. V. Moshchalkov, X. G. Qiu et V. Bruyndoncx, *Paramagnetic Meissner effect from the self-consistent solution of the Ginzburg-Landau equations*, Phys. Rev. B 55, 11793 (1997).
- [Moshchalkov 2011] V. V. Moshchalkov, J. Fritzsche, *Nanostructured superconductors*, World Scientific, 2011.
- [Ning 2009] Y. X. Ning, C. L. Song, Z. L. Guan, X. C. Ma, Xi Chen, J. F. Jia, Q. K. Xue, *Observation of surface superconductivity and direct vortex imaging of a Pb thin island with a scanning tunneling microscope*, EPL 85, 27004 (2009).
- [Ning 2010] Y. X. Ning, C. L. Song, Y. L. Wang, Xi Chen, J. F. Jia, Q. K. Xue, X. C. Ma, *Vortex properties of two-dimensional superconducting Pb films*, J. Phys.: Condens. Matter 22 065701 (2010).

- [Nishio 2006] T. Nishio, M. Ono, T. Eguchi, H. Sakata, Y. Hasegawa, *Superconductivity of nanometer-size Pb islands studied by low-temperature scanning tunneling microscopy*, Appl. Phys. Lett. 88, 113115 (2006).
- [Nishio 2008] T. Nishio, T. An, A. Nomura, K. Miyachi, T. Eguchi, H. Sakata, S. Lin, N. Hayashi, N. Nakai, M. Machida, Y. Hasegawa, *Superconducting Pb island nanostructures studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. 101, 167001 (2008).
- [Pereira 2012] P. J. Pereira, V. V. Moshchalkov, L. F. Chibotaru, *Method for the solution of the nucleation problem in arbitrary mesoscopic superconductors: theory and application*, Phys. Rev. E 86, 056709 (2012).
- [Tanaka 2002] K. Tanaka, I. Robel, B. Jankó, *Electronic structure of multiquantum giant vortex states in mesoscopic superconducting disks*, PNAS 99, 5233 (2002).
- [Tominaga 2012] T. Tominaga, T. Sakamoto, T. Nishio, T. An, T. Eguchi, Y. Yoshida, Y. Hasegawa, *Observation of vortex clustering in nano-size superconducting Pb island structures by low-temperature scanning tunneling microscopy/spectroscopy*, J. Supercond Nov Magn 25, 1975 (2012).
- [Saint-James 1965] D. Saint-James, *Étude du champ critique H_{c3} dans une géométrie cylindrique*, Phys. Lett. 15, 13 (1965).
- [Saint-James 1969] D. Saint-James, G. Sarma et E. J. Thomas, *Type II superconductivity*, Pergamon Press, Oxford, (1969).
- [Sander 2007] E. Sandier et S. Serfaty, *Vortices in the magnetic Ginzburg-Landau model*, Birkhäuser, Boston (2007).
- [Schweigert 1998] V. A. Schweigert, F. M. Peeters, P. Singha Deo, *Vortex phase diagram for mesoscopic superconducting disks*, Phys. Rev. Lett. 81, 2783 (1998).
- [Silaev 2013] M. Silaev et V. A. Silaeva, *Self-consistent electronic structure of multiquantum vortices in superconductors at $T \ll T_c$* , J. Phys. Condens. Matter 25, 225702 (2013).
- [Zadorosny 2012] R. Zadorosny, E. Sardella, A. L. Malvezzi, P. N. Lisboa-Filho, W. Aires Ortiz, *Crossover between macroscopic and mesoscopic regimes of vortex interactions in type-II superconductors*, Phys. Rev. B 85, 214511 (2012).
- [Zhang 2010] T. Zhang, P. Cheng, W.-J. Li, Y.-J. Sun, G. Wang, X.-G. Zhu, K. He, L. Wang, X. Ma, X. Chen, Y. Wang, Y. Liu, H.-Q. Lin, J.-F. Jia, Q.-K. Xue, *Superconductivity in one-atomic-layer metal films grown on Si(111)*, Nature Physics 6 (2010).
- [Zharkov 2001] G. F. Zharkov, *Paramagnetic Meissner effect in superconductors from self-consistent solution of Ginzburg-Landau equations*, Phys. Rev. B 63, 214502 (2001).

