



Dynamique térahertz des nanotubes de carbone

Matthieu Baillergeau

► To cite this version:

Matthieu Baillergeau. Dynamique térahertz des nanotubes de carbone. Systèmes mésoscopiques et effet Hall quantique [cond-mat.mes-hall]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2015. Français. ⟨NNT: 2015PA066464⟩. ⟨tel-01264927v2⟩

HAL Id: tel-01264927

<https://theses.hal.science/tel-01264927v2>

Submitted on 23 Mar 2016

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.



HAL Authorization

**THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité : Physique

École doctorale : « Physique en Île-de-France »

réalisée

au Laboratoire Pierre Aigrain

présentée par

Matthieu Baillergeau

pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

Dynamique térahertz des nanotubes de carbone

Soutenue le 10/12/2015

devant le jury composé de :

M.	Giacomo Scaliari	Rapporteur
M.	Renaud Leturcq	Rapporteur
M.	Carlo Sirtori	Examineur
M ^{me}	Agnès Maître	Présidente du Jury
M.	Patrick Mounaix	Examineur
M ^{me}	Juliette Mangeney	Directrice de thèse
M.	Richard Deblock	Membre Invité
M.	Takis Kontos	Membre Invité

Sommaire

Notations	vii
Remerciements	1
Introduction Générale	3
1 Interaction entre une boîte quantique et un résonateur térahertz	8
1.1 Introduction	9
1.2 Le résonateur térahertz	9
1.3 Le nanotube de carbone en régime de boîte quantique	14
1.4 Le couplage entre un résonateur térahertz et un nanotube de carbone en régime de boîte quantique	23
1.5 Conclusion	34
2 Techniques expérimentales pour la spectroscopie terahertz	35
2.1 Fabrication des échantillons	36
2.2 Montage expérimental pour la caractérisation des échantillons en transport électronique	40
2.3 Développement d'un banc de spectroscopie dans le domaine temporel large bande	45
2.4 Focalisation en limite de diffraction du champ térahertz	60
3 Spectroscopie des résonateurs térahertz	76
3.1 Introduction	77
3.2 Transmission d'un métamatériau - Relation avec la structure électromagnétique du résonateur	78
3.3 Spectroscopie des résonateurs	79
3.4 Influence du substrat sur la résonance d'une cavité	87
3.5 Conclusion	90
4 Premiers résultats expérimentaux du couplage entre la cavité térahertz et la boîte quantique	91
4.1 Introduction	92
4.2 Etude des niveaux électroniques	93
4.3 Influence du fil diffusif	100
4.4 Modulation des niveaux d'énergie	103
4.5 Conclusion	108
Conclusion Générale	109
A Le Fabry Perot Electronique	I

B	Calcul du courant dans le régime du blocage de Coulomb	IV
C	Recettes et procédés pour la fabrication des échantillons	VII
C.1	Recettes pour la lithographie optique	VII
C.2	Dépôt de résine et développement pour la lithographie électronique	VIII
C.3	Méthode de fabrication des tampons	VIII
C.4	Méthodes de fabrication des échantillons THz-DCB-NT	IX
D	Spectroscopie d'un échantillon dans le domaine THz	XV
E	Principe de la mesure de la taille du faisceau térahertz	XVIII
F	Etude d'un fil diffusif cohérent dans une cavité térahertz	XX
F.1	Introduction	XX
F.2	Etude théorique du blocage de Coulomb dynamique avec un environne- ment photonique	XXII
F.3	Blocage de Coulomb dynamique d'un fil diffusif dans une cavité térahertz .	XXVI
F.4	Conclusion	XXX
	Références	XXXI

Liste des figures

1	Schéma de principe de l'expérience	6
1.1	Schéma de principe de l'expérience	9
1.2	Schéma et mesure de réflectivité d'une cavité double-métal	10
1.3	Exemple de split ring resonator extrait de l'article de <i>Singh et al.</i>	11
1.4	Exemple d'utilisation des SRRs dans la littérature	12
1.5	Pertes mesurées dans le cadre d'un guide d'onde coplanaire fabriqué sur un substrat de saphir, quartz et polymère	13
1.6	Représentation schématique d'une feuille de graphène et du nanotube de carbone et zone de Brillouin	16
1.7	Schéma électronique du nanotube de carbone en régime de boîte quantique avec les différentes électrodes avec les différentes énergies rentrant en jeu	17
1.8	Schéma électronique de la boîte quantique avec les différentes électrodes dans le cadre du blocage de Coulomb	18
1.9	Conditions de stabilité pour N électrons	19
1.10	Courant et Conductance dans un régime de blocage de Coulomb	22
1.11	Schéma de principe du couplage à la cavité avec une réponse quantique du système	25
1.12	Calcul de la fonction F	30
1.13	Calcul numérique du courant et de la conductance dans le régime d'états électroniques habillés	31
1.14	Schéma de principe de l'effet tunnel photo-assisté	32
1.15	Coupe du diagramme de stabilité pour différents rapport $qV_{ac}/\hbar\omega_0$	33
2.1	Schéma de principe de fabrication d'une structure	37
2.2	Schéma de principe du tamponnage de nanotube de carbone	39
2.3	Photographie de l'échantillon après résonateur	40
2.4	Photographies du porte échantillon dans le cryostat et de l'embase	42
2.5	Photographies prises au microscope à balayage électronique de l'échantillon avec les connexions aux différents appareils	43
2.6	Schéma électronique du montage pour l'étude des échantillons en transport	44
2.7	Schéma de montage expérimental de la TDS	46
2.8	Schéma de principe de l'échantillonnage électro-optique	47
2.9	Schéma d'une antenne photoconductrice	47
2.10	Schéma d'une antenne interdigitée	51
2.11	Schéma de la détection électro-optique	53
2.12	Coefficients électro-optiques dans les cristaux de ZnTe et de GaP	54
2.13	Longueur de cohérence dans les cristaux de ZnTe et de GaP	55
2.14	Signal temporel et spectre	56

2.15	Bande passante du banc de spectroscopie en fonction du cristal utilisé . . .	57
2.16	Variation de la bande passante en fonction de la tension appliquée et de la puissance optique	59
2.17	Divergence du champ térahertz en fonction de la fréquence excitée par un front d'onde plan	63
2.18	Calcul numérique de la l'extension spatiale du champ électrique au niveau de l'échantillon dans le cadre d'une excitation classique	64
2.19	Représentation schématique de l'antenne excitée par un front d'onde sphérique	65
2.20	Divergence du champ térahertz (en $\frac{1}{\rho^2}$) en fonction de la fréquence pour une antenne excitée avec par une impulsion IR avec un front d'onde sphérique et schéma de principe	67
2.21	Schéma de principe de la mesure au à la lame de rasoir	68
2.22	Profils mesurés à la lame de rasoir pour les composantes à 4 THz et 7 THz pour un front d'onde sphérique et plan	69
2.23	Rayon et largeur à mi-hauteur en fonction de la fréquence	70
2.24	Signaux temporels et Spectres dans les deux configurations d'excitation . .	72
2.25	Rapport des spectres sondés avec un spot IR de taille 90 μm , 175 μm et 280 μm sur un spectre sondé avec un spot IR de taille 410 μm	74
3.1	Photographie et représentation schématique du résonateur SRR3	80
3.2	Transmission du résonateur SRR3 pour les deux polarisations du champ électrique térahertz	81
3.3	Simulation de la réponse en champ électrique du résonateur SRR3	82
3.4	Photos prises au microscope des résonateurs SRR3-DP1 (a) et SRR3-DP2 (b)	83
3.5	Transmission du résonateur SRR3-DP1 et SRR3-DP2	84
3.6	Simulation du résonateur SRR3-DP1 à 0.47 THz et 1.02 THz	85
3.7	Simulation du résonateur SRR3-DP2 à 0.46 THz et 1.03 THz	86
3.8	Simulation du résonateur SRR3-DP2 à 0.46 THz et 1.03 THz	86
3.9	Dépendance de la fréquence de résonance du mode en fonction du substrat	88
3.10	Image prise au microscope optique du métamatériau sur topas composé des résonateurs SRR3	88
3.11	Transmission du résonateur SRR3 sur Topas	89
4.1	Schéma de principe et photographies de l'échantillon	92
4.2	Etude statistique des niveaux	94
4.3	Diagramme de stabilité de la zone 36	95
4.4	Diagramme de stabilité de la zone 41	96
4.5	Modélisation des niveaux avec la théorie des états habillés	98
4.6	Représentation schématique d'un conducteur mésoscopique diffusif	100
4.7	Etude de l'effet du fil diffusif	102
4.8	Etude de l'évolution des niveaux électroniques en fonction de V_{nw}	104
4.9	Modulation des taux d'évènement tunnel	106
A.1	Schéma du Fabry-Pérot électronique	I
A.2	Représentation schématique de la propagation des fonctions d'onde électronique dans notre système	III
C.1	Photographie prise au MEB du nanofil	XII

C.2	Photographie prise au MEB du nanotube de carbone contacté par les électrodes	XIII
C.3	Photographie prise au microscope optique d'un échantillon après toutes les étapes	XIV
D.1	Schéma de principe de la spectroscopie TDS d'un matériau dans le domaine térahertz	XVI
E.1	Représentation schématique d'un conducteur mésoscopique diffusif	XXI
E.2	Conductance en fonction de la tension V_{nw} appliquée	XXV
E.3	Image de l'échantillon avec le résonateur SRR3-DP1 avec le fil diffusif disposé dans l'entrefer de la cavité	XXVII
E.4	Mesures expérimentales de la conductance dans les fils diffusifs dans une cavité térahertz	XXVIII

Liste des tableaux

2.1	Valeurs des grandeurs intervenant dans le calcul du r_{41} pour les cristaux GaP et ZnTe	54
3.1	Valeurs des fréquences de résonance et des facteurs de qualité de SRR3 . . .	80
3.2	Valeurs des fréquences de résonance et des facteurs de qualité de SRR3-DP1	84
3.3	Valeurs des fréquences de résonance et des facteurs de qualité de SRR3-DP2	85
3.4	Fréquences de résonance et facteurs de qualité du résonateur SRR3 sur topas	89
C.1	Résumé des temps d'exposition, de cuisson pour la photolithographie. . . .	VII
F.1	Tableau résumant les paramètres de modélisation pour les courbes de la figure F4.	XXIX

Notations

Transport Electronique

λ : Couplage sans dimension entre le nanotube de carbone et la cavité THz
 Λ : Couplage sans dimension dans la théorie de *Braig et al.*
 g : Couplage sans dimension entre le fil diffusif et le résonateur
 E : Energie
 μ Potentiel chimique
 $U - E_c$: Energie de Coulomb / Energie de charge
 $\mathcal{H}$: Hamiltonien
 σ : spin
 γ : taux tunnel
 $\Gamma = \gamma / h$: Elargissement des niveaux de la boîte quantique
 I : Courant
 G : Conductance
 $a, a^\dagger$: Opérateurs création et annihilation pour les états de la cavité THz $b, b^\dagger$: Opérateurs création et annihilation pour les états de la boîte quantique V_{nw} : Tension de polarisation du nanofil diffusif V_{sd} : Tension de polarisation de la boîte quantique V_g : Tension de grille

Spectroscopie Terahertz

λ_{THz} : longueur d'onde
 ν_{THz} : fréquence
 $\omega = 2\pi\nu$: fréquence angulaire pour les composantes terahertz
 Ω : fréquence angulaire pour les composantes optiques
 r : position
 E : Champ Electrique
 ς : Nombre d'ouverture des miroirs paraboliques
 P_{opt} : Puissance du faisceau optique
 τ_s : Temps de vie des porteurs dans le GaAs
 $\delta\tau_{EM}$: Temps de collision
 l_c : Longueur de cohérence
 $f(\omega)$: Fonction de réponse du cristal électro-optique
 ΔI : Différence de courant entre les photodiodes pour la balancée électro-optique
 $r_{THz}(\omega)$: Rayon du faisceau THz au point de focalisation pour la composante ω
 $\psi(\omega)$: Angle de divergence du faisceau THz
 $j(t)$: Photocourant au niveau de l'antenne émettrice
 c : Vitesse de la lumière
 $G(\omega)$: Gain
 $T(\omega)$: Transmission
 $Z(\omega)$: Impédance
 $\epsilon(\omega)$: Permittivité diélectrique

$\mu(\omega)$: Perméabilité magnétique

$n(\omega)$: Indice de réfraction complexe

n, k : Parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction

Remerciements

Tout d'abord, je souhaiterais remercier Jean-Marc Berroir qui m'a accueilli au laboratoire Pierre Aigrain à l'Ecole Normale Supérieure pour effectuer ma thèse. Je tiens plus particulièrement à remercier mes deux directeurs de thèse, Juliette Mangeney et Takis Kontos de m'avoir accepté en thèse, de m'avoir encadré durant ces 3 années et quelques mois et de m'avoir fait confiance sur un travail ambitieux, long et difficile et qui a suscité beaucoup de doute, de questions mais énormément de satisfaction intellectuelle quant au défi que nous nous étions fixés.

Je tiens ensuite à remercier les membres du Jury qui ont examiné mon travail de thèse, Giacomo Scalari et Renaud Leturcq qui ont pris le temps et le soin d'examiner en détail mon travail de thèse, et, Agnès Maître, Carlo Sirtori, Richard Deblock et Patrick Mounaix qui ont jugé mon travail lors de la soutenance.

Bien sûr, un travail de thèse s'effectue dans un groupe dans lequel l'interaction avec les différents membres est fondamentale tant pour l'ambiance que pour les échanges scientifiques et la réussite du projet de recherche sur lequel nous travaillons. Je remercie Jérôme et Sukhdeep, permanents du groupe de spectroscopie terahertz de leur implication et de leur aide durant mes travaux. Je tiens aussi à remercier les différents thésards et post-doc avec qui j'ai pu travailler, Pierrick, Jean pour la bonne ambiance et ton humour décapant, Sarah pour toujours rigoler à mes bêtises, et Feihu sans qui je pense la conférence à Hong-Kong aurait été plus difficile, Anaïs, Armand, Djamal, Joshua et Anthony pour le groupe de spectroscopie terahertz; Jérémie pour ton aide et ton soutien durant la thèse, Laure pour le soutien et la motivation apportée depuis mon entrée à l'ENS, Matthieu Dartailh (MaDar), Matthieu Desjardins (Matmat), Tino, Lauriane et Shubba pour l'équipe HQC. Je tiens à remercier aussi plus particulièrement Kenneth pour ce qu'il m'a appris et qui a toujours été présent pour répondre aux questions et me soutenir dans les moments de flottement (et, en particulier, qui a toujours le mot pour faire rire).

Le laboratoire est aussi un lieu de vie agréable grâce à l'ensemble des thésards présents qui apportent une ambiance conviviale propice à toute sorte de discussion (oui... allant aussi bien de la cuisine que la manière de laver les vêtements en passant par la musique et les films d'animation... et bien sûr un peu de science). Merci à Cécile, Quentin W., Antoine, Simon H., Arthur, Andreas, Holger, Camille, Teldo, Udson, Loïc, Danjiela, Quentin F., Nathanael., Emmanuel, Philippe, Omblin, Adrien, Simon B., Thanya, Wei, Badih, Fabien, Benjamin, Michele... (si j'en oublie, je suis désolé) avec qui ça a été un véritable plaisir de partager et de discuter. Un remerciement plus particulier va à mon voisin de bureau, Raphael, qui a supporté mes blagues et mes jeux de mots pendant 3 années et qui a aussi été d'une aide véritable pour les discussions scientifiques.

Un laboratoire, ce sont aussi des équipes techniques qui vous aident pour que tout se

pas pour le mieux. Merci à l'administration, Anne M. et Fabienne, merci à l'équipe d'instrumentation technique Pascal et Claude, merci à l'équipe d'électronique, David, Anne et Philippe P, merci à l'équipe de la salle blanche Michael et José, merci à la cryogénie, Olivier et

Enfin, un dernier grand merci à tous ceux que je connais depuis longtemps (et qui font aussi un thème pour certains) et qui m'ont fait penser à autre chose que ma thèse lorsqu'on se voyait, merci aux potes du lycée (Guillaume, Pierrick, Romain, Cindy, Antoine, Julien, Antoine M.), aux potes de la fac de Poitiers (Flo, Médéric, Claire...), de l'école (Martin, Antoine, Mathieu, Valentine, Guillaume, Yannick, Bastien, Anne-Laure, Simon M....), du master (Benjamin, Matthieu, Jojo...). Un merci aussi aux personnes que j'ai rencontrées durant ma thèse avec qui j'ai pu échanger (Florence, Silvia...). Enfin, un grand merci à tous les membres du pôle PESU qui m'ont fait vivre une belle aventure, Thierry, Arnaud, Adeline, Pauline, Claire, Muy-Cheng et Quentin. Tout cela aurait sans doute été plus difficile sans mes tous premiers soutiens qui sont ma famille, mes parents et mes sœurs. Un merci particulier va aussi à ma nièce, Louise, qui avec son arrivée a rendu la période de rédaction plus agréable que ce que j'aurais pu imaginer.

Introduction Générale

L'émergence de l'électrodynamique quantique en cavité a permis l'étude au niveau fondamental de l'interaction lumière-matière entre un photon et un atome [1]. Le dipôle associé aux niveaux électroniques de l'atome se couple avec le champ électrique du photon permettant la création d'un nouvel état quantique intriqué entre l'état du photon et de l'électron. On parle d'états habillés. Ce couplage a pu être étudié finement par l'implémentation de l'atome dans une cavité optique permettant de confiner le champ électromagnétique du photon [2]. Les propriétés d'échange entre l'atome et les photons sont déterminées par l'état des photons en sortie de cavité. L'étude de systèmes identiques a aussi émergé en physique mésoscopique grâce à l'apparition de cavités micro-ondes supraconductrices possédant une grande finesse et l'utilisation des atomes artificiels, ou bien plus récemment, des boîtes quantiques [3, 4]. Ces systèmes sont aujourd'hui utilisés pour des travaux d'information quantique [5, 6].

Le développement de ces systèmes hybrides offre la possibilité de pousser l'étude de l'interaction lumière-matière vers le domaine térahertz. Ce domaine, qui s'étend typiquement dans le spectre électromagnétique de 0.1 THz jusqu'à 10 THz - soit de 0.4 meV à 41 meV en énergie - est resté longtemps inaccessible de part le manque de sources puissantes et compactes et de détecteurs sensibles et simple d'utilisation. Les fortes applications industrielles, surtout dans la sécurité, que promettent le térahertz ont poussé les recherches et développements de sources et de détecteurs [7, 8] efficaces et compactes rendant l'étude de l'interaction lumière-matière possible aujourd'hui. D'autre part, l'existence de phénomènes naturels possédant des caractéristiques dans ce domaine de fréquence, tels que les vibrations intermoléculaires [9], les transitions intersoubandes des semiconducteurs [10], les rayonnements astrophysiques avec en particulier le fond diffus cosmologique [11] ou bien même les supraconducteurs eux-mêmes qui présentent des valeurs de bande interdite situées dans le sub-térahertz [7] encouragent l'étude approfondie de la nature de l'interaction de la matière avec des photons dans ce domaine spectral. La découverte de sources compactes telles que les lasers à cascade quantique émettant dans le térahertz [12] ou des antennes dipolaires [13] ainsi que la mise en place de systèmes de spectroscopie puissants dans ce domaine de fréquence [14] sont autant d'outils à notre disposition aujourd'hui pour l'étude de cette interaction lumière-matière.

L'objectif de ce travail de thèse est d'étudier le couplage entre des états électroniques individuels et les photons d'une cavité térahertz. Pour cela, nous avons conçu, fabriqué et caractérisé un système adapté à l'étude fine de ce couplage entre un photon térahertz et la matière ; le système est composé d'une boîte quantique et d'un résonateur térahertz. Les boîtes quantiques sont des atomes artificiels complexes, c'est-à-dire, des objets dont la structure électronique est discrétisée par un confinement élevé du gaz électronique permettant de simuler les niveaux orbitaux des atomes et dont les interactions électroniques

sont dominantes. Contrairement aux atomes, le spectre de la boîte quantique est facilement accordé grâce à des électrodes locales, celles-ci permettant également de sonder les états électroniques de la boîte par des mesures de transport électronique. L'objet central de notre étude a été la boîte quantique insérée dans un résonateur térahertz qui joue le rôle de boîte à photons. Le résonateur crée alors un environnement préférentiel pour que la boîte quantique soit couplée aux photons à la fréquence souhaitée. Par des mesures de courant ou de conductance de la boîte quantique, il est en principe possible de remonter aux propriétés de couplage et d'interaction entre les électrons et les photons de la cavité.

Les boîtes quantiques peuvent être fabriquées à partir de gaz bidimensionnels d'électrons [15], de graphène [16] ou bien même d'hétérostructures semiconductrices [17]. Nous avons choisi de les fabriquer à base de nanotubes de carbone pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la structure électronique est dimensionnée par des énergies dont la fréquence est située dans le térahertz. L'énergie de charge E_c et l'espacement de niveau $\Delta\epsilon$ sont typiquement de l'ordre de la dizaine de milliélectronVolt [18, 19]. De plus, les nanotubes de carbone sont des composés faciles à fabriquer et à intégrer dans des architectures hybrides tels que les résonateurs térahertz. Il existe des résonateurs sub-longueur d'onde térahertz très adaptés à notre étude car ils présentent des volumes de mode très faibles, tels que les "split ring resonator" (SRR) [20, 21] et les microcavités térahertz [22, 23]. Notre choix s'est porté sur les SRRs pour des facilités de réalisation technologique. Ainsi, notre système d'étude est composé du nanotube de carbone en régime de boîte quantique inséré dans une cavité térahertz de type SRR ; il sera notre paradigme pour l'étude de l'interaction lumière-matière avec des photons térahertz.

Des études dans le domaine térahertz ont déjà été effectuées sur les nanotubes de carbone irradiés par des photons térahertz - i.e. à grands nombres de photons. Dans les travaux de *Ischibashi et al.* [24], les auteurs ont illuminé un nanotube de carbone avec des photons térahertz et ont visualisé l'apparition de pics satellites à l'énergie du photon. Ce phénomène se prénomme évènement tunnel photo-assisté. Une étude similaire a été réalisée par *Rinzan et al.* [25] où cette fois le nanotube de carbone était inséré dans une antenne logarithmique térahertz démontrant outre des résultats similaires à ceux de *Ischibashi et al.*, la capacité des nanotubes de carbone à être utilisés comme milieux actifs pour les détecteurs térahertz. Ces mécanismes ont aussi été étudiés dans d'autres structures telles que des boîtes quantiques semiconductrices ou bien des molécules de fullerène C60 où dans les deux cas les structures étaient insérées dans une antenne illuminée avec des photons térahertz [26, 27]. Le couplage se manifeste là aussi par l'apparition d'évènements tunnel photo-assistés. *Zhong et al.* [28] et *Chudow et al.* [29] ont quant à eux étudié le mécanisme de réponse des nanotubes de carbone métalliques aux fréquences térahertz. La réponse observée est l'apparition d'une contribution quadratique supplémentaire dans le courant¹ due à la présence de photons térahertz. Cette contribution particulière est interprétée comme une signature de l'apparition d'états à une particule dans la réponse térahertz du nanotube de carbone [30]. Cependant, aucun travail n'a pu mettre en évidence à ce jour l'interaction directe entre les états électroniques et les photons térahertz.

Le couplage entre les électrons et les photons térahertz a aussi été étudié dans des systèmes associant une densité d'électron élevée comme les puits quantiques [31, 32] et les niveaux de Landau d'un gaz bidimensionnel [33] et des photons térahertz en cavité.

1. Cette contribution est de la forme $\frac{\partial^2 I}{\partial V^2} (\Delta V)^2$

Dans ces systèmes, la fréquence de Rabi Ω_r , qui décrit le couplage photon-matière a été estimée de l'ordre de la fréquence des transitions du système ω_{21} établissant un régime de couplage fort voire ultrafort. Notre travail se démarque de l'état de l'art car il vise à étudier un nanotube de carbone inséré dans une cavité térahertz dans le but d'étudier dans des aspects plus fondamentaux l'interaction lumière-matière avec un système possédant une densité faible d'électron et un photon unique.

Mon travail de thèse décrit dans ce manuscrit s'est décomposé en deux aspects, l'un tourné vers la spectroscopie térahertz et l'autre vers les mesures de transport pour l'étude du couplage électron-photon térahertz. Une première partie a consisté au développement d'un banc de spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (TDS) dans le but de caractériser les résonateurs térahertz et déterminer leurs propriétés qu'il est fondamental de connaître pour l'étude de l'interaction lumière-matière que nous souhaitons effectuer. La seconde partie a consisté à l'étude du couplage entre les photons de la cavité térahertz et la boîte quantique par des mesures de transport électronique.

Le banc de spectroscopie THz que nous avons développé possède une bande passante allant de 0.3 THz à 20 THz et utilise comme source d'émission térahertz des antennes interdigitées large ouverture [34] et comme détecteurs des cristaux électrooptiques [35]. La spectroscopie THz dans le domaine temporel est un outil très puissant basée sur la mesure de l'amplitude et à la phase du champ électrique ce qui permet de reconstruire l'indice optique n ou la conductivité σ complexe d'un matériau sondé. Ce montage permet tout d'abord de caractériser les résonateurs térahertz afin d'identifier les fréquences de résonance ainsi que les facteurs de qualité associés. La fréquence fondamentale typique des résonateurs que nous avons réalisés se situe autour de 0.5 THz. Dans un second temps, nous avons travaillé sur les propriétés du champ térahertz émis par l'antenne interdigitée large-ouverture pour optimiser la résolution spatiale de notre outil de spectroscopie ainsi que sa bande de détectivité. En effet, dans les conditions classiques d'excitation des antennes, leur diagramme de rayonnement dépend fortement de la fréquence [36, 37] ce qui limite la résolution spatiale typiquement aux dimensions des antennes et limite aussi la sensibilité en détection. En développant une méthode originale basée sur le contrôle du front d'onde térahertz, nous démontrons qu'il est possible de focaliser en limite de diffraction l'ensemble des composantes du champ THz émis ce qui offre une résolution spatiale ultime sur toute la plage spectrale. Le gain dont bénéficie la bande passante du montage est aussi montré en comparaison avec une excitation classique avec un front d'onde plan de l'antenne large-ouverture.

Nous avons dans le même temps caractérisé les échantillons constitués d'un nanotube de carbone inséré dans une cavité térahertz. Les mesures de courant permettent directement de faire la spectroscopie de la boîte quantique et de mettre en évidence le couplage de ces états électroniques à la cavité par l'apparition d'états supplémentaires. Le couplage entre un état électronique orbital et un état bosonique a déjà été réalisé avec des modes de phonons. Ces travaux ont mis en évidence un phénomène de blocage du courant et l'apparition de niveaux d'énergie régulièrement espacés de l'énergie du mode de phonons $\hbar\omega_{ph}$ [38, 39, 40, 41]. Dans le cas présent, si l'énergie de l'électron qV_{sd} est supérieure à l'énergie du mode de la cavité $\hbar\omega_0$, celui-ci a la possibilité d'émettre un photon qui vient exciter le résonateur. La population du résonateur augmente alors de 1 photon. Par ce même mécanisme, la fonction d'onde du résonateur est décalée dans l'espace d'une quantité Δx et c'est précisément ce décalage qui est à l'origine du phénomène de blocage de courant comme illustré à la figure 1.1. La caractérisation de ces différents états

par les mesures de courant donne accès au couplage λ qui existe entre la boîte quantique et le résonateur.

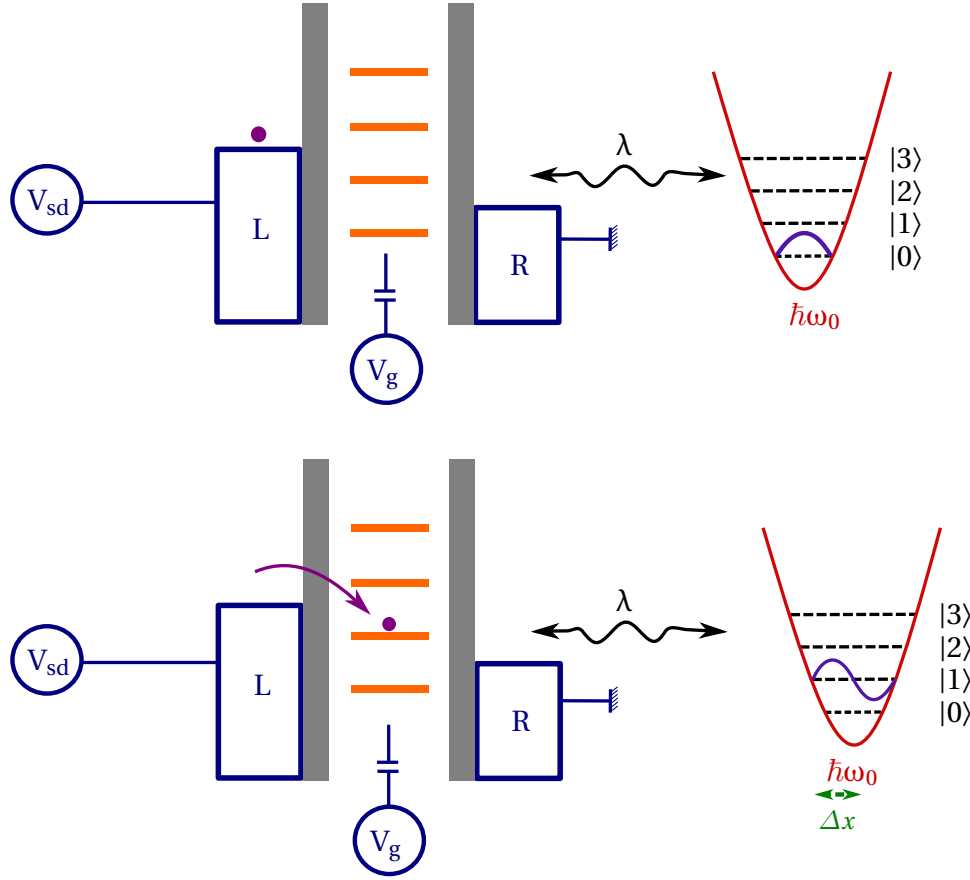


FIGURE 1 – Schéma de principe de l'expérience. Une boîte quantique avec des niveaux discrets dont l'occupation des états est contrôlée par les tensions de biais V_{sd} et de grille V_g est couplée avec un résonateur modélisé par un oscillateur harmonique. Lorsqu'un électron transite dans la boîte quantique, un photon peut être émis pour exciter l'oscillateur harmonique si $qV_{sd} > \hbar\omega_0$. L'état de l'oscillateur passe de $|0\rangle$ à $|1\rangle$. Le couplage entre la boîte quantique et le résonateur est défini par un paramètre λ . Lorsque l'électron a transité, la fonction d'onde du résonateur est décalée dans l'espace de Δx .

A cet échantillon constitué d'un nanotube de carbone inséré dans une cavité térahertz, nous avons rajouté une source de photons fabriquée à partir d'un fil de palladium de 5 nm d'épaisseur et de 1 μm de large présentant une résistance élevée de part le désordre qui existe. Deux types de mécanisme d'émission de photons sont envisagés, les fluctuations de courant ou l'échauffement du gaz électronique type effet joule [42, 43]. L'implémentation de cette source est un outil supplémentaire qui servira à étudier l'évolution des niveaux électroniques en présence de photons et à apporter des informations supplémentaires quant au couplage.

Le manuscrit se divise en quatre parties. Dans une première partie, nous allons tout d'abord décrire le couplage entre les niveaux électroniques de la boîte quantique et les modes photoniques de la cavité. La deuxième partie sera consacrée aux techniques expérimentales. La troisième partie sera consacrée à la caractérisation des résonateurs. Enfin, les résultats consacrés aux mesures de transport des nanotubes de carbone insérés dans un résonateur térahertz seront détaillés dans une quatrième partie.

Dans le premier chapitre, nous décrirons les deux objets principaux mis en jeu dans

notre étude, les résonateurs térahertz et le nanotube de carbone. Nous décrirons deux types de résonateurs, les microcavités térahertz et des SRRs et nous motiverons notre choix pour cette seconde classe de résonateurs. Nous détaillerons le transport dans les nanotubes de carbone en régime de boîte quantique dans les conditions de blocage de Coulomb. Enfin, en réunissant les deux objets, nous étudierons le transport dans les nanotubes de carbone couplés à un mode de cavité et nous mettrons en évidence différents régimes. Nous insisterons particulièrement sur le régime à faible nombre de photons qui permet de définir le couplage λ présenté à la figure 1.1, et qui sera notre principal régime d'étude.

Dans la seconde partie, nous introduirons les techniques expérimentales que nous avons développées pour effectuer nos mesures. Les méthodes de fabrication des échantillons développées pour les nanotubes de carbone et les résonateurs seront explicitées dans un premier temps en mettant en avant la technique de tamponnage des nanotubes de carbone. Le montage de la TDS et les différentes spécificités de ce banc qui met en jeu des impulsions térahertz large-bandes seront détaillés en premier lieu en décrivant à la fois le mécanisme d'émission par l'antenne interdigitée et de détection par l'effet électro-optique. Cela permettra d'introduire le concept original que nous avons mis en place pour focaliser le faisceau térahertz en limite de diffraction. Les méthodes de mesures du courant et de la conductance des échantillons seront introduites dans un dernier paragraphe.

Dans la troisième partie, nous détaillerons les caractérisations par TDS des résonateurs utilisés dans les échantillons à boîte quantique, ainsi que les simulations numériques effectuées pour étudier la répartition du champ à résonance. L'étude débute autour d'un résonateur nommé SRR3 qui a été modifié par la suite en ajoutant des structures dipolaires autour du résonateur pour améliorer le couplage du résonateur THz avec la boîte quantique et le fil diffusif. Une étude préliminaire de ce même résonateur a aussi été effectuée sur du topas pour étudier l'influence du substrat sur les modes de résonance de ce résonateur.

Enfin, des mesures de transport d'un nanotube de carbone dans une cavité térahertz seront présentées dans la quatrième partie. Nous détaillerons les mesures faites sur l'échantillon THz-NT-DCB-02-1a. L'étude se divise en une étude statistique des niveaux d'énergie et une étude de certaines zones présentant des états régulièrement espacés. Cette première étude montre que nous avons des niveaux dont l'amplitude des pics de conductance suit une loi de Poisson, signes caractéristiques de présence d'états habillés par un état bosonique. Dans un second temps, nous avons étudié l'effet de la source sur ces niveaux d'énergie en mettant en évidence une modulation de la conductance de ces niveaux. Pour comprendre l'origine de la modulation de la conductance de ces niveaux, nous proposons une modélisation par des événements tunnels photo-assistés. Nous montrerons que plusieurs indices tendent à indiquer un couplage des états électroniques à un mode bosonique issu de la cavité. Les limites de cette interprétation seront discutées dans le manuscrit.

Chapitre 1

Interaction entre une boîte quantique et un résonateur térahertz

Sommaire

1.1	Introduction	9
1.2	Le résonateur térahertz	9
1.2.1	Les microcavités métal-diélectrique-métal térahertz	10
1.2.2	Les split ring resonators (SRR)	11
1.2.3	Le facteur de qualité Q de la cavité	12
1.2.4	Le choix du résonateur THz : les SRRs	14
1.3	Le nanotube de carbone en régime de boîte quantique	14
1.3.1	Propriétés spectrales des nanotubes de carbone en régime de boîte quantique	15
1.3.2	Les différentes échelles d'énergie	17
1.3.3	Le blocage de Coulomb	18
1.3.4	Expression du courant en régime de blocage de Coulomb	20
1.4	Le couplage entre un résonateur térahertz et un nanotube de carbone en régime de boîte quantique	23
1.4.1	Description du système et échelles d'énergie	25
1.4.2	Différents régimes de couplage au champ térahertz	27
1.5	Conclusion	34

1.1 Introduction

L'objectif principal de ce travail de thèse est d'étudier l'interaction lumière-matière aux fréquences térahertz dans un système constitué d'un nanotube de carbone en régime de boîte quantique placé au sein - ou à proximité - d'un résonateur THz. Nous effectuons des mesures de transport électronique pour sonder cette interaction lumière-matière. Le système étudié est présenté figure 1.1 et se compose de deux objets : un résonateur et un nanotube de carbone en régime de boîte quantique, connecté à des électrodes de source, drain et grille nécessaires aux mesures de transport. Le nanotube de carbone et le résonateur sont couplés de manière capacitive - comme deux charges en regard au niveau des armatures. Ce couplage est défini par un paramètre λ et permet l'échange de photons entre la boîte quantique et le résonateur à l'énergie des modes de résonance.

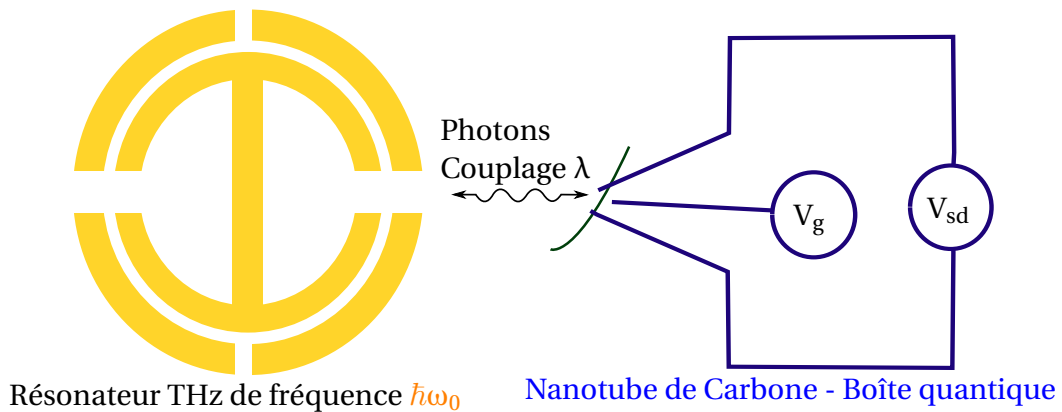


FIGURE 1.1 – Schéma de principe de l'expérience. Une nanotube de carbone en régime de boîte quantique est couplé de manière capacitive avec un résonateur térahertz de fréquence $\hbar\omega_0$. On nomme λ le couplage qui se caractérise par un échange de photons entre les deux entités.

1.2 Le résonateur térahertz

Afin de choisir le type et la géométrie du résonateur THz, nous devons définir dans un premier temps les propriétés du résonateur THz pour son interaction avec la boîte quantique soit optimale. La fonction du résonateur dans le système est d'emmagasinier des photons dont la fréquence se situe dans le domaine térahertz et de les échanger avec la boîte quantique. L'énergie de charge E_c dans les nanotubes de carbone étant de l'ordre de la dizaine de millielectronVolt et l'espacement de niveau $\Delta\epsilon$ variant entre 8.5 meV et 1.7 meV pour des boîtes de taille située entre 200 nm et 1 μm , les résonateurs doivent avoir des résonances $\hbar\omega_0$ situées entre 2 et 8 meV pour être résonnant avec l'espacement de niveau et l'énergie de charge. Le facteur de qualité Q du résonateur, qui est défini par l'énergie dissipée sur l'énergie totale stockée dans le résonateur, doit être suffisant pour que le résonateur puisse interagir avec le nanotube de carbone en régime de boîte quantique.

Le substrat du système choisi est le silicium haute résistivité classiquement utilisé pour les mesures de transport électroniques. Les études sur l'interaction lumière matière au sein d'un nanotube de carbone en régime de boîte quantique placé dans une cavité ont été réalisées jusqu'à présent aux fréquences GHz. Les cavités utilisées étaient des cavités métalliques coplanaires. L'architecture de ces cavités est néanmoins inadaptée au régime

téraherzt car les pertes sont extrêmement élevées [44, 45, 46]. Un calcul effectué avec les formules utilisées dans les micro-ondes pour une cavité "microstrip" $\lambda/2$ à une fréquence de 0.5 THz sur un substrat de silicium de 500 μm nous donne des pertes par dissipation ohmique de l'ordre de $2.1 \times 10^4 \text{ Np/m}$. Sans inclure les pertes radiatives et diélectriques, le facteur de qualité calculé est alors $Q \approx 0.8$. La cavité résonne très faiblement. De plus, le confinement du mode est faible car il est essentiellement piégé dans le substrat [47]. Pour répondre à ces limitations, nous avons considéré deux autres types de résonateurs : les microcavités métal diélectrique métal et les "split ring resonators (SSR)".