Vortex piégés

- [Córdoba 2013] R. Córdoba, T. I. Baturina, J. Sesé, A. Yu Mironov, J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, D. A. Nasimov, A. K. Gutakovskii, A. V. Latyshev, I. Guillamón, H. Suderow, S. Vieira, M. R. Baklanov, J. J. Palacios, V. M. Vinokur, *Magnetic field-induced dissipation-free state in superconducting nanostructures*, Nature Communications 2437 (2013).
- [Grigorieva 2007] I. V. Grigorieva, W. Escoffier, V. R. Misko, B. J. Baelus, F. M. Peeters, L. Y. Vinnikov, S. V. Dubonos, *Pinning-induced formation of vortex clusters and Giant Vortices in mesoscopic superconducting disks*, Phys. Rev. Lett. 99, 147003 (2007).
- [Karapetrov 2005] G. Karapetrov, J. Fedor, M. Iavarone, D. Rosenmann, W. K. K. Kwok, *Direct observation of geometrical phase transition in mesoscopic superconductors by scanning tunneling microscopy*, Phys. Rev. Lett. 95, 167002 (2005).
- [Liao 2003] H.-Y. Liao, S.-P. Zhou, H.-C. Du, *Vortex pinning by point defect in superconductors*, J. Phys. D: Appl. Phys. 36 1439-1445 (2003).
- [Matsuda 2001] T. Matsuda, O. Kamimura, H. Kasai, K. Harada, T. Yoshida, T. Akashi, A. Tonomura, Y. Nakayama, J. Shimoyama, K. Kishio, T. Hanaguri, *Oscillation rows of vortices in superconductors*, Science 294 (2001).
- [Okayasu 2006] S. Okayasu, T. Nishio, M. Ono, T. Mashimo, Y. Tanaka, A. Iyo, *Vortex imaging in TI-based superconductors with a scanning squid microscopy*, Physica C 445-448 (2006).
- [Özer 2006] M. M. Özer, J. R. Thompson, H. H. Weitering, *Hard superconductivity of a soft metal in the quantum regime*, Nature Physics 2, arXiv:cond.mat/0601641v1 (2006).
- [Villegas 2003] J. E. Villegas, Sergey Savel'ev, Franco Nori, E. M. Gonzalez, J. V. Anguita, R. García, J. L. Vicent, *A superconducting reversible rectifier that controls the motion of magnetic flux quanta*, Science 302 (2003).

Blocage de Coulomb dynamique et effet Altshuler-Aronov, effet de proximité, jonction et vortex Josephson

- [Altshuler 1985] B. L. Altshuler and A. G. Aronov, *Electron-Electron interactions in disordered systems*, A. L. Efros and M. Pollak (Elsevier Science Publisher B. V., Amsterdam (1985).
- [Angers 2008] L. Angers, F. Chiodi, G. Montambaux, M. Ferrier, S. Gueron, H. Bouchiat, J. C. Cuevas, *Proximity dc squids in the long-junction limit*, Phys. Rev. B 77, 165408 (2008).

- [Brun 2012] C. Brun, K. H. Müller, I-P. Hong, F. Pattey, C. Flindt, W.-D. Schneider, *Dynamical Coulomb blockade observed in nano-sized electrical contacts*, arXiv:1006.0333v2 [cond-mat.mes-hall], Phys. Rev. Lett. 108, 126802 (2012).
- [Chiodi 2012] F. Chiodi, M. Ferrier, S. Gueron, J. C. Cuevas, G. Montambaux, F. Fortuna, A. Kasumov, H. Bouchiat, *Geometry-related magnetic interference patterns in long SNS Josephson junctions*, Phys. Rev. B 86, 064510 (2012).
- [Clem 2010] J. R. Clem, *Josephson junctions in thin and narrow rectangular superconducting strips*, arXiv: 1003.0839v2 [cond-mat.supr-con], Phys. Rev. B 81, 144515 (2010).
- [Cuevas 2006] J. C. Cuevas, J. Hammer, J. Kopu, J. K. Viljas, M. Eschrig, *Proximity effect and multiple Andreev reflections in diffusive superconductor-normal-metal-superconductor junctions*, Phys. Rev. B 73, 184505 (2006).
- [Cuevas 2007] J. C. Cuevas, F. S. Bergeret, *Magnetic interference patterns and vortices in diffusive SNS junctions*, Phys. Rev. Lett. 99, 217002 (2007).
- [Erez 2010] A. Erez, Y. Meir, *Thermal phase transition in two-dimensional disordered superconductors*, EPL 91, 47003 (2010).
- [Feigel'man 2012] M. V. Feigel'man, M. A. Skvortsov, *Universal broadening of the Bardeen-Cooper-Schrieffer coherence peak of disordered superconducting films*, Phys. Rev. Lett. 109 147002, arXiv: 1112.2874v1 [cond-mat.supr-con] (2012).
- [Goldman 1967] A. M. Goldman, P. J. Kreisman, *Meissner effect and vortex penetration in Josephson junctions*, Phys. Rev. 164, 544 (1967).
- [Golubov 1994] A. A. Golubov, E. P. Houwman, J. G. Gijsbertsen, J. Flokstra, H. Rogalla, J. B. le Grand, P. A. de Korte, *Quasiparticle lifetime and tunneling times in a superconductor-insulator-superconductor tunnel junction with spatially inhomogeneous electrodes*, Phys. Rev. B 49, 12953 (1994).
- [Guéron 1997] S. Guéron, *Quasiparticles in a diffusive conductor: interaction and pairing*, thèse (1997).
- [Hansmann 2013] P. Hansmann, T. Ayrat, L. Vaugier, P. Werner et S. Biermann, *Long-range Coulomb interactions in surface systems: a first-principles description within self-consistently combined GW and dynamical mean-field theory*, Phys. Rev. Lett. 110, 166401 (2013).
- [Ingold 2005] G.-L. Ingold et Y. V. Nazarov, *Charge Tunneling Rates in Ultrasmall Junctions*, in *Single Charge Tunneling*, edited by H. Grabert and M.H. Devoret, Plenum Press, New York NATO ASI Series B 294, 21 (1992) ; arXiv:cond-mat/0508728 (2005).
- [Kim 2012] J. Kim, V. Chua, G. A. Fiete, H. Nam, A. H. MacDonald, C.-K. Shih, *Visualization of geometric influences on proximity effects in heterogeneous*