1.2.1 Les microcavités métal-diélectrique-métal téraherzt

Les microcavités métal-diélectrique-métal sont des résonateurs étudiés par *Todorov et al.* [48]. L'idée est de confiner le mode téraherzt en utilisant une faible épaisseur de diélectrique placée entre deux plans métalliques (voir figure 1.2). Le fort confinement du mode est assuré par la faible épaisseur du diélectrique utilisé comparée à la longueur d'onde à résonance. Les modes de résonance correspondent à des modes de cavité de type TM et qui sont observables par des mesures de spectre en réflexion présentées sur la droite de la figure 1.2. On peut observer que le facteur de qualité dont un calcul approché est donné par le rapport de la fréquence de résonance ω_0 sur la largeur à mi-hauteur de la cavité $\Delta\omega$, $Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega}$, n'excède pas 10 pour le mode $K = 1$. Ces microcavités ont été étudiées sous plusieurs configurations, avec des tailles pouvant varier afin d'optimiser le confinement du champ dans un volume plus restreint [22]. Dans les travaux de *Paulillo et al.* [23], les auteurs ont rajouté une boucle métallique entre les deux plans métalliques afin de doter cette cavité d'une résonance pouvant être décrit de manière équivalente par un circuit LC. Les deux plans métalliques confinant le mode jouent le rôle de condensateur donnant une capacité et la boucle joue le rôle d'inductance. La fréquence de résonance est ainsi facilement modifiable en changeant la taille de la boucle ce qui influe directement sur l'inductance du résonateur. Ces cavités ont été couplées avec les transitions intersous-bandes de puits quantiques [31]. Les mesures ont démontré un couplage ultra-fort entre photons et électrons démontrant un échange important entre la structure confinée et la cavité.

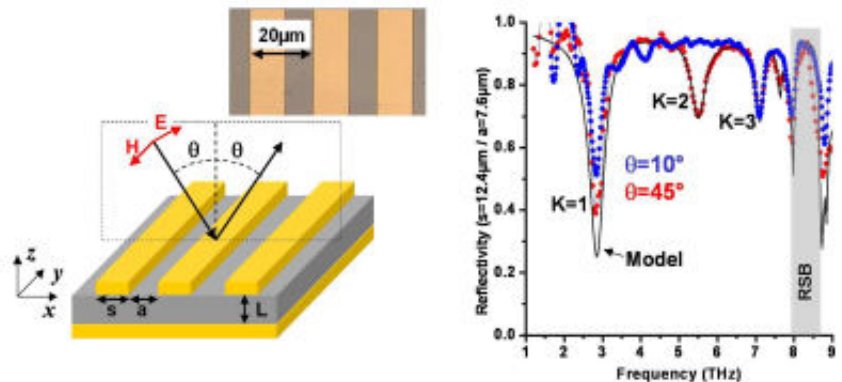


FIGURE 1.2 – Figure extraite de l'article de *Todorov et al.* [48]. A gauche est présentée une figure de principe de la cavité double-métal. A droite est présentée une mesure en réflexion selon différents angles d'incidence du champ téraherzt.

1.2.2 Les split ring resonators (SRR)

Les SRRs sont des résonateurs qui ont été utilisés dans les micro-ondes pour leur haut facteur de qualité et leur facilité de fabrication *Hardy et al.*[49]. Ce sont des éléments tels que la longueur caractéristique est très petite devant la longueur d'onde λ liée à la fréquence de résonance. La dimension de la structure est de l'ordre de $\lambda/6$ - $\lambda/10$. Un exemple de SRR est présenté en figure 1.3. Ils sont constitués de deux éléments fondamentaux : une boucle qui définit une inductance L et un espacement qui définit une capacité C . La fréquence de résonance fondamentale de ce résonateur est : $\omega_{LC} = \frac{1}{\sqrt{LC}}$. L'inductance L est composée de deux termes, l'inductance géométrique L_m correspondant à l'inductance de la boucle et l'inductance provenant de l'énergie cinétique de l'électron L_e [50] telle que $L \approx L_e + L_m$. La capacité C peut être calculée en considérant deux armatures en regard de section du résonateur S et séparées par l'espacement de l'entrefer l dans un milieu de permittivité effective ϵ_{eff} défini par le substrat et l'air $C \approx \frac{\epsilon_{\text{eff}} S}{l}$. La transmission de la courbe $\delta x = 0$ visible à droite sur la figure 1.3 montre une résonance fondamentale à 0.5 THz - soit une énergie $\hbar\omega_{LC} \approx 2$ meV - avec un facteur de qualité pour cette résonance de l'ordre de 10 en utilisant la même définition que pour les microcavités métal-diélectrique-métal. La capacité et la taille de la boucle peuvent être aussi facilement modifiées afin de changer la fréquence de résonance fondamentale du résonateur. Cette description autorise à modéliser le résonateur proche de la fréquence de résonance comme un circuit RLC.

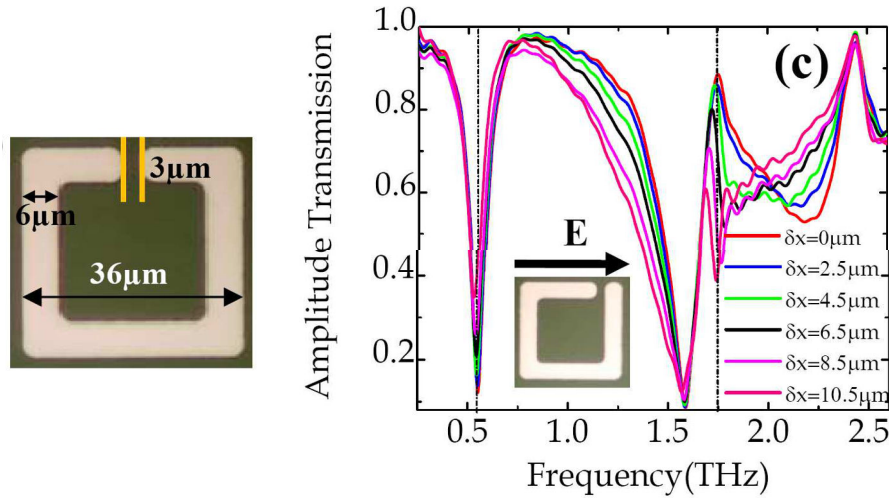
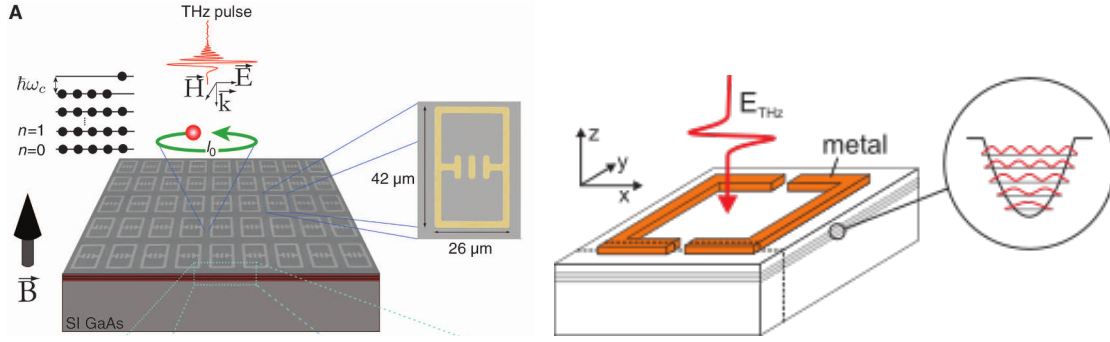


FIGURE 1.3 – Exemple de SRR extrait de l'article de *Singh et al.* [20]. A gauche, photographie optique prise au microscope d'un SRR avec la transmission du métamatériau qu'il compose selon une polarisation du champ défini en insert. Les valeurs δx mentionnées sont le décalage de l'entrefer du résonateur par rapport à l'axe central favorisant la finesse de la résonance fondamentale à 0.5 THz.

Le champ électrique térahertz induit un courant dans la structure qui suit la trajectoire de la boucle. Ce courant crée un champ magnétique qui est orthogonal au plan du résonateur. Ensuite, de part l'accumulation de charges aux extrémités de l'entrefer, un champ électrique intense qui est émis dans l'entrefer du résonateur. La valeur de ce champ électrique peut atteindre quelques kV/cm à résonance et être extrêmement confiné autour de l'entrefer du résonateur (quelques μm^3). A la différence d'une cavité type ligne de transmission, les champs ne se propagent pas et sont quasistatiques dans l'espace et en temps au premier ordre.



(a) Figure extraite de l'article de *Scalari et al.* [33] présentant le gaz bidimensionnel en rouge avec le métamatériau au dessus. Le résonateur utilisé est présenté en agrandissement sur la droite de la figure

(b) Figure extraite de l'article de *Dietze et al.* [51] présentant un métamatériau déposé sur un ensemble de puits quantiques. Le résonateurs utilisé est similaire à celui de la figure 1.3.

FIGURE 1.4 – Exemple d'utilisation de SRRs pour coupler des photons térahertz avec une structure composée de puits quantiques ou bien un gaz bidimensionnel. Le couplage ultrafort a été observé dans ces deux cas.

Ces résonateurs ont été utilisés sous forme de métamatériaux afin de coupler des photons avec différentes structures. *Scalari et al.* ont réussi à coupler un gaz bidimensionnel d'électrons plongé dans un champ magnétique avec une assemblée de SRRs et ont pu identifier un couplage ultra-fort entre les modes collectifs du gaz bidimensionnel et les modes photoniques du résonateur marqué par un dédoublement de Rabi du vide. Le schéma de l'échantillon est présenté à la figure 1.4a. De la même manière, *Dietze et al.* ont démontré un couplage fort en utilisant le champ proche à résonance afin de le coupler avec des transitions intersousbandes des puits quantiques comme dans les travaux de *Todorov et al.* présentés précédemment. Le schéma de principe de l'expérience est présenté à la figure 1.4b.

1.2.3 Le facteur de qualité Q de la cavité

Nous avons vu que les valeurs typiques des facteur de qualité de ces résonateurs métalliques aux fréquences THz sont de l'ordre de la dizaine. Il s'agit de valeurs faibles comparées aux valeurs obtenues en micro-onde et sa valeur peut influencer la forme du couplage qui sera finalement obtenue. L'une des raisons pour lesquelles le facteur de qualité des résonateurs se dégradent aux fréquences THz est liée à un accroissement des pertes. En effet, le facteur de qualité est proportionnel au rapport de l'énergie stockée sur l'énergie dissipée, elle-même proportionnelles aux pertes α .

Les pertes α des résonateurs (ou de la cavité) sont définies par la somme de trois composantes, les pertes diélectriques α_D , les pertes dues à la conductivité et les pertes radiatives. Les pertes diélectriques sont propres au diélectrique utilisé, dépendent de la tangente des pertes $\tan(\delta)$ ¹ et évoluent linéairement en fréquence. Dans notre cas, la tangente des pertes dans le silicium est de l'ordre de 1×10^{-3} [52]. Il s'agit de faibles pertes ce qui fait que les pertes diélectriques sont généralement négligeables comparées aux autres types de perte. Les pertes dues à la conductivité du métal utilisées α_C traduisent

1. $\tan(\delta)$ est défini comme étant le rapport des parties imaginaire et réelle de la permittivité $\frac{\text{Im}(\epsilon)}{\text{Re}(\epsilon)}$.

la dissipation de type effet joule et sont proportionnelles à la racine carré de la fréquence $\alpha_c \propto \omega^{1/2}$. Les pertes radiatives α_R décrivent les pertes relatives à l'émission de radiation THz et sont proportionnelles au cube de la fréquence $\alpha_R \propto \omega^3$ [44, 45]. Les pertes dues à la conductivité et les pertes radiatives dépendent de la géométrie de la structure utilisée et de l'épaisseur du substrat.

Un exemple de calcul et de mesure de ces pertes est présenté figure 1.5. Cette figure présente l'atténuation α totale en fonction de la fréquence sur différents substrats (saphir, quartz et polymère) en fonction de la fréquence sur une ligne de transmission coplanaire avec une épaisseur de 200 nm d'or. Même si la ligne de transmission coplanaire est une structure différente des résonateurs mentionnés précédemment, il s'agit d'une excellente illustration de ce qui se produit dans le domaine THz. Alors que les pertes radiatives α_R sont négligeables dans les micro-ondes, elles deviennent prédominantes dans le THz et plus importantes que les pertes induites par la seule conductivité du matériau à cause du comportement en ω^3 [44, 45, 46]. Ce raisonnement est aussi applicable dans le cadre des SRRs où les pertes radiatives et ohmiques deviennent importantes dans le THz [53, 54]. La croissance de ces pertes provoquent une augmentation de l'énergie dissipée et donc une dégradation du facteur de qualité.

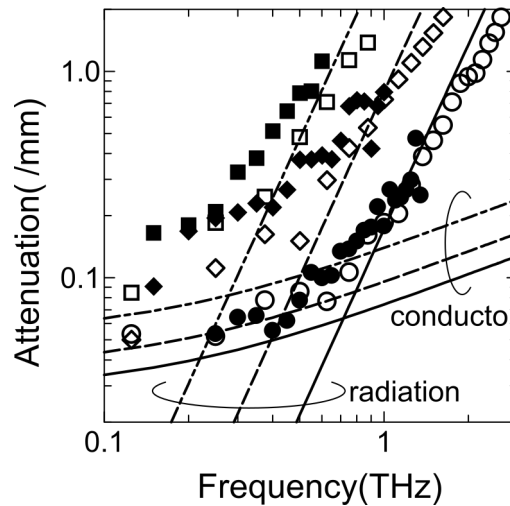


FIGURE 1.5 – Pertes mesurées dans le cadre d'un guide d'onde coplanaire fabriqué sur un substrat de saphir (carré), quartz (losange) et polymère (cercle) extrait de l'article de *Kadoya et al.* [55]. En blanc sont représentées les données expérimentales, en noir sont représentés les points extraits d'une simulation avec un code en élément fini, les lignes sont les prédictions théoriques issues des formules analytiques dans le domaine microonde.

Plusieurs stratégies ont été développées pour pallier cette dégradation des pertes aux fréquences THz. Une stratégie est de réaliser des résonateurs avec des supraconducteurs tels que le niobium [56] ; une amélioration du facteur de qualité d'un facteur 5 a été démontrée par la réduction des pertes ohmiques. Une deuxième stratégie est de faire ressortir une résonance de type Fano très fine en jouant sur la symétrie du résonateur ou bien en le couplant avec d'autres résonateurs [20, 57, 58]. Les résonances Fano sont des résonances issues des interférences entre deux phénomènes physiques dont l'un possède un spectre discret et l'autre est un continuum d'état. La résonance est ici créée par l'asymétrie du résonateur par exemple. Cependant, l'analyse de données avec ce type de résonance est nettement plus complexe que dans le cas d'une simple résonance de part la multiplication des canaux d'échange d'énergie possibles.

Dans le régime d'étude qui sera détaillé dans les prochaines sections, pour qu'un effet puisse être visible, le système ne doit pas relaxer trop rapidement. Le facteur de qualité doit être tel que $Q > \frac{2\lambda}{\pi\hbar\omega_0}$ [59]². Pour des couplages sans dimension de l'ordre de 1, $\lambda/\hbar\omega_0 \sim 1$, le facteur de qualité limite doit être de l'ordre de 1, $Q_c \approx 1$. Le choix de prendre un facteur de qualité de l'ordre de 10, comme dans les SRRs, nous assure d'être dans un régime où nous pourrions visualiser ce couplage.

1.2.4 Le choix du résonateur THz : les SRRs

Les SRRs et les microcavités métal-diélectrique-métal présentent des propriétés attractives, celles d'avoir des facteurs suffisamment élevés pour que nous puissions visualiser un couplage et des fréquences de résonances qui tombent dans la gamme d'énergie que nous souhaitons. De plus, les exemples récents de couplage ultra-fort lumière-matière rapportés avec ces structures ont été démontrés. Cependant, les microcavités métal-diélectrique-métal représentent un défi technologique plus important que les SRRs. En effet, alors que la fabrication des SRRs ne nécessite que le dépôt d'une couche métallique sur un substrat quelconque, la fabrication des microcavités métal-diélectrique-métal requière des développements technologiques plus importants pour que le mode soit confiné comprenant des étapes de gravure, de dépôt de diélectrique et plusieurs étapes de lithographie pour l'implémenter dans l'échantillon. De plus, les SRRs possèdent des entrefers dans lesquels nous pourrions insérer judicieusement le nanotube de carbone car le champ électrique est particulièrement élevé à la résonance du fondamental. Le facteur de qualité des SRRs, limité par les pertes radiatives et ohmiques élevées dans ce domaine de fréquence, reste faible mais compatible avec notre objectif. Ces considérations nous ont conduit à choisir les SRRs pour réaliser les cavités THz des systèmes étudiés dans ce travail de thèse.

1.3 Le nanotube de carbone en régime de boîte quantique

Le deuxième objet de notre expérience est le nanotube de carbone en régime de boîte quantique. Le nanotube de carbone est un composé unidimensionnel découvert dans les années 90 [60] que nous pouvons aujourd'hui fabriquer facilement par croissance CVD (*chemical vapor deposition* en anglais). Le nanotube de carbone a très vite rencontré un vif intérêt autant pour son potentiel technologique [61] que pour l'étude fondamentale de la matière [62] et c'est dans ce cadre que nous l'utilisons. Dans ce travail de thèse, le nanotube de carbone qui est simple paroi, est utilisé pour fabriquer une boîte quantique qui sera la matière dans notre paradigme. Pour obtenir une boîte quantique il est nécessaire de confiner le gaz électronique dans la direction le long du tube. Une approche est de créer des barrières tunnel sur le nanotube en déposant des électrodes métalliques en palladium par exemple. Les barrières créées alors sont suffisamment hautes en terme d'énergie pour que le gaz électronique se trouvant entre les deux électrodes soit isolé dans cette partie de l'espace. De plus, afin d'étudier le transport électronique à travers la boîte quantique, il est nécessaire de fabriquer un transistor à trois terminaux (source, drain et

2. Dans le cas où le facteur de qualité serait inférieur à Q_c , le système relaxerait immédiatement dans un état classique et la visualisation de cet effet serait plus délicat et difficile à interpréter

grille) [63] avec la boîte quantique comme élément actif du transistor. Les barrières métalliques servant au confinement du gaz électronique sont utilisées comme des électrodes de source et de drain dont les potentiels sont ajustables. Une troisième électrode de grille est ajoutée et couplée de manière capacitive à la boîte quantique pour moduler son potentiel chimique. L'un des mécanismes de transport principal au sein des nanotubes de carbone en régime de boîte quantique est le régime de blocage de Coulomb qui sera développé en détail dans cette section.

1.3.1 Propriétés spectrales des nanotubes de carbone en régime de boîte quantique

Commençons par une brève description des états d'énergie des nanotubes de carbone en régime de boîte quantique qui ont largement été étudiés dans la littérature. Le nanotube de carbone est souvent représenté comme une feuille de graphène repliée sur elle-même comme l'illustre la figure 1.6a. La feuille de graphène est composée d'atomes de carbone disposés en nid d'abeille dont la relation de dispersion $E(k)$ a été établie en 1947 par Wallace [64]. C'est un matériau sans bande interdite qui possède une dispersion linéaire le long des points de dégénérescence appelés points de Dirac. Le graphène étant un matériau bidimensionnel, il faut 2 vecteurs $\vec{a}_1$ et $\vec{a}_2$ pour décrire sa maille élémentaire comme illustré en figure 1.6a. A partir de cette relation de dispersion et des conditions de repliement, il est possible de remonter aux propriétés du nanotube de carbone quelque soit son repliement si toutefois son diamètre est supérieur à la taille de la maille de la feuille de graphène [65] afin que le spectre soit peu déformé. Le repliement du nanotube de carbone est défini par le vecteur $\vec{C} = n\vec{a}_1 + m\vec{a}_2$, vecteur décrivant la circonférence du nanotube de carbone appelé vecteur de chiralité. Cela permet de définir deux vecteurs $k_{\parallel}$ et $k_{\perp}$ qui décrivent la structure du nanotube dans l'espace réciproque dans la direction parallèle et perpendiculaire de l'axe du nanotube.

Le diamètre du nanotube étant de l'ordre de quelques nanomètres, il y a une quantification du moment cristallin dans la direction perpendiculaire au nanotube de carbone $k_{\perp}$. En considérant que le tube a une longueur infinie, la condition au limite périodique s'écrit sur le vecteur $\vec{k}$, $\vec{C} \cdot \vec{k} = \pi k_{\perp} D = 2\pi p$ avec $k_{\perp} = p \frac{2}{D}$ où D est le diamètre du nanotube de carbone et p un entier. La figure 1.6b représente une coupe à $E=0$ du diagramme de dispersion. Les conditions de quantification sur le vecteur $k_{\perp}$ sont dessinées à travers les lignes rouges sur le même graphe et la zone de Brillouin du graphène est dessinée en vert. Si ces conditions de quantification passent sur un point de Dirac situé aux extrémités de la zone de Brillouin marqués par des points circulaires sur la figure 1.6b, le nanotube ne possède pas de barrière interdite et est métallique. Dans le cas contraire, le nanotube est semi-conducteur comme le cas représenté à la figure 1.6b. L'état métallique ou semi-conducteur du nanotube dépend de son repliement et donc des indices chiraux (m, n) [66, 67]. La connaissance de la condition de quantification sur $k_{\perp}$ permet de remonter à la relation de dispersion $E(k_{\parallel})$ du nanotube de carbone [50, 65] :

$$E(k_{\parallel}) = \sqrt{\hbar^2 v_f^2 k_{\parallel}^2 + E_G^2 / 4} \quad (1.1)$$

où $v_f \sim 8.1 \times 10^5$ m/s [19] est la vitesse de Fermi, E_G est la valeur de la bande interdite, et $\hbar$ la constante de Planck réduite. Cette équation est l'équation d'une parabole et donne une dispersion linéaire pour des valeurs de $k_{\parallel}$ suffisamment grandes.

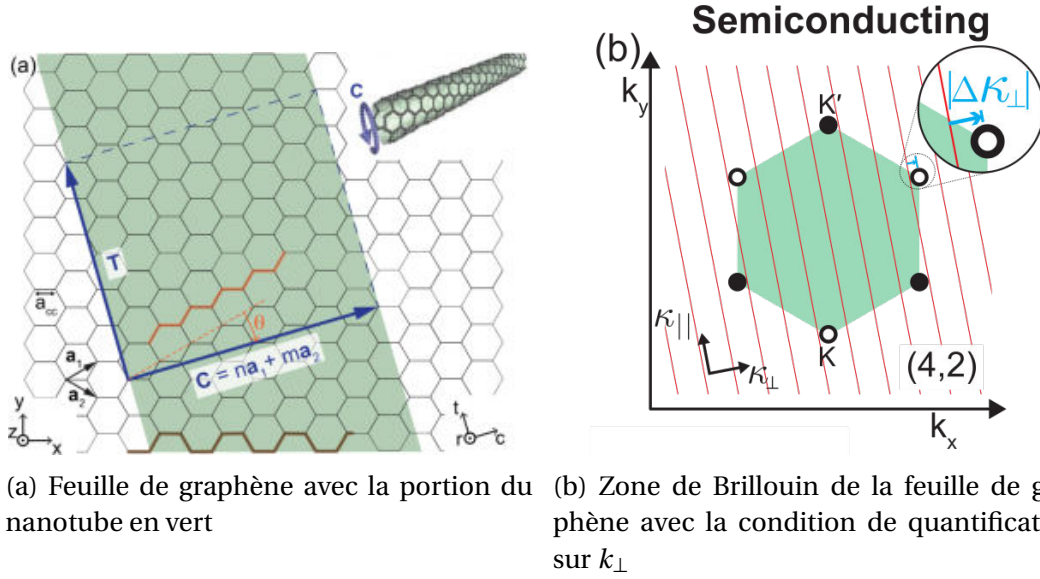


FIGURE 1.6 – Représentation schématique (a) d'une feuille de graphène et de la portion en verte qui repliée donne naissance au nanotube de carbone en haut à gauche issue de la revue de *Laird et al.* [65]. Le vecteur $\vec{C}$ est le vecteur circonférence qui impose la condition de quantification sur $k_{\perp}$ visible à travers les lignes rouges sur la figure (b) issue de la même revue. En fonction de la valeur des nombres chiraux (n,m) , nous avons un nanotube métallique ou un nanotube semiconducteur comme représenté sur la figure (b).

Lorsque des électrodes métalliques sont placées sur le nanotube pour obtenir une boîte quantique, une seconde condition de quantification apparaît dans la direction le long du nanotube de carbone avec des conditions aux limites nulles faisant apparaître des états orbitaux discrets en énergie, $k_{\parallel} \cdot L = \pi q$ avec $k_{\parallel} = q \frac{\pi}{L}$ où L est la taille de la boîte quantique³. Si on remplace la valeur de $k_{\parallel}$ par les valeurs imposées par la quantification dans la formule 1.1, l'énergie s'écrit $E(q) = \sqrt{q^2 \Delta\epsilon^2 + E_G^2/4}$ où $\Delta\epsilon = \frac{h\nu_f}{2L}$. Ainsi l'espacement d'énergie entre deux niveaux $\Delta E = E(q+1) - E(q)$, est donné par :

$$\Delta E = (q+1)\Delta\epsilon \sqrt{1 + \frac{E_G^2}{4(q+1)^2 \Delta\epsilon^2}} - q\Delta\epsilon \sqrt{1 + \frac{E_G^2}{4q^2 \Delta\epsilon^2}} \quad (1.2)$$

Dans le cas où q est suffisamment grand, on trouve que l'espacement entre deux niveaux est donné par l'expression :

$$\Delta E \approx \Delta\epsilon = \frac{h\nu_f}{2L} \quad (1.3)$$

L'expression 1.3 est la formule que nous utiliserons dans la suite pour exprimer la différence de niveaux dans la boîte quantique. Elle a été proposée en 1997 par *Tans et al.* [19] qui a effectué la première mesure électronique d'un nanotube de carbone et démontré par *Liang et al.* en 2001 [68]. La discrétisation des niveaux telle qu'elle est décrite rappelle naturellement les niveaux orbitaux atomiques et justifie l'emploi de niveaux discrets pour effectuer une description théorique de la boîte par la suite.

3. Dans notre cas, L est la distance entre les deux électrodes et est environ de 300 nm

1.3.2 Les différentes échelles d'énergie

L'espacement de niveau $\Delta\epsilon$ n'est pas la seule énergie rentrant en compte pour pouvoir décrire pleinement le transport électronique dans la boîte quantique. Il faut également considérer l'énergie thermique k_bT qui est une énergie qui rentre naturellement en jeu pour le confinement des états électroniques de la boîte quantique. A cause des interactions électroniques qui sont dominantes dans notre boîte quantique, une autre énergie également importante du système est l'énergie de charge E_c . L'énergie de Coulomb associée est exprimée avec les capacités du système. Les barrières tunnel peuvent-être schématisées comme des résistances et des capacités en parallèle comme décrit sur la figure 1.7. Nous introduisons ainsi 2 grandeurs C_L et C_R les capacités équivalentes des barrières de gauche et de droite. La capacité de la grille C_g doit être également prise en compte.

L'énergie de charge s'écrit : $E_c = \frac{q^2}{C_\Sigma}$ où $C_\Sigma = C_L + C_R + C_g$. Cette énergie est de l'ordre de la dizaine de meV. Enfin, de part le couplage des niveaux de la boîte quantique avec un environnement extérieur, les électrons présents sur les niveaux électroniques ont un temps de vie fini qui se manifeste par un élargissement de ces niveaux, Γ et qui est notre dernière échelle d'énergie. Cet élargissement est directement lié aux taux d'événements tunnels γ par $\Gamma = h\gamma$. Ce dernier terme est directement lié au courant circulant à travers la boîte quantique, plus cette énergie est grande, plus le nombre d'événements tunnel est grand et donc plus le courant circulant dans la boîte est élevé. Cette énergie décrit aussi le confinement de la boîte quantique par rapport aux mers de Fermi des électrodes. Les énergies importantes et leur origine sont résumées sur le schéma 1.7

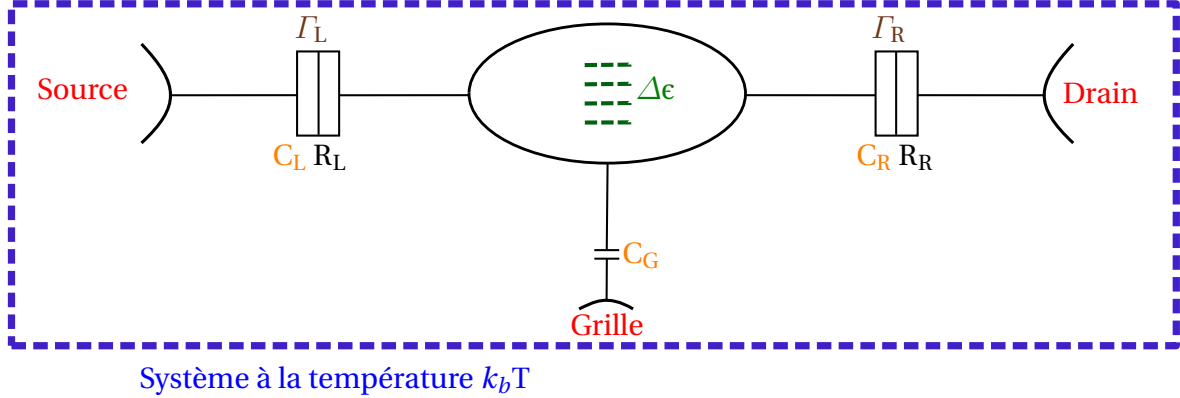


FIGURE 1.7 – Schéma électronique du nanotube de carbone en régime de boîte quantique avec les différentes électrodes. Les échelles d'énergie importantes rentrant en jeu sont mentionnées : la température k_bT , l'énergie de charge $\frac{q^2}{C_\Sigma}$, l'énergie des jonctions tunnel Γ et l'espacement de niveau dans la boîte $\Delta\epsilon$.

Le régime de transport dans lequel se trouve la boîte quantique dépend du rapport des différentes énergies rentrant en jeu dans le système. Il existe deux configurations particulières fréquemment rencontrées dans les nanotubes en régime de boîte quantique :

1. $E_c, k_bT \ll \Gamma < \Delta\epsilon$. Dans ce cas, le transport est dominé par l'espacement de niveau à l'intérieur du nanotube de carbone et le faible confinement de la boîte quantique. Les interactions coulombiennes sont négligeables. Il s'agit du régime de Fabry-Pérot électronique qui est traité en annexe A.
2. $\Gamma, k_bT \ll \Delta\epsilon \sim E_c$. Dans ce second cas, le système est dominé par les interactions

électroniques et le confinement. Le régime observé se dénomme alors blocage de Coulomb.

Dans ce travail de thèse, nous allons nous focaliser uniquement le régime de blocage de Coulomb c'est à dire le cas où $\Gamma, k_b T \ll \Delta\epsilon \sim E_c$ car c'est le régime de transport principalement identifié lors des mesures de transport des échantillons. Nous allons faire une analyse électrostatique du système pour comprendre plus finement les mécanismes rentrant en jeu dans le transport dans ce régime.

1.3.3 Le blocage de Coulomb

Le régime de blocage de Coulomb n'est expérimentalement observable que si les résistances tunnel sont grandes devant le quantum de résistance [69], $R_i \gg e^2/h$. La première observation expérimentale d'un régime de blocage de Coulomb dans les nanotubes de carbone date de 1997 [18]. Pour analyser le transport dans la boîte quantique en régime de blocage de Coulomb, on a fréquemment recours à une description électrostatique à cause des fortes interactions coulombiennes qui localisent fortement les électrons dans la boîte. La boîte quantique est soumise aux différents potentiels V_{sd} et V_g lors d'une mesure et peut être représentée schématiquement par un ilot composé de plusieurs niveaux d'énergie discrets E_i espacés d'une énergie $\Delta\epsilon$ remplis par N électrons comme illustré à la figure 1.8. L'énergie électrostatique de la boîte s'écrit [70, 69] :

$$U(N) = \sum_{i=1}^N E_i + \frac{(-qN + C_L V_{sd} + C_g V_g)^2}{2C_\Sigma} \quad (1.4)$$

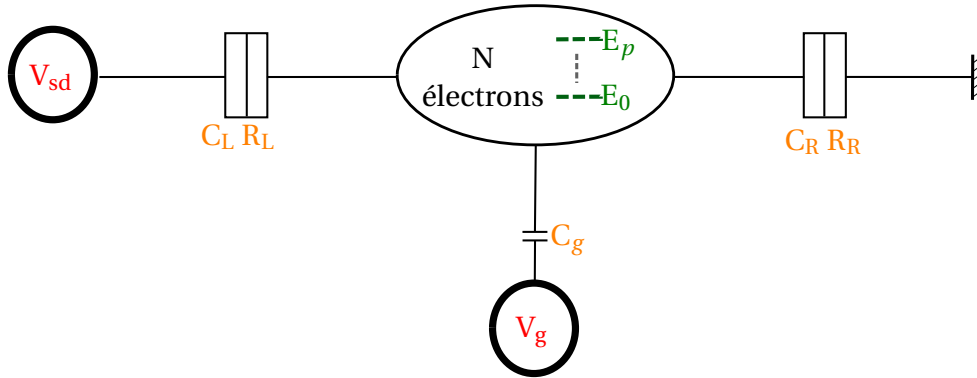


FIGURE 1.8 – Schéma électronique de la boîte quantique avec les différentes électrodes dans le cadre du blocage de Coulomb. La boîte quantique possède p niveaux discrets N électrons dont le nombre est modifié selon la force des potentiels V_{sd} et V_g .

Le potentiel chimique de l'état à N électrons de la boîte $\mu(N) = U(N) - U(N-1)$ s'écrit,

$$\mu(N) = E_N + \frac{q^2(N-1/2)}{C_\Sigma} + q(\alpha_g V_g + \alpha_L V_{sd}) \quad (1.5)$$

où $\alpha_i = C_i/C_\Sigma$ caractérise le couplage entre le potentiel appliqué et la boîte quantique.

La variation de potentiel chimique $\Delta\mu$ entre un état à $N+1$ électrons et un état à N électrons donne accès à l'énergie à fournir pour ajouter une charge. Dans notre cas,

$$\begin{aligned}\Delta\mu &= E_{N+1} + \frac{q^2(N+1/2)}{C_\Sigma} - E_N - \frac{q^2(N-1/2)}{C_\Sigma} \\ \Delta\mu &= \Delta\epsilon + \frac{q^2}{C_\Sigma} = \Delta\epsilon + E_C\end{aligned}\quad (1.6)$$

Ainsi, pour rajouter un électron dans le système, il faut fournir l'énergie équivalente à l'espacement de niveau et une autre énergie qui est l'énergie de charge. Appliquer une tension $V_{sd} = \Delta\epsilon/q$ ne suffit pas à faire transiter l'électron car les interactions du système empêchent celui-ci de venir dans la boîte quantique. On parle alors de blocage de Coulomb.

La connaissance du potentiel chimique de la boîte permet d'identifier les zones de stabilité où le nombre d'électrons est stable en fonction des paramètres du système V_g et V_{sd} . La figure 1.9a montre un diagramme énergétique des niveaux de la boîte avec les niveaux des potentiels chimiques des électrodes de gauche $\mu_L = qV_{sd} > 0$ et $\mu_R = 0$. Les niveaux de la boîte se situant en-deçà, l'état à N électrons dans la boîte est stable. Cela donne accès à deux conditions de stabilité, $\mu(N+1) > qV_{sd}$ et $\mu(N) < 0$. Nous pouvons établir d'autres conditions de stabilité dans le cas où $qV_{sd} < 0$ ce qui donnent $\mu(N) < qV_{sd}$ et $\mu(N+1) > 0$.

La résolution de ces inéquations donnent accès aux conditions de stabilité de l'état à N électrons représentées figure 1.9b par des lignes rouges. Ces 4 lignes, représentant l'évolution des niveaux électroniques de la boîte en fonction des potentiels appliqués, délimitent une zone où à l'intérieur il y a exactement N électrons. De part sa forme particulière, cette zone est dénommée un **diamant de Coulomb**.

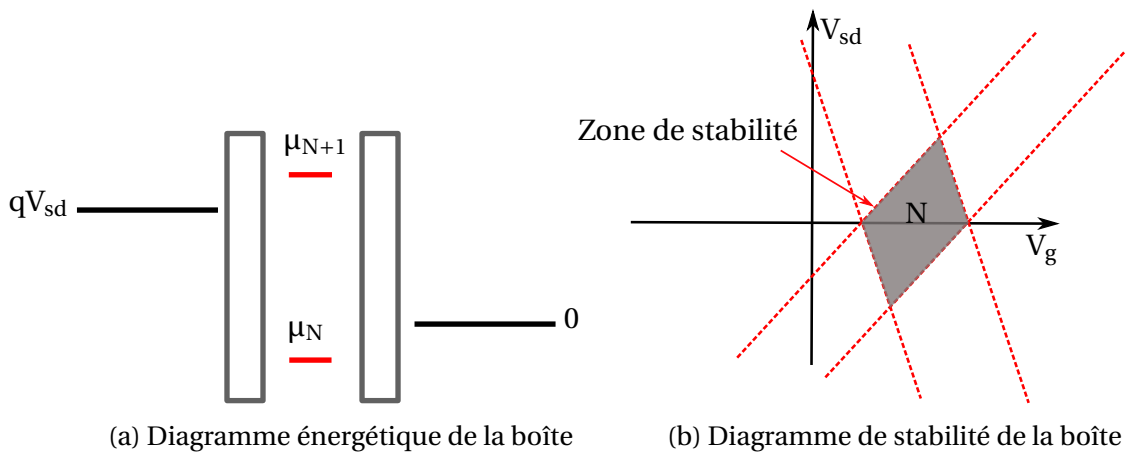


FIGURE 1.9 – Schémas représentant le diagramme énergétique de la boîte avec les électrodes (a) pour les niveaux à N et $N+1$ électrons de la boîte quantique et les niveaux des potentiels chimiques des électrodes de source et de drain pour où $V_{sd} > 0$ et le diagramme de stabilité (b) en fonction de V_g et V_{sd} issus des conditions de stabilité. Le schéma (a) représente le cas où le niveau μ_N est stable dans le cas $V_{sd} > 0$. Nous sommes alors dans la zone grisée sur le diagramme (b) que nous dénommons **Diamant de Coulomb**.

Nous possédons maintenant tous les éléments pour établir l'expression du courant à travers la boîte quantique dans ce régime.

1.3.4 Expression du courant en régime de blocage de Coulomb

Les mesures de transport que nous effectuons sont des mesures de courant et de conductance aux bornes de la boîte quantique. La connaissance de ces grandeurs physiques permet de remonter à la répartition des niveaux électroniques et donc d'effectuer une spectroscopie comme nous l'avons vu en substance précédemment. Cet aspect est visible dans l'expression du courant qui sera établi. Pour cela, nous allons effectuer une description hamiltonienne du système qui permettra d'introduire l'expression des taux d'événement tunnel cruciale pour l'étude lors du couplage de la boîte quantique avec la cavité.

On supposera que la boîte est quasiment isolée de son environnement, soit $\Gamma \ll k_b T$. Ce régime particulier se nomme régime séquentiel car les transitions électroniques effectuées sont alors des transitions tunnel séquentielles, i.e. que l'électron va de l'électrode à la boîte quantique et de la boîte quantique à l'électrode. Le formalisme de l'équation maîtresse est pleinement adapté pour trouver l'expression du courant dans ce contexte. Dans toute cette section, les électrodes seront décrites comme des mers de Fermi et donc, la probabilité de présence des électrons avec une énergie ϵ est décrite par la statistique de Fermi-Dirac, $f_\alpha(\epsilon) = \frac{1}{1 + \exp(\beta(\epsilon - \mu_\alpha))}$ où α désigne l'électrode de gauche ou de droite, μ_α est le potentiel chimique de l'électrode concerné et $\beta = 1/k_b T$ l'inverse de l'énergie thermique.

Commençons par l'écriture de l'hamiltonien du système $\mathcal{H}$. Il est composé de 3 termes distincts, l'hamiltonien de la boîte $\mathcal{H}_{BQ}$, l'hamiltonien décrivant les mers de Fermi des électrodes $\mathcal{H}_{L,R}$ et l'hamiltonien décrivant les événements tunnels entre les électrodes et les niveaux orbitaux de la boîte quantique $\mathcal{H}_T$. La somme de ces 3 termes composent l'hamiltonien d'Anderson. Les hamiltoniens s'écrivent ⁴,

$$\mathcal{H}_{BQ} = \sum_{\sigma} \epsilon_{\sigma} b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma} + \frac{E_c}{2} \hat{N}(\hat{N} - 1) \quad (1.7)$$

$$\mathcal{H}_{L,R} = \sum_{k,\sigma,\alpha} (\xi_{\sigma,k,\alpha} - \mu_{\alpha}) c_{k,\sigma,\alpha}^{\dagger} c_{k,\sigma,\alpha} \quad (1.8)$$

$$\mathcal{H}_T = \sum_{\alpha,k,\sigma} t_{\alpha,\sigma,k} c_{k,\sigma,\alpha}^{\dagger} b_{\sigma} + \text{h.c.} \quad (1.9)$$

où b_{σ} est l'opérateur annihilation des électrons de la boîte ϵ_{σ} sont les niveaux d'énergie de la boîte, σ est le degré de liberté lié au spin. On supposera pour la suite que les niveaux orbitaux sont dégénérés en spin, i.e. $\epsilon_{\uparrow} = \epsilon_{\downarrow}$. E_c est l'énergie de charge, $\hat{N} = \sum_{\sigma} b_{\sigma}^{\dagger} b_{\sigma}$ est l'opérateur du nombre total d'électron dans la boîte, α est la variable pour se référer à l'électrode de gauche ou de droite, $c_{k,\sigma,\alpha}$ est l'opérateur annihilation des mers de Fermi des électrodes, ξ est l'énergie des électrons dans les mers de Fermi et $t_{\alpha,\sigma,k}$ est le couplage tunnel entre les électrodes et les niveaux orbitaux de la boîte relié à l'élargissement Γ introduit précédemment que nous supposons constant quelles que soient les transitions étudiées.

Les états propres de $\mathcal{H}_{BQ}$ sont donnés par le nombre d'électron présent aux différents états orbitaux k soit $\{|n_1\rangle_{k_1} |n_2\rangle_{k_2} \dots |n_p\rangle_{k_p}\}$, $n_i = \{0, 1, 2\}$. Afin de ne pas alourdir les notations, nous mentionnerons par la suite uniquement l'état concerné par les processus de transition $|n\rangle$, $n = \{0, 1, 2\}$. L'hamiltonien $\mathcal{H}_{L,R}$ présentant une forme similaire, nous sim-

4. On considère que nous n'interagissons qu'avec un seul niveau électronique dans la boîte quantique.

plifierons la notation des états propres par $|s\rangle$. Une étude du spectre de la boîte quantique $\mathcal{H}_{\text{BQ}}$ montre que nous retrouvons bien les aspects énergétiques liés au blocage de Coulomb décrit précédemment⁵.

Dans l'hypothèse d'un régime séquentiel, l'hamiltonien tunnel peut être traité en perturbation par rapport aux autres hamiltoniens. Cela permet d'établir l'expression des taux tunnel en utilisant la règle d'or de Fermi. Ces taux pilotent le courant à travers la boîte quantique et apparaissent naturellement dans son expression. L'état du système est décrit par le produit tensoriel des deux états d'occupation des niveaux orbitaux de la boîte et des mers de Fermi que nous écrirons $|s, n\rangle$. γ décrit le taux de transition d'un état discret $|n\rangle$ de la boîte quantique vers une état $|s\rangle$ du continuum de la mer de Fermi à travers un processus tunnel. γ s'écrit,

$$\begin{aligned} \Upsilon_{\alpha, (s-1, n) \rightarrow (s, n-1)} &= \frac{2\pi}{\hbar} |\langle s-1, n | \mathcal{H}_T | s, n-1 \rangle|^2 \rho(\mu_\alpha) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} |t_\alpha|^2 \rho(\mu_\alpha) \end{aligned} \quad (1.10)$$

où $\alpha = L, R$ et $\rho(\mu_\alpha)$ ⁶ est la densité d'état électronique relative à l'électrode α et μ_α le potentiel chimique.

Nous pouvons établir maintenant l'équation maîtresse. Cette équation décrit les probabilités d'évolution des états d'occupation des niveaux électroniques. Pour simplifier le calcul, on ne considère qu'un niveau électronique. On suppose de plus que l'interaction de Coulomb E_c tend vers l'infini. Physiquement, cela veut dire que la boîte se trouve à la limite entre une transition à 0 électron et 1 électron et que nous ne considérons que les transitions passant d'une occupation de 0 à 1 électron et de 1 à 0 électron. Les 3 états à considérer sont $|0\rangle, |\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$. On nomme p_i les probabilités d'occupation des états propres $|i\rangle$. L'équation d'évolution de la probabilité d'un état $|i\rangle$ de la boîte s'écrit,

$$\frac{\partial p_i}{\partial t} = \sum_{v \neq i} -p_i W_{i \rightarrow v} + p_v W_{v \rightarrow i} \quad (1.11)$$

où $W_{i \rightarrow v}$ sont les éléments de la matrice probabilités de transition d'un état $|i\rangle$ à un état $|v\rangle$ de la boîte qui se décomposent en deux termes pour la barrière de gauche $W_{i \rightarrow v, L}$ et la barrière de droite $W_{i \rightarrow v, R}$ soit $W_{i \rightarrow v} = W_{i \rightarrow v, L} + W_{i \rightarrow v, R}$. Ces éléments de matrice W prennent en compte le taux de transition tunnel à travers la barrière concernée et

5. On considère un état à N électrons disposés sur p orbitales successives toutes remplies. L'énergie $E(N, p)$ associée est donnée par le produit tensoriel des états sur l'hamiltonien soit $E(N, p) = \sum_{k=1}^p \epsilon_k n_k + \frac{E_c}{2} N(N-1)$. L'énergie associée à l'état à $N+1$ électrons $E(N+1, p+1)$ s'écrit $E(N+1, p+1) = \sum_{k=1}^{p+1} \epsilon_k n_k + \frac{E_c}{2} N(N+1)$. La différence d'énergie $\mu(N+1) = E(N+1, p+1) - E(N, p)$ donne le potentiel chimique de la boîte,

$$\mu(N+1) = \epsilon_{p+1} + NE_c$$

On peut donc en déduire la différence de potentiel chimique $\Delta\mu$ entre l'état à $N+1$ électrons sur $p+1$ orbitales et l'état à N électron sur p orbitales,

$$\Delta\mu = \Delta\epsilon + E_c$$

On retrouve donc la même expression qu'à la formule 1.6. Pour ajouter une charge supplémentaire au système, il faut payer une énergie supplémentaire qui est due aux interactions entre les électrons E_c . Si un électron est ajouté sur un état orbital déjà occupé par un autre électron, il faut appliquer exactement la même démarche pour trouver que la différence de potentiel chimique $\Delta\mu = E_c$

6. C'est directement la densité d'état électronique au potentiel chimique de l'électrode qui est pris en compte car on considère celle-ci comme un réservoir avec un grand nombre d'électrons

la distribution des états dans les électrodes donnée par les fonctions de Fermi tels que $W_{i,i+1,\alpha} = f_\alpha(\mu_i)\gamma_\alpha$ et $W_{i,i-1,\alpha} = (1 - f_\alpha(\mu_i))\gamma_\alpha$ où $\mu_i = \epsilon_i + \alpha_g V_g$ est le potentiel chimique du niveau orbital dans la boîte concerné par la transition en tenant compte de l'effet de grille. Le calcul est formellement résolu en annexe C. Nous obtenons comme expression finale,

$$\langle I_L \rangle = \frac{2q}{h} \frac{W_{1 \rightarrow 0,R} W_{0 \rightarrow 1,L} - W_{0 \rightarrow 1,R} W_{1 \rightarrow 0,L}}{2W_{0 \rightarrow 1} + W_{1 \rightarrow 0}} \quad (1.12)$$

En remplaçant W par leur expression, nous obtenons,

$$\langle I_L \rangle = -2 \frac{q}{h} \gamma_L \gamma_R \frac{f_R(\mu_d) - f_L(\mu_d)}{(1 + f_L(\mu_d))\gamma_L + (1 + f_R(\mu_d))\gamma_R} \quad (1.13)$$

où $\mu_d = \epsilon_d + \alpha_g V_g$.

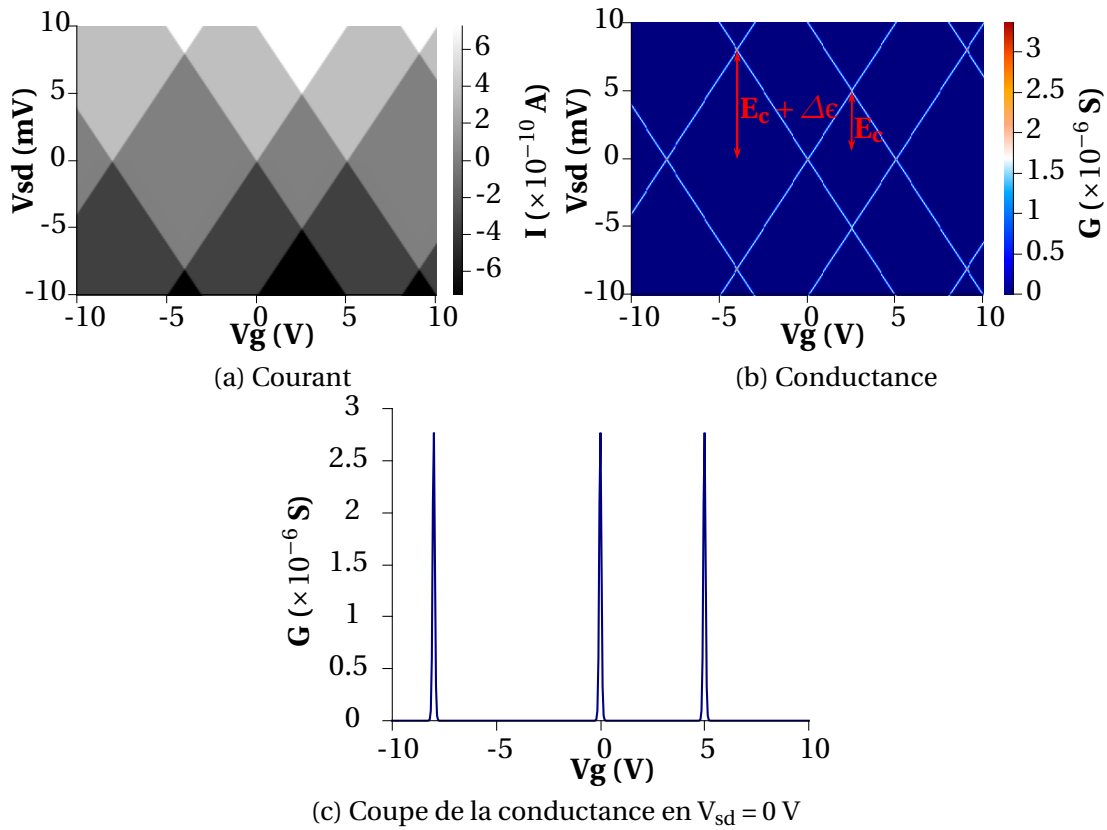


FIGURE 1.10 – Courant (a) et Conductance (b) dans un régime de blocage de Coulomb avec les paramètres suivants pour le calcul, $\Gamma_R = \Gamma_L = 0.01$ meV, $k_b T = 0.025$ meV, $\Delta\epsilon = 2.5$ meV, $E_C = 4$ meV. Afin de mieux visualiser les différents niveaux d'énergie, une coupe de la conductance en (c) a été effectuée en $V_{sd} = 0$ V. Les pics de conductance apparaissent lorsqu'un nouveau niveau est rencontré.

Les figures 1.10a et 1.10b montrent le courant et la conductance calculés à partir de la formule 1.13 en fonction de V_{sd} et V_g . Pour faire ce calcul, nous avons supposé que le comportement décrit par la formule 1.13 était similaire pour toutes les transitions électroniques entre l'électrode et la boîte⁷. Nous avons pris des paramètres proches de nos valeurs expérimentales, i.e. $\Gamma_L = \Gamma_R = 0.01$ meV, $k_b T = 0.025$ meV (300 mK). Afin de prendre en compte la répartition énergétique des niveaux orbitaux, la formule 1.6 qui nous donne

7. Pour être précis, il faudrait tenir compte de la transition entre les états à un électron et l'état à deux électrons. Le calcul a été formellement fait dans la thèse de Matthieu Delbecq [71].

les potentiels chimiques des différents niveaux a été utilisée. Le niveau de référence a été pris à $\epsilon_d = 0$. L'espacement de niveau orbital choisi est $\Delta\epsilon = 2.5$ meV et l'énergie de charge prise égale à $E_c = 4$ meV pour que nous puissions visualiser les effets sur le calcul. Ces paramètres se rapprochent de ceux visualisés expérimentalement. Le calcul du courant a été effectué pour une tension de biais V_{sd} variant entre -10 mV et 10 mV et une tension de grille V_g variant entre -10 V et 10 V comme dans le cadre d'une mesure de courant sur un échantillon. La conductance différentielle $G = \frac{\partial I}{\partial V_{sd}}$ a été dérivée numériquement.

Les formes qui apparaissent sont les diamants de Coulomb décrits auparavant. Dans ces zones, le courant et la conductance sont nuls car c'est une zone de stabilité. La hauteur des diamants dépend directement de la différence de potentiel chimique entre les niveaux, E_c si un électron est ajouté sur un niveau orbital occupé ou $\Delta\epsilon + E_c$ si l'électron vient occuper un niveau vide à l'origine. Pour une tension V_{sd} supérieure à E_c , d'autres zones où le courant est non nul et constant sont observées avec une valeur proche de 600 pA avec les paramètres choisis. Ces zones correspondent à des situations où au moins un niveau orbital se situe entre les niveaux des potentiels chimiques des électrodes permettant la circulation d'électron à travers la boîte. Ce diagramme calculé en figure 1.10b est le schéma observé expérimentalement lorsqu'un nanotube de carbone en régime de boîte quantique présente du blocage de Coulomb.

Sur la figure 1.10c, la coupe en $V_{sd} = 0$ mV de la conductance a été tracée. Nous pouvons visualiser des pics de conductance apparaître en $V_g = -8$ V, $V_g = 0$ V et $V_g = 5$ V qui sont les positions des niveaux de la boîte avec nos paramètres choisis. Pour chaque niveau de la boîte rencontré, c'est un nouveau canal qui s'ouvre et donc un courant plus élevé qui circule dans la boîte. Dans la conductance, cela est signalée par l'apparition d'un pic. En variant les deux boutons de notre système V_g et V_{sd} , les variations de courant en fonction des niveaux de la boîte sont décrits. Les lignes de conductance dessinées à la figure 1.10b indiquent les positions des différents niveaux d'énergie dans la boîte et décrit le spectre de la boîte quantique.

1.4 Le couplage entre un résonateur térahertz et un nanotube de carbone en régime de boîte quantique

Nous avons décrit les deux objets de notre expérience, le résonateur et le nanotube de carbone. L'objectif fondamental de ce travail de thèse est d'identifier les mécanismes physiques impliqués dans la transport de la boîte quantique en présence d'une cavité. En effet, la présence du résonateur va modifier le transport des électrons décrit précédemment en permettant de nouvelles transitions. Ces nouvelles transitions vont donner lieu à des signatures particulières dans les mesures de transport. Nous allons décrire ici les différentes manifestations possibles du couplage. Mais tout d'abord, nous allons revenir sur les régimes de couplage fort et ultrafort observés, évoqués dans la première partie de ce premier chapitre.

Le couplage fort lumière-matière aux fréquences THz a fait l'objet de nombreux travaux rapportés dans la littérature [33, 31, 51]. Dans toutes les expériences mentionnées, les photons de la cavité térahertz de fréquence $\hbar\omega_0$ se couplent à une transition du système qui est soit une transition entre deux niveaux du puits quantique dans les travaux

de *Todorov et al.* ou bien une transition entre deux niveaux de Landau dans les travaux de *Scalari et al.*. Nous sommes dans un cas où le nombre d'électrons est élevé dans le système. Nous dénommons $p^\dagger$ l'opérateur permettant d'effectuer une transition et $\hbar\omega_{21}$ l'énergie de la transition renormalisée par les interactions du système. Le résonateur est décrit comme un oscillateur harmonique. Pour décrire ce type de système, nous allons nous appuyer sur les travaux théoriques de *Todorov et al.* [72]. L'hamiltonien s'écrit,

$$\mathcal{H} = \hbar\omega_{21}p^\dagger p + \hbar\omega_0(aa^\dagger + \frac{1}{2}) + i\hbar\Omega_r\sqrt{N_e}\sqrt{\frac{\omega_0}{\omega_{21}}}(p^\dagger + p)(a^\dagger - a) \quad (1.14)$$

a est l'opérateur annihilation de photons lié à la cavité, N_e est le nombre d'électrons et $\Omega_r = \sqrt{\frac{q^2 f_{12}}{4m^* \epsilon \epsilon_0 V_{\text{cav}}}}$ est la fréquence de Rabi du système qui dépend de la force d'oscillateur f_{12} qu'impose le champ électrique des photons au système et du volume du mode de la cavité V_{cav} . Elle représente l'intensité du couplage lumière-matière du système. Dans le cas où $\hbar\Omega_r$ est plus grand que les énergies de décohérences du système - dissipation de la cavité, temps de vie des niveaux électroniques... - le système est décrit par un état d'hybridation des transitions électroniques et des photons de la cavité appelé polariton. Ces nouveaux états propres du système ont des énergies propres du système qui s'écrivent,

$$\hbar v^\pm = \sqrt{\frac{1}{2} \left(\omega_{21}^2 + \omega_0^2 \pm \sqrt{(\omega_{21}^2 - \omega_0^2)^2 + 16\Omega_r N_e \omega_{21} \omega_0^2} \right)} \quad (1.15)$$

Ce sont ces nouvelles énergies propres qui sont visualisées dans ces différentes expériences. La modélisation de ces branches permettent d'extraire la fréquence de Rabi Ω_r . Dans les travaux de *Todorov et al.*, la valeur du rapport $\frac{\hbar\Omega_r}{\omega_{21}}$ est de 0.22 tandis que dans l'expérience de *Scalari et al.*, ce rapport avec l'énergie cyclotron est de 0.58 plaçant ces différents systèmes dans un régime de couplage fort voire ultra-fort.

L'origine de ce couplage est l'échange d'énergie entre les transitions du système et la cavité, autrement dit la manière dont le dipôle issu de la transition électronique du système se couple avec le champ électrique de la cavité. La fréquence de Rabi issue de l'ensemble des dipôles se comporte alors en $\sqrt{N_e}$ comme nous pouvons le visualiser dans l'hamiltonien. La réponse collective de ses modes est signalée dans l'hamiltonien par le facteur $\sqrt{N_e}$. Dans le cadre des travaux de *Scalari et al.*, le dipôle d issu de la transition cyclotron est proportionnel à l_B la longueur magnétique ce qui permet de bénéficier de dipôles élevés à partir du moment où la transition cyclotron est résolue ($d \sim 1 \times 10^{-26}$ C.m pour un facteur de remplissage $\nu = 100$ soit un champ $B = 0.134$ T et $\rho = 3.2 \times 10^{11}$ m²). De même, le volume du mode de la cavité a été estimé à $V_{\text{cav}} = 8 \times 10^{-17}$ m³ permettant de bénéficier de champs électriques élevés et localisés augmentant le couplage entre les photons et les électrons. Cela se voit aussi dans la fréquence de Rabi qui augmente lorsque le volume de mode diminue. La combinaison de ces trois éléments permet d'avoir un couplage extrêmement élevé dans ce type de système.

Notre étude concerne un nanotube de carbone en régime de boîte quantique couplé à une seule cavité. Nous utilisons le même type de résonateur donc le volume du mode peut être similaire. De même, un rapide calcul du dipôle dans notre structure $d \sim el \sim 1 \times 10^{-25}$ C.m. donne une valeur similaire aux dipôles de la transition cyclotron. Cependant, le dipôle auquel se couple les photons de la cavité est issu d'un seul électron qui

effectue sa transition des électrodes vers la boîte quantique ce qui nous démarque des études précédemment citées. De plus, dans le système étudié, le couplage s'effectue avec le dipôle de l'électron présent sur le niveau électronique et non avec le dipôle issu d'une transition d'un système à deux niveaux. Ces particularités rendent la visualisation du couplage beaucoup plus difficile car le système proposé est un système microscopique où la géométrie du champ à l'échelle du dipôle n'est pratiquement pas contrôlée. Nous détaillons par la suite la théorie pour rendre plus quantitative la discussion.

1.4.1 Description du système et échelles d'énergie

Nous allons maintenant décrire précisément le système que nous souhaitons mesurer en écrivant le nouvel hamiltonien du système. Avec l'apport de la cavité, de nouvelles énergies rentrent en jeu dans le système. Selon la valeur des différentes énergies, la manifestation du couplage résultant sera différente et son effet peut être estimé qualitativement. Un schéma de principe est présenté à la figure 1.11 qui consiste en la boîte quantique telle que nous l'avons décrite couplée aux électrodes via les taux de transition tunnel γ et la cavité de fréquence $\hbar\omega_0$ qui possède un facteur de qualité fini, nous modélisons cela par un couplage avec un environnement. Le paramètre de couplage entre la cavité et les niveaux électroniques de la boîte quantique se nomme λ .

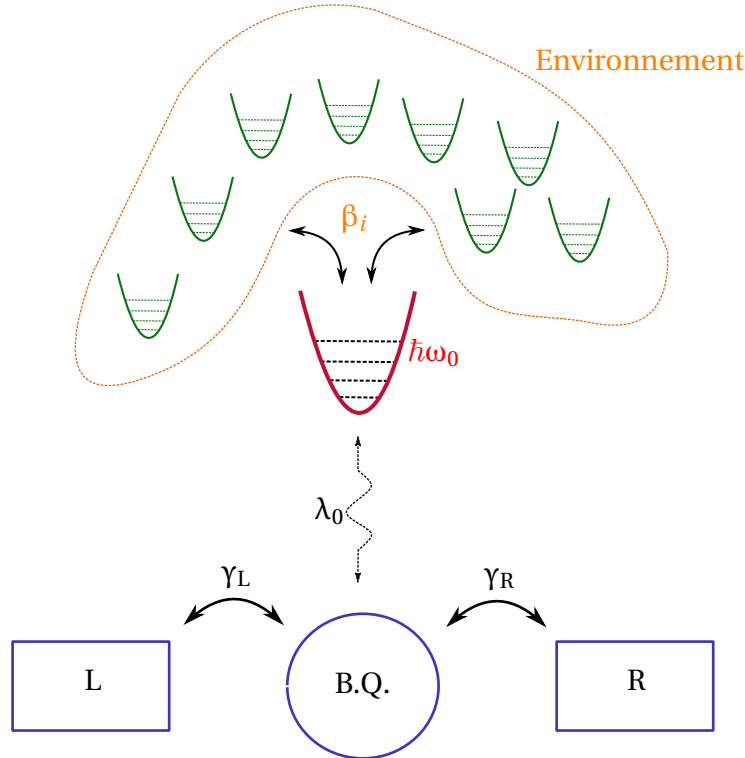


FIGURE 1.11 – Schéma de principe du couplage à la cavité avec une réponse quantique du système. Les états électroniques résultant du couplage sont des états électroniques habillés par les photons de la cavité. Le facteur de qualité fini de la résonance est modélisé par un couplage de la cavité de fréquence $\hbar\omega_0$ avec un environnement composé d'une série d'oscillateurs harmoniques. BQ signifie boîte quantique, L et R sont les électrodes de gauche et de droite.

L'hamiltonien de base du système est l'hamiltonien d'Anderson qui a été décrit au paragraphe précédent, $\mathcal{H}_{\text{Anderson}} = \mathcal{H}_{\text{BQ}} + \mathcal{H}_{\text{L,R}} + \mathcal{H}_{\text{T}}$. A la boîte quantique s'ajoute une

cavité térahertz, le "split ring resonator" (SRR) qui possède un mode de résonance fondamental $\hbar\omega_0$ qui peut être décrit comme étant la résonance d'un circuit RLC de forme lorentzienne avec un facteur de qualité fini Q ⁸. Cela nous autorise à représenter le mode fondamental de la cavité comme un oscillateur harmonique. L'environnement dans le lequel se dissipe la cavité est représenté par un ensemble d'oscillateurs harmoniques dont le couplage est défini par β_i comme représenté en figure 1.11. L'hamiltonien de la cavité s'écrit,

$$\mathcal{H}_{\text{cav}} = \hbar\omega_0 a^\dagger a + \sum_{i \geq 1} \hbar\omega_i p_i^\dagger p_i + \sum_{i \geq 1} \beta_i (p_i^\dagger a + p_i a^\dagger) \quad (1.16)$$

où comme dans le traitement des polaritons, a est l'opérateur annihilation des photons de la cavité, p_i est l'opérateur annihilation des oscillateurs de l'environnement dont l'énergie est $\hbar\omega_i$.

Le couplage entre les électrons dans la boîte quantique et la cavité est capacitif. L'énergie d'une capacité s'écrit $\epsilon = Q^2/2C$. De manière identique, l'hamiltonien issu du couplage s'écrit sous la forme $\mathcal{H} \propto \hat{V}_{\text{pho}} \cdot \hat{Q}_d$ où $\hat{V}_{\text{pho}}$ est le potentiel lié aux photons dans la cavité directement proportionnel au champ dans la cavité $(a + a^\dagger)$ [73] et $\hat{Q}_d$ est le nombre de charges dans la boîte quantique. Le terme d'hamiltonien décrivant l'influence du champ s'écrit dans ce cas,

$$\mathcal{H}_{\text{coupl}} = \sum_{\sigma} \lambda_0 (a + a^\dagger) b_{\sigma}^\dagger b_{\sigma} \quad (1.17)$$

où b_{σ} est l'opérateur d'annihilation de l'état orbital lié au spin σ de la boîte quantique et λ_0 le terme de couplage décrit sur la figure 1.11 entre les niveaux orbitaux et le champ. Si nous sommions tous les termes, l'hamiltonien final que nous obtenons est similaire à celui présenté pour la description du couplage fort à la formule 1.14 montrant que λ joue un rôle identique à la fréquence de Rabi dans la description du couplage lumière-matière.

Lorsque le nombre de photons dans la cavité devient grand $\langle aa^\dagger \rangle \approx \langle a^\dagger a \rangle = N_{\text{ph}}$. Nous pouvons alors adopter une description classique du champ électrique. Le potentiel lié à ce champ dans le cas présent s'écrit $V_{\text{ac}} \cos(\omega_0 t)$ et peut être réintroduit à la place de V_{pho} . L'hamiltonien décrivant le couplage s'écrit dans ce cas,

$$\mathcal{H}_{\text{coupl}} = \sum_{\sigma} qV_{\text{ac}} \cos(\omega_0 t) b_{\sigma}^\dagger b_{\sigma} \quad (1.18)$$

où V_{ac} est le potentiel ressenti par le niveau électronique qui est proportionnel à λ_0 et dépend du nombre de photons dans la cavité. Dans cette considération, le terme hamiltonien lié à la description de la cavité ne rentre en jeu dans la description que pour décrire la fréquence des photons ω_0 . Le système décrit est maintenant une boîte quantique couplée avec un terme de forçage qu'est le champ électrique de la cavité.

Deux nouvelles échelles d'énergie font leur apparition, l'énergie de résonance de la cavité $\hbar\omega_0$ et le couplage λ ou bien le potentiel qV_{ac} . Le régime qui nous intéresse est celui à faible nombre de photons. Dans le cas où le temps de vie des photons n'est pas trop faible, i.e. que le facteur de qualité de la cavité n'est pas inférieur à 1, le régime décrit est celui des états électroniques habillés par les photons de la cavité. C'est ce régime en particulier que nous allons décrire expérimentalement. Nous nous placerons toujours dans un régime de blocage de Coulomb séquentiel tel que $\Gamma < k_b T < \hbar\omega_0$. Dans le cas où le nombre de photons devient grand dans la cavité, une autre manifestation du couplage peut apparaître sous la forme d'effet tunnel photo-assisté.

8. Pour rappel, le facteur de qualité Q est relié à la largeur à mi-hauteur de la résonance par $\Delta\omega = \frac{\omega_0}{Q}$.

1.4.2 Différents régimes de couplage au champ térahertz

Nous allons d'abord décrire le régime des états électroniques habillés en établissant l'expression du courant dans ce cas. Cela permettra ensuite de mettre en évidence les marqueurs du couplage à la cavité dans ce régime précis et les spécificités des niveaux d'énergie apparaissant dans les mesures de transport électronique. Nous parlerons ensuite brièvement de l'effet tunnel photo-assisté en donnant l'expression du courant et en pointant les différences par rapport au régime d'états électroniques habillés par les photons.

États électroniques habillés

Les états électroniques habillés sont la manifestation quantique du couplage des états électroniques de la boîte au résonateur. Le détail de cette théorie s'appuie sur une étude effectuée par *Braig et al.* [59] qui a calculé le courant à travers une boîte quantique en prenant en compte la dissipation d'un mode de phonon avec des niveaux discrets. Nous avons adapté cette théorie au couplage de niveaux discrets avec des photons dans le régime térahertz.⁹ Le schéma de principe est identique au schéma présenté en introduction à la figure 1.11. Les calculs ne sont pas effectués formellement dans ce manuscrit et sont directement extraits de l'article de *Braig et al.* [59]. On suppose que la boîte est dans un régime de blocage de Coulomb et que le transport est séquentiel dans le nanotube de carbone, i.e. $\Gamma \ll k_b T \ll \Delta \epsilon \sim E_c$. On supposera également pendant toute cette partie que $\hbar \omega_0 \gg k_b T$ où ω_0 est la fréquence de résonance de la cavité.

Cette étude commencera par une reprise de l'hamiltonien du système dans le formalisme développé par les auteurs sur lequel on effectue une transformation unitaire dite "polaronique"¹⁰. Cette transformation met au jour un nouveau terme dans l'hamiltonien tunnel qui de part sa présence modifie le taux tunnel calculé lors de l'étude du blocage de Coulomb. Une fois ces nouveaux taux calculés, nous nous servirons du formalisme de l'équation maîtresse et de l'équation B.9 pour calculer le courant circulant à travers la boîte quantique.

Exprimons tout d'abord l'hamiltonien du système dans le formalisme des auteurs. Les hamiltoniens des oscillateurs harmoniques liés aux résonateurs sont décrits avec les opérateurs classiques de la quantité de mouvement $\hat{P}$ et de la position $\hat{X}$. Cependant, les liens entre les opérateurs d'annihilation et de création et les opérateurs classiques sont parfaitement identifiés et donc, une description par ces opérateurs ne changent pas le phénomène physique décrit. L'hamiltonien décrivant les modes de la cavité avec la dissipation s'écrit dans ce formalisme,

$$\mathcal{H}_{\text{cav}} = \frac{P_0^2}{2m_0} + \frac{1}{2}m_0\omega_0^2 X_0^2 + \sum_i \frac{P_i^2}{2m_0} + \frac{1}{2}m_i\omega_i^2 X_i^2 + \sum_i \beta_i X_i X_0 \quad (1.19)$$

En se basant sur notre description du système avec les opérateurs créations et annihilations en début de chapitre, l'hamiltonien de la cavité et du couplage entre la cavité et la

9. Notons que le cas sans dissipation ($Q \rightarrow \infty$) a aussi été traité dans la littérature par *Koch et al.* [74] décrivant le phénomène de blocage de Franck-Condon.

10. Cette transformation permet d'éliminer directement le terme de couplage entre les modes électroniques et les modes bosoniques et fait apparaître un décalage en énergie appelé décalage polaronique.

boîte quantique se réécrit avec les opérateurs classiques ¹¹,

$$\mathcal{H}_{\text{coupl}} = \Lambda X_0 \sum_{k,\sigma} b_{k,\sigma}^\dagger b_{k,\sigma} \quad (1.20)$$

L'hamiltonien final se compose donc de trois composantes, l'hamiltonien d'Anderson $\mathcal{H}_{\text{Anderson}} = \mathcal{H}_{\text{BQ}} + \mathcal{H}_{\text{L,R}} + \mathcal{H}_{\text{T}}$, l'hamiltonien de la cavité et du couplage à la boîte quantique $\mathcal{H}_{\text{pho}}$ et l'hamiltonien décrivant la dissipation $\mathcal{H}_{\text{diss}}$. Afin d'étudier le couplage électron-photon, une transformation de Lang-Firsov sur l'hamiltonien $\mathcal{H}$ est effectuée,

$$\tilde{\mathcal{H}} = U^\dagger \mathcal{H} U$$

avec $U = \exp(i\Lambda n_b)$ où $n_b = \sum_{k,\sigma} b_{k,\sigma}^\dagger b_{k,\sigma}$ et $A = P_0 l + \sum_i P_i l_i$, l et l_j sont les longueurs respectives des oscillateurs avec la longueur de l'oscillateur l de la cavité proportionnelle au couplage,

$$l = \Lambda / m_0 \bar{\omega}_0^2$$

où $\bar{\omega}_0$ est la fréquence de la cavité renormalisée par les interactions avec l'environnement. Cette transformation est une transformation canonique qui va permettre d'étudier le couplage du point de vue de l'interaction entre la boîte quantique et la cavité. L'hamiltonien devient,

$$\tilde{\mathcal{H}} = \tilde{\mathcal{H}}_{\text{BQ}} + \tilde{\mathcal{H}}_{\text{T}} + \mathcal{H}_{\text{L,R}} + \mathcal{H}_{\text{cav}} + \mathcal{H}_{\text{coupl}}$$

où,

$$\tilde{\mathcal{H}}_{\text{BQ}} = \sum_{k,\sigma} \left(\epsilon_k - \frac{1}{2} \Lambda l \right) + \frac{E_c - \Lambda l}{2} \sum_{k,\sigma} b_{k,\sigma}^\dagger b_{k,\sigma} \quad (1.21)$$

$$\tilde{\mathcal{H}}_{\text{T}} = \sum_{\alpha,k,j,\sigma} t_\alpha c_{j,\sigma,\alpha}^\dagger e^{iA} b_{k,\sigma} + \text{h.c.} \quad (1.22)$$

Les énergies de la boîte sont renormalisées par le couplage avec la cavité, c'est le décalage polaronique. En analysant de plus près l'hamiltonien tunnel, un nouveau terme est apparu entre les opérateurs $c^\dagger$ et b faisant intervenir la matrice A . Cet opérateur e^{iA} est un opérateur de translation qui agit dans les espaces de Hilbert des oscillateurs harmoniques. Les états propres sont donnés par l'état quantique des oscillateurs et des électrodes et de la boîte quantique : $|n, s\rangle |p_0, p_1, p_2 \dots p_r\rangle$ où l'indice 0 se réfère à la cavité et les indices $\{1 \dots r\}$ se réfèrent aux oscillateurs harmoniques de l'environnement. Nos états électroniques sont maintenant habillés par les états photoniques de la cavité.

Pour exprimer le courant qui circule dans le système, il reste à exprimer les taux de transition tunnel avec la présence de ce nouveau terme e^{iA} . Chaque fois qu'un électron transite de l'électrode vers la boîte quantique avec ou sans émission de photon, la fonction d'onde de l'oscillateur i est décalée d'une quantité l_i à cause de l'opérateur e^{iA} . En conséquence, l'apparition de cette exponentielle d'opérateur modifie les taux de transition tunnel qui ont été mis en évidence dans le blocage de Coulomb. Nous allons calculer le nouveau terme de transition tunnel en reprenant les notations utilisés pour le même calcul dans le cadre du blocage de Coulomb. Il faut maintenant prendre en compte l'état des oscillateurs quantiques. Lorsqu'un électron transite, le système passe d'un état

11. De part le changement des opérateurs, le couplage λ_0 est modifié en Λ qui est en terme de grandeur une énergie sur une longueur

$|n-1, s\rangle |p_0, p_1, \dots, p_r\rangle$ à un état $|n, s-1\rangle |q_0, q_1, \dots, q_r\rangle$. Le taux de transition tunnel $\tilde{\gamma}$ se calcule en utilisant la règle d'or de Fermi,

$$\begin{aligned}\tilde{\gamma}_\alpha &= \frac{2\pi}{\hbar} |\langle n-1, s | \langle p_0, p_1, \dots, p_r | \tilde{\mathcal{H}}_T | n, s-1 \rangle | q_0, q_1, \dots, q_r \rangle|^2 \rho(\mu_\alpha) \\ &= \gamma_\alpha |\langle p_0, p_1, \dots, p_r | e^{iA} | q_0, q_1, \dots, q_r \rangle|^2\end{aligned}$$

Ce second terme est le terme supplémentaire qui vient modifier le taux de transition tunnel¹². Regardons dans le cas où il n'y aurait qu'un seul oscillateur : $|\langle p | e^{iPl} | q \rangle|^2$. Ce terme décrit la superposition de deux fonctions d'ondes propres de l'oscillateur avec respectivement p et q photons, décalés l'un par rapport à l'autre d'une quantité $\Delta x = l$. Ce terme peut s'écrire sous la forme d'une intégrale,

$$\langle p | e^{iPl} | q \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dx \phi_p(x) \phi_q^\dagger(x+l)$$

où ϕ_i est la fonction d'onde propre à i photons de l'oscillateur harmonique. Plus le couplage Λ est élevé, plus le décalage $l (\propto \Lambda)$ entre les fonctions d'onde lors d'une transition électronique est grande. En conséquence, le courant qui dépend des taux de transition γ est aussi lié au nombre de photons qui est échangé entre la cavité et la boîte quantique et de la valeur du couplage Λ .

Nous pouvons maintenant calculer l'expression du courant en utilisant le formalisme de l'équation maîtresse. La formule que nous obtenons est identique à celle du blocage de Coulomb B.9¹³. Cependant, les termes de la matrice d'évolution des probabilités $W_{i \rightarrow j}$ sont aussi modifiés puisqu'ils dépendent directement du taux de transition tunnel. Ces nouveaux termes s'écrivent,

$$W_{0 \rightarrow 1, \alpha} = \gamma_\alpha \int d\omega F(\omega) f_\alpha(\mu_d + \omega) \quad (1.23)$$

$$W_{1 \rightarrow 0, \alpha} = \gamma_\alpha \int d\omega F(\omega) (1 - f_\alpha(\mu_d + \omega)) \quad (1.24)$$

où $\mu_d = \epsilon_d + \alpha_g V_g$ est le potentiel chimique du niveau orbital. La fonction F est la fonction qui prend en compte le décalage des fonctions d'onde propres des oscillateurs à chaque transition. L'intégration sur l'ensemble du domaine de fréquence provient de la diversité des oscillateurs de l'environnement qui ont des fréquences différentes. Cette fonction est définie comme étant la valeur moyenne de l'opérateur translation e^{iA} à un instant t avec son conjugué à l'instant initial, $F(t) = \langle e^{iA(t)} e^{-iA} \rangle = e^{(B(t) - B(0))}$ où $B(t) = \langle A(t) A(0) \rangle$. C'est précisément dans ce terme que la dissipation de la cavité vers l'environnement est décrite. $F(\omega)$ est la transformée de Fourier de la fonction $F(t)$. Cette fonction $F(\omega)$ possède exactement les mêmes propriétés que la fonction $P(E) = \mathcal{F}(e^{J(t)})$ ¹⁴ où $J(t)$ est la fonction de corrélation phase-phase qui apparaît dans le cadre du blocage Coulomb dynamique [75]¹⁵. L'interprétation de $F(\omega)$ est similaire à savoir qu'elle caractérise les probabilités

12. Ce terme décrit les termes de Franck-Condon dans l'article de Koch *et al.* [74] et qui est à l'origine dans cet article de tous les phénomènes de blocage de courant issu du couplage avec la cavité.