- superconductor thin films*, Nature Physics 8, arXiv:1203.0354v1 [cond-mat.supr-con] (2012).
- [Lesueur 2007] H. Lesueur, *Cryogenic AFM-STM for mesoscopic physics*, thèse (2007).
- [Moussy 2001] N. Moussy, H. Courtois, B. Pannetier, *Local spectroscopy of a proximity superconductor at very low temperature*, Europhys. Lett 55, 861 (2001).
- [Pfennigstorf 2002] O. Pfennigstorf, A. Petkova, H. L. Guenter et M. Henzler, *Conduction mechanism in ultrathin metallic films*, Phys. Rev. B 65, 045412 (2002).
- [Qin 2009] S. Qin, J. Kim, C.-K. Shih, *Superconductivity at the two-dimensional limit*, Science 324 (2009).
- [Rollbühler 2001] J. Rollbühler et H. Brabert, *Coulomb Blockade of Tunneling between Disordered Conductors*, Phys. Rev. Lett. 87, 126804 (2001).
- [Serrier-Garcia 2013] L. Serrier-Garcia, J.-C. Cuevas, T. Cren, C. Brun, V. Cerkez, F. Debontridder, D. Fokin, F.-S. Bergeret et D. Roditchev, *Scanning tunneling study of the proximity effect in a disordered two-dimensional metal*, Phys. Rev. Lett. 110, 157003 (2013).
- [Usadel 1970] K. D. Usadel, *Generalized diffusion equation for superconducting alloys*, Phys. Rev. Lett. 25, 507 (1970).

Fluctuations des vortex sous la pointe STM

- [Bean 1964] C. P. Bean et J. D. Livingston, *Surface barrier in type-II superconductors*, Phys. Rev. Lett. 12, 14 (1964).
- [Hernández 2005] A. D. Hernández, B. J. Baelus, D. Domínguez, F. M. Peeters, *Effects of thermal fluctuations on the magnetic behavior of mesoscopic superconductors*, Phys. Rev. B 71, 214524 (2005).
- [Lin 2012] S.-Z. Lin, T. Nishio, L. N. Bulaevskii, M. J. Graf et Y. Hasegawa, *Thermally assisted penetration and exclusion of single vortex in mesoscopic superconductors*, Phys. Rev. B 85, 134534 (2012).
- [Nishio 2010] T. Nishio, S. Lin, T. An, T. Egushi et Y. Hasegawa, *Tip-induced excitation of a single vortex in nano-size superconductors using scanning tunneling microscopy*, Nanotechnology 21, 465704 (2010).
- [Pogosov 2005] W. V. Pogosov, *Thermal suppression of surface barrier in ultrasmall superconducting structures*, Phys. Rev. B 81, 184517 (2010).
- [Stan 2004] G. Stan, S. B. Field, J. M. Martinis, *Critical field for complete vortex expulsion from narrow superconducting strips*, Phys. Rev. Lett. 92, 097003 (2004).

Vortex confinés dans des nanostructures de Pb/Si(111) étudiés par microscopie à effet tunnel

La supraconductivité est caractérisée par deux échelles importantes : la longueur de pénétration du champ magnétique dite de London λ , et la longueur de cohérence ξ . Dans les supraconducteurs dits de type II, la longueur ξ est plus petite que λ ce qui a pour conséquence l'éclatement du champ magnétique pénétrant le matériau en quanta de flux appelés vortex. Chaque vortex est constitué d'un cœur nanométrique où la supraconductivité est détruite (à l'échelle de ξ), tandis qu' autour de ce cœur et dans un rayon typique de l'ordre de λ circulent des courants supraconducteurs. Dans les travaux de cette thèse, nous montrons comment le confinement d'un système à une échelle comparable à ξ modifie sensiblement ses propriétés supraconductrices.