13. On se place toujours des des conditions telles que $E_c \rightarrow \infty$.

14. $\mathcal{F}$ désigne l'opérateur transformé de Fourier

15. Cette fonction $P(E)$ sera détaillée dans le cadre de l'étude du blocage de Coulomb dynamique en annexe E.

d'échange de photon entre la cavité et la boîte quantique en tenant compte de la dissipation. L'expression finale de $F(t)$ en fonction de $B(\omega)$ donne,

$$F(t) = \exp \left(\int \frac{d\omega}{2\pi} (e^{-i\omega t} - 1) B(\omega) \right) \quad (1.25)$$

$$B(\omega) = 4\lambda \frac{1 + n_B(\omega)}{\omega^2} \text{Im} \left(\frac{\bar{\omega}_0^2}{\omega^2 - \bar{\omega}_0^2 - \bar{S}(\omega)} \right) \quad (1.26)$$

où λ est le couplage sans dimension $\lambda = \Lambda^2/\bar{\omega}_0^2$ qui est similaire à l'énergie de Rabi $\hbar\Omega_r$ normalisée par l'énergie de la transition ω_{21} introduite au début de la section 1.4, $\bar{\omega}_0$ est la fréquence du résonateur renormalisée par les interactions avec l'environnement, $n_B(\omega)$ est la distribution de Bose-Einstein et $\bar{S}(\omega)$ est une fonction qui décrit la dissipation du système. Sa dépendance en fréquence dépend de la forme de dissipation du système. Pour notre problème, nous supposons une dissipation ohmique du système de la forme $\bar{S}(\omega) = \frac{\omega\bar{\omega}_0}{Q}$ où Q est le facteur de qualité de la cavité¹⁶.

La fonction F peut se calculer numériquement. La figure 1.12 montre des résultats de ce calcul pour différentes valeurs de λ variant entre 1 et 20 pour un facteur qualité $Q = 5$ et une température tendant vers 0, $k_b T \rightarrow 0$. L'axe des abscisses est normalisée par rapport à la fréquence renormalisée de la cavité.

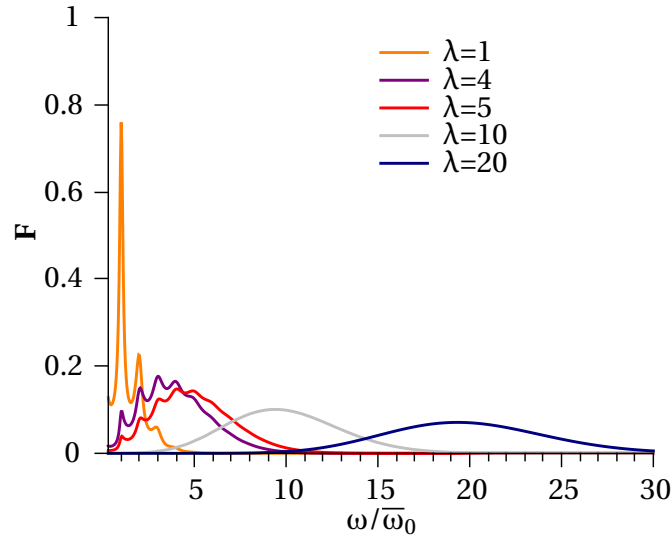


FIGURE 1.12 – Calcul de la fonction F modulante les taux de transition tunnel. Les paramètres utilisés sont $Q = 5$ et $k_b T \rightarrow 0$. Les paramètres de couplage λ varient entre 0.5 et 20.

Pour des valeurs de couplage variant entre 1 et 5, on constate que la fonction F possède des maxima situés exactement à des multiples de la fréquence de la cavité. La distribution de ces pics est une distribution suivant une loi de Poisson de paramètre λ , $P(n) = \frac{e^{-\lambda} \lambda^n}{n!}$. Cette distribution est maximale pour $n = \lambda$, i.e., que la probabilité d'échange de photons entre la cavité et la boîte quantique est la plus forte pour un nombre de photons avoisinant la valeur du couplage. Ces signatures régulières observées à tous les multiples de la fréquence de la cavité se retrouveront dans le courant et dans la conductance. Ce point sera détaillé au paragraphe suivant. Pour des valeurs de couplage $\lambda = 10$ ou $\lambda = 20$, la

16. La dissipation est dite ohmique car comme dans le problème de Caldeira-Leggett [76], la dissipation est proportionnelle à la cavité

fonction F est lisse et centrée en $\omega = g\bar{\omega}_0$. Il n'y a plus qu'un seul pic et cela provient du nombre important de photons présent dans la cavité. Nous sommes dans des conditions où la relaxation est quasi immédiate. La contribution apportée par les photons est un effet moyenné de l'ensemble des photons dans la cavité qui se soldera par l'apparition d'un nouveau niveau d'énergie décalé de $\lambda\bar{\omega}_0$ par rapport au niveau fondamental.

Les calculs numériques du courant et de la conductance différentielle sont présentés dans les panels de la figure 1.13 avec en (a) et (c) le courant et la conductance et en (b) et (d) les coupes en $V_g = 0$ V du courant et de la conductance. Afin de simplifier le calcul, la température a été prise tendant vers 0, qui éloigne un peu du régime séquentiel mais le phénomène de blocage de Coulomb existe toujours. Le paramètre Γ utilisé est proche d'observations expérimentales avec $\Gamma = 0.025$ meV. Le couplage choisi est $g = 3$ afin que numériquement nous puissions observer l'effet. Enfin, le facteur de qualité et la fréquence de résonance ont été choisi dans des valeurs proches de résonateurs térahertz $Q = 10$ et $\hbar\omega_0 = 1.3$ meV. Comme pour une mesure de transport, la tension de grille V_g varie entre -10 V et 10 V et la tension de biais V_{sd} varie entre -10 mV et 10 mV. L'axe des abscisses des coupes a été normalisé par la fréquence du résonateur pour une meilleure lecture.

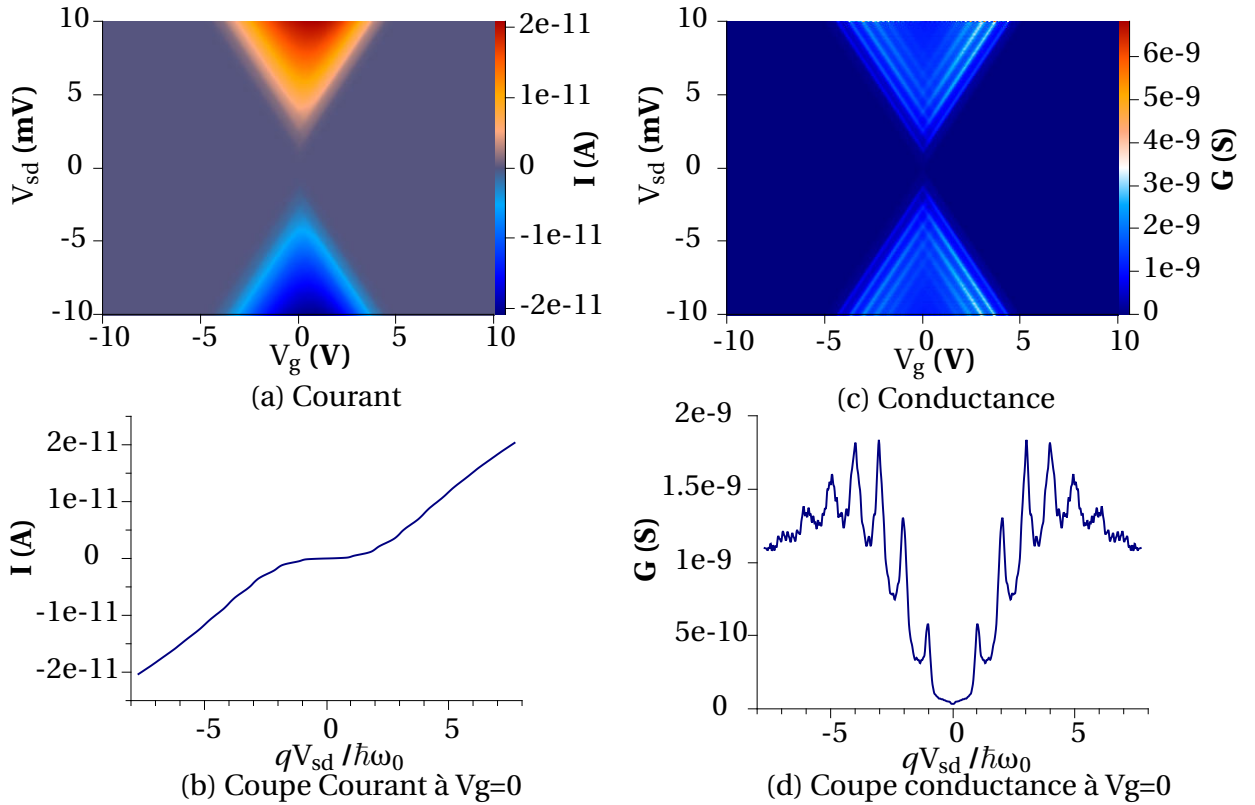


FIGURE 1.13 – Calcul numérique du courant et de la conductance dans le régime d'états électroniques habillés. En (a) et (c) sont présentés le courant et la conductance calculés autour d'un point de transition dans le diamant de Coulomb. En (b) et (d) sont présentés les coupes de la conductance et du courant à $V_g = 0$ V. Les paramètres utilisés pour ce calcul sont $k_b T \rightarrow 0$, $\Gamma = 0.025$ meV, $g = 3$, $Q = 10$ et $\hbar\omega_0 = 1.3$ meV.

La figure (a) montre un diagramme similaire à celui du blocage de Coulomb à la figure 1.10a signalée par des zones de courant nul. Cependant, le diamant ne se referme pas au centre et le courant n'est pas constant. Alors qu'il y avait une marche nette dans le blocage de Coulomb, la coupe à la figure (b) montre que le courant évolue par paliers qui ne

sont pas très marqués à cause de la dissipation. Cet effet est mieux visualisé dans la figure de conductance tracée en (c). A l'intérieur des triangles (zones où le courant est non nul $I \neq 0$), nous voyons apparaître des lignes de conductance à intervalle régulier. En observant la coupe en $V_g = 0$ V, l'espacement de ces pics est précisément $\hbar\omega_0$. La distribution de ces pics est une distribution poissonnienne et le pic le plus haut en amplitude indique donc la valeur du couplage. Dans notre cas, le plus haut pic est situé pour $n = 3$ qui est bien la valeur du couplage implémenté dans le calcul. Cette méthode permettra d'estimer le couplage entre la boîte quantique et la cavité térahertz à partir des observation expérimentales.

Effet tunnel photo-assisté

Nous nous plaçons dans un régime où le nombre de photons n_{pho} est grand. Le schéma de la figure 1.14 décrit ce qui se passe pour le transport. Ce champ va moduler le potentiel chimique des niveaux de la boîte quantique. Si le potentiel chimique du niveau $\mu(\epsilon_d)$ devient supérieur au potentiel chimique μ_R de l'électrode de droite, les électrons présents sur ce niveau ont la possibilité de transiter à travers la barrière tunnel pour aller vers l'électrode droite. C'est l'effet tunnel photo-assisté. Le schéma ne décrit que le point de vue du niveau à l'intérieur de la boîte mais le même phénomène peut se produire dans les électrodes, à savoir que le champ peut aider un électron à transiter vers un niveau à l'intérieur de la boîte quantique. Ce phénomène a été pour la première fois décrit par *Tien et Gordon* en 1963 [77] sous le nom de procédé multiphotonique.

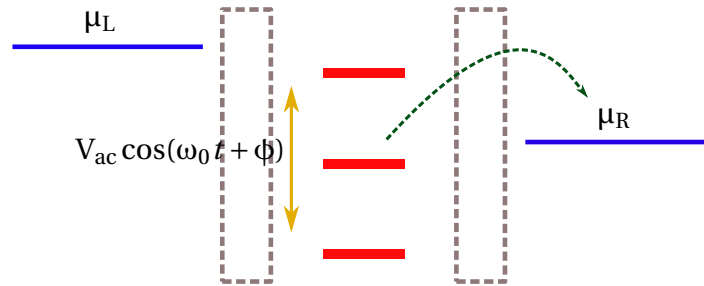


FIGURE 1.14 – Schéma présentant le principe de l'effet tunnel photo-assisté. Le niveau électronique est modulé par le champ électrique de fréquence ω_0 . L'électron peut alors transiter vers l'électrode de droite.

La résolution du problème est plus complexe que précédemment car cette fois, nous devons prendre en compte la dimension temporelle puisque les niveaux électroniques sont modulés dans le temps. Cela implique d'utiliser le formalisme de Keldysh. Cependant, ces travaux ont déjà été effectués par *Jauho et al.* [78] et les résultats avec leur interprétation physique dans cette section seront cités dans ce manuscrit. On supposera par la suite que seuls les niveaux de la boîte sont modulés par le champ de la cavité. Les potentiels chimiques des électrodes et des barrières tunnel sont indépendants du temps. Dans notre cas, les photons sont amenés dans la cavité par une source extérieure. L'expression finale du courant donnée par *Jauho et al.* s'écrit,

$$\langle I \rangle = \frac{q}{h} \Gamma_L \Gamma_R \sum_{k=-\infty}^{+\infty} J_k^2\left(\frac{qV_{ac}}{\hbar\omega_0}\right) \int \frac{d\epsilon}{2\pi} \frac{f_L(\epsilon) - f_R(\epsilon)}{(\epsilon - \mu_d - k\omega)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (1.27)$$

où J_k sont les fonctions de Bessel d'ordre k ¹⁷ et $\Gamma = \Gamma_L + \Gamma_R$. L'intégrand est un terme de forme lorentzienne exprimant l'élargissement spectral du niveau de la boîte par lequel transite l'électron. Cette formule 1.27 est totalement générique. Le courant est modulé par les fonctions de Bessel. C'est un résultat qui a été observé par *Kawano et al.* [79] où les auteurs ont identifié une modulation du courant dans les nanotubes de carbone par les fonctions de Bessel en fonction de la puissance de la source térahertz. Afin de mieux comprendre les modifications que cela apporte sur le diagramme de stabilité, le courant en fonction de la tension de grille V_g pour différentes valeurs de V_{ac} avec une valeur V_{sd} constante a été calculé. Les résultats sont présentés à la figure 1.15. Le calcul a été fait pour des conditions éloignées du régime séquentiel afin de mieux visualiser l'effet du champ électrique. Les paramètres utilisés pour ce calcul sont $\Gamma = 1$ meV, $k_b T \rightarrow 0$, $\hbar\omega_0 = 3$ meV. Les valeurs prises pour le rapport $qV_{ac}/\hbar\omega_0$ varient entre 0 et 1.25.

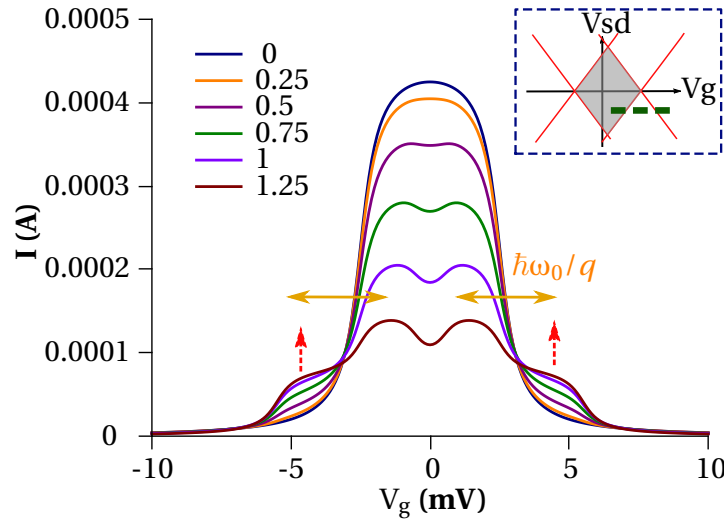


FIGURE 1.15 – Coupe du diagramme de stabilité selon V_g pour différents rapport $qV_{ac}/\hbar\omega_0$ variant entre 0 et 1.25. Le niveau de la coupe dans le diagramme de stabilité est montré en pointillé vert dans l'image en insert. La tension de grille a directement était implémentée en mV pour indiquer les niveaux d'énergie de la boîte. Les pics satellites qui apparaissent sont ainsi séparés de $\hbar\omega_0/q$ du niveau principal. Les paramètres utilisés pour le calcul sont $k_b T \rightarrow 0$, $\Gamma = 1$ meV, $\hbar\omega_0 = 3$ meV.

Plus l'amplitude du potentiel V_{ac} est important, plus le courant du pic principal diminue. Il passe de 4×10^{-4} A pour $qV_{ac}/\hbar\omega_0 = 0$ à 1.5×10^{-4} A pour un rapport $qV_{ac}/\hbar\omega_0 = 1.25$. L'amplitude de la modulation du potentiel chimique du niveau devient très importante et il y a moins de transition possible avec les électrodes ce qui provoque une diminution du courant. En parallèle, avec l'augmentation de V_{ac} , deux pics satellites apparaissent situés à une distance $\hbar\omega_0/q$ du niveau orbital. Sur le diagramme de stabilité, ces

17. Pour mieux comprendre pourquoi les fonctions de Bessel interviennent dans ce problème, regardons le cas d'une fonction d'onde simple $\psi(t) = \exp(-iE(t)/\hbar)$ où $E(t) = \int_0^t d\tau (\epsilon_0 + qV_{ac} \cos(\omega\tau)) = \epsilon_0 t + qV_{ac}/\hbar \sin(\omega t)$ fonction propre de l'hamiltonien $\mathcal{H} = \epsilon_0 + qV_{ac} \cos(\omega t)$. En réinjectant, cette expression dans l'exponentielle on se retrouve avec deux termes,

$$\begin{aligned} \psi(t) &= \exp(-i\epsilon_0 t/\hbar) \exp\left(\frac{-iqV_{ac}}{\hbar\omega \sin(\omega t)}\right) \\ &= \exp(-i\epsilon_0 t/\hbar) \sum_k J_k(qV_{ac}/\hbar\omega) \exp(-ik\omega t) \end{aligned}$$

En conséquence, l'amplitude des fonctions d'onde est modulée par les fonctions de Bessel. Il en va de même pour les fonctions d'onde électroniques des niveaux de la boîte.

pics situés dans les diamants. L'apparition de ces niveaux est une caractéristique de l'effet tunnel photo-assisté. Pour un rapport $qV_{ac}/\hbar\omega_0 = 1.25$, le niveau de courant entre les pics principaux et les pics satellites est quasiment identique. Pour certaines puissances, seuls les pics satellites seront visibles et nous serons alors dans un régime de transport entièrement assisté par les photons. Il est à noter que si la coupe avait été faite pour une tension V_{sd} plus petite, nous verrions apparaître des pics satellites de manière similaire à l'intérieur de la zone de courant séparés du niveau principal de $\hbar\omega_0$.

1.5 Conclusion

Après avoir décrit les résonateurs (fréquences de résonance, facteur qualité, choix) et le transport au sein d'une boîte quantique, nous avons étudié le couplage entre une boîte quantique et une cavité. Deux cas distincts ont été étudiés. Tout d'abord, l'étude à faible nombre de photons a montré que de nouveaux états - appelés états électroniques habillés - apparaissaient dans le diagramme de stabilité séparés de l'énergie du mode de la cavité $\hbar\omega_0$. La répartition de ces nouveaux états suit une loi poissonnienne de paramètre du couplage sans dimension g . Un second cas a été brièvement traité, le cas de l'effet tunnel photo-assisté qui lui montre l'apparition de pics satellites dans les diamants de Coulomb dont l'amplitude dépend de l'amplitude du champ térahertz.

Nous allons dans le chapitre suivant détailler les techniques expérimentales pour caractériser les résonateurs térahertz et effectuer les mesures de transport dans notre boîte quantique afin d'identifier et d'étudier le couplage entre les niveaux électroniques et la cavité.

Chapitre 2

Techniques expérimentales pour la spectroscopie térahertz

Sommaire

2.1 Fabrication des échantillons	36
2.1.1 Procédés de fabrication en salle blanche	36
2.1.2 Technique de tamponnage pour les nanotubes de carbone	39
2.2 Montage expérimental pour la caractérisation des échantillons en transport électronique	40
2.2.1 Cryostat et porte échantillon	41
2.2.2 Mesures de la conductance différentielle et du courant	41
2.3 Développement d'un banc de spectroscopie dans le domaine temporel large bande	45
2.3.1 Description de la spectroscopie térahertz	45
2.3.2 Performances du banc de spectroscopie	56
2.4 Focalisation en limite de diffraction du champ térahertz	60
2.4.1 Situation classique - Excitation par un faisceau infrarouge à front d'onde plan	61
2.4.2 Excitation par un faisceau infrarouge à front d'onde sphérique	64
2.4.3 Focalisation du faisceau térahertz	68
2.4.4 Performances du banc expérimental en limite de diffraction	72

Dans ce chapitre, nous allons détailler les techniques expérimentales utilisées pour mesurer nos échantillons et les fabriquer. Dans un premier temps, les techniques de fabrication seront présentées en insistant particulièrement sur la technique du tamponnage de nanotube de carbone, essentiel pour contrôler l'environnement de l'échantillon. Nous avons deux types d'échantillon à caractériser, les résonateurs d'un côté et les nanotubes de carbone imbriqués dans une cavité térahertz de l'autre. Les résonateurs ont été caractérisés dans un montage de spectroscopie dans le domaine temporel. Dans un premier temps, nous décrirons le montage électronique pour pouvoir mesurer les nanotubes de carbone couplés à la cavité térahertz. Le montage de spectroscopie térahertz sera explicité dans un deuxième temps ce qui permettra de détailler la mise en place d'une technique originale générer le champ térahertz afin de le focaliser en limite de diffraction.

2.1 Fabrication des échantillons

Nous allons détailler dans cette section les procédés de fabrication des échantillons utilisés pour la caractérisation térahertz des résonateurs ou bien pour l'étude du couplage électron-photon dans la gamme térahertz à travers les mesures de transport. Dans le second cas, chaque étape est cruciale et les différents éléments de l'environnement de l'échantillon (morceaux métalliques, résine, dépôt de carbone amorphe...) et en particulier du nanotube de carbone peuvent modifier le résultat final de manière non négligeable : les niveaux électroniques de la boîte quantique peuvent être désordonnés, les résonances de cavités peuvent être perturbées voire disparaître.

Dans le but de maîtriser l'environnement de l'échantillon le plus finement possible et d'assurer une reproductibilité de l'échantillon dans des conditions identiques, la technique du tamponnage (*stamping* en anglais) de nanotube de carbone a été développée dans notre laboratoire. Cette technique se base sur un report de la structure carbonée, crue sur un substrat de quartz, sur le substrat de silicium où est fabriqué l'échantillon. La maîtrise de cette technique permet d'obtenir un spectre pour le nanotube de carbone plus ordonné et donc de visualiser les effets recherchés plus lisiblement dans les mesures.

Dans un premier temps, nous allons détailler succinctement le principe des principaux procédés de salle blanche utilisés. Ensuite, le procédé et les particularités de la technique du tamponnage sera explicité en insistant sur la méthode de fabrication des tampons que nous utilisons dans la salle blanche. Pour terminer, nous détaillerons les recettes de fabrication des échantillons mentionnés dans ce manuscrit.

2.1.1 Procédés de fabrication en salle blanche

Dans ce premier paragraphe, les procédés de salle blanche utilisés sont présentés avec en tout premier lieu la lithographie qui est le procédé central de la fabrication de tous les échantillons de ce manuscrit. La fabrication se déroule en deux grandes phases : une première phase où nous effectuons une lithographie afin de permettre la création d'un masque sur une résine sensible au moyen utilisé dévoilant les zones qui seront métallisées¹, et une seconde phase consistant à déposer le (les) métal(aux) par évaporation. Le

1. Ce procédé est équivalent à celui qu'utilise les artistes sur leurs œuvres à l'inverse qu'ils travaillent à des dimensions métriques.

principe est représenté à la figure 2.1.

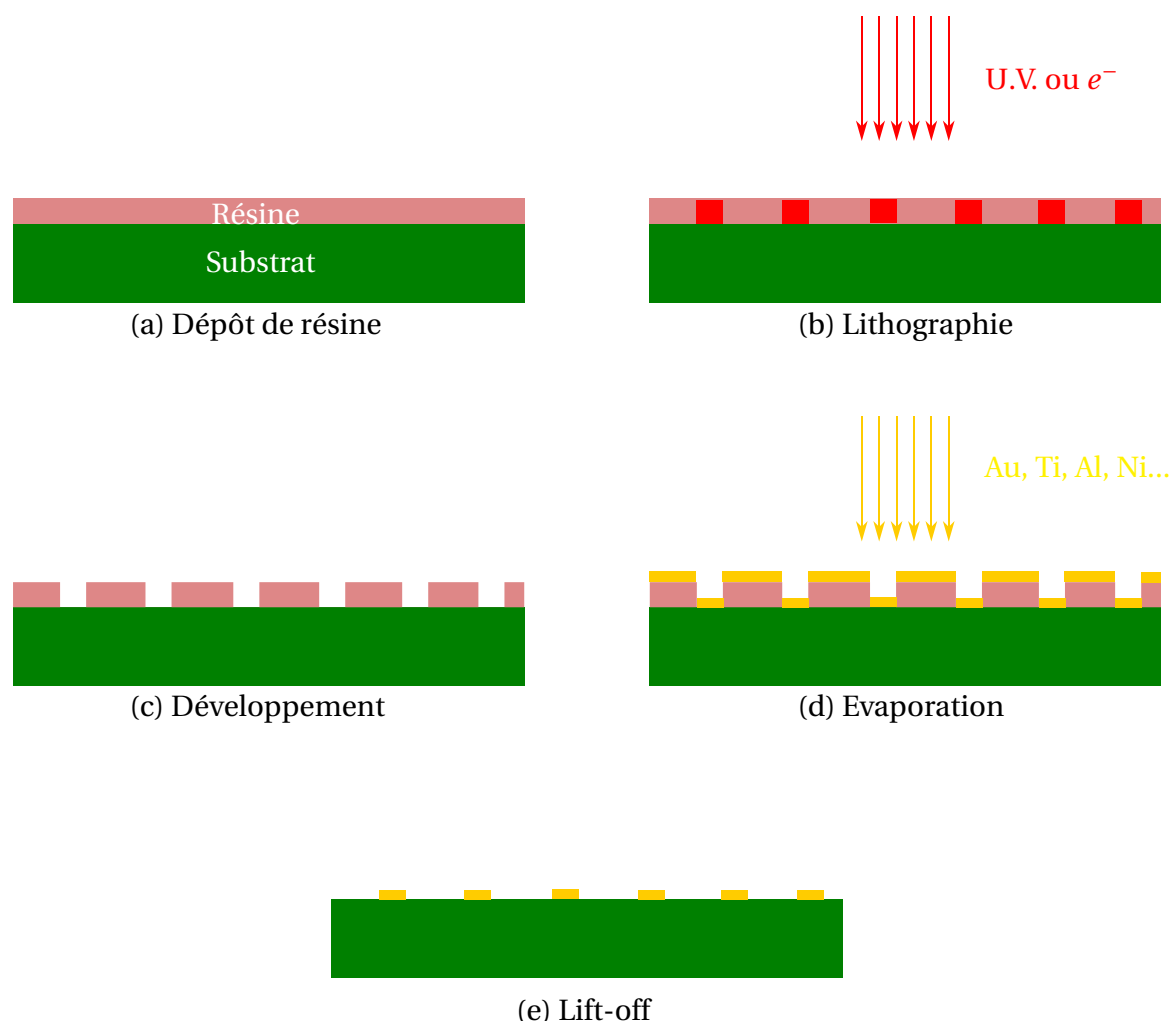


FIGURE 2.1 – Schéma présentant le principe de la fabrication d’une structure en utilisant la technique de la lithographie. L’étape finale représentée en (d) et (e) est la métallisation qui s’effectue dans un évaporateur.

Procédés de lithographie

Pour fabriquer les masques que nous pouvons voir à l’étape (b) de la figure 2.1, deux grands procédés sont utilisés : la lithographie par voie électronique et la photolithographie. Les deux procédés présentent un aspect identique à savoir que dans les deux cas on insoule une résine photosensible ou électrosensible. La différence va résider dans la résolution spatiale qu’il est possible d’obtenir entre les deux techniques.

Commençons par la technique de lithographie optique. Elle utilise des photons ultraviolet pour insoler la résine dont la longueur d’onde est située autour de 370 nm. Pour des résines de faibles épaisseurs, la résolution est limitée par la limite de diffraction. La résolution atteinte pour la résine que nous utilisons est plutôt de l’ordre du μm . Elle convient donc parfaitement pour la fabrication d’objets dont la taille est supérieure à 1 μm telle que les antennes interdigitées décrites dans le chapitre sur la TDS ou les résonateurs térahertz décrits tout au long de ce manuscrit.

La technique de lithographie que nous utilisons pour la fabrication des échantillons afin d'étudier le couplage est la lithographie électronique. Le principe est d'utiliser les électrons à fortes énergies pour insoler la résine émise par l'intermédiaire du canon d'un microscope électronique à balayage (MEB). Lors de la lithographie, l'échantillon est inséré dans une chambre qui est pompée jusqu'à une pression de 2×10^{-6} mbar. Le canon à électron se positionne sur la zone à insoler et les électrons sont accélérés sous une tension de 20 kiloVolts. Lorsque les électrons atteignent la résine, ceux-ci détruisent les liaisons chimiques des molécules. La platine de l'échantillon se déplace ensuite et l'opération est répétée. Les masques sont dessinés sur un logiciel commercial **e-line**. Le masque peut comporter plusieurs parties qui sont divisées en couche. Chaque couche peut-être sélectionnée indépendamment l'une de l'autre pour décider de n'exposer qu'une seule partie du masque dans des procédés à plusieurs étapes.

Nous avons la possibilité de régler plusieurs paramètres sur le MEB, la dose d'insolation et l'incrément de déplacement de la platine dans les zones insolées². Ces deux paramètres suffisent à définir le temps d'exposition (*dwell time* en anglais) que la machine utilise comme paramètre pour toute la lithographie. Nous pouvons agir aussi sur la taille du faisceau en variant l'ouverture du canon. Si nous souhaitons faire une lithographie très précise, nous utiliserons une ouverture de 10 μm tandis que si nous effectuons un masque pour des grosses structures, une plus grande ouverture pourra être utilisée comme 60 voire 120 μm . Le dernier paramètre sur lequel nous pouvons agir est le champ d'écriture. Le logiciel du MEB divise le masque en champ de 100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ ou 1000 $\mu\text{m} \times 1000 \mu\text{m}$ au centre duquel la platine se place lors de l'écriture de la zone. La taille choisie aura directement un impact sur la précision et le temps d'écriture. Un champ de 1000 $\mu\text{m} \times 1000 \mu\text{m}$ permettra une écriture plus rapide mais moins précise que l'utilisation d'un champ de 100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$. C'est la deuxième solution qui est privilégiée car la taille de nos structures sont pour la plupart toutes inférieures à 10 μm .

Déposition métallique

L'étape qui suit la lithographie est la déposition de métaux présentée aux étapes (d) de la figure 2.1. Cette étape s'effectue dans un évaporateur à source électronique ou thermique. Une source chauffe un creuset jusqu'au point d'ébullition des lopins du métal que nous souhaitons évaporer permettant aux atomes de s'évaporer jusqu'à l'échantillon. L'épaisseur et le taux d'évaporation sont contrôlées grâce à un quartz et l'ensemble des évaporations sont effectuées sous vide. Après évaporation, l'échantillon est plongé dans de l'acétone - qui peut être chauffé à 52 degrés - afin d'enlever les traces de résine comme il est présenté à l'étape (e).

Les évaporateurs thermiques de la salle blanche permettent d'évaporer de l'or, de l'aluminium et du chrome (comme couche d'accrochage pour l'or). Les pressions sous lesquels on peut effectuer l'évaporation sont aux alentours de 5×10^{-6} mbar avec une augmentation jusqu'à 10^{-5} mbar lors de l'évaporation due aux dégazages des métaux lors de la montée en température. Ces évaporateurs sont parfaits pour faire des épaisseurs de métaux inférieures à 100 nm dans un environnement pour l'échantillon qui n'a pas besoin d'être parfaitement contrôlé.

2. Le canon ne fait pas la lithographie de manière continue. Il opère en faisant des points d'insolation. Les électrons se diffusent ensuite dans la résine et cassent les liaisons sur une zone limitée.

Les évaporateurs munis d'un canon à électron permettent d'évaporer plus facilement un grand nombre de métaux que l'évaporateur thermique dans un environnement plus contrôlé. A titre d'exemple, l'évaporateur électronique nous permet d'évaporer de l'or, du titane, de l'aluminium, du palladium et du nickel sous une pression proche de l'ultra-vide à 10^{-9} – 10^{-8} mbar. L'environnement est mieux contrôlé et cela évite d'avoir des impuretés qui se déposent sur la structure lors de l'évaporation et qui permet une meilleure reproductibilité de la fabrication des échantillons. Comme pour l'évaporateur thermique, les taux d'évaporation et l'épaisseur du métal déposée sont contrôlés par un quartz.

2.1.2 Technique de tamponnage pour les nanotubes de carbone

La croissance de nanotube de carbone est une étape qui s'effectue à haute température dans un four de croissance par technique CVD (*Chemical Vapor Deposition* en anglais). Les nanotubes croissent grâce à l'utilisation de particules de catalyseur qui permettent aux atomes de carbone de se déposer afin d'initier la croissance du nanotube de carbone. Cette étape apporte aussi beaucoup de carbone amorphe qui sont des morceaux de carbone sans structure particulière qui viennent fortement perturber l'environnement. Ce type de structure peut dégrader les résonances de cavités et empêcher le bon fonctionnement des échantillons. Dans notre cas, les nanotubes de carbone sont placés à quelques micromètres des résonateurs térahertz et dans le but d'avoir un environnement le plus propre possible les structures carbonées sont reportées en utilisant la technique du tamponnage développée dans notre groupe [80]. Dans ces conditions, le champ électrique issu du résonateur est moins perturbé ne dégradant pas le couplage avec le dipôle issu du nanotube de carbone.

Le principe du tamponnage est de reporter aux endroits voulus le nanotube de carbone en préservant le substrat de silicium sur lequel les échantillons sont fabriqués par l'intermédiaire d'un substrat de quartz sur lequel les nanotubes de carbone ont crû. Sur ce substrat de quartz, des piliers dont la taille varie en fonction de la zone de transfert sont gravés. Cela permet de sélectionner une zone très précise qui sera reportée sur le silicium. Un dépôt de catalyseur est effectué sur l'ensemble du quartz afin de procéder à la croissance CVD dans le four. Après la croissance, le substrat de quartz est collé sur un masque en verre et déposé sur le masqueur optique qui est utilisé pour avoir un alignement précis. Le dépôt de nanotubes se produit par simple contact entre le haut du pilier et le substrat de silicium comme le montre le schéma de principe de la figure 2.2.



FIGURE 2.2 – Schéma présentant le principe du tamponnage de nanotube de carbone - le substrat de silicium est apposé au contact du pilier de quartz (flèche verte) - le nanotube est reporté lors du contact sur le substrat de silicium (flèche rouge)

Cette technique permet de contrôler à la fois la quantité de nanotube de carbone déposé, en évitant d'avoir des amas de tubes qui rendent impossible toute post-sélection lors de l'étape de localisation des nanotubes ; et d'autre part d'avoir une zone circon-

crite où il y a peu de carbones amorphes. Nous pouvons voir sur la figure 2.3 l'exemple d'un tamponnage de tube dans l'entrefer du résonateur térahertz. L'image dans le cercle est la partie de l'entrefer agrandie et on peut apercevoir qu'il y a très peu de dépôt autre que les tubes permettant d'avoir une zone très propre pour la lithographie de contact des nanotubes.

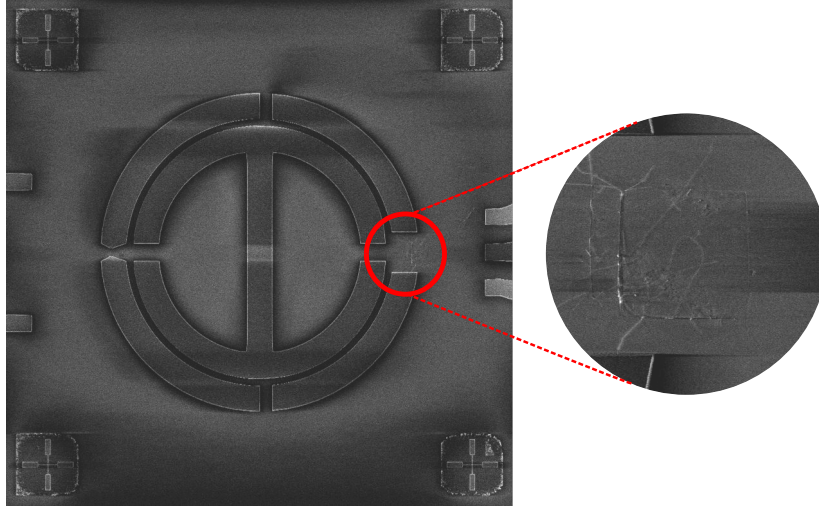


FIGURE 2.3 – Photographie du résonateur térahertz prise au MEB avec la marque du tamponnage - les tubes sont déposés laissant une marque dans l'oxyde de silicium dans l'entrefer du résonateur. L'image dans le cercle de gauche représente la partie de l'entrefer de gauche du résonateur agrandi.

Le détail des procédés de fabrication est précisé en annexe C. Une fois la fabrication effectuée, les échantillons sont préparés pour être mesurés. Les parties suivantes sont consacrées aux montages expérimentaux qui nous permettent d'effectuer les mesures de transport dans les nanotubes de carbone et la spectroscopie des résonateurs, la spectroscopie térahertz dans le domaine temporel.

2.2 Montage expérimental pour la caractérisation des échantillons en transport électronique

L'étude du couplage entre les photons térahertz et la boîte quantique s'effectue à travers des mesures de courant et de conductance sur le nanotube de carbone. Les pas en énergie $q\Delta V$ qui sont appliqués aux bornes sont de l'ordre de l'énergie de la température soit dans notre cas un pas en tension de l'ordre de 30 μV afin de bénéficier d'une meilleure résolution possible. De plus, les valeurs de courant sont très faibles de l'ordre de 1×10^{-10} A à 1×10^{-8} A que nous devons être capable de lire. Pour atteindre ces performances, il nous faut d'un côté un montage isolé du bruit de l'environnement sur lequel de très faibles tensions peuvent être appliquées et de l'autre côté des appareils qui puissent amplifier et lire le courant et la conductance sans rajouter de bruit. C'est ce montage que nous allons détailler dans ce paragraphe.

Dans un premier temps, nous décrirons succinctement le cryostat et le porte échantillon utilisé pour effectuer ce type de mesure. Puis, dans un second temps, nous détaillerons les techniques utilisées pour faire les mesures de conductance différentielle et de

courant de la boîte quantique et du fil de palladium, la source de photons qui a été intégrée aux échantillons et qui sera décrite en annexe E.