Nous avons mené cette étude dans des nanostructures de plomb déposé *in-situ* sur un substrat de silicium (111) Nous avons étudié la supraconductivité avec la spectroscopie à effet tunnel, sous UHV, à basses températures jusqu'à 300 mK, et sous champ magnétique.

Nous avons montré comment les vortex s'organisent en fonction du confinement latéral et du champ magnétique appliqué. Dans les systèmes extrêmement confinés (ayant la taille latérale inférieure à 10ξ), nous avons observé des objets quantiques prédits théoriquement depuis 45 ans : des vortex Géants. Nous avons également mis en évidence que dans les systèmes faiblement confinés (ayant la taille latérale de l'ordre de 10ξ ou plus), les effets de piégeages des vortex sont dominants à faible champ. A plus fort champ, les effets de bord augmentent et les vortex s'organisent progressivement suivant le réseau triangulaire d'Abrikosov. Enfin, proche du champ critique de transition, nous avons observé la supraconductivité de surface.

Les îlots de Pb cristallins supraconducteurs sont reliés entre eux par une monocouche de mouillage de Pb, ici désordonnée et non supraconductrice. Au voisinage de chaque îlot, nous avons observé que la couche de mouillage acquiert des caractéristiques spectroscopiques spécifiques qui reflètent l'interaction entre la supraconductivité induite par proximité et les interactions entre électrons de type Altshuler-Aronov, inhérentes à ce métal 2D diffusif. Nous avons reproduit ces résultats par la simulation de l'évolution spatiale des spectres tunnel, en combinant les équations d'Usadel et la théorie du blocage de Coulomb dynamique.

En réduisant la distance entre les îlots, l'effet de proximité autour de chacun se recouvre, ce qui forme une jonction Josephson. Nous avons sondé ces jonctions et observé des vortex Josephson sous champ magnétique. Grâce à la spectroscopie tunnel, nous avons pu étudier finement le spectre et la forme des cœurs de vortex Josephson, leur nombre et leurs positions, à travers une grande panoplie de jonctions. Non seulement nous avons pu observer l'existence d'états de cœur, mais nous avons montré également qu'ils résultent bien d'un phénomène d'interférences, ce qui explique les figures de type Fraunhofer observées dans les mesures de transport.

Superconductivity is characterized by two important length scales: the London penetration depth λ , and the coherence length ξ . In so-called type II superconductors, the length ξ is smaller than λ which results in the collapse of the magnetic field penetrating the material in quanta of flux called vortices. Each vortex is constituted by a nanometric core where superconductivity is destroyed (on ξ wide), while around the core and in a typical radius of approximately λ , superconducting currents circulate. In the work of this thesis, we show how the confinement of a system to a scale comparable to ξ substantially modifies its superconducting properties.

We carried out this study in nanostructures of lead deposited *in-situ* on a silicon (111) substrate. We studied the superconductivity by scanning tunneling spectroscopy under UHV at low temperatures down to 300 mK, and under magnetic field.

We showed how vortices are organized according to the lateral confinement and the applied magnetic field. In extremely confined systems (having the lateral size less than 10ξ), we observed quantum objects predicted 45 years ago: the Giant vortices. We also demonstrated that in the weakly confined systems (with the lateral size of the order of 10 or more ξ), strong vortex pinning effect are dominant at low field, while at intermediate fields strong edge effects dominate and the triangular Abrikosov lattice is recovered. Finally, close to the critical field, we observed surface superconductivity.

Crystalline superconducting Pb islands are here connected by a disordered non-superconducting wetting layer of Pb. In the vicinity of each superconducting island, the wetting layer acquires specific tunnelling characteristics which reflect the interplay between the proximity induced superconductivity and the inherent electron correlations of this ultimate diffusive two-dimensional metal. We reproduced the spatial evolution of the tunnel spectra by combining the Usadel equations and the theory of dynamic Coulomb blockade.

With reducing the distance between the islands, the proximity effect around each overlaps and forms a Josephson junction. We probed these junctions and we observed Josephson vortices under magnetic field. Thanks to the tunneling spectroscopy, we were able to study in detail the spectrum and form of the Josephson vortex cores, their number and positions, for a large variety of junctions. Not only we observed the existence of states inside the vortex core, but we have also shown that they result of an interference phenomenon, which explains the Fraunhofer figures observed in transport measurements.