2.2.1 Cryostat et porte échantillon

Pour notre étude, l'échantillon doit être refroidi à une température telle que $k_b T \ll \Delta\epsilon, \hbar\omega_0$ où $\Delta\epsilon$ est l'espacement de niveau et ω_0 est l'énergie du photon du résonateur. La longueur du tronçon du nanotube de carbone servant à la conception de la boîte quantique est de 300 nm. L'espacement de niveau attendu est environ de $\Delta\epsilon \sim 6$ meV soit si nous convertissons en température de 57 K environ. De même, pour une résonance à 500 GHz, l'énergie est de 2 meV soit une température équivalente de 24 K. Nous devons donc atteindre des températures cryogéniques pour le nanotube de carbone pour être dans un régime quantique du point de vue des photons térahertz. Pour cela, nous utilisons un cryostat à hélium 3 de chez *Oxford Instrument* dont la température de fonctionnement peut descendre jusqu'à 235 mK pendant un cycle de condensation³.

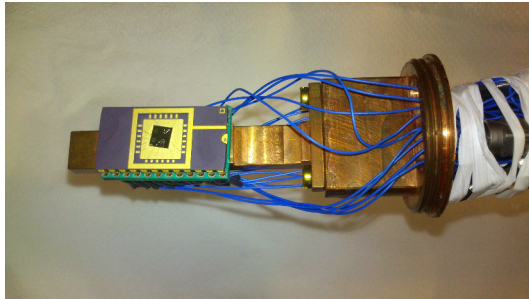
L'échantillon est inséré sur une embase en contact avec le doigt froid du cryostat comme présenté sur la photographie à la figure 2.4a. L'embase est capable d'accueillir une puce en céramique à 24 ports de sortie pour la caractérisation des échantillons. Dans le cryostat, uniquement 22 lignes sont connectées jusqu'à la boîte d'entrée située sur la partie supérieure de la canne. Chaque ligne est connectée à un interrupteur accessible au niveau de la boîte d'entrée. La partie de l'échantillon à laquelle est connectée l'interrupteur peut être mis à la masse du cryostat, en circuit ouvert ou bien connecté avec un appareil de mesure ou un générateur de tension.

La connexion de l'échantillon à la puce en céramique se fait par micro-soudure de l'électrode de l'échantillon jusqu'au port de sortie que nous pouvons apercevoir sur la figure 2.4b sous la forme de petits carrés en or. La difficulté de cette étape est de conserver l'échantillon à un potentiel bien défini jusqu'à ce qu'il soit connecté à l'embase du doigt froid. Pour cela, nous utilisons une seconde embase fixé sur un bloc de cuivre (voir la figure 2.4b) qui peut être facilement mis au potentiel voulu sans brûler les contacts des échantillons.

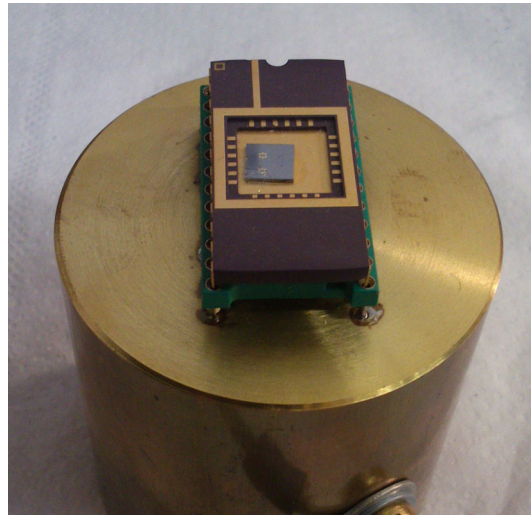
2.2.2 Mesures de la conductance différentielle et du courant

Nous allons nous intéresser plus précisément au montage électronique pour mesurer le courant circulant dans la boîte quantique et la conductance différentielle. Deux parties sont à considérer dans ce montage, tout d'abord la partie qui permet d'appliquer des tensions très faibles aux bornes de l'échantillon et ensuite, une partie qui permet de lire le courant et la conductance différentielle de l'échantillon. Afin de mieux comprendre ce

3. Le principe de fonctionnement du cryostat repose sur la condensation de l'hélium 3. Pour cela, on active un cycle à l'intérieur du cryostat en forçant les molécules d'hélium 3 à devenir liquide au contact d'un pot à 1 K. Cette température est atteinte en pompant de l'hélium 4 du vase de Dewar dans lequel est inséré le cryostat. Ce cycle de condensation dure environ 30 minutes. A la fin de ce cycle, les atomes d'hélium 3 sont tous liquides mais le système n'est pas encore à 300 mK. Afin d'abaisser la température, il nous faut garder uniquement les atomes les plus froids ce qui est possible en diminuant la pression de vapeur par adsorption des atomes les plus chauds grâce à une pompe à charbon. Ce mécanisme est similaire à celui que nous pouvons faire lorsque nous soufflons sur une tasse à café pour refroidir le liquide. Le porte échantillon étant en contact avec ce réservoir d'atomes à 300 mK permet de faire descendre la température de l'échantillon.



(a) Porte Echantillon



(b) Puce placée sur une embase pour la micro-soudure

FIGURE 2.4 – (a) Photographie du porte échantillon dans le cryostat autour duquel les lignes DC arrivent - (b) Photographie de la puce sur l'embase servant pour la micro-soudure de l'échantillon.

montage, la connexion des appareils de tension et de mesure sera d'abord détaillée. Puis, le montage sera expliqué dans un deuxième temps.

Connexion de l'échantillon

La figure 2.5 présente une photographie prise au microscope électronique à balayage d'un échantillon avec les électrodes. En insert sont présentés des agrandissements des connexions au niveau du fil de palladium et du nanotube de carbone. Le schéma présente aussi les connexions avec les différents appareils - générateurs et appareils de mesure - pour la mesure du courant et de la conductance en sortie de la boîte quantique et du fil de palladium.

Concentrons-nous autour du nanotube de carbone. Une des électrodes connectée au nanotube de carbone est reliée à un générateur de tension qui pilote la tension V_{sd} appliquée sur le nanotube pour moduler le potentiel chimique de l'électrode. L'autre électrode en amont est reliée aux appareils de lecture de tension à savoir un voltmètre et/ou une détection synchrone qui servira à la lecture du courant à travers la boîte quantique et la conductance. L'électrode centrale est reliée à un second générateur de tension qui contrôle la tension V_g en charge de moduler le potentiel chimique de la boîte quantique. L'électrode centrale qui touche le nanotube de carbone visible sur la photographie 2.5 en insert en haut à droite, est la grille supérieure (*top gate* en anglais) qui est reliée au résonateur.

Du côté du fil de palladium, les connexions sont identiques à la source et au drain de la boîte quantique. Le fil est contacté d'un côté à une électrode reliée à un générateur de tension qui contrôle la tension V_{nw} en charge de moduler le potentiel chimique. L'autre électrode est reliée aux appareils de lecture de tension pour pouvoir extraire le courant circulant à travers le fil et la conductance.

Les générateurs de tension utilisés sont des générateurs *Yokogawa*. Les détections

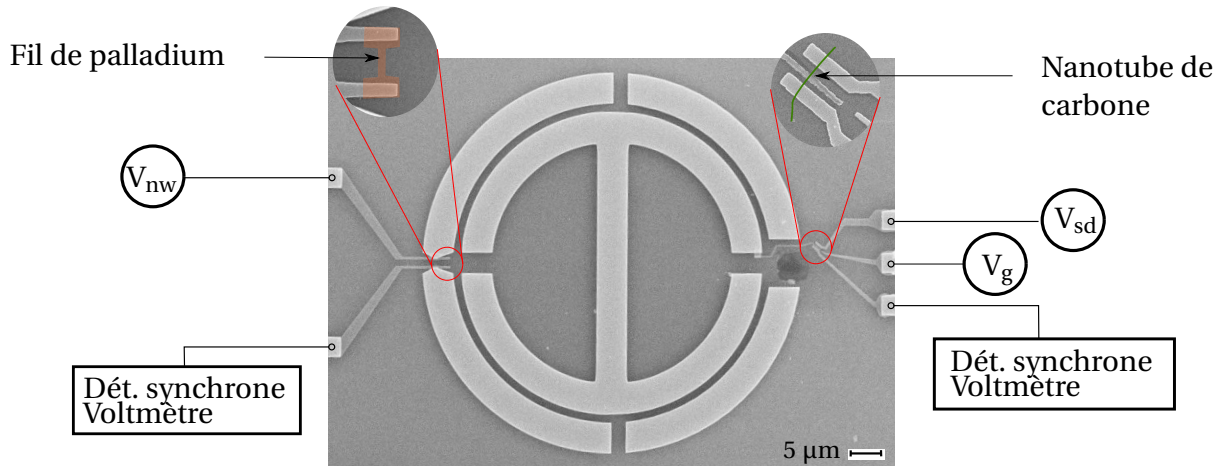


FIGURE 2.5 – Photographies prises au microscope à balayage électronique de l'échantillon. Le schéma présentant les connexions des échantillons avec les différents appareils du montage expérimental. *Dét.* signifie détection sur ce schéma. Le fil de palladium - source de photons - est connecté d'un côté à un générateur de tension V_{nw} et de l'autre à une détection synchrone et un voltmètre. De l'autre côté, la source de la boîte quantique est connectée à un générateur de tension V_{sd} et le drain à un voltmètre et une détection synchrone. L'électrode de grille est connectée à un générateur de tension V_g .

synchrones utilisées sont des *Signal Recovery* SR-7265. Les voltmètres utilisés pour lire les tensions sont de la marque *Keithley*. Nous allons nous intéresser au montage électronique pour la mesure de l'échantillon.

Montage pour la mesure du courant et de la conductance différentielle

Pour effectuer la spectroscopie des états de la boîte, nous devons appliquer de faibles tensions aux bornes de la boîte quantique et lire des courants qui sont très faibles. La figure 2.6 est le schéma électronique du montage afin de lire le courant et la conductance différentielle sur notre échantillon sur la boîte quantique.

En amont de la boîte quantique, une tension $V_{sd} + V_{ac} \cos(2\pi f_{ref} t)$ est appliquée. Cette tension est composée d'une tension continue alimentée par le générateur de tension et d'une tension alternative délivrée par la source interne de la détection synchrone. La fréquence f_{ref} de modulation de cette tension alternative est de 77.7777 Hz. Les tensions qui sont appliquées par les appareils sont réduites par l'utilisation d'un pont diviseur de tension, visible sur la gauche du schéma 2.6. La tension V_{ac} est appliquée sur une résistance de 10 k Ω avec une résistance de 100 Ω en parallèle ce qui permet de diviser la tension par 100. De même, la tension V_{dc} est appliquée sur une résistance de 100 k Ω avec une résistance de 100 Ω en parallèle ce qui permet de diviser la tension appliquée sur la boîte quantique par 1000. Une tension de 3 mV est fixée sur la détection synchrone afin de ne pas être limité par l'agitation thermique à 300 mK et la tension de biais V_{sd} est implémentée sur le générateur de tension entre -10 V et 10 V avec des pas de 30 mV. Le filtrage des effets de l'environnement se fait naturellement par la thermalisation des câbles DC à l'intérieur du cryostat.

En sortie de la boîte quantique, un courant I_{BQ} circule avec une composante continue I et une composante alternative $\delta I \cos(2\pi f_{ref} t)$. Ce courant est amplifié avec un amplificateur de courant bas bruit de valeur $\times 10^6$ - la valeur de la résistance à l'intérieur de l'am-

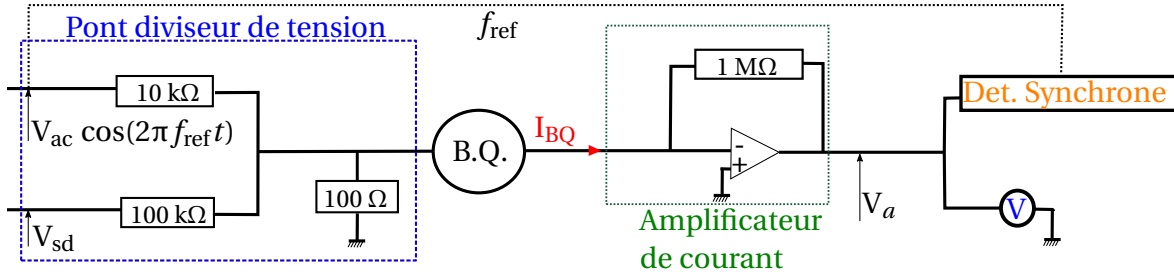


FIGURE 2.6 – Schéma électronique de la mesure du courant et de la conductance différentielle de la boîte quantique. *B. Q.* signifie boîte quantique. Les générateurs sont connectés sur un pont diviseur de tension qui permet d'appliquer de faibles tensions aux bornes de la boîte quantique. En aval, le courant est amplifié par un amplificateur bas bruit. La tension en sortie de l'amplificateur est lue par un voltmètre et une détection synchrone.

plificateur. A la sortie de cet amplificateur, une tension V_a est récupérée avec toujours une composante continue V et une composante alternative $\delta V \cos(2\pi f_{\text{ref}} t)$. La relation entre I_{BQ} et V_a est donnée par $V_a = -I_{BQ} \times 10^6$.

La détection synchrone permet de lire la composante alternative amplifiée δV et de remonter directement à la conductance différentielle via la relation :

$$\delta G = \frac{-\delta V \times 10^{-6}}{V_{ac}}$$

Le voltmètre permet de lire la tension moyenne amplifiée V et nous pouvons ainsi remonter au courant via la relation :

$$I = -V \times 10^{-6}$$

Pour la tension de grille, un filtre passe-bas est placé à l'entrée du cryostat dans le but de filtrer les composantes rapides. Cela permet de bénéficier d'une meilleure stabilité pour la grille et de se prémunir de couplages à des fréquences non souhaitées. Le RC de ce filtre est composé d'une résistance de 1 MΩ et d'une capacité de 1 nF permettant d'avoir une fréquence de coupure à 160 Hz. Le générateur de tension permet d'appliquer des tensions de grille entre -30 V et 30 V pour balayer de grandes zones. Il est à noter cependant que l'efficacité de modulation de la tension de grille sur le potentiel chimique de la boîte dépend de son couplage - via le bras de levier introduit dans le premier chapitre $\alpha_g = C_g / C_\Sigma$ à la formule 1.5 - et de sa configuration.

Le montage présenté nous permet d'appliquer de petites tensions pour effectuer une spectroscopie très fine de l'échantillon sans être limité par la l'effet de la température. De même, par l'utilisation d'amplificateurs bas bruit, de très faibles courants peuvent être lus. Ce schéma de montage est un schéma électronique classique pour les mesures de transport à basse température qui permettra dans ce cas d'étudier l'interaction lumière matière entre la boîte quantique et les photons térahertz du résonateur. Nous allons maintenant nous intéresser au montage développé dans le cadre de cette thèse pour caractériser les fréquences de résonance des résonateurs.

2.3 Développement d'un banc de spectroscopie dans le domaine temporel large bande

Pour l'étude du couplage que nous souhaitons effectuer, les propriétés de résonance de la cavité doivent être connues. Pour cela, j'ai développé un banc de spectroscopie térahertz dans le domaine temporel (TDS pour *time domain spectroscopy*) afin de caractériser les résonateurs THz. C'est ce que nous allons détailler dans ce paragraphe. Cette méthode de spectroscopie nous permet de pouvoir sonder un échantillon de dans la gamme térahertz avec une résolution temporelle très élevée. La TDS s'appuie sur un système de détection cohérente permettant de détecter que le champ térahertz à température ambiante et d'atteindre des rapports signaux à bruit élevés [81]. La TDS restitue l'amplitude et la phase du signal térahertz ce qui la démarque des autres techniques de spectroscopie telle que la spectroscopie infrarouge par transformée de Fourier (FTIR) qui mesure l'intensité du signal. D'autre part, la détection dans le domaine temporel permet avec l'ajout d'une pompe infrarouge de mesurer la dynamique des phénomènes physiques dans ce domaine de fréquence à travers des expériences pompe-sonde [82].

Avec la prolifération des lasers à impulsion de très courte durée, des bancs de spectroscopie très large bande, i.e. une bande passante s'étendant de 300 GHz à plus de 10 THz, ont fait leur apparition couvrant tout le domaine térahertz et allant jusqu'au moyen infrarouge. *Shen et al.* ont démontré une bande passante s'étendant jusqu'à 30 THz [83] en utilisant un laser avec une impulsion de 15 fs et une antenne dipolaire. De même, *Huber et al.* sont montés jusqu'à 41 THz [84] en utilisant des impulsion infrarouge d'une durée 10 fs et un cristal de GaSe. L'utilisation de ce type de banc a permis à *Huber et al.* de décrire le mécanisme de couplage phonon-plasmon dans l'InP qui se situait à haute fréquence par l'utilisation d'une expérience pompe-sonde [85]. Pour atteindre ces performances, les émetteurs doivent avoir la capacité de générer un rayonnement large bande. Il en va de même pour le détecteur qui doit aussi être sensible à toutes les composantes du rayonnement émis. De plus, pour effectuer une spectroscopie, nous devons aussi conserver un bon rapport signal à bruit ce que toutes les techniques d'émission large-bande ne permettent pas. Un compromis a donc été fait entre la performance large-bande et la dynamique du signal en utilisant des antennes interdigitées à large surface ce qui permet d'atteindre une bande passante s'étendant de 0.3 THz jusqu'à 20 THz.

Dans un premier temps, nous effectuerons une description générale de la TDS en motivant le choix de l'émetteur et du détecteur utilisés. Dans un second temps, les performances de la TDS seront présentées en faisant varier plusieurs paramètres afin d'analyser l'évolution de la bande passante du système.

2.3.1 Description de la spectroscopie térahertz

Description Générale

Commençons par effectuer une description générale de la TDS. Le schéma du banc est présenté à la figure 2.7. La TDS présente deux chemins différents pour le faisceau infrarouge, un chemin de pompe et un chemin de sonde sur lesquels sont présents respectivement l'émetteur et le détecteur. Lorsque le térahertz est émis, il est propagé à travers le système par l'utilisation de miroirs paraboliques tels qu'ils sont dessinés à la figure 2.7.

Enfin, le dernier élément important est la ligne à retard qui permet d'effectuer l'acquisition temporelle du signal térahertz. L'émetteur, le détecteur et les miroirs paraboliques sont placés dans une enceinte purgée sous air sec pour minimiser l'absorption du térahertz par les molécules d'eau.

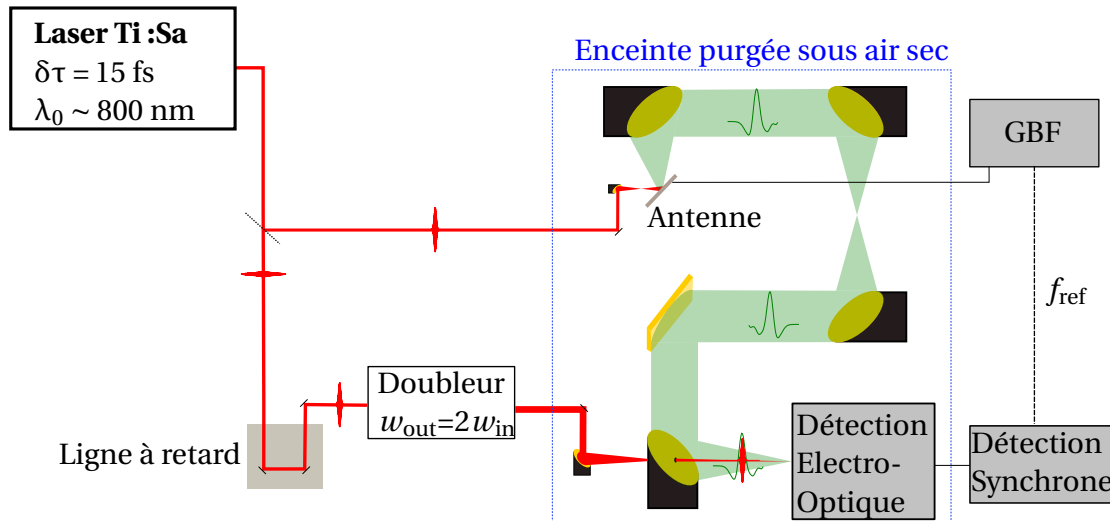


FIGURE 2.7 – Schéma du montage expérimental de spectroscopie térahertz large bande dans le domaine temporel. Le faisceau infrarouge est dessiné en rouge et le térahertz est en vert. La zone où est émise et propagée le térahertz est mise dans une enceinte purgée sous air sec afin de diminuer les absorptions dues à l'eau.

L'impulsion térahertz générée a une durée de l'ordre de la picoseconde tandis que l'impulsion infrarouge a une durée de 15 fs. De plus, les détecteurs utilisés sont sensibles à l'amplitude du champ térahertz à l'instant où le faisceau infrarouge arrive sur le détecteur. Pour reconstruire l'impulsion térahertz, le faisceau infrarouge va échantillonner l'ensemble du faisceau térahertz en se décalant temporellement grâce à l'utilisation de la ligne à retard comme il est montré sur la figure 2.8. Une détection synchrone dont la fréquence est synchronisée avec celle d'un chopper ou d'un GBF selon le type d'émetteur utilisé permet d'amplifier le signal détecté et de maximiser le rapport signal à bruit. Pour reconstruire un signal dont les composantes sont situées entre 0.3 THz et 20 THz, d'après le critère de Shanon, il faut que les pas de la ligne à retard soit au maximum de 25 fs soit des pas de 7.5 μm pour la ligne à retard ce qui revêt l'intérêt d'avoir un pulse de 15 fs pour la détection.

Émetteur Terahertz

Nous allons maintenant décrire les émetteurs utilisables dans le cadre d'une TDS très large bande. Il y a trois familles différentes, la rectification optique, la génération par plasma et la génération par dispositifs photoconducteurs. La rectification optique se base sur l'utilisation des propriétés non-linéaires des cristaux en effectuant une différence de fréquence avec les composantes spectrales de l'impulsion infrarouge⁴. C'est une conversion de fréquence de l'infrarouge vers le térahertz. Le développement de lasers femtosecondes a permis l'émergence de cette technique en utilisant les propriétés non-linéaires

4. Pour une description plus précises de bancs expérimentaux utilisant cette technique, le lecteur pourra se référer aux ouvrages suivant qui décrivent en détail le fonctionnement de la rectification optique[86, 87]

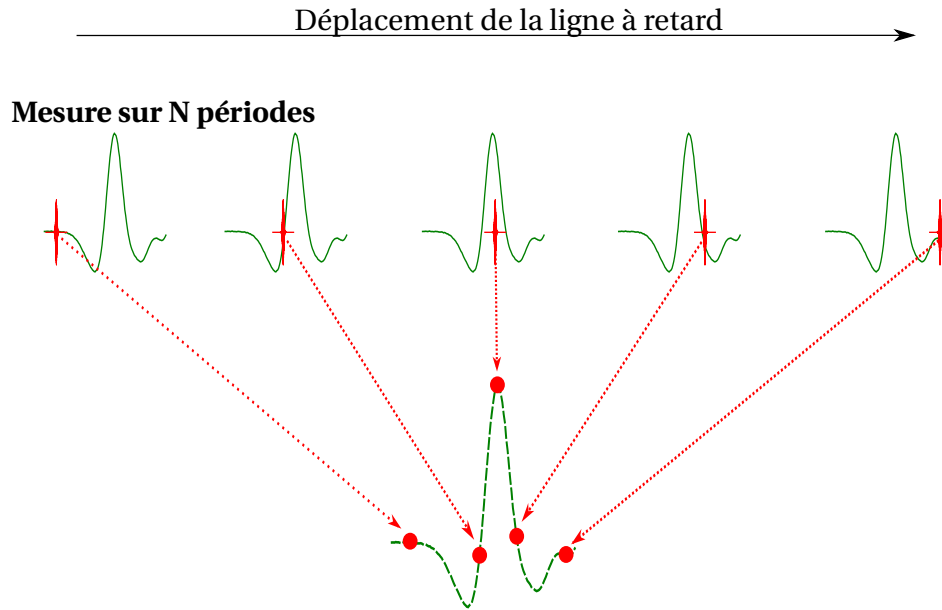


FIGURE 2.8 – Schéma du principe de l'échantillonnage électro-optique d'un signal temporel térahertz. L'impulsion infrarouge se décale temporellement grâce à la ligne à retard pour venir sonder différents points du champ térahertz.

de cristaux tels que le tellure de zinc (ZnTe) [36, 88] ou bien de sélénure de gallium (GaSe) [84] permettant d'atteindre des bandes passantes jusqu'à 50 THz [89]. La génération par création de plasma dans l'air se base sur l'utilisation des fortes puissances crêtes de l'impulsion infrarouge. Si on focalise le faisceau infrarouge fortement, son champ électrique ionise l'air et permet la création d'un plasma qui émet des ondes dans la gamme THz [90] par l'accélération des électrons. Les ondes émises couvrent de fait l'ensemble du domaine THz. L'utilisation de cette technique a démontré la possibilité d'avoir une bande passante jusqu'à plus de 100 THz [91].

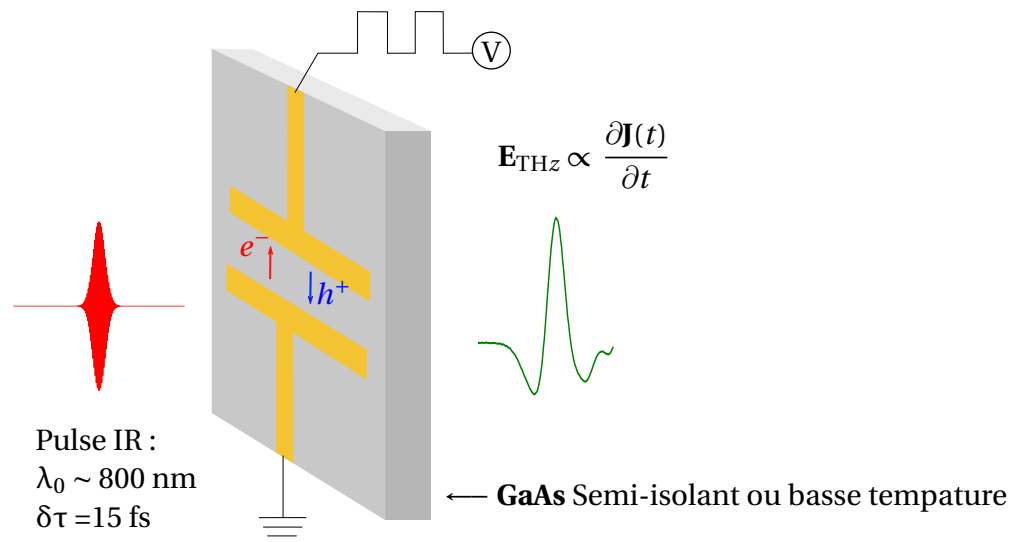


FIGURE 2.9 – Schéma d'une antenne photoconductrice dipolaire sur du GaAs semi-isolant (SI) ou basse température (BT) excitée par une impulsion infrarouge femtoseconde. Le faisceau infrarouge génère des porteurs qui sont accélérés par le champ électrique aux bornes de l'antenne.

Le dispositifs photoconducteurs génèrent un rayonnement térahertz grâce à l'existence d'un courant transitoire. Un exemple est décrit dans la figure 2.9 montrant une an-

tenne dipolaire fabriquée sur un substrat de GaAs. L'antenne est polarisée par une tension de quelques volts générant un champ électrique aux bornes de l'antenne de l'ordre de la dizaine de kV/cm. L'antenne est illuminée par une impulsion infrarouge ($\lambda_0 \sim 800$ nm - $E \sim 1.55$ eV) dont l'énergie est supérieure à la bande interdite du semiconducteur⁵. Des paires électron-trou formant un dipôle (que nous appellerons aussi porteurs par la suite pour porteur de charge) sont alors générées et sont accélérées par le champ électrique DC entre les bornes de l'antenne comme illustré sur la figure 2.9. Un courant transitoire est ainsi généré permettant de rayonner un champ térahertz pouvant aller au delà de 30 THz [83]⁶.

Les deux premières familles d'émetteurs décrites réclament l'utilisation d'un chopper pour la détection du rayonnement térahertz ce qui dégrade le rapport signal à bruit. De plus, la génération par plasma dans l'air requière l'utilisation d'un amplificateur paramétrique dont nous ne disposons pas. A contrario, l'émission des dispositifs photoconducteurs peuvent être modulées par l'utilisation d'un GBF dont la fréquence de modulation peut être synchronisée à la détection synchrone comme illustré sur la figure 2.9 sans dégrader la dynamique de la bande passante. C'est donc vers cette troisième famille d'émetteurs que nous nous sommes orientés pour la génération térahertz.

Détecteurs térahertz

Comme pour l'émission, il faut installer sur notre banc un détecteur sensible au champ térahertz sur une large bande spectrale. On peut identifier 2 grandes familles de détecteurs dans le cadre de la TDS qui sont utilisés, les commutateurs photoconducteurs identiques à ceux décrits précédemment et les cristaux électro-optiques. L'utilisation de commutateurs photoconducteurs se base sur la détection d'un photocourant (i.e. courant induit par des photons) généré par le champ térahertz.⁷ La mesure de ce courant permet de remonter directement à la structure temporelle du champ THz puisqu'il est directement lié à la tension aux bornes de l'antenne $J_{ac}(t) \propto V_{ac}(t)$. La détection de composantes allant jusqu'à 60 THz a été démontrée avec l'utilisation de ces antennes [94].

Les cristaux électro-optique utilisent un effet non-linéaire du second ordre pour la détection du champ térahertz, l'effet Pockels [95, 35]. Ces cristaux acquièrent une biréfringence induite lorsqu'ils sont irradiés par un champ térahertz. Le principe de la détection électro-optique repose sur la mesure de cette biréfringence par l'intermédiaire d'un fais-

5. Le gap E_{gap} du GaAs à température ambiante est de 1.424 eV

6. Nous avons donc un champ électrique qui est généré par ce dipôle et qui peut s'écrire en champ lointain [13] :

$$E_{THz}(r, t) = \frac{L}{4\pi\epsilon_0 c^2 r} \frac{\partial J(t)}{\partial t}$$

avec $J(t)$ le courant transitoire, L la taille du dipôle (ici la distance entre les électrodes), et r la position relative au dipôle. Le temps de vie de ce courant dépend du temps de vie des porteurs dans le GaAs et de l'impulsion de l'impulsion infrarouge [92]. Le courant a une durée de vie de l'ordre de la picoseconde. Le champ électrique généré est alors une impulsion dont la durée est de l'ordre de la picoseconde.

7. En effet, le champ térahertz est un champ électrique qui dépend du temps que nous pouvons écrire sous la forme $E_{ac}(t)$. En conséquence, le potentiel associé $V_{ac}(t)$ conserve toutes les variations temporelles du champ électrique. Lorsque ce champ est dirigé vers une antenne, le potentiel aux bornes est modifié permettant aux paires électron-trous, générées avec une impulsion infrarouge, d'être accélérées. Un courant est créé dans la structure. Le lecteur est invité aussi à consulter l'article de *Jepsen et al.* [93] qui détaille la théorie sur le fonctionnement des antennes en détection

ceau proche infrarouge du laser Ti :Sa⁸. Les cristaux non-linéaires utilisés sont le tellure de zinc (ZnTe) [95, 88, 36, 87] et le phosphure de gallium (GaP) [96] ou le cristal de sélénium de gallium (GaSe) [84]. La détection électro-optique est le plus souvent utilisée pour la détection large bande car les performances sont nettement meilleures comparées aux antenne photoconductrices [97]. C'est donc l'option qui a été choisie pour la détection du champ térahertz.

Développement expérimental

Nous allons maintenant présenter le banc tel qu'il est décrit à la figure 2.7 en détail en partant du laser utilisé jusqu'à la détection du champ térahertz. Les deux bras du montage seront ainsi décrits permettant d'introduire l'émetteur qui est utilisé, les antennes interdigitées et d'expliquer quels cristaux sont particulièrement adaptés pour la détection large bande.

Le laser utilisé pour le banc de spectroscopie est un laser Titane :Saphir (Ti :Sa) émettant des impulsions situées dans l'infrarouge ($\lambda_0 \sim 800$ nm) avec un taux de répétition de 80 MHz. La durée des impulsions est réduite grâce à l'utilisation d'un compresseur (CPC) permettant d'atteindre une durée $\delta\tau$ de 15 fs. La puissance moyenne du laser est de 750 mW soit une énergie crête de 9.375 nJ par impulsion. L'étalement spectral $\delta\lambda$ en longueur d'onde est dans les conditions optimales de 100 nm. La durée temporelle de chaque impulsion est cruciale pour pouvoir bénéficier à la fois d'une émission et d'une détection large bande. Après avoir traversé le compresseur, l'impulsion est séparée en deux par une lame séparatrice avec une partie pompe avec 90% de la puissance soit 320 mW et donc une énergie crête de 4nJ, et une partie sonde qui a donc 10% de la puissance soit 35 mW.

Décrivons d'abord le chemin de la pompe infrarouge qui vient exciter l'antenne. Le faisceau proche infrarouge a une taille de spot en sortie du laser qui est de 1/2" (... signifiant pouce où 1 pouce=2.54 cm) et sa divergence est de 10^{-4} mrad. L'impulsion infrarouge est focalisée sur l'antenne en utilisant un miroir parabolique 1/2" de distance focale $f' = 1$ ". L'antenne est placée avec un angle de 45 degrés après le point de focalisation du faisceau, dans la partie divergente telle que le diamètre coïncide avec la taille de l'antenne⁹. L'antenne est excitée en réflexion permettant aux composantes à hautes fréquences du rayonnement térahertz de ne pas être absorbée et dispersée par le substrat de GaAs [83]. Le rayonnement térahertz est collecté par un miroir de collection de diamètre 3" de distance focale $f' = 6$ " qui permet de collimater le faisceau térahertz sur un second miroir parabolique ayant les mêmes caractéristiques. Le faisceau est ensuite focalisé sur l'emplacement de l'échantillon et est collecté par un miroir dont les caractéristiques sont identiques aux deux premiers. Il est de nouveau collimaté sur un miroir plan de longueur $L = \sqrt{2} \times 3$ " qui le réfléchit sur un miroir de diamètre 3" et de distance focale $f' = 1$ " ce qui permet de le focaliser sur le cristal électro-optique. Les miroirs ont tous été placés de telle manière à conserver la même courbure le long du trajet du faisceau térahertz. Cela a pour but de minimiser les aberrations optiques qui apparaissent par l'utilisation de ce type d'optique.

8. Les indices optiques des axes ordinaires du cristal à l'origine identique sont modifiés par le champ térahertz, les composantes de polarisation verticale et horizontale du faisceau infrarouge ne se propagent pas à la même vitesse entraînant un déphasage du faisceau infrarouge en sortie du cristal. C'est ce déphasage qui est mesuré ensuite.

9. L'explication de ce montage particulier sera détaillé dans le chapitre concernant l'optimisation du banc expérimental.

Intéressons-nous maintenant à l'émetteur. Les antennes dipolaires telles qu'elles sont décrites à la figure 2.9 se comportent comme des sources ponctuelles, toutes les composantes émises sont diffractées. Pour collecter le rayonnement térahertz émis par ces antennes, une lentille de silicium est apposée sur l'antenne. De plus, les composantes émises sont de faibles amplitudes. Pour pallier ces défauts et avoir un champ électrique térahertz de plus grande amplitude et plus directif, *Hu et al.*[98] et *Darrow et al.* [99] ont développé des antennes à grande ouverture dont la surface illuminée par l'impulsion infrarouge varie entre $100\text{ }\mu\text{m}^2$ et 1 mm^2 . De part la large surface que ces antennes offrent, l'amplitude du champ térahertz émis peut être de quelques kV/cm. Cependant, pour avoir un champs électrique DC équivalent aux antennes dipolaires, une tension 100 à 1000 fois plus élevée doit être appliquée, cela variant avec l'espacement entre les deux électrodes. Des schémas d'antenne ont été conçus pour allier les avantages des deux concepts à savoir des électrodes suffisamment rapprochées afin d'appliquer de faible tension aux bornes mais avec une surface active d'émission assez grande pour que le champ soit directif et de plus grande amplitude, ce sont les antennes interdigitées [34] dont un exemple est présenté à la figure 2.10 et qui sont utilisées dans notre banc de spectroscopie. Ces antennes ont été fabriquées en salle blanche. Il y a trois étapes dans la fabrication [100]. En premier lieu, sur un substrat de GaAs basse température ou semi-isolant, une photolithographie du masque d'une première série d'électrode est effectuée sur lequel 150 nm d'or est évaporé. A cause de l'alternance entre cathode et anode, le champ terahertz émis est opposé en phase périodiquement provoquant des interférences destructives. Afin de ne conserver que les composantes constructives, un espacement sur deux est recouvert d'un masque métallique pour empêcher l'émission térahertz dans ces zones. Pour fabriquer cette seconde série d'électrodes sans court-circuiter l'antenne, une couche d'oxyde de silicium (SiO_2) est évaporée par PECVD (*Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition* en anglais). Une deuxième photolithographie du masque des électrodes masquantes est faite où 150 nm d'or est de nouveau évaporé¹⁰.

Les antennes utilisées pour ces travaux sont constituées de deux électrodes qui sont entrelacées et dont les doigts entre anode et cathode alternent périodiquement. La surface totale est de $500\mu\text{m} \times 500\mu\text{m}$. L'espacement entre les doigts qui constituent les dipôles de l'antenne est de $2\mu\text{m}$. Au niveau de l'état de l'art, *Hale et al.* [101] ont utilisé ces antennes fabriquées sur un substrat de GaAs semi isolant (SI) pour un montage de spectroscopie large bande. L'antenne était excitée par une impulsion infrarouge de 15 fs avec une énergie crête par impulsion de 27.5 nJ. Un cristal de tellure de zinc (ZnTe) d'épaisseur $20\text{ }\mu\text{m}$ a été utilisé pour la détection. La bande de détection atteinte s'étend de 0.3 THz à 20 THz.

A la différence de cet article, nous avons décidé de fabriquer nos antennes sur du GaAs basse température. Ce substrat est de composition identique au GaAs mais il a été crû à basse température insérant plusieurs défauts dans la maille cristalline et diminuant les temps de vie des porteurs générés. Alors que le temps de vie des porteurs est de l'ordre de la centaine de picosecondes dans le GaAs SI [93, 102], le temps de vie chute en dessous de la picoseconde pour le GaAs BT [103, 102]. La réduction de ce temps de vie permet de générer des composantes spectrales supérieures à 2 THz avec une puissance spectrale plus importante [83, 102] que celle générée dans le GaAs SI. Afin de comprendre cela,

10. Les techniques de salle blanche sont détaillées dans le chapitre concernant la fabrication des échantillons.

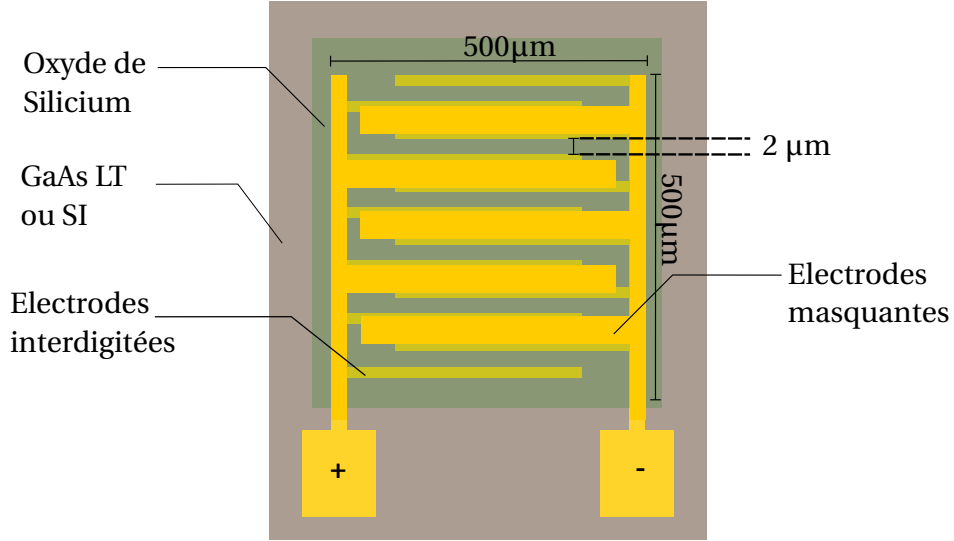


FIGURE 2.10 – Schéma d'une antenne interdigitée faite sur un substrat de GaAs (semi-isolant ou basse température) - l'espacement entre les électrodes est de 2 µm. Elle est composée d'une série d'électrodes interdigitées qui est recouverte d'une couche d'oxyde de silicium et d'une seconde série d'électrode masquante afin d'éviter les interférences destructives.

écrivons le champ généré par l'antenne [92],

$$E_{THz}(\omega) \propto \frac{P_{opt} E_{DC}}{m^*} \delta\tau_{em} \omega \frac{(\tau_s - \tau_r) \exp[-(\pi\omega\tilde{\tau}_{las})^2]}{(1 - 2i\pi\omega\tau_s)(1 - 2i\pi\omega\tau_r)} \quad (2.1)$$

où P_{opt} est la puissance optique, E_{DC} est le champ électrique continu accélérant les porteurs, $\tilde{\tau}_{las} = \tau_{las}/(2\ln(2))$ est la durée réduite de l'impulsion, τ_s est le temps de vie des porteurs dans le substrat et $\delta\tau_{em}$ est le temps de collision, $1/\tau_r = 1/\tau_s + 1/\delta\tau_{em}$. Le champ térahertz émis est proportionnel à la puissance optique et au champ électrique et son amplitude est limitée par les effets de saturation provenant de l'écrantage des charges lors de la génération de porteurs par l'impulsion infrarouge et par le champ de claquage du substrat. L'effet de saturation est décrit par un paramètre F_0 , la demi-fluence à saturation¹¹ qui s'écrit [104] $F_0 = \frac{(1+n)\hbar\Omega_0}{e(1-R)\mu Z_0}$ avec n l'indice de réfraction du matériau dans lequel sont générées les paires électron-trou à la longueur d'onde $\lambda_0 = c/\Omega_0$, R le coefficient de réflectivité, e est la charge élémentaire μ est la mobilité du matériau et Z_0 l'impédance du vide qui vaut 377 Ω. Pour le GaAs (BT et SI), l'indice de réfraction à 800 nm vaut $n=3.6835$ et le coefficient de réflectivité vaut $R=0.25$. La mobilité a des valeurs différentes dans les deux types de substrat de GaAs cela à cause du temps de vie plus court dans le GaAs BT. Dans le GaAs BT, la mobilité de Hall a une valeur de 150 cm²/(Vs) [103] mais la valeur à prendre en considération est la photomobilité, modifiée par l'apparition des porteurs, $\mu_{GaAsBT} = 3000$ cm²/(Vs) [102]. Ces valeurs sont plus faibles que dans le GaAs SI où $\mu_{GaAsSI} = 7000$ cm²/(Vs) [105]. Cette différence de valeur fait que le niveau de saturation à puissance optique similaire sera inférieure dans le GaAs BT d'après la formule de F_0 ¹². D'autre part, le champ de claquage dans le GaAs BT est nettement plus élevé que dans le

11. La fluence est l'énergie de l'impulsion infrarouge rapportée à la surface illuminée et s'exprime en J/m²

12. Les valeurs de saturation pour les deux substrats sont $F_{0,GaAsBT} = 8.6 \times 10^{-3}$ mJ/cm² pour le GaAs BT et $F_{0,GaAsSI} = 3.7 \times 10^{-3}$ mJ/cm² pour le GaAs SI

GaAs SI [102] permettant d'appliquer une tension plus grande aux bornes de l'antenne. Ces deux éléments expliquent qualitativement pourquoi nous pouvons bénéficier d'une puissance spectrale plus élevée à haute fréquence avec ce substrat avec ce substrat.

L'autre partie du faisceau infrarouge est utilisée pour la détection électro-optique et emprunte un second chemin. Le faisceau circule tout d'abord à travers une ligne à retard. Cette ligne a la capacité de se déplacer en faisant des pas de 1 μm soit un déplacement en temps relatif de 6 fs. Le faisceau passe ensuite dans un télescope dont le but est de modifier sa taille passant de 1/2" à environ 1". Son but est de mieux focaliser l'impulsion infrarouge en utilisant les optiques de 1". Le faisceau optique est ensuite focalisé sur le cristal électro-optique à travers le dernier parabolique emprunté par le faisceau térahertz, grâce à un miroir parabolique de diamètre 1" et de focale $f' = 6"$ ce qui permet d'atteindre un rayon de faisceau dans le plan focal image inférieur à 100 μm . C'est ainsi la même impulsion initiale qui sert à la fois à générer et détecter le térahertz.

Détaillons maintenant le mécanisme de détection présenté à la figure 2.11. Lorsque le faisceau infrarouge arrive sur le cristal électro-optique, sa phase est modifiée par la présence du champ térahertz. Ce déphasage est mesuré par ellipsométrie au moyen d'une lame quart d'onde, d'un prisme de Wollaston et d'une balance de photodiode présenté en figure 2.11. La lame quart d'onde permet de déphaser de $\pi/2$ la composante de polarisation verticale par rapport à la composante horizontale. Après cette lame, le déphasage total est donné par la différence des phases selon les deux axes propres $\phi_x - \phi_y$ [35]. Pour mesurer le déphasage total, il faut donc mesurer la différence d'intensité entre les deux composantes. Le prisme de Wollaston projette ces deux composantes orthogonales dans deux directions de l'espace différentes qui sont focalisées sur la balance de photodiodes. On mesure la différence d'intensité ΔI qui est convertie en tension par un amplificateur transimpédance. Les polarisations des deux champs optiques et térahertz avant le cristal sont tous deux rectilignes et parallèle l'un à l'autre car la même source infrarouge est utilisée pour générer et détecter le térahertz. Pour un maximum d'efficacité, l'angle entre les axes propres du cristal et l'axe de polarisation du faisceau infrarouge est de 45 degrés.

La différence de courant ΔI mesuré est relié au champ térahertz par la relation suivante [106, 35]¹³,

$$\Delta I(\tau) \propto \sin(S(\tau)) \sim S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega E_{\text{THz}}(\omega) f(\omega) \exp(-i\omega\tau) \quad (2.2)$$

où S est le déphasage qui est de l'ordre du 10^{-4} rad, f est la fonction de réponse du cristal dans l'espace des fréquences¹⁴ dans laquelle rentre en jeu le coefficient électro-optique concerné pour la détection $r_{41}(\omega)$ et l'accord de phase entre les composantes de l'impulsion infrarouge à la fréquence ω_0 et les composantes du champ térahertz de fréquence ω , E est le champ térahertz dans l'espace des fréquences. Pour des bancs de spectroscopie dont la bande de détection est inférieure à 4 THz et selon le cristal utilisé, cette fonction f peut être considérée comme constante. On retrouve alors la formule démontrée par *Planken et al.* [95],

$$\Delta I(\tau) = I_p \frac{\omega_0 n^3 r_{41} L}{2c} E_{\text{THz}}(\tau) \quad (2.3)$$

13. Cette formule suppose que la taille du faisceau IR est plus petite que la taille du faisceau térahertz à toutes les fréquences telle que l'intégrale de recouvrement des faisceaux optique et térahertz soit constant. Ainsi nous n'avons pas de dépendance spatiale qui apparaît dans cette formule.

14. L'expression de cette fonction est donnée dans la partie concernant le choix du cristal électro-optique

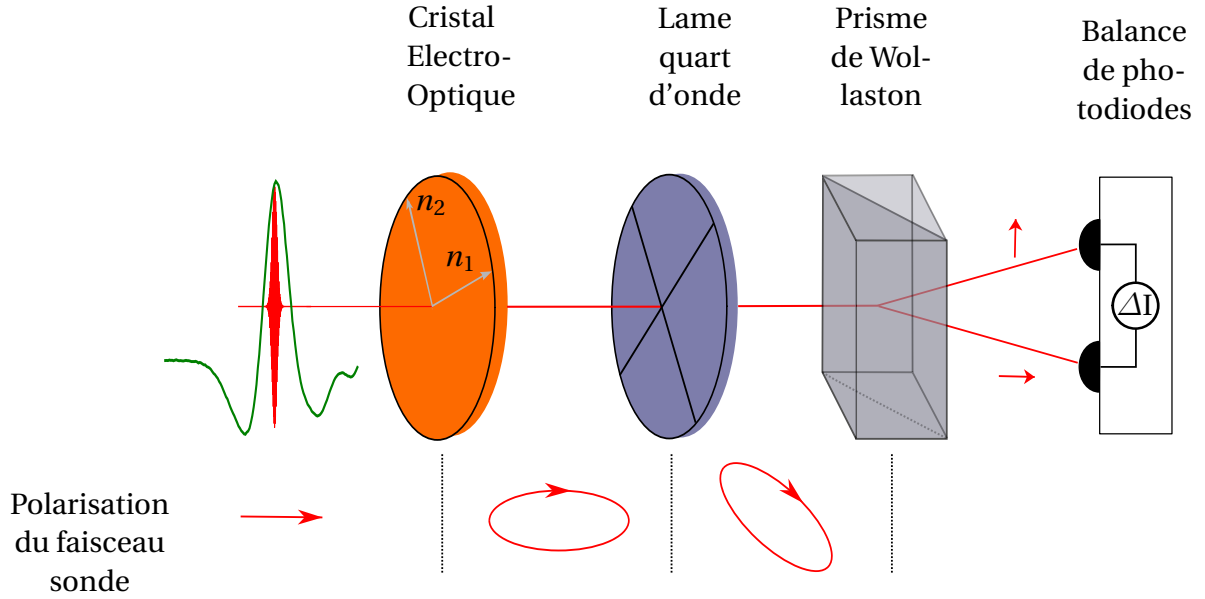


FIGURE 2.11 – Schéma de la détection électro-optique. Les flèches rouges représentent la polarisation de la sonde proche infrarouge dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. Le faisceau infrarouge est déphasé par la présence du térahertz dans le cristal électro-optique. La lame quart d'onde permet de rectifier la polarisation du faisceau infrarouge qui en la tournant de 45 degrés. Le prisme de Wollaston projette les composantes orthogonales de la polarisation et la différence d'intensité ΔI est mesurée.

où I_p est l'intensité du faisceau proche infrarouge, n est l'indice optique du cristal dans le proche infrarouge ($\lambda = 800$ nm), r_{41} est le coefficient électro-optique et L l'épaisseur du cristal.

Nous ne pouvons choisir n'importe quel cristal pour bénéficier d'une détection large-bande car la bande passante du banc est directement liée à la fonction de réponse du cristal f mentionnée dans la formule 2.2. L'étude de cette fonction en fonction des paramètres du cristal permet de déterminer quelle bande passante nous pouvons avoir avec n'importe quels cristaux. Cette fonction f s'écrit [35, 106]¹⁵,

$$f(\omega) = C_{\text{opt}}(\omega) \chi^{(2)}(\Omega_0; \omega, \Omega_0 - \omega) \left(\frac{\exp[i\Delta k(\Omega_0, \omega)L] - 1}{i\Delta k(\Omega_0, \omega)} \right) \quad (2.4)$$

où L est la longueur du cristal de détection, Ω_0 est la fréquence de la composante infrarouge, ω est la fréquence de la composante térahertz, $\Delta k = -k(\Omega_0 + \omega) + k(\Omega_0) + k(\omega)$ est l'accord de phase et k sont les nombres d'onde, $\chi^{(2)}$ est la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 qui est proportionnelle au coefficient électro-optique [107] rentrant en jeu dans la détection r_{41} et C_{opt} est l'autocorrélation du faisceau optique à la fréquence Ω_0 avec le faisceau optique à la fréquence $\Omega_0 - \omega$. La réponse électro-optique est donc limitée par l'accord de phase Δk (ou la longueur de cohérence $l_c = \pi/\Delta k$) entre les composantes infrarouge et térahertz et le coefficient électro-optique r_{41} . Il nous faut les étudier pour savoir quel cristal choisir. Cette étude portera sur les cristaux de tellure de zinc (ZnTe) et de phosphure de gallium (GaP) principalement utilisés pour la détection électro-optique. L'utilisation d'impulsion infrarouge ultracourte ne limite pas la réponse du cristal car le terme C_{opt} est quasiment constant sur la bande passante considérée.

15. Les expressions pour f mentionnées dans ces deux articles ne sont pas identiques mais elles sont toutefois équivalentes. Nous pouvons retrouver une expression équivalente dans les travaux de *Leitenstorfer et al.*[97].

Commençons par l'étude du coefficient électro-optique. Les deux cristaux ont tous deux des modes de phonon qui modifient le comportement des coefficients électro-optiques proche de la résonance. Le phonon transverse optique du ZnTe se situe à 5.2 THz tandis que celui du GaP se trouve à 10.98 THz. Loin de cette résonance, à $\omega \rightarrow 0$, les valeurs de ces coefficients sont connues et valent 4.25×10^{-11} m/V pour le ZnTe et 1×10^{-12} m/V pour le GaP. Les informations sont résumées dans le tableau 2.1. Les coefficients électro-optiques sont calculés en utilisant les expressions données par la littérature [106, 107, 97]. Les résultats sont présentés à la figure 2.12.

TABEAU 2.1 – Valeurs des grandeurs intervenant dans le calcul du r_{41} pour les cristaux GaP et ZnTe

	d_E (m/V)	Ω_{ph} (THz)
ZnTe	4.25×10^{-11}	5.2
GaP	1×10^{-12}	10.98

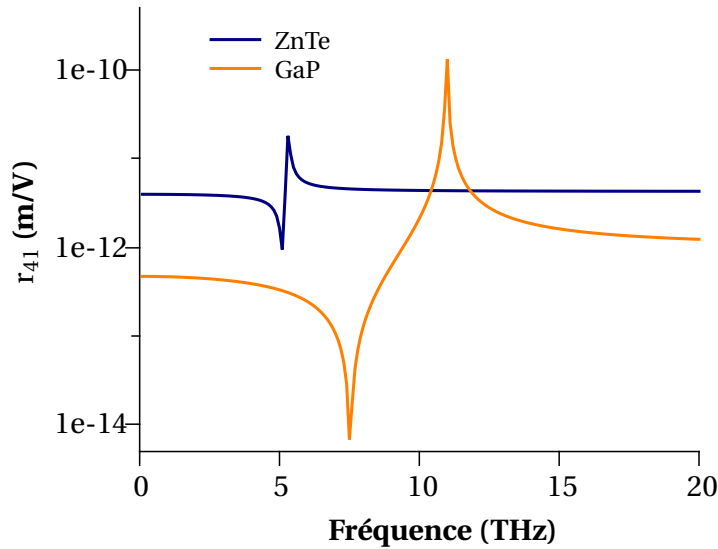


FIGURE 2.12 – Coefficients électro-optiques dans les cristaux de ZnTe en bleu et du GaP en orange entre 0 et 20 THz. Les discontinuités observées sont dues à la présence des phonons.

Le coefficient électro-optique du cristal de ZnTe est à peu près constant entre 0 et 4.5 THz et entre 6.5 THz et 20 THz. A cause du phonon à 5.2 THz, une divergence apparaît mais reste localisée entre 4.5 THz et 6.5 THz. Dans cette zone, le coefficient électro-optique descend jusqu'à 1×10^{-12} m/V à 5.2 THz et remonte jusqu'à 1×10^{-11} m/V à 6.2 THz. Les valeurs du coefficient électro-optique du GaP sont plus basses que celles du ZnTe à cause de la valeur à fréquence nulle, moins élevée que celle du ZnTe. Il est constant entre 0 THz et 6 THz et, 15 THz et 20 THz. A l'inverse du ZnTe, le coefficient électro-optique du GaP montre des variations sur une plage plus importante à cause de son phonon. Cette plage se situe entre 6 THz et 15 THz sur laquelle le coefficient chute à 1×10^{-14} m/V à 7.5 THz et remonte jusqu'à 1×10^{-10} m/V à 11.5 THz. Cette première étude nous apprend que pour travailler sur une bande passante très large, le cristal de ZnTe est à privilégier car à l'inverse du GaP, le phonon perturbe très peu le coefficient et permet d'avoir un signal plus élevé au niveau de la détection électro-optique d'après la formule 2.3.

Etudions maintenant la longueur de cohérence de l'effet électro-optique entre les composantes infrarouge et térahertz. La longueur de cohérence est liée à l'accord de phase

par $l_c = \pi / \Delta k$. Cette longueur est la longueur selon laquelle l'accord de phase peut s'effectuer entre les composantes rentrant en jeu dans le phénomène non-linéaire. Dans notre cas, si une composante térahertz a une longueur de cohérence inférieure à la longueur du cristal, elle ne sera pas détectée. L'accord de phase s'effectue lorsque la phase de l'onde térahertz se propage à la même vitesse que l'impulsion optique, soit quand il y a correspondance entre la vitesse de phase de l'onde térahertz et la vitesse de groupe de l'impulsion optique [88]. Ces vitesses sont reliées aux indices de réfraction dans les différents domaines de fréquence déjà connus dans la littérature [106, 108, 88]. Le calcul de la longueur de cohérence est présenté à la figure 2.13 sur une plage spectrale variant entre 0 et 20 THz.

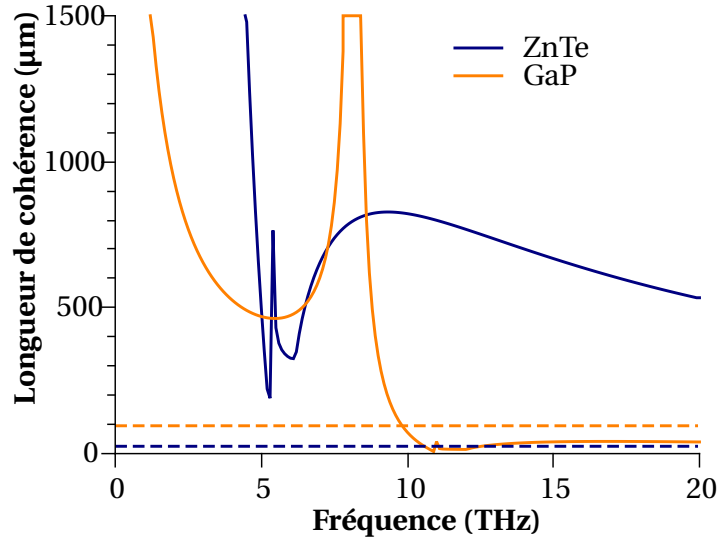


FIGURE 2.13 – Longueur de cohérence dans les cristaux de ZnTe en bleu et du GaP en orange. En pointillés ont été rajoutées les longueurs de cristaux utilisées pour le GaP de 100 μm (en orange) et le ZnTe de 20 μm (en bleu) pour la spectroscopie large bande.

La longueur de cohérence du ZnTe, supérieure à 1500 μm en dessous de 4 THz, chute jusqu'à 200 μm à cause de la présence du phonon. La longueur de cohérence remonte ensuite jusqu'à 900 μm à 10 THz pour décroître de nouveau à 500 μm à 20 THz. La longueur de cohérence du GaP chute à 500 μm à 5 THz et remonte au delà de 1500 μm à 8 THz. Elle décroît de nouveau jusqu'à 0 à 11 THz puis remonte légèrement à 30 μm jusqu'à 20 THz. Les longueurs de cohérence dans le cristal de ZnTe sont plus élevées globalement que les longueurs de cohérence du GaP. De plus, si nous souhaitons utiliser un cristal de GaP pour une détection jusqu'à 20 THz, il nous faudrait prendre des cristaux très fins mais le signal détecté serait très faible à cause du coefficient électro-optique. Ces deux études montrent donc que le ZnTe est le cristal le plus adapté pour une détection très large bande. Nous avons opté pour un cristal de ZnTe de 20 μm d'épaisseur pour la détection dont la ligne a été dessinée en pointillés bleus sur le graphe 2.13. Des épaisseurs plus élevées de cristal ne permettent pas une sensibilité aussi grande dans la plage de fréquence considérée à cause du facteur d'accord de phase $\left(\frac{\exp[i\Delta k(\Omega_0, \omega)L] - 1}{i\Delta k(\Omega_0, \omega)} \right)$ à la formule 2.4 [89] comme nous le verrons par la suite. Nous avons aussi choisi un cristal de GaP 100 μm pour travailler sur des bandes passantes plus étroites jusqu'à 7 THz. Le GaP représente ici un véritable avantage car il offre très peu de perturbation sur cette bande passante. A ces cristaux, un substrat de 2 mm est ajouté permettant de bénéficier d'une fenêtre d'intégration temporelle plus grande et donc d'une meilleure résolution pour la transformée de Fourier. Observons les performances obtenues avec ce cristal.

2.3.2 Performances du banc de spectroscopie

Performance large bande

Présentons tout d'abord une première performance large bande qui a été obtenue avec le cristal de ZnTe 20 μm . Les performances acquises dans cette configuration du banc de spectroscopie sont présentées aux figure 2.14a et 2.14b. La figure 2.14a présente l'amplitude du champ térahertz acquis avec l'utilisation d'un cristal de ZnTe 20 μm pour la détection et un temps d'intégration de 1 s pour la détection synchrone. Le pas de la ligne à retard a été fixé à 10 fs. En $t = 0$, nous avons le pic principal du champ térahertz dont la largeur à mi-hauteur est de 150 fs. Ce pic principal est suivi d'un second pic transitoire de largeur à mi-hauteur de 140 fs. Ces temps très courts vont de paire avec une émission - et détection - large bande. La figure 2.14b est l'amplitude de la transformée de Fourier du signal temporel. Nous prenons comme critère pour la bande passante que la fréquence maximum détectée est la première composante qui se situe au niveau du bruit du montage. En conséquence, la bande passante s'étend de 0.3 THz à 17 THz. Pour pouvoir atteindre un bande passante plus large, une méthode originale basée sur le contrôle du front d'onde du champ térahertz a été mise en place et sera détaillée dans la section suivante. En effectuant la transformée de Fourier du signal temporel, nous pouvons aussi accéder à la phase du champ dans le domaine fréquentiel rendu possible par la détection du champ térahertz dans le domaine temporel. En une seule mesure, nous avons donc accès à deux informations ce qui peut permettre de reconstruire n'importe quelle information dans le plan complexe. Le rapport signal à bruit atteint est de l'ordre de 1000. Le spectre fait apparaître des pics d'absorption à 5.2 THz et 8.1 THz. L'absorption à 5.2 THz est due au phonon du ZnTe (voir tableau 2.1). Le pic à 8.1 THz est particulier puisque celui-ci résulte de l'absorption du térahertz par le phonon transverse optique du GaAs qui se visualise par des oscillations d'une période de 120 fs dans le signal temporel. Par un mécanisme de couplage plasmon-phonon, cela entraîne l'émission d'un fort rayonnement térahertz à 8.7 THz à la valeur du phonon longitudinal optique déjà observé dans la littérature [109]. Les autres pics observés sont la conséquence de présence d'eau (à 1.7 THz) ou bien de désaccord de phase (pic à 6.3 THz).

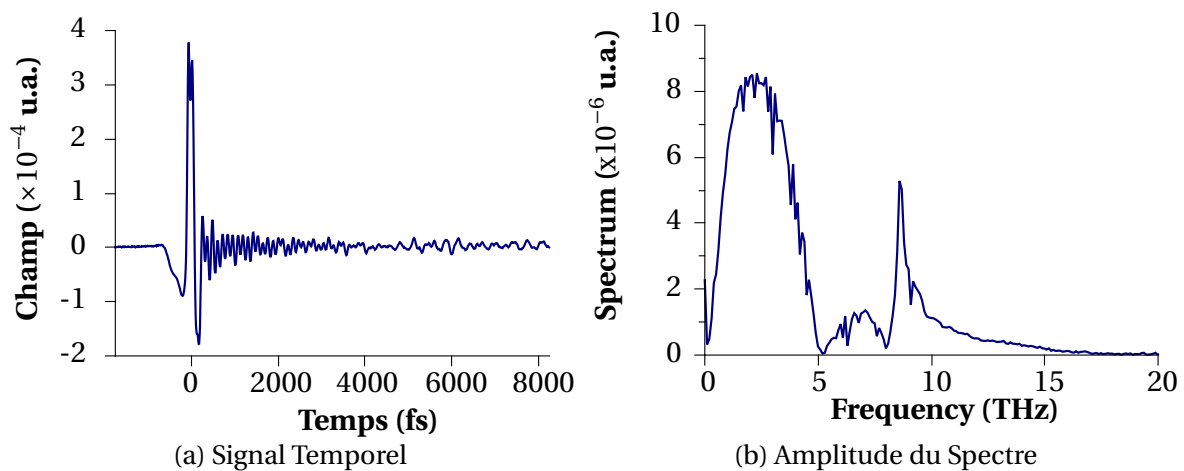


FIGURE 2.14 – Signal temporel (a) et spectre (b) d'une impulsion térahertz détectée à l'aide d'un cristal de ZnTe 20 μm . Le spectre a été calculé en effectuant une transformée de Fourier rapide et s'étend de 0.3 THz jusqu'à 15 THz.

Par la suite, nous allons observer comment cette performance est modifiée en chan-

geant le détecteur ou bien en modifiant les paramètres d'émission du rayonnement téra-
hertz.

Bande passante du montage avec d'autres cristaux

Comparons la performance acquise avec un cristal de ZnTe 20 μm en changeant de détecteur pour voir comment la bande passante est modifiée. Le spectre acquis avec le cristal de ZnTe 20 μm est présenté de nouveau à la figure 2.15a. Nous avons fait l'acquisition avec un cristal de ZnTe 200 μm en figure 2.15a, un cristal de ZnTe 2 mm à la figure 2.15c et le cristal de GaP 100 μm à la figure 2.15d. Les graphes sont présentés avec une échelle logarithmique. Sur chacune des courbes, les transformées de Fourier ont été laissées jusqu'à 20 THz afin de comparer les comportements. Sur chaque graphe, une modélisation a été ajoutée dans laquelle on décrit l'émission du champ térahertz décrite à la formule 2.1, la réponse du cristal décrite à la formule 2.4 et la dispersion de l'impulsion infrarouge dans le cristal décrite par *Casalbuoni et al.* [106]. Les résultats sont présentés en pointillés orange sur chaque courbe et permet de mettre en évidence la bande passante. Les oscillations visualisées sur le modèle sont dues aux artefacts numériques des transformées de Fourier inverses lors du calcul numérique.

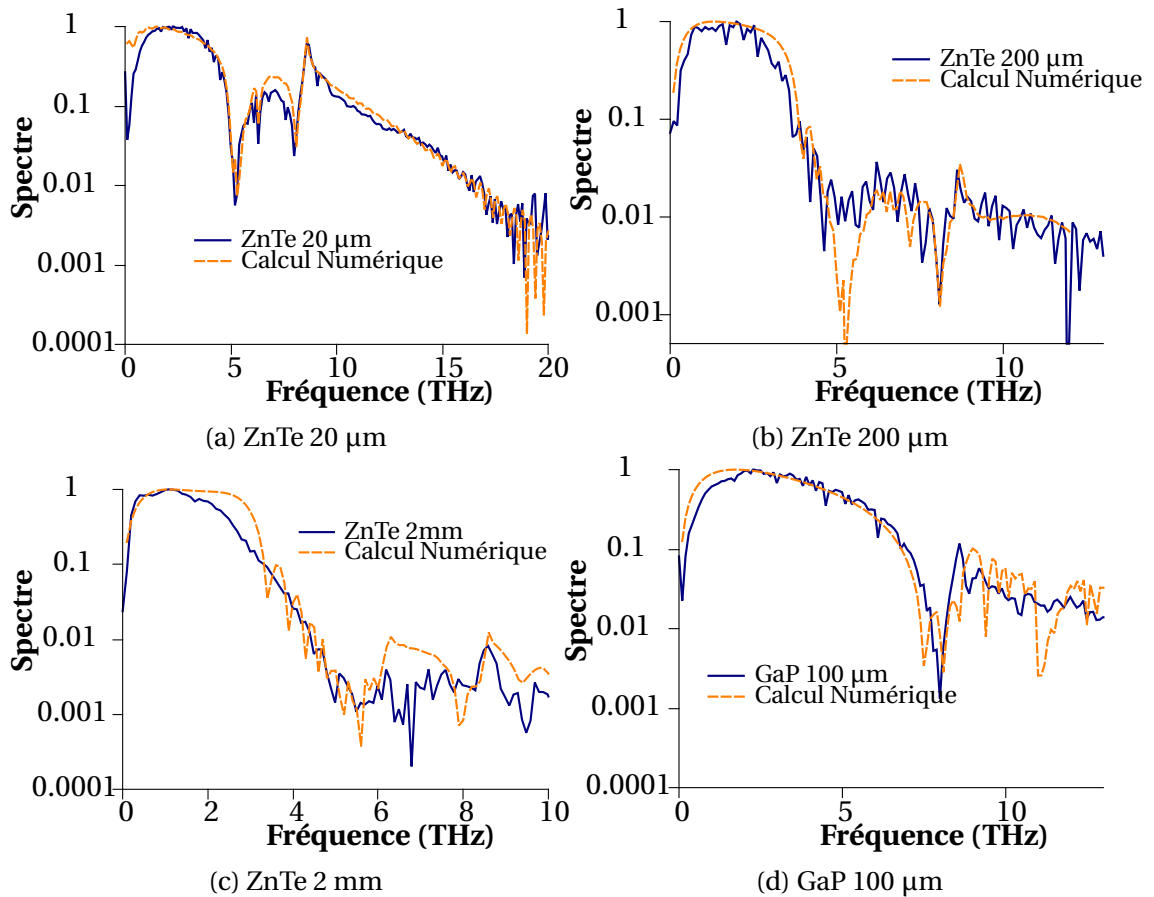


FIGURE 2.15 – Bande passante du banc de spectroscopie en fonction du cristal de ZnTe 20 μm (a), ZnTe 200 μm (b), ZnTe 2 mm (c) et GaP 100 μm (d). En orange sur chaque graphe, est tracée le calcul numérique de la bande passante du banc expérimental. Les paramètres utilisés sont $\tau_{las} = 45$ fs, $\tau_s = 300\text{-}500$ fs et $\delta\tau_{em} = 50$ fs.

Si nous comparons les performances globales des cristaux de ZnTe, on peut constater

que la bande passante du banc se dégrade avec l'augmentation de l'épaisseur du cristal. Cela vient d'une trop grande épaisseur du cristal par rapport à la longueur de cohérence de l'effet électro-optique entre les composantes infrarouge et térahertz. Commençons avec le cristal de ZnTe 20 μm . Les paramètres utilisés pour la modélisation sont une durée de l'impulsion infrarouge de 45 fs avec un temps de vie pour les porteurs de 400 fs. La durée d'impulsion est plus large que celle mesurée à l'autocorrélateur qui était de 15 fs. L'augmentation de la durée de l'impulsion peut être attribuée à la focalisation du faisceau infrarouge par un miroir parabolique qui peut apporter de la dispersion mais surtout à l'effet capacitif inhérent aux antennes interdigitées et qui n'est pas pris en compte à la formule 2.1[110]. Cet effet rallonge artificiellement le temps d'établissement du courant transitoire. Dans notre modèle, le temps d'établissement du courant est fixé par l'impulsion infrarouge. Celle-ci s'en retrouve virtuellement augmentée. Malgré cela, on constate un bon accord entre le modèle et le spectre que nous avons mesuré. On peut noter toutefois un petit décalage entre 6.5 THz et 8 THz. Nous avons ensuite testé la bande passante avec un cristal de ZnTe 200 μm . La bande passante est dégradée et l'amplitude relative des composantes au delà de 5 THz est diminuée d'un facteur 10 par rapport à la performance en figure 2.15a. Les composantes entre 0.3 THz et 4.5 THz sont toujours détectés. Le rapport signal à bruit est moins bon car le temps d'intégration utilisée n'était pas le même. Cependant, les phonons du ZnTe et du GaAs sont identifiables. La modélisation en orange a été faite avec une taille de l'impulsion infrarouge de 45 fs et un temps de vie des porteurs dans le substrat de 500 fs. On constate encore un bon accord jusqu'à 10 THz. Nous avons ensuite placé un cristal de ZnTe d'une longueur de 2 mm. Les composantes entre 0.3 THz et 4 THz sont encore identifiables. Cependant, le phonon du ZnTe est à peine visible et l'ensemble du poids relatif des composantes au delà de 5 THz est abaissé d'un facteur 10 par rapport au spectre du ZnTe 200 μm . Nous pouvons observer un pic à 8.7 THz qui peut être l'émission térahertz par le GaAs. La modélisation en orange a été effectuée avec les mêmes paramètres que pour le cristal de ZnTe 20 μm . Nous voyons un bon accord jusqu'à 5 THz. Alors que la modélisation montre une résurgence entre 5.2 THz et 8 THz, elle n'est pas visible sur la mesure à cause d'un rapport de signal à bruit trop faible. La modélisation confirme aussi le pic d'émission à 8.7 THz.

Regardons maintenant le spectre obtenu avec un cristal de GaP 100 μm . Nous avons un premier lobe qui commence à 0.3 THz et qui s'étend jusqu'à 8 THz, ce qui correspond en énergie à la valeur du phonon transverse optique du GaAs. Le signal croît avec un pic à 8.7 THz pour ensuite diminuer jusqu'à 15 THz. Nous ne pouvons identifier le phonon du GaP sur ce spectre signifiant que la bande passante s'arrête avant 11 THz. La modélisation en orange a été effectuée avec durée pour l'impulsion infrarouge de 45 fs et une durée de vie des porteurs de 300 fs, assez proche de la valeur trouvée avec les cristaux du ZnTe¹⁶. On observe encore un bon accord entre le modèle et le spectre. La modélisation nous permet de voir qu'autour de 10 THz mesure et la modélisation ne sont plus en accord montrant que la bande passante que nous atteignons avec ce cristal s'étend jusqu'à 10 THz. Ce cristal est donc bien adapté pour la détection dans une bande passante située entre 0.3 THz et 7 THz.

16. Seule une mesure du temps de vie des porteurs dans le GaAs permettra de déterminer précisément cette valeur

Variation de la bande passante en fonction de la tension et de la puissance optique

Nous avons fait varier d'autres paramètres au niveau de l'émetteur cette fois en modifiant la tension appliquée sur l'antenne et en modifiant la puissance optique sur l'émetteur. Le cristal utilisé pour ces acquisitions était un cristal de ZnTe 20 μm . Des acquisitions ont été faites pour une tension sur l'antenne de 3 V, 6 V et 10 V. Les résultats sont présentés à la figure 2.16a. L'amplitude spectrale de toutes les composantes diminue avec la tension conformément à la formule 2.1 qui nous montre que le champ térahertz est proportionnel au champ électrique appliqué sur l'antenne. En se plaçant au point d'amplitude maximum à 1.2 THz, celle-ci passe de 2.2×10^{-5} u.a. pour une tension de 10 V à 1.2×10^{-5} u.a. pour une tension de 6 V et chute à 4.9×10^{-6} u.a. pour une tension de 3 V respectant la proportionnalité en fonction de la tension appliquée. Cette proportionnalité n'est plus respectée pour le pic d'émission à 8.7 THz où les amplitudes respectives à 10 V, 6 V et 3 V sont de 2.6×10^{-6} u.a., 1.3×10^{-6} u.a. et 3.4×10^{-7} u.a. La forte diminution de cette dernière valeur provient d'un abaissement du signal qui se situe juste dans la limite signal à bruit, plus difficilement détectable pour le banc. En conséquence, la bande passante s'en retrouve dégradée. Alors que la bande passante avec une tension à 10 V s'étend jusqu'à 13 THz, elle chute à 10 THz avec une tension de 6 V et va à peine au delà du pic d'émission du GaAs avec une tension de 3 V.

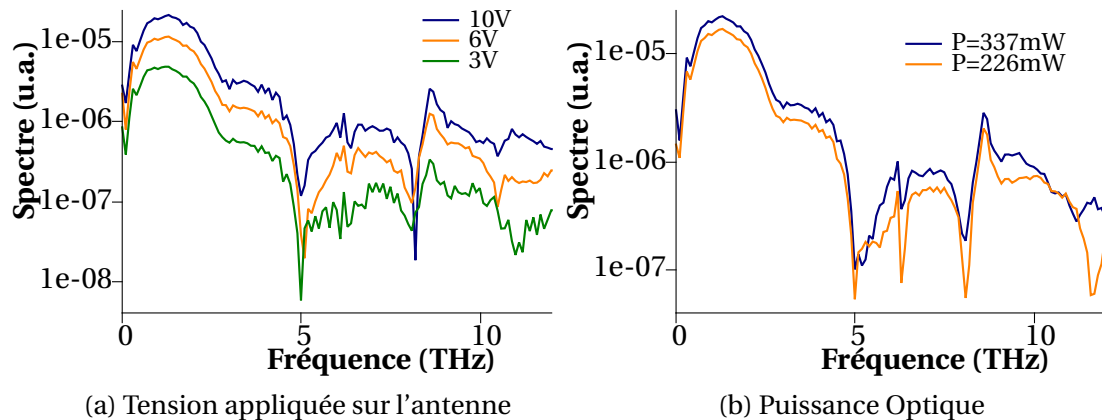


FIGURE 2.16 – Variation de la bande passante en fonction de la tension appliquée (a) et de la puissance optique (b). Sur le graphe (a), les spectres ont été acquis pour des tensions de 10 V, 6 V et 3 V. Sur le graphe (b), le spectre a été mesuré pour des puissances optiques de 337 mW et 226 mW.

La figure 2.16b présente les spectres acquis pour deux puissances optiques différentes, respectivement de 337 mW et 226 mW. Pour les mêmes raisons que la tension, l'amplitude globale de toutes les composantes sont diminuées. Au point où le spectre est maximum à 1.2 THz, l'amplitude passe de 2.2×10^{-5} u.a. à 1.6×10^{-5} u.a. respectant là aussi le facteur de proportionnalité. Celui-ci est d'ailleurs assez bien respecté sur l'ensemble du spectre. Nous pouvons identifier les phonons du ZnTe et du GaAs dans les deux cas. Si nous gardons comme critère que la bande passante est fixée par la composante située au même niveau que le bruit, les bandes passantes sont similaires dans les deux cas dans les conditions d'acquisition utilisées. En conclusion à cette étude, la puissance optique et la tension jouent des rôles similaires au niveau de l'émission puisque tous deux entretiennent une relation de proportionnalité avec le champ térahertz émis par l'antenne. Le montage TDS sera d'autant plus sensible aux hautes fréquences que la tension et la puissance optique appliquées sur l'antenne est élevée et que la puissance optique est élevée. Cependant, il faut rester dans des limites raisonnables pour ne pas dépasser la tension de

claquage du substrat et éviter des effets de saturation trop importants.

Le montage de spectroscopie dans le domaine temporel a été présenté. Ce montage servira pour la caractérisation des résonateurs présentée dans le chapitre suivant. Afin de bénéficier d'une performance large bande tout en conservant un bon rapport signal à bruit, nous avons utilisé comme émetteur une antenne interdigitée à grande surface et comme détecteur un cristal de ZnTe 20 μ m. La performance large bande atteinte s'étend jusqu'à 15 THz. Afin d'améliorer encore la bande passante et de l'étendre jusqu'à 20 THz, nous avons modifié les propriétés d'émission de l'antenne pour focaliser le champ térahertz jusqu'en limite de diffraction. C'est ce procédé qui est présenté dans le chapitre suivant.

2.4 Focalisation en limite de diffraction du champ térahertz

Nous avons développé un banc de spectroscopie THz dans le domaine temporel qui utilise des impulsions proches infrarouges ultracourtes (15 fs) permettant de générer un champ térahertz large bande à partir d'une antenne interdigitée en GaAs BT et de le détecter en utilisant l'effet électro-optique dans des cristaux non linéaires. La bande de détection de notre système s'étend de 300 GHz à 17 THz et sa dynamique atteint 60 dB. Un des objectifs de ce travail de thèse est de sonder des résonateurs de type SRRs aux fréquences THz. Ces résonateurs ayant de petites dimensions ($\lambda/6$ - $\lambda/10$), le banc expérimental que nous avons développé permet de caractériser un ensemble de résonateurs comme nous le verrons plus en détail au chapitre 3. A plus long terme, nous souhaitons être capable de sonder un seul résonateur ainsi que le système complet, boîte quantique et résonateur, par un faisceau THz focalisé en limite de diffraction. En effet, pour sonder des objets de dimensions caractéristiques de quelques dizaines de micromètre, l'extension spatiale du champ térahertz au niveau de l'échantillon doit être suffisamment petite pour bénéficier d'un rapport signal à bruit favorable. Notons qu'une extension spatiale élevée sur le cristal électro-optique dégrade également la sensibilité de détection pour les composantes hautes fréquences. Un de nos objectifs a été de faire évoluer le banc expérimental afin de focaliser le plus fortement possible, à la limite de la diffraction, le champ térahertz à la fois au niveau de l'échantillon et du détecteur - ici, le cristal électro-optique. Il s'agit d'un réel défi expérimental qui concerne l'ensemble des systèmes de TDS large bande car le diagramme de rayonnement du champ térahertz¹⁷ de nombreux émetteurs THz dépend fortement de la fréquence. Cette dépendance fréquentielle entraîne une propagation du champ THz non-uniforme le long du chemin optique pour l'ensemble des composantes spectrales rendant difficile la focalisation en limite de diffraction pour l'ensemble des fréquences.

Les principaux émetteurs THz utilisés pour la génération d'impulsions THz très large bande sont la photoionisation dans un gaz plasma, la rectification optique au sein d'un cristal non-linéaire et la photoconduction ultrarapide dans une antenne photoconductrice. Dans le cas de la génération THz dans un plasma, la distribution du champ électrique émis en champ lointain dépend fortement de la fréquence THz, ce qui rend impossible la focalisation en limite de diffraction en utilisant des éléments optiques classiques [111]. En exploitant, le faisceau THz très confiné qui se propage à l'intérieur du filament,

17. Le diagramme de rayonnement est la répartition angulaire dans laquelle le rayonnement à une fréquence donnée est émis

Zhao et al ont développé un système de TDS avec une résolution sous-limite de diffraction mais qui se limite à un spectre étroit [112]. De même, le diagramme de rayonnement des impulsions THz émises par rectification optique dans les cristaux nonlinéaires varie fortement avec la fréquence THz à cause des régimes de diffraction mis en jeu [36]. Pour s'approcher d'une focalisation de taille $\lambda/3$ des impulsions générées, *Shalaby et al.* [113] ont employé un système de contrôle de la divergence des impulsions optiques de pompe. Cependant, la méthode proposée requiert des procédures d'optimisation itératives sophistiquées et ne permet pas une focalisation en limite de diffraction sur l'ensemble du spectre large bande. En ce qui concerne les antennes photoconductrices utilisées pour l'émission THz ultra-large bande, elles délivrent un rayonnement THz avec une divergence qui dépend également de la fréquence. Même si l'utilisation d'antennes de large surface permet d'avoir une émission THz plus directive [114], il a été démontré par *Gürtler et al.* que leur diagramme de rayonnement dépendait aussi de la fréquence [37], ce qui rend difficile la focalisation en limite de diffraction sur plusieurs octaves.

Pour répondre à ces limitations, nous proposons une méthode originale basée sur la manipulation du front d'onde du champ THz émis pour développer un système TDS large bande dont la résolution spatiale est limitée par la diffraction. Ce concept repose sur une excitation optique avec un front d'onde sphérique de l'émetteur THz qui se traduit par une émission THz large bande avec une divergence et un front d'onde indépendant de la fréquence.

2.4.1 Situation classique - Excitation par un faisceau infrarouge à front d'onde plan

Avant de présenter notre concept, examinons les propriétés d'émission d'une antenne excitée par un faisceau infrarouge gaussien à front d'onde plan qui est la configuration la plus utilisée pour exciter les antennes photoconductrices. En effet, soit l'antenne photoconductrice est éclairée par des faisceaux infrarouges collimatés ou faiblement divergents, soit elle est placée dans la zone de Rayleigh du faisceau infrarouge. Les propriétés d'émission des antennes dans un domaine spectral situé entre 0.1 THz et 3 THz ont déjà été étudiées par *Hattori et al.* et *Budiarto et al.* [114, 115]. Nous allons nous intéresser à ce qui se passe dans le cadre d'une émission allant au delà de 10 THz.

L'impulsion étant issue d'un laser femtoseconde, on supposera que le faisceau infrarouge est gaussien. Voici les notations qui seront utilisées pour la suite pour le champ électrique, $E(r) = E_0 \exp(-r^2/w^2)$ où w est le rayon du champ à l'endroit où la taille du faisceau est minimal. L'antenne étant située dans la zone de Rayleigh du faisceau infrarouge dont le front d'onde est plan, l'ensemble des dipôles est excité en phase. Comme nous l'avons vu précédemment, c'est l'impulsion optique qui génère les porteurs au niveau de l'antenne. Le nombre de porteurs créé est directement lié à son intensité. Dans les conditions optimales, le faisceau infrarouge couvre l'ensemble de l'antenne. Le rayon du faisceau infrarouge est donc fixé par la taille de l'antenne L soit, $w_{\text{opt}} = \frac{L}{2}$. En champ proche, le champ est directement lié au courant généré par les porteurs via la loi d'Ohm, $\vec{j} = \sigma \vec{E}$. Le courant s'exprime [92] :

$$j(t) \propto h(t)P_{\text{opt}}$$

où P_{opt} est la puissance du faisceau infrarouge et $h(t)$ est une fonction dépendant du temps et prenant en compte les processus de création et d'accélération de porteurs dé-

taillés précédemment. L'expression telle qu'elle est écrite ne prend pas en compte la dépendance spatiale. Nous allons l'introduire de manière phénoménologique. La puissance est directement liée à l'intensité du faisceau infrarouge telle qu'au niveau de l'antenne,

$$P_{\text{opt}} \approx I_{\text{opt}} L^2. \text{ Le faisceau infrarouge a une distribution gaussienne soit } I_{\text{opt}}(r) = I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{w_{\text{opt}}^2}\right).$$

Le champ électrique THz s'écrit donc $E_{\text{THz}}(t, r) = \frac{j(t, r)}{\sigma} \propto \frac{h(t)}{\sigma} I_{\text{opt}}(r) L^2$. Localement, le champ térahertz étant généré par un faisceau gaussien, sa répartition spatiale à la surface de l'antenne sera gaussienne. En remplaçant E_{THz} et I_{opt} par leur expression, nous obtenons

$$E_0(t) \exp\left(-\frac{r^2}{w_{\text{THz}}^2}\right) \propto \frac{h(t)}{\sigma} I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{w_{\text{opt}}^2}\right) L^2$$

On en déduit donc que $\exp\left(-\frac{r^2}{w_{\text{THz}}^2}\right) = \exp\left(-\frac{2r^2}{w_{\text{opt}}^2}\right)$ ce qui nous donne la condition sur le rayon du champ térahertz généré à la surface de l'antenne,

$$w_{\text{THz}} = \frac{w_{\text{opt}}}{\sqrt{2}} = \frac{L}{2\sqrt{2}} \quad (2.5)$$

Deux régimes distincts existent alors selon les composantes térahertz considérées [36],

1. Pour toutes les composantes dont la longueur d'onde est telle $\lambda_{\text{THz}} > 2\pi w_{\text{THz}}$, le faisceau est diffracté très fortement. Il s'agit d'un régime de diffraction par les petites ouvertures décrites par *H. Bethe* [116] et étudié notamment par *Lin et al.* [117] et *Dreyhaupt et al.* [34].
2. Pour les composantes dont la longueur d'onde est telle que $\lambda_{\text{THz}} < 2\pi w_{\text{THz}}$, le faisceau généré est caractérisé par un paramètre confocal, la longueur de Rayleigh $z_R = \frac{\pi w_{\text{THz}}^2}{\lambda_{\text{THz}}}$. C'est ce régime auquel nous allons nous intéresser par la suite.

Considérant la taille des antennes photoconductrices réalisées dans ce travail de thèse ($500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$), la longueur d'onde correspondante à $2\pi w_{\text{THz}}$ est $1110 \mu\text{m}$ soit une fréquence autour de 0.3 THz . Nous souhaitons calculer le champ térahertz émis par l'antenne aux fréquences supérieures à 0.3 THz pour analyser la dépendance spectrale de sa divergence et de son front d'onde. Pour cela, nous décomposons l'antenne photoconductrice en une série de dipôles qui émettent un champ électrique térahertz. Chaque dipôle agit comme un point source qui est excité localement par le faisceau optique. Pour calculer le champ émis, appliquons le principe d'Huygens-Fresnel et le principe de superposition des ondelettes. L'antenne est positionnée dans le plan $(O; \vec{x}, \vec{y})$. Le champ en un point M s'écrit,

$$E(M, k_{\text{THz}}) = \frac{ik}{2\pi} \iint dx dy \chi(\theta) A(x, y) \frac{\exp(ik_{\text{THz}} \cdot \text{PM})}{\text{PM}} \quad (2.6)$$

où $A(x, y)$ est l'amplitude locale de la densité de champ au point P de coordonnées (x, y) du plan de l'antenne qui dépend de l'intensité locale du faisceau infrarouge $I_{\text{opt}}(r)$, $\chi(\theta) = \frac{1 + \cos(\theta)}{2}$ est une fonction prenant en compte l'orientation de la source par rapport à

la normale et k est le vecteur d'onde tel que $k_{\text{THz}} = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{THz}}} = \frac{2\pi\nu_{\text{THz}}}{c}$. Le champ térahertz rayonné est entièrement contrôlé par l'amplitude locale de la densité de champ $A(x, y)$. On considérera le cas où le plan de l'antenne est orientée perpendiculairement à la normale, i.e. $\theta = 0$. Pour chaque fréquence, on calcule le champ émis dans tous les points M

de l'espace. L'amplitude $A(x, y)$ est définie par la gaussienne de rayon w_{THz} défini à la formule 2.5 centrée au milieu de l'antenne pour toutes les composantes. Le calcul du champ électrique émis permet de calculer le profil spatial en champ lointain à 4 THz et 10 THz présentés à la figure 2.17a. On observe que la divergence du faisceau THz est fortement réduite de 4 THz à 10 THz. De plus, le front d'onde du champ lointain ne conserve pas le front d'onde plan du faisceau optique et le rayon de courbure du front d'onde THz augmente fortement lorsque la fréquence augmente. La divergence angulaire du module du champ électrique térahertz¹⁸ en fonction de la fréquence est présentée à la figure 2.17b.

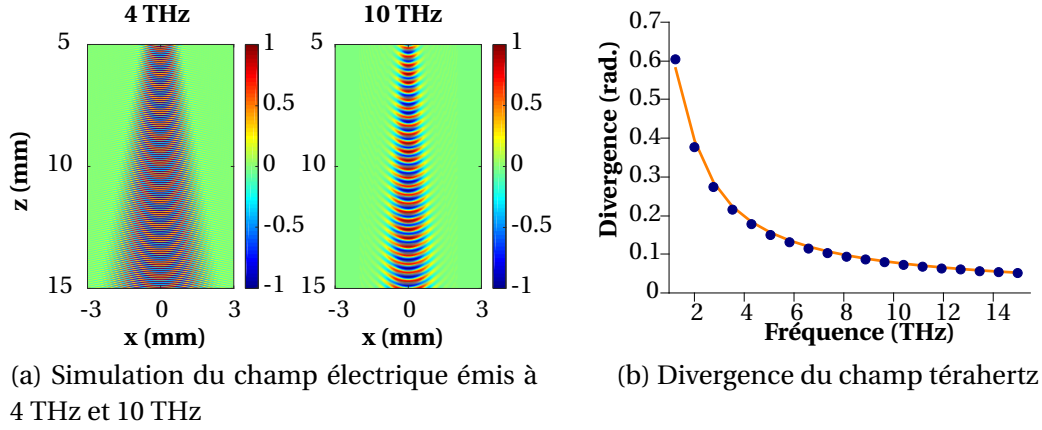


FIGURE 2.17 – En (a), Simulation du champ émis par l'antenne pour les composantes à 4 THz et 10 THz en champ lointain dans la configuration d'une excitation avec un front d'onde plan. L'antenne est située selon l'axe des x . En (b), divergence du champ térahertz calculée à partir de simulations numériques du champ émis par une antenne de $0.5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ excitée avec un faisceau infrarouge de faible divergence. Les points extraits de la simulations sont en bleus. En orange, nous avons tracé la loi $\tan \psi \sim \psi = \sqrt{2} \left(\frac{\sqrt{2}c}{\pi \nu_{\text{THz}} w_{\text{opt}}} \right)$, où $w_{\text{opt}} = 250 \text{ } \mu\text{m}$ et ν est la fréquence.

On observe que la divergence du faisceau diminue continument avec l'augmentation de la fréquence. Cette évolution est décrite par la divergence d'un faisceau gaussien de rayon au waist w_{THz} définie par la fonction $\psi = \frac{\sqrt{2}c}{\nu_{\text{THz}} \pi w_{\text{THz}}}$ représentée en orange sur la figure 2.17b. Dans cette configuration, le front d'onde du champ térahertz à la surface de l'antenne est fixé par le front d'onde plan du faisceau infrarouge pour toutes les composantes spectrales. Le champ térahertz émis se comporte comme un faisceau gaussien paraxial¹⁹ de rayon w_{THz} au point de focalisation, situé à la surface de l'antenne, constant pour toutes les fréquences. En conséquence, due à la conversion en longueur d'onde de l'optique vers le domaine spectrale THz, le faisceau gaussien THz diverge fortement en suivant cette dépendance en fréquence. Notons que pour les basses fréquences, la divergence est assez élevée car les fréquences se situent à la frontière entre les deux régimes décrits précédemment.

Examinons maintenant l'extension spatiale du champ térahertz au point où est placé l'échantillon, i.e. à l'emplacement où le faisceau focalise. A cause de la dépendance de la divergence en fonction de la fréquence, le rayon du champ térahertz sur le parabolique de collection diffère selon les composantes. En conséquence, la dépendance en fréquence

18. La divergence est définie dans ce cas présent comme étant l'angle qu'il y a entre la normale et la droite où le champ électrique vaut E_0/e^2 .

19. Le faisceau est ici paraxial car l'angle de divergence est suffisamment faible pour que $\tan \psi \sim \psi$

des propriétés du faisceau THz est conservée tout au long du trajet du faisceau térahertz. Nous avons implémenté numériquement les fonctions de transfert des miroirs et calculé l'extension spatiale du champ électrique $|E_{\text{THz}}|$ térahertz pour 3 différentes fréquences 3 THz, 4 THz et 10 THz au point focal du miroir parabolique de focalisation dont les résultats sont présentés à la figure 2.18.

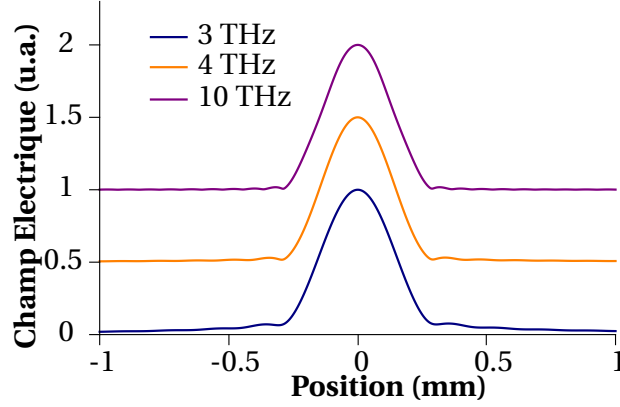


FIGURE 2.18 – Calcul numérique de l'extension spatiale du champ électrique au niveau de la position de l'échantillon dans le cadre d'une excitation de l'antenne par une impulsion infrarouge faiblement divergent à 3 THz, 4 THz et 10 THz. Les champs électriques sont normalisés et décalés sur l'axe des ordonnées afin de mieux visualiser leur extension.

L'extension du champ térahertz est quasiment identique pour ces trois composantes ; le rayon est constant et vaut $176 \mu\text{m}$, qui est le rayon du champ térahertz au niveau de l'antenne w_{THz} . Ces résultats numériques indiquent que le miroir de focalisation produit l'image virtuelle de la surface illuminée de l'antenne photoconductrice en son foyer image. La résolution spatiale résultante du système de spectroscopie mettant en jeu une excitation optique avec un front d'onde plan est faible comparée à la limite de diffraction. Plus quantitativement, le faisceau THz focalisé possède une surface de focalisation 22 fois supérieure à un confinement en limite de diffraction de l'ordre de λ^2 à 10 THz pour un système avec un grossissement de 1. Ainsi, à cause de la dépendance de la divergence du faisceau térahertz en fonction de la fréquence, il n'est pas possible de focaliser le champ térahertz en limite de diffraction. Pour arriver à cela, il faut que l'émetteur délivre un champ térahertz dont la divergence est indépendante en fréquence sur plusieurs octaves. Nous allons voir dans le paragraphe suivant que cela est possible en utilisant un profil d'onde sphérique pour le faisceau infrarouge.

2.4.2 Excitation par un faisceau infrarouge à front d'onde sphérique

Regardons maintenant le cas un peu plus général du rayonnement térahertz délivré par une antenne photoconductrice excitée par un faisceau infrarouge de front d'onde quelconque. Si le front d'onde n'est plus plan, les dipôles ne sont plus excités en phase mais avec un retard $\tau(x, y)$ qui dépend directement de la configuration du front d'onde du faisceau infrarouge. Pour un dipôle situé au point (x, y) , le déphasage associé à la composante ω_{THz} s'écrit,

$$\Phi(\omega_{\text{THz}}) = -\omega_{\text{THz}}\tau(x, y)$$

où ω_{THz} est la fréquence angulaire reliée à la fréquence par la relation $\omega_{\text{THz}} = 2\pi\nu_{\text{THz}}$. En réutilisant la formule 2.6 le champ électrique rayonné en un point M s'écrit,

$$E(M, k_{\text{THz}}) = \frac{ik}{2\pi} \iint dx dy A(x, y) \exp(i\phi(\omega_{\text{THz}})) \frac{\exp(ik_{\text{THz}} \cdot \text{PM})}{\text{PM}} \quad (2.7)$$

Regardons le champ rayonné dans une direction $\mathbf{k}_{\text{THz}}$. En remplaçant $\mathbf{k}$ par son expression dans les coordonnées polaires $(k_{\text{THz}}, \theta, \phi)$, nous obtenons la densité angulaire de champ émis par l'antenne pour un angle (θ, ϕ) de l'espace²⁰,

$$E(\theta, \phi) \propto \iint dx dy A(x, y) e^{-i(\omega_{\text{THz}}\tau(x, y) + k_{\text{THz}}x \sin(\theta) \cos(\phi) + k_{\text{THz}}y \sin(\theta) \sin(\phi))} \quad (2.8)$$

Cette expression peut être interprétée comme la résultante d'une figure de diffraction d'un objet possédant une transmission complexe $A(x, y)e^{-i\omega_{\text{THz}}\tau(x, y)}$. Il est possible de contrôler le diagramme de rayonnement de l'antenne en ajustant la densité locale du champ émis $A(x, y)$ à la surface de l'antenne et le déphasage dû au retard d'excitation des différents dipôles $\tau(x, y)$. La propagation du faisceau térahertz est alors totalement contrôlée par le front d'onde imposé par le faisceau infrarouge, i.e. le profil spatiotemporel de l'impulsion infrarouge.

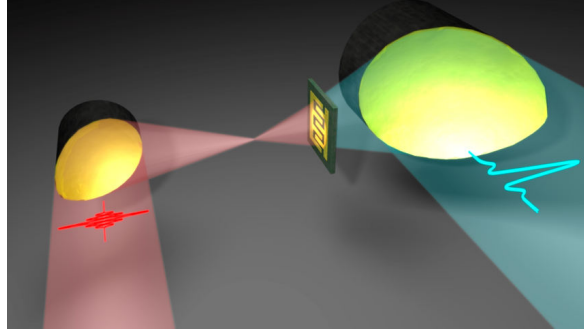


FIGURE 2.19 – Représentation schématique en 3D de l'antenne excitée par une impulsion infrarouge avec un front d'onde sphérique. L'antenne est placée hors de la zone de Rayleigh. Les divergences du faisceau térahertz et du faisceau infrarouge sont identiques.

Notre concept est alors de placer l'antenne hors de la zone de Rayleigh du faisceau optique afin de l'exciter avec un front d'onde sphérique comme il est montré à la figure 2.19. Le schéma de principe est décrit à la figure 2.20a, l'antenne située dans le plan (O', x, y) est placée à une distance z_0 du point de focalisation du faisceau infrarouge dont la divergence est fixée par le miroir parabolique de focalisation, soit dans notre cas

20. Nous avons vu que notre faisceau gaussien pouvait se décrire comme un faisceau paraxial. En incluant cette hypothèse, notre formule 2.7 devient,

$$E(M, k_{\text{THz}}) = \frac{ik_{\text{THz}}}{2\pi} \iint dx dy A(x, y) \exp(i\phi(\omega_{\text{THz}})) \frac{\exp(ik_{\text{THz}} \cdot \text{PM})}{\text{OM}}$$

Pour décrire le rayonnement dans une direction donnée de l'espace (θ, ϕ) , il faut simplement prendre en compte les termes de phase de toutes les contributions qui sont données par $\mathbf{k}_{\text{THz}} \cdot \text{PM} = -\mathbf{k}_{\text{THz}} \cdot \text{OP} + \mathbf{k}_{\text{THz}} \cdot \text{OM}$. Nous pouvons écrire le champ rayonné dans la direction $\mathbf{k}_{\text{THz}}$ pour une distance OM fixe,

$$E(\mathbf{k}_{\text{THz}}) \propto k_{\text{THz}} \iint dx dy A(x, y) e^{-i(\phi(\omega_{\text{THz}}) - \mathbf{k}_{\text{THz}} \cdot \text{OP})}$$

$\tan \psi_{\text{IR}} \sim \psi_{\text{IR}} = 0.25$ rad. Nous avons toujours la relation qui existe entre le rayon du faisceau infrarouge et du champ térahertz, $w_{\text{THz}} = w_{\text{opt}}/\sqrt{2}$ avec $w_{\text{opt}} = L/2$. Dans le cadre d'un front d'onde sphérique, le déphasage du point M par rapport au point O' décrits à la figure 2.20a s'écrit $\phi(\omega_{\text{THz}}) \approx k_{\text{THz}} w_{\text{THz}}^2 / (2 z_0^2)$ où z_0 vaut 998 μm pour un faisceau infrarouge de longueur d'onde 800 nm avec une divergence de 0.25 rad et une antenne de 500 μm . Pour des composantes telles que $k_{\text{THz}} w_{\text{THz}}^2 / (2 z_0^2) \ll 1$ soit $\lambda_{\text{THz}} \gg \pi w_{\text{THz}}^2 / z_0$, le déphasage est négligeable. On se retrouve pour ces composantes dans les conditions d'émission décrites au paragraphe précédent. Cependant, pour les composantes telles que $\lambda_{\text{THz}} \ll \pi w_{\text{THz}}^2 / z_0$, les effets de déphasage doivent être pris en compte. Dans notre configuration, cette longueur d'onde critique à l'origine du changement de régime se situe autour de 97 μm soit 3 THz. C'est à ce second régime que nous nous intéresserons par la suite.

Nous avons calculé le champ électrique en tout point de l'espace en implémentant le retard pour l'excitation des dipôles de l'antenne. La divergence du module du champ térahertz prédite par les simulations numériques à différentes fréquences est présentée en bleu sur la figure 2.17b. A titre de comparaison, nous avons rajouté la loi de divergence suivie par le champ térahertz dans le cas où l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge à front d'onde plan.

Les points extraits des simulations suivent la courbe orange à basse fréquence conformément à nos prédictions. A partir de 3 THz, la courbe commence à dévier et la divergence du faisceau térahertz se stabilise à 0.25 rad, soit la divergence du faisceau infrarouge. En conséquence, à partir de 4 THz, la divergence du faisceau térahertz est indépendante de la fréquence. Cela est aussi montré par les calculs du champ électrique émis par l'antenne présentés à la figure 2.20c pour les composantes situées à 4 THz et 10 THz où nous pouvons observer que le cône d'émission est identique dans les deux configurations. De manière identique à une excitation avec un front d'onde plan, le front d'onde du champ térahertz émis est fixé par le front d'onde de l'impulsion qui excite la surface de l'antenne. Pour les composantes supérieures à 4 THz, le faisceau se comporte alors comme un champ gaussien dont la zone de Rayleigh se situe en amont, à une distance z_0 de l'antenne, car la divergence est constante et égale à celle du faisceau infrarouge. En utilisant les propriétés d'optique gaussienne, nous pouvons remonter à l'expression de w'_{THz} , le rayon du champ térahertz virtuel dans sa zone de Rayleigh, en fonction de w'_{opt} , le rayon du faisceau infrarouge dans la zone de Rayleigh, en utilisant le fait que les

divergences des faisceaux sont identiques $\tan \psi_{\text{IR}} = \tan \psi_{\text{THz}} = \sqrt{2} \frac{\lambda_{\text{THz}} \pi}{w'_{\text{THz}}}$ ²¹,

$$w'_{\text{THz}} = \frac{\lambda_{\text{THz}}}{\lambda_{\text{opt}}} \frac{w'_{\text{opt}}}{\sqrt{2}} = \frac{v_{\text{opt}}}{v_{\text{THz}}} \frac{w'_{\text{opt}}}{\sqrt{2}} \quad (2.9)$$

Le seul paramètre qui supporte la conversion en longueur d'onde de l'infrarouge au térahertz est le rayon du faisceau virtuel w'_{THz} . Il est très fortement dépendant de la fréquence. A titre d'exemple, le rapport du rayon de la composante à 10 THz avec le rayon du faisceau infrarouge donne 26.5.

21. Nous pouvons aussi exprimer w'_{THz} en fonction de la taille de l'antenne,

$$w'_{\text{THz}} = \frac{2\sqrt{2}}{L} \lambda_{\text{THz}} \pi$$

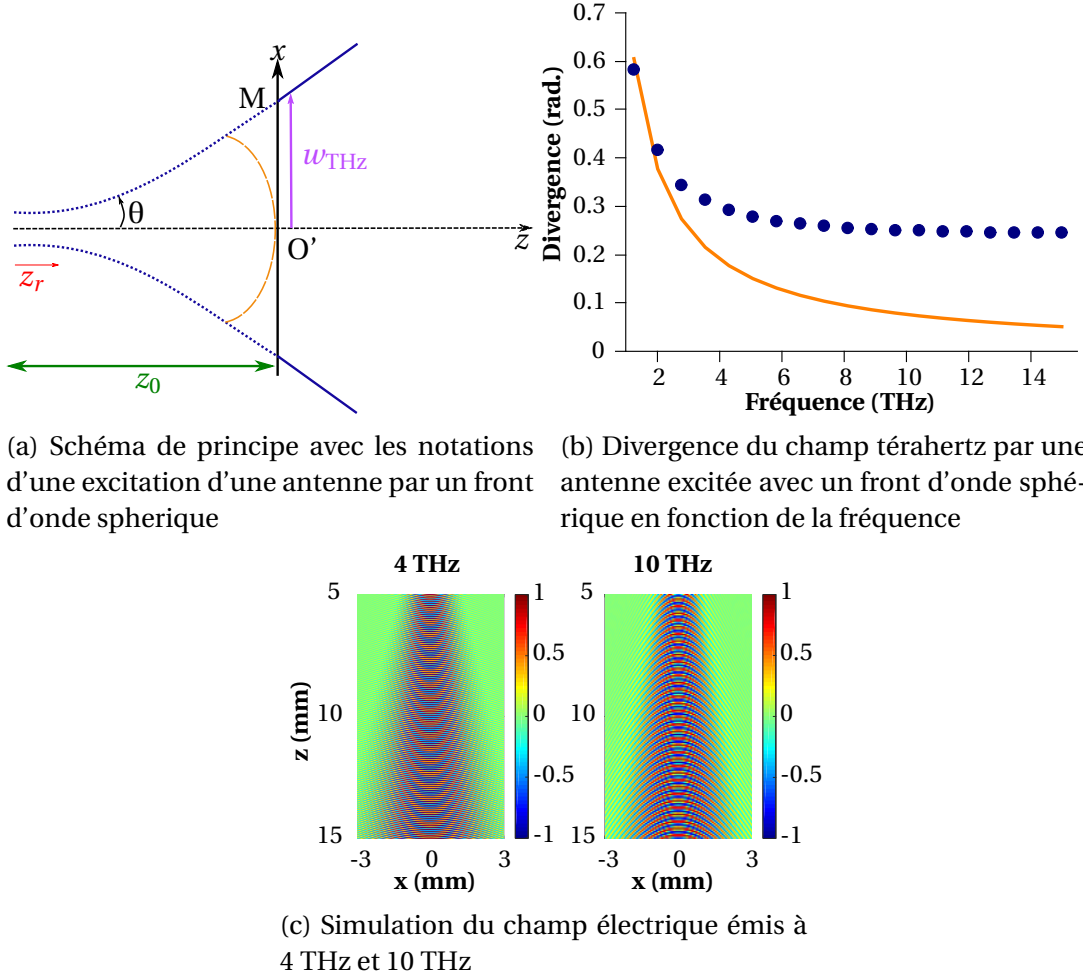


FIGURE 2.20 – Sur la figure (a), on définit le rayon du champ térahertz par w_{THz} ; en bleu continu nous avons le profil du champ en $\frac{1}{e}$ qui est émis. Ce profil peut être relié à un champ virtuel gaussien en pointillé bleu de longueur de Rayleigh z_r et d'angle θ et dont le centre de la zone de Rayleigh est situé à une distance z_0 de l'antenne (rayon minimal). Sur la figure (b) est représentée la divergence du champ térahertz calculée à partir de simulations numériques du champ émis par une antenne de $0.5 \mu\text{m} \times 0.5 \mu\text{m}$ excitée avec un faisceau infrarouge avec un front d'onde sphérique. Les points extraits de la simulations sont en bleus. En orange, nous avons tracé la loi $\tan \psi \sim \psi = \sqrt{2} \left(\frac{\sqrt{2}c}{\pi f_{\text{THz}} w_{\text{opt}}} \right)$, où $w_{\text{opt}} = 0.25 \mu\text{m}$ que suit la divergence si l'antenne est excitée par un faisceau faiblement divergent. A noter que le passage de θ à ψ s'effectue en multipliant par $\sqrt{2}$. A la figure (c) sont présentés les calculs des champs émis à 4 THz et 10 THz en champ lointain.

Cette indépendance du diagramme du rayonnement térahertz émis avec la fréquence permet d'utiliser les instruments d'optique classique pour focaliser l'ensemble des composantes du champ térahertz en limite de diffraction. Pour cela, le rayonnement térahertz est collecté avec un miroir de focale f_0 dont l'ouverture numérique est identique à celui qui focalise le faisceau infrarouge, i.e. $N.A. = 0.25$. Le miroir parabolique est placé à une distance h de l'antenne. Pour collecter l'ensemble du rayonnement, c'est à dire que celui-ci recouvre l'ensemble de la surface du miroir parabolique, la relation $z_0 + h = f_0$ doit être respectée. Dans cette configuration, toutes les composantes spectrales du champ térahertz au delà de 4 THz présenteront une extension spatiale égale à la surface du miroir parabolique de collection. Ainsi, le faisceau térahertz incident sur le deuxième miroir parabolique de focalisation sera collimilé pour toutes les fréquences et de diamètre constant. Notons que pour les fréquences plus petites que 3 THz, une partie seulement du rayonnement sera collectée ce qui ne change pas des conditions habituelles d'émission. La distance focale f_0 du parabolique de collection étant dans notre cas de 6", la distance z_0 est très faible devant elle. Cependant, la précision du placement de l'antenne est cruciale sur le montage afin de pouvoir réaliser une focalisation en limite de diffraction.

2.4.3 Focalisation du faisceau térahertz

Nous avons apporté une validation expérimentale de ce concept de manipulation du front d'onde en mesurant l'extension spatiale du champ térahertz focalisé à l'emplacement de l'échantillon. Nous avons eu recours à la technique de la lame de rasoir combinée à la TDS pour caractériser l'extension spatiale du faisceau térahertz focalisé pour chacune des fréquences dont le principe est présenté à la figure 2.21 [118]. Cette mesure de la taille du faisceau térahertz a été effectuée dans les deux configurations d'excitation pour l'antenne, avec un front d'onde plan et un front d'onde sphérique. Le principe de la mesure est présentée dans l'annexe E.

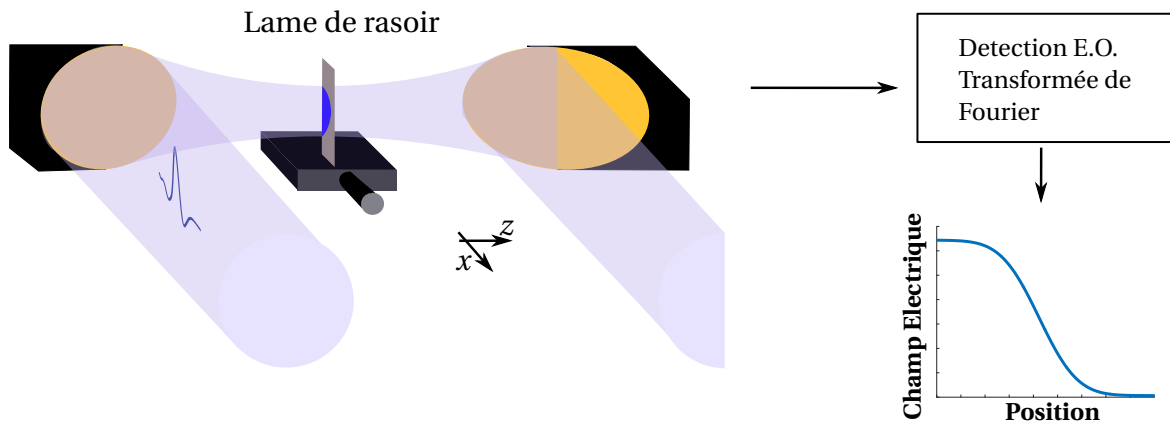


FIGURE 2.21 – Schéma de principe de la mesure de la taille du champ térahertz à la lame de rasoir. Pour chaque position de la lame, nous faisons l'acquisition d'un signal temporel. Pour chaque composante spectrale, on est capable de reconstruire le champ électrique en fonction de la position de la lame qui est une fonction erreur.

Les profils des composantes à 4 THz et 7 THz pour un front d'onde plan et sphérique du faisceau infrarouge au niveau de l'antenne sont représentés à la figure 1.6. Les profils à 4 THz entre les deux configurations aux figures 2.22a et 2.22b montrent que l'extension, qui est donnée par la longueur sur laquelle décroît la courbe, sont similaires dans les deux

cas. A contrario, les profils des composantes à 7 THz ne sont pas identiques. L'extension spatiale est plus étroite dans le cas où le front d'onde est sphérique que lorsqu'il est plan. Ceci démontre que selon le front d'onde utilisé, l'extension spatiale du champ terahertz focalisé est différente. Dans le cas où l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge à front d'onde sphérique, l'extension spatiale à 7 THz (figure 2.22c) est plus faible que celle à 4 THz (figure 2.22a) montrant qu'il y a un effet de focalisation en fonction de la longueur d'onde. A l'inverse dans le cas où l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge à front d'onde plan, les figures 2.22b et 2.22d montrent que l'extension spatiale est quasiment similaire. Il n'y a pas de dépendance en fréquence de l'extension spatiale. Nous pouvons également remarquer que les profils ressemblent à ceux d'une fonction erreur telle que nous l'avons décrite (courbes rouges). Juste une légère déviation à la fonction erreur est observée à la figure 2.22a autour de 5.6 mm que nous attribuons à la complexité du champ terahertz à cette position.

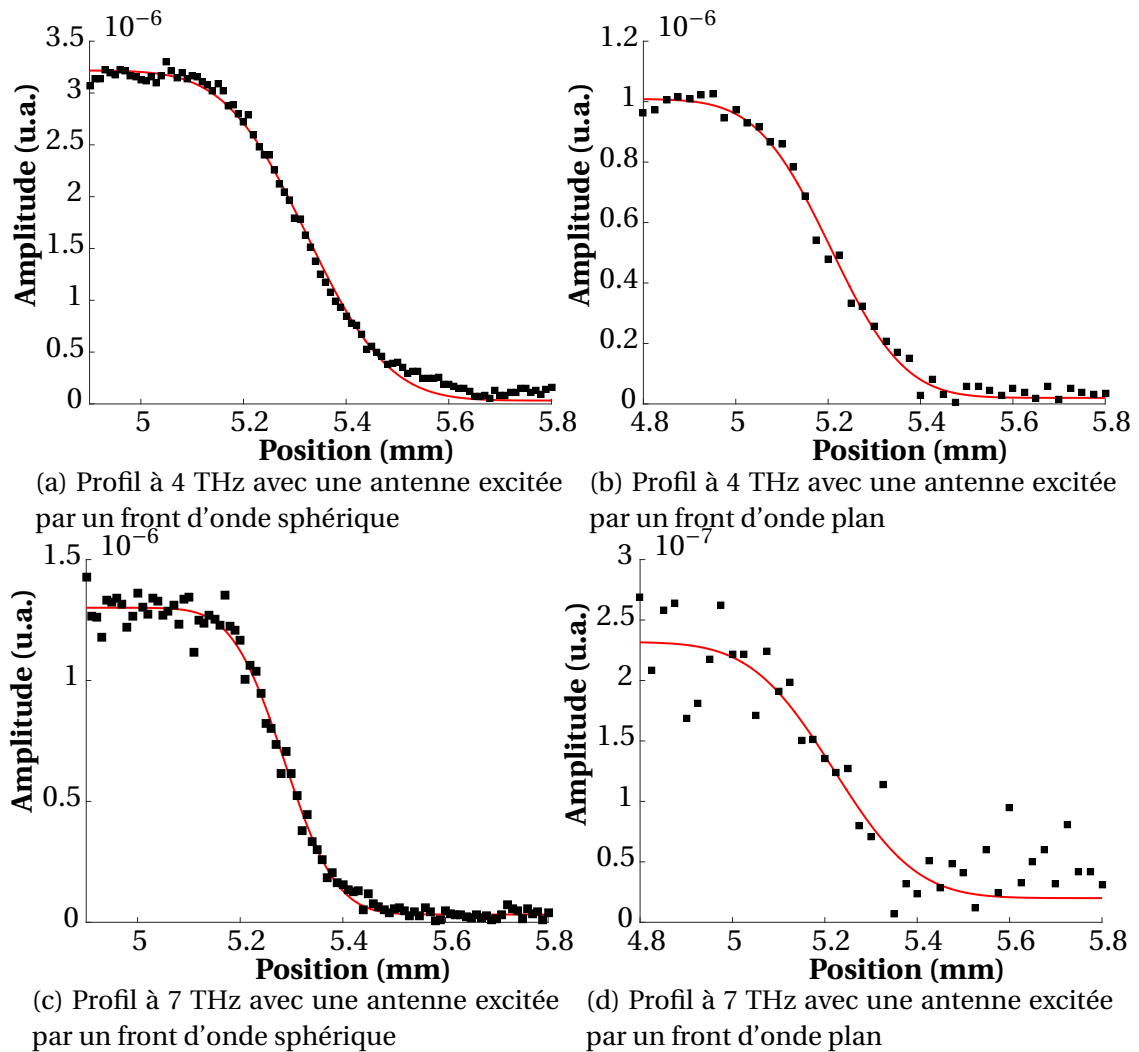


FIGURE 2.22 – Profils mesurés à la lame de rasoir pour les composantes à 4 THz (a),(b) et 7 THz (c),(d) pour un front d'onde sphérique et plan. En noirs sont présentés les données expérimentales sur lesquelles nous avons effectuées une modélisation en rouge afin d'extraire le rayon du faisceau terahertz r_{THz} en utilisant une fonction erreur $E_{\text{THz}}(x) = A \operatorname{erfc}((x - x_0)/w) + B$.

Pour chaque composante à partir de 3.5 THz - début du régime étudié, nous avons extrait les rayons r_{THz} correspondant à l'extension spatiale du champ terahertz à la figure 2.23a. En noir sont représentées les données extraites lorsque l'antenne est excitée par

un front d'onde sphérique et en bleu, lorsque le front d'onde est plan. Les données sont exploitées jusqu'à 14.5 THz lorsque l'antenne est excitée avec un front d'onde sphérique car le spectre présente une large bande passante. Cette bande passante est dégradée en régime d'excitation par un faisceau infrarouge avec un front d'onde plan limitant l'acquisition de données à 10 THz. Dans cette dernière condition particulière, le rapport signal à bruit est diminué rendant la dispersion des données plus importante comme nous pouvons le voir sur le graphe 2.23a. Nous reviendrons plus précisément sur la bande passante selon le régime d'excitation dans le paragraphe suivant.

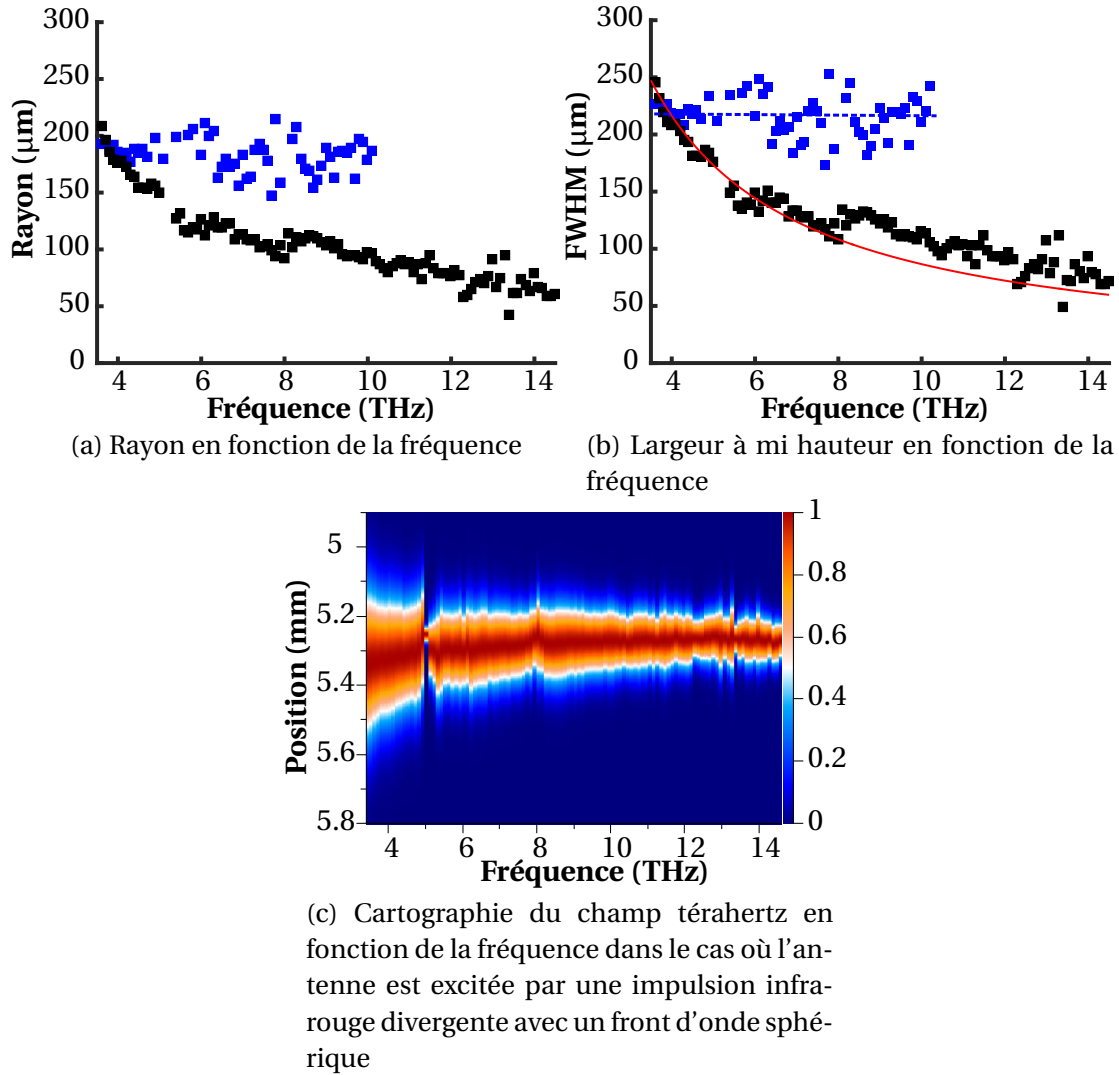


FIGURE 2.23 – Rayon (a), largeur à mi-hauteur (b) de la gaussienne en fonction de la fréquence. Sur chaque courbe, nous avons représenté le cas où l'antenne était excitée par un front d'onde plan (carrés bleus) et le cas où l'antenne était excitée par un front d'onde sphérique (carrés noirs). Le lien entre le rayon et la largeur à mi-hauteur est donnée par $FWHM = r_{THz} \sqrt{2 \ln(2)}$. En (c) est représentée une cartographie en deux dimensions du champ térahertz en fonction de la fréquence pour des composantes entre 3.5 THz et 14.5 THz au point du focalisation du faisceau térahertz.

Un résultat marquant qui ressort de ce travail est que dans le cadre d'une excitation avec un faisceau infrarouge à front d'onde sphérique, le rayon diminue fortement avec la fréquence. L'extension spatiale est réduite à une valeur de seulement 61 μm à 14.5 THz. Les points autour de 5.2 THz correspondant aux phonons du ZnTe ont été enlevés car nous n'avons pas de rayonnement térahertz détectés à ces fréquences. Nous pouvons voir que la continuité de la courbe est modifiée à 8.7 THz; cette valeur correspond à la

fréquence du phonon longitudinal optique de l'arséniure de gallium dont une émission par un mécanisme de couplage avec le phonon transverse optique à 8.1 THz a été mise en évidence [109]. Nous suspectons que ce mécanisme étant différent de celui des autres composantes, les conditions d'émission à cette fréquence particulière diffèrent du reste des autres composantes ne permettant pas de confiner aussi fortement cette composante comparée aux autres. A l'inverse, le rayon extrait des profils lorsque l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge à front d'onde plan (courbe bleue) est relativement constant. Le rayon moyen extrait se situe autour de 185 μm , une valeur proche de la surface éclairée de l'antenne de 176 μm confirmant que le faisceau focalisé dans ce régime n'est autre que l'image virtuelle de la surface éclairée de l'antenne. Il reste à savoir si le régime d'excitation avec un faisceau infrarouge à front d'onde sphérique observé expérimentalement est limité par la diffraction. Pour cela comparons ces mesures à la limite de diffraction que nous pouvons atteindre avec les éléments optiques utilisés. Le rayon d'un faisceau focalisé par un élément d'optique de nombre d'ouverture ζ correspond au premier zéro de la tâche d'Airy et est donné par $r_{\text{foc}} \approx 1.22\lambda_{\text{THz}}\zeta$. Cependant, il réside un désaccord entre la queue d'une fonction gaussienne et la queue du lobe principal de la tâche d'Airy. Ainsi, pour comparer le rayon déduit expérimentalement en approximant le faisceau térahertz focalisé par une fonction gaussienne avec le rayon de la tâche d'Airy en limite de diffraction, il est plus pertinent de regarder les largeurs à mi-hauteur de la tâche d'Airy et de la gaussienne en intensité du faisceau térahertz. La largeur à mi-hauteur L_{Gauss} de l'intensité térahertz est donnée par $L_{\text{Gauss}} = r_{\text{THz}}\sqrt{2\ln(2)}$. La largeur à mi-hauteur minimum que peut atteindre L_{Airy} d'une tâche d'Airy est donnée par,

$$L_{\text{Airy}} \approx 2\sqrt{2}\zeta \cdot 0.51\lambda_{\text{THz}} = 2\sqrt{2}\zeta \cdot 0.51 \frac{c}{v_{\text{THz}}} \quad (2.10)$$

où le facteur $\sqrt{2}$ est rajouté car c'est la divergence en $1/e^2$ du champ qui correspond à l'ouverture numérique du paraboloïde de collection. La formule 2.10 sera notre critère de comparaison à la limite de diffraction.

A la figure 2.23b, nous avons calculé la mi-hauteur de l'intensité térahertz pour toutes les fréquences avec en noir le cas où l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge avec un front d'onde sphérique et en bleu le cas où l'antenne est excitée par un faisceau infrarouge avec un front d'onde plan. Nous avons rajouté sur ce graphe la loi exprimée à la formule 2.10 en ligne continue rouge. Nous constatons un très bon accord entre les points expérimentaux noirs et la courbe rouge pour les composantes situées entre 3.5 THz et 8 THz démontrant que notre concept simple basé sur la manipulation du front d'onde permet de focaliser ces composantes spectrales en limite de diffraction. De part l'émission térahertz provenant du phonon de l'arséniure de gallium, il existe un décalage d'une trentaine de micromètres entre les données expérimentales et la loi. Cependant, à plus hautes fréquences nous observons que la largeur à mi-hauteur converge de nouveau vers la limite de diffraction. Cela démontre également que pour le diagramme d'émission de l'antenne excitée par un faisceau infrarouge avec un front d'onde sphérique est indépendant de la fréquence au delà de 4 THz. Sur la figure 2.23c, nous avons reconstruit l'amplitude du champ térahertz en fonction de la fréquence à partir des profils mesurés en fonction de la position de la lame. C'est une carte du profil du champ térahertz focalisé en fonction de la fréquence qui permet de visualiser directement l'augmentation de la focalisation du faisceau térahertz avec la fréquence. Les accidents que nous voyons apparaître sont dus aux phonons dans le cristal et l'arséniure de gallium et les désaccords de phase précédemment évoqués dans le cristal.

2.4.4 Performances du banc expérimental en limite de diffraction

Nous allons maintenant étudier la bande passante obtenue en focalisant le faisceau térahertz à la limite de diffraction ou proche de celle-ci. Nous étudierons dans un premier temps les signaux temporels et les spectres puis, nous analyserons l'effet de la taille du faisceau infrarouge de sonde sur la bande passante du montage de spectroscopie.

Performances obtenues

Nous avons fait l'acquisition de deux spectres dans les différents régimes d'excitation de l'antenne. Les performances ne sont pas comparables de manière quantitative car les données n'ont pas été acquises au même moment et les temps d'intégration de la détection synchrone étaient différents. Cependant, l'énergie par impulsion était identique, 4 nJ. Le cristal utilisé dans les deux cas étaient un cristal de ZnTe de 20 μm d'épaisseur. Le champ étant aussi mieux focalisé sur le cristal de détection, l'intégrale de recouvrement spatial entre le faisceau infrarouge de sonde et le champ térahertz devrait être nettement amélioré permettant une meilleure détection de l'ensemble des composantes et en particulier celles situées à haute fréquence.

Sur la figure 2.24a sont présentés les signaux temporels avec en bleu, le cas où l'antenne est excitée par un front d'onde sphérique et en orange par un front d'onde plan. Les courbes ont été disposées l'une au dessus de l'autre afin de mieux visualiser leur différence. La courbe bleue présente un transitoire symétrique avec une largeur à mi-hauteur pour le pic négatif de 100 fs et une largeur à mi-hauteur pour le pic positif de 273 fs. Ce pic est modulé par une oscillation périodique de 120 fs que nous avons dans le chapitre lié à la TDS associé à l'émission térahertz par le phonon du GaAs. A l'inverse, lorsque l'antenne est excitée par un front d'onde plan, nous perdons la symétrie du transitoire. Le premier pic voit sa largeur à mi-hauteur augmenter à 200 fs tandis que la largeur à mi-hauteur du second pic est conservé. Nous pouvons aussi visualiser les oscillations à 120 fs avec cependant une amplitude moins élevée que sur le signal temporel bleu.

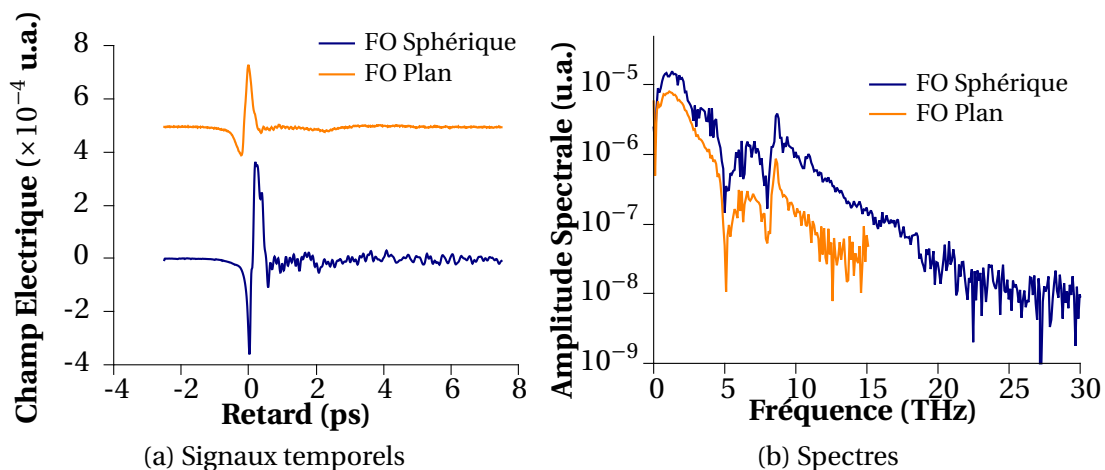


FIGURE 2.24 – Signaux temporels (a) et spectres (b) dans les configurations d'excitation en front d'onde plan (orange) et front d'onde sphérique (bleu). La dynamique dans le cas d'une excitation avec un front d'onde plan est moins importante que dans le cas où l'antenne est excitée par un front d'onde sphérique. FO est une abréviation pour front d'onde

Nous obtenons les spectres issus de ces signaux par transformée de Fourier rapide qui

sont présentés avec une échelle logarithmique sur l'axe des ordonnées à la figure 2.24b. Les codes de couleur sont conservés. La courbe orange relative à la transformée de Fourier du signal acquis avec un front d'onde plan présente une bande spectrale allant de 0.3 THz jusqu'à 13 THz. La courbe a été laissée jusqu'à 15 THz afin de visualiser le bruit. La dynamique de l'amplitude spectrale est de 40 dB. La valeur de la pente suivant le pic dû au phonon de l'arséniure de gallium est de 4.5 THz par décade.

La courbe bleue présente ici une bande passante allant de 0.3 THz à plus de 20 THz qui est une performance tout aussi comparable que celle obtenue par *Hale et al.* [101] avec un pulse 5 fois moins énergétiques. Le spectre présente une dynamique de 60 dB. Nous pouvons observer un creux à 2 THz qui peut être attribué au changement de régime au niveau de l'émission de l'antenne. C'est la région du spectre pour laquelle le diagramme de rayonnement commence à être constant quelle que soit la fréquence. Analysons la pente après le pic à 8.7 THz. Elle est dans ce cas de 6 THz par décade, soit supérieure à la pente que nous avons obtenue avec le spectre en orange et qui nous permet d'atteindre la performance de détection jusqu'à 20 THz. Cela est une conséquence directe du recouvrement du faisceau infrarouge et du champ térahertz qui est meilleur au niveau du cristal dans cette seconde configuration et que nous allons étudier un peu plus en détail dans le dernier paragraphe de cette étude.

Dépendance de la bande de détection en fonction de la taille du faisceau de sonde

Nous souhaitons regarder comment le spectre est modifié en fonction de la taille du faisceau de sonde sur le cristal électro-optique. Le rayon mesuré est de l'ordre de 90 μm dans la zone de Rayleigh du faisceau. Via une platine de translation sur laquelle est posée le parabolique qui focalise le faisceau de sonde, nous sommes capables de modifier sa taille sur le cristal électro-optique. Nous avons fait une acquisition temporelle avec un rayon de 90 μm , 175 μm , 280 μm et 410 μm . Nous avons normalisé les spectres acquis avec une taille de faisceau de 90 μm , 175 μm et 280 μm par le spectre acquis avec une taille de faisceau de 410 μm . C'est ce que nous appellerons le gain dans cette section. Les données normalisées ont été tracées entre 3.5 THz et 11 THz avec à la figure 2.25 en carré bleu, orange et violet.

Nous pouvons constater est que plus la taille du faisceau infrarouge de sonde est petite, plus le gain effectif est élevé. Cela est directement lié à l'extension spatiale du champ térahertz sur le cristal électro-optique. Celui-ci étant plus petit de part la focalisation en limite de diffraction du champ térahertz, la détection des hautes fréquences augmentera si nous réduisons la taille du faisceau de sonde infrarouge.

Nous allons calculer théoriquement ce gain. Pour une composante spectrale térahertz ω donnée, la détection de cette composante dépend du $\chi^{(2)}$ du cristal, du recouvrement spatial des faisceaux térahertz et infrarouge et de l'accord de phase [35]. Si la taille du faisceau térahertz est modifiée, seul le recouvrement entre les deux champs térahertz et infrarouges sera modifié. Ainsi, le gain $G(\omega)$ tracé à la figure 2.25 est directement le rapport des intégrales de recouvrement des faisceaux térahertz et infrarouges,

$$G(\omega) \approx \frac{\int d\mathbf{r} E_{\text{THz},1}(\omega, r) E_{\text{opt},1}(\Omega, r)}{\int d\mathbf{r} E_{\text{THz},2}(\omega, r) E_{\text{opt},2}(\Omega, r)} \quad (2.11)$$

où E_{THz} est le champ électrique térahertz et E_{opt} est le champ électrique optique. Tous deux sont considérés gaussien pour ce calcul. L'extraction du rayon térahertz dans le pa-

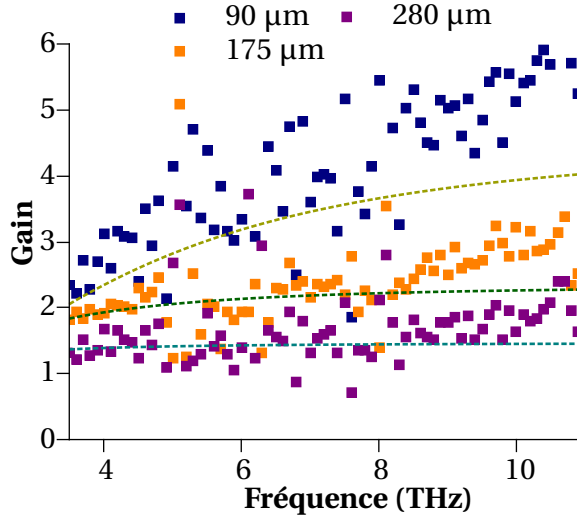


FIGURE 2.25 – Rapport des spectres sondés avec un spot IR de taille 90 μm , 175 μm et 280 μm sur un spectre sondé avec un spot IR de taille 410 μm . En pointillés sont représentés les courbes théoriques que issus du rapport des intégrales de recouvrement des champs infrarouge et térahertz.

ragraphe précédent permet de remonter à une expression théorique du rayon du champ térahertz en limite de diffraction,

$$L_{\text{Thz,Theo}} \approx \gamma \frac{4}{\sqrt{\ln(2)}} \zeta 0.51 \frac{c}{v_{\text{THz}}} \quad (2.12)$$

où γ est le grossissement du montage qui vaut 1/2 dans notre cas. La dernière chose dont nous devons tenir compte est que l'amplitude $E_{0,i}$ en préfacteur de la gaussienne varie en $1/L_i$ où L_i est le rayon du champ au waist²². Nous avons tracé les courbes de gain théoriques en utilisant la formule 2.11 avec l'expression théorique du rayon du faisceau térahertz à la formule 2.12 en pointillés sur la figure 2.25 en jaune, vert et bleu pour respectivement des rayons de faisceau infrarouge de 90 μm , 175 μm et 280 μm . Pour la courbe correspondant à 90 μm , l'allure entre les deux courbes coïncident. Cependant, la courbe théorique est un peu plus basse que ce que la courbe dessinée par les données expérimentales. En revanche, nous avons une bonne correspondance entre les courbes théoriques et les données expérimentales dans les deux autre cas montrant que pour des rayons plus élevés, l'intégrale de recouvrement est le facteur principal pour le gain. Le recouvrement est l'une des raisons principales du gain de signal à hautes fréquences entre les deux signaux et démontre que l'apport de cette performance sur un montage TDS permet d'augmenter la bande passante même avec de faibles énergies dans les impulsions infrarouge.

Nous avons développé dans ces deux sections le banc expérimental TDS et ses améliorations. Ce banc nous permet de faire la spectroscopie des résonateurs SRR dont les résultats sont présentés dans la section suivante. Dans cette configuration d'émission en front d'onde sphérique, nous pouvons nous demander si nous sommes capable de faire la spectroscopie d'un résonateur THz de type SRR unique et dont la fréquence de résonance fondamentale se situe à 8 THz. La taille est typiquement de 5 μm . Le diamètre de la composante à 8 THz peut être réduit à 23 μm en utilisant une miroir parabolique

22. L'énergie de chaque composante est conservée dans toutes les mesures donc $\int d\mathbf{r} E(r)^2 \epsilon_0 / 2$ est une constante quelque soit le rayon du champ électrique. En effectuant l'intégrale on trouve, $E_0^2 r_0^2 = \alpha$ d'où $E_0 \propto 1/r_0$.

avec un nombre d'ouverture $\varsigma = 0.5$. Le rapport des surfaces donne 4.8 % qui est supérieur au rapport signal à bruit du montage de spectroscopie. Ainsi, une simple évolution du banc de spectroscopie permettrait de caractériser un résonateur unique. Au delà des résonateurs uniques, nos travaux ouvrent la voie à l'exploration d'objets de dimensions micrométriques tels que les flocons de graphène ou des cellules sur une large gamme de fréquences THz. De plus, ce concept qui permet de focaliser le rayonnement THz en limite diffraction ouvre la perspective de produire des champs térahertz intenses ce qui a un impact important pour les applications THz non-linéaires.

Chapitre 3

Spectroscopie des résonateurs térahertz

Sommaire

3.1	Introduction	77
3.2	Transmission d'un métamatériau - Relation avec la structure électro-magnétique du résonateur	78
3.3	Spectroscopie des résonateurs	79
3.3.1	Caractérisation du résonateur SRR 3	79
3.3.2	Modification de la structure du motif SRR3	82
3.3.3	Etude de l'influence de la grille supérieure sur les modes du résonateur	86
3.4	Influence du substrat sur la résonance d'une cavité	87
3.4.1	Dépendance du mode en fonction du substrat	87
3.4.2	Mesures en transmission du résonateur SRR3 sur topas	88
3.5	Conclusion	90

3.1 Introduction

Identifier les fréquences de résonance ainsi que le facteur de qualité des résonateurs est crucial pour l'analyse du couplage des niveaux électroniques de la boîte quantique avec les photons terahertz. La spectroscopie de ces résonateurs par spectroscopie dans le domaine temporel (TDS) nous permet d'accéder à la transmission complexe (phase et amplitude) dans le domaine terahertz et son étude nous permet d'identifier clairement les résonances ainsi que leur facteur de qualité qui nous serviront de piste de travail dans l'analyse du couplage des niveaux électroniques de la boîte quantique avec les photons terahertz. Les résonateurs doivent obéir à 2 critères pour notre étude, l'énergie du photon à la résonance fondamentale doit se situer entre 2 meV et 10 meV et le facteur de qualité doit être supérieur à 1.

Nous avons fait le choix d'utiliser des split ring resonators (SRR) qui sont des résonateurs planaires. Pour chaque résonateur, nous n'avons pas étudié celui-ci en objet unique mais sous forme de matrice appelé métamatériau¹. Les métamatériaux ou métafilms dans notre cas sont définis comme des structures électromagnétiques artificiels composés de structures résonantes de dimensions typique $\lambda/6$ - $\lambda/10$, où λ est la longueur d'onde correspondant à la résonance, déposées sur une surface diélectrique ou semiconductrice. La taille du résonateur étant plus faible que la longueur d'onde, on peut considérer ces composés comme un milieu effectif propre qui peut être décrit qualitativement par une permittivité diélectrique $\epsilon(\omega)$ et une perméabilité magnétique $\mu(\omega)$ [119]. La réponse de ces matériaux dépend essentiellement de la réponse des résonateurs qui les composent et du couplage qui existe entre les résonateurs. Nous construirons toujours nos matériaux d'étude des résonateurs de telle manière à ce que la distance entre chaque résonateur soit suffisamment grande afin de minimiser le couplage et donc d'obtenir une valeur pour le facteur de qualité et la fréquence de résonance qui soit la plus proche possible comparé à l'étude d'un résonateur unique [120].

Le premier résonateur qui est étudié est issu de la littérature [121]. C'est une boucle avec une lame centrale et deux entrefers qui se dénommera SRR3 dans ce chapitre. Cette structure a été améliorée dans le but d'optimiser le couplage entre les nanoobjets, la boîte quantique ou la source de photons, et la cavité en ajoutant des structures dipolaires autour du résonateur. L'idée est que si la source ou la boîte quantique est connectée avec ces nouvelles structures, la surface d'échange avec le résonateur sera augmentée améliorant le couplage. L'ajout de ces objets va changer les fréquences de résonance identifiées avec SRR3 que nous allons analyser par spectroscopie terahertz et à travers des simulations. L'idée est de maximiser la surface d'échange entre le résonateur terahertz et les La fabrication de ces résonateurs est détaillée dans la partie concernant la conception des échantillons. Ils sont fabriqués sur du silicium haute résistivité poli double face² ou du topas pour les études sur l'influence du substrat. Le métal qui compose les résonateurs

1. En effet, la fréquence la plus basse de ces résonateurs est située autour de 500 GHz soit une longueur d'onde de 600 μm et donc un faisceau terahertz au niveau de l'échantillon dans la TDS de l'ordre de 1 mm. La taille de notre résonateur est typiquement de 50 μm . Si nous faisons le rapport des surfaces, $\Delta S = \frac{50^2}{1000^2} = 2.5 \times 10^{-3}$. Ainsi, détecter une résonance avec notre spot THz d'un résonateur unique revient à dire qu'il nous faudrait voir une variation de 0.25% ce qui nous situe dans la limite de bruit du banc expérimental. L'étude de plusieurs objets similaires est donc plus simple au niveau du bruit et au niveau de l'analyse de données

2. Le silicium haute résistivité permet d'avoir une fréquence plasma en dessous du terahertz et donc qu'il puisse être traversé par le terahertz. Le polissage double face permet de supprimer les imperfections de surface susceptibles de diffracter l'onde terahertz.

est une couche de 150 nm d'or, supérieure à l'épaisseur de peau aux fréquences de résonance concernées [47]. L'étude sur le silicium est primordiale puisque c'est sur ce substrat que nos échantillons seront fabriqués ensuite.

Nous allons tout d'abord développer la relation qu'il y a entre la transmission de ce type de matériau et la structure électromagnétique du résonateur et définir toutes les notions dont nous aurons besoin pour la suite de ce chapitre. Dans un second temps, les résultats expérimentaux des spectroscopies des résonateurs seront présentés et analysés afin d'extraire les fréquences de résonance et leur facteur de qualité. Puis, nous effectuerons une étude préliminaire de l'influence du substrat sur les résonances du résonateur.

3.2 Transmission d'un métamatériau - Relation avec la structure électromagnétique du résonateur

La caractérisation du résonateur s'effectue en sondant la transmission (ou la réflexion selon la configuration du banc de spectroscopie) du métamatériau. Afin de comprendre comment la transmission est reliée aux résonances du résonateur, nous allons écrire l'expression de la transmission du métamatériau sur le substrat de silicium. Dans notre cas, l'échantillon est directement lié au silicium et nous ne pouvons définir une longueur d'échantillon proprement. Les termes de transmission $T_{\text{air} \rightarrow \text{ech}}$ et $T_{\text{ech} \rightarrow \text{sub}}$ disparaissent pour laisser place au terme $T_{\text{air} \rightarrow \text{met}}$ où *met.* désigne métamatériau. Les métamatériaux sont connus pour être des matériaux avec des permittivités ϵ_r ou des perméabilités μ_r et qui ont donc un impact sur les deux composantes du champ³. Nous ne pouvons donc utiliser l'expression des coefficients de Fresnel développée pour la transmission qui ne s'utilisent que dans le cas de milieux non magnétiques. En revanche, il existe une expression similaire pour la transmission utilisant l'impédance des milieux traversés et qui prend donc en compte à la fois l'aspect magnétique et électrique de l'onde. La transmission peut s'écrire en incidence normale $T_{a \rightarrow b}(\omega) = \frac{2Z_b}{Z_a + Z_b}$ où Z_a est l'impédance du milieu *a* et Z_b l'impédance du milieu *b*. Le métamatériau étant composé de résonateurs, il possède sa propre impédance Z_{met} . Ainsi, nous pouvons écrire l'expression des champs sondant le substrat et le métamatériau,

$$E_{\text{THz,met}}(\omega) = T_{\text{air} \rightarrow \text{met}}(\omega)P(\omega, L_{\text{sub}})T_{\text{sub} \rightarrow \text{air}}(\omega)\eta(\omega)E_{\text{THz}}(\omega) \quad (3.1)$$

$$E_{\text{THz,sub}}(\omega) = T_{\text{air} \rightarrow \text{sub}}(\omega)P(\omega, L_{\text{sub}})T_{\text{sub} \rightarrow \text{air}}(\omega)\eta(\omega)E_{\text{THz}}(\omega) \quad (3.2)$$

où P est le coefficients de propagation dans le substrat par $P(\omega, L_{\text{sub}}) = \exp\left(-i \frac{\tilde{n}_{\text{sub}} 2\pi\omega L_{\text{sub}}}{c}\right)$ avec $\tilde{n}_{\text{sub}}$ l'indice complexe du matériau et η est le coefficient de propagation dans l'air environnant l'échantillon. Le rapport des deux champs, définissant la transmission T_{met} s'écrit, $T_{\text{met}} = \frac{T_{\text{air} \rightarrow \text{met}}}{T_{\text{air} \rightarrow \text{sub}}}$. En remplaçant les transmissions par leur expression en fonction de l'impédance des différents milieux, la transmission du métamatériau s'écrit,

$$T_{\text{met}} = \frac{Z_{\text{met}}}{Z_0 + Z_{\text{met}}} \frac{Z_0 + Z_{\text{sub}}}{Z_{\text{sub}}} \quad (3.3)$$

3. Les métamatériaux sont mêmes utilisés pour l'existence à résonance d'une perméabilité ou d'un permittivité négative. Cela est directement reliée à la structure résonante.

où Z_0 est l'impédance du vide égale à 377Ω , Z_{sub} est l'impédance du substrat que nous pouvons calculer en utilisant la relation $Z = \sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} Z_0 = \frac{\sqrt{\mu_r}}{n} Z_0$. Dans le cas du silicium, $\mu_r = 1$ et son indice de réfraction dans le térahertz vaut $n_{\text{Si}} = 3.416$. On calcule ainsi son impédance $Z = Z_0 / n_{\text{Si}} = 110 \Omega$. En prenant la valeur absolue de l'expression 3.3, nous obtenons la formule de la transmission mesurée par en TDS⁴. Il faut maintenant préciser l'impédance du métamatériau. Le résonateur est déposé sur le substrat que nous pouvons schématiser par deux impédances mises en parallèle. L'expression de l'impédance pour Z_{met} s'écrit alors $Z_{\text{met}}(\omega) = \frac{1}{\frac{1}{Z_{\text{Si}}} + \frac{1}{Z_{\text{res}}}}$ où Z_{res} est l'impédance du résonateur⁵ Les

conditions de résonance étant définie par $\text{Im}(Z_{\text{res}}) = 0$, l'impédance Z_{res} est directement reliée aux résonances. Cela démontre qu'en sondant la transmission du métamatériau, on sonde aussi les résonances du résonateur. Cependant, il est difficile de lui donner une expression théorique. Mise à part la résonance fondamentale qu'il est possible de modéliser par un circuit RLC, les résonances d'ordre supérieure de type dipolaire et quadrupolaire ne peuvent pas nécessairement être modélisées comme des circuits RLC.

3.3 Spectroscopie des résonateurs

Nous allons maintenant détailler des mesures de transmission terahertz effectuées sur les résonateurs⁶. Les SRR présentent la particularité d'avoir des réponses différentes selon la polarisation du champ électrique qui sonde la structure. Il nous faut ainsi étudier les résonateurs selon les deux polarisations horizontale et verticale du champ électrique afin de n'omettre aucune résonance. Ces mesures ont été réalisées avec un cristal de GaP $300 \mu\text{m}$ ou un cristal de ZnTe $500 \mu\text{m}$ pour la détection nous permettant d'avoir accès à une bande passante allant de 0.3 THz jusqu'à 3 THz . Nous avons tout d'abord commencé à travailler sur le résonateur SRR3, présenté dans ce premier paragraphe, que nous avons par la suite modifié afin de l'adapter à notre étude. En particulier, les modifications effectuées portent sur la structure du résonateur afin d'améliorer le couplage entre la boîte quantique et les photons. Ces nouveaux résonateurs, SRR3-DP1 et SRR3-DP2 sont présentés en deuxième partie de ce paragraphe.

3.3.1 Caractérisation du résonateur SRR 3

Une image du résonateur SRR3 est présentée à la figure 3.1. Il est composé une boucle avec deux espacements symétriques de part et d'autre de la structure. La structure de ce résonateur est particulièrement intéressante car elle offre la possibilité d'insérer deux

4. Cette formule est identique à celle définie par *O'Hara et al.* utilisée pour leur spectroscopie de métamatériaux [119]

5. Nous pouvons donc réécrire la transmission à la formule 3.3,

$$T_{\text{met}} = \frac{Z_{\text{sub}} Z_{\text{res}}}{(Z_{\text{res}} + Z_{\text{sub}}) Z_0 + Z_{\text{sub}} Z_{\text{res}}} \frac{Z_0 + Z_{\text{sub}}}{Z_{\text{sub}}}$$

6. Toutes les mesures effectuées durant cette thèse ne sont pas présentées. Cependant, pour plus de précisions, le lecteur est invité à se référer aux articles suivants [122, 123, 20, 21, 121] afin de voir quels autres types de résonateurs nous avons mesurés.

nano-objets dans les interstices - 2 nanotubes de carbone par exemple. Cette forme de résonateur a été étudiée par *Yang et al.* [121] mais le métal choisi était l'aluminium⁷. Ils ont identifié une résonance avec une polarisation horizontale du champ électrique terahertz (voir figure 3.1) à 500 GHz.

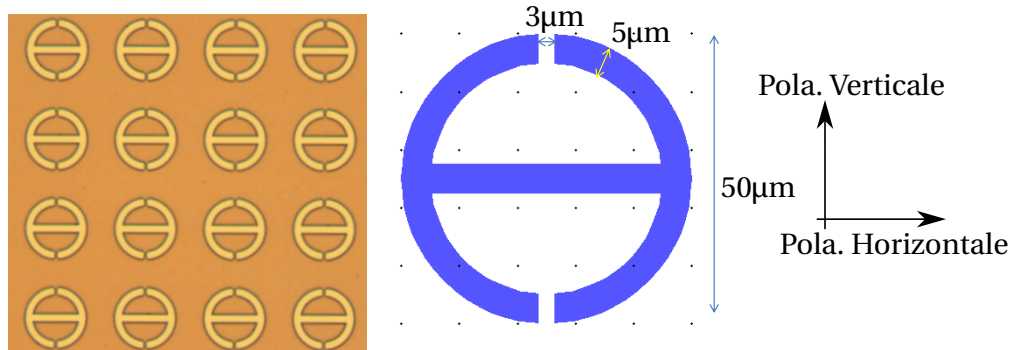


FIGURE 3.1 – Résonateur SSR3 - A gauche, une photo prise au microscope optique de la structure étudiée dont les dimensions sont présentées au centre - A droite sont définies les conventions de polarisation pour ce résonateur.

Pour cette mesure, les résonateurs ont été sondés dans une matrice de 40x40 motifs espacés respectivement de 75 μm dans les deux directions de l'espace. La référence de la mesure a été faite sur le même morceau de substrat, à une position où il n'y avait aucun résonateur. Les résonateurs étaient enchâssés dans un carré d'or de 3 mmx3 mm suffisamment grand pour que l'extension spatiale du faisceau terahertz aux fréquences qui nous intéressent soit inférieure aux dimensions du carré.

Les transmissions entre 0.3 THz et 3 THz en polarisation horizontale et verticale du champ sont présentées en figure 3.2a et 3.2b respectivement⁸. La réponse en polarisation horizontale nous montre 3 résonances à 0.46 THz, 1.6 THz et 2.6 THz. La réponse en polarisation verticale nous montre une résonance située à 1 THz. Les résonances sont assez larges confirmant que les facteurs de qualité dans ce type de structure ne sont pas très élevés.

TABEAU 3.1 – Valeurs des fréquences de résonance, des facteurs de qualité extraits de la modélisation des résonances de SRR3 par une lorentzienne selon la polarisation du champ électrique pour la transmission sur un substrat de silicium

Polarisation du champ électrique THz	$\omega_{LC}/2\pi$ (THz)	Q
Horizontale	0.454	~ 14
Horizontale	1.61	1.6
Horizontale	2.59	-
Verticale	0.998	9.9

Pour chaque résonance, quand c'était possible, les facteurs de qualité ont été estimés en modélisant les résonances par une lorentzienne. Ceci a pour but de donner une valeur

7. A cause de la supraconductivité apparaissant à basse température, nous ne souhaitons pas conserver l'aluminium comme métal pour les résonateurs de manière générale.

8. On peut constater sur ces figures que la transmission est parfois supérieure à 1. Cela provient d'une erreur du substrat qui n'était pas haute résistivité apportant des erreurs lors de la normalisation. D'autres mesures ont été effectuées par la suite sur un substrat de silicium haute résistivité poli double-face où les fréquences de résonance observées sur ces premières mesures ont été de nouveau identifiées.

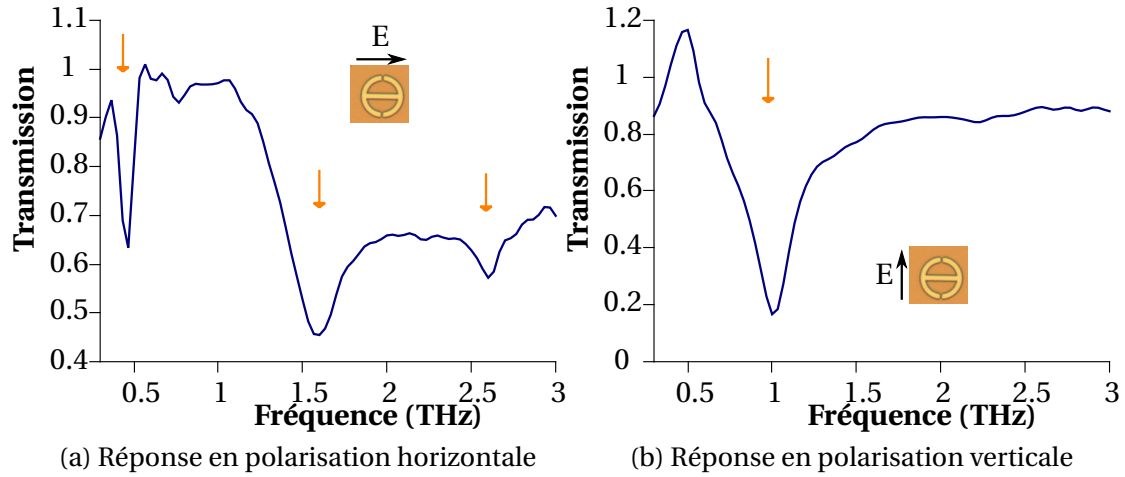


FIGURE 3.2 – Transmission du résonateur SRR3 sur un substrat de silicium haute résistivité avec une polarisation du champ électrique horizontale (a) ou verticale (b) pour des fréquences situées entre 0.3 THz et 3 THz. Les résonances sont indiquées par une flèche orange sur chacune des transmissions.

approchée de ce paramètre. L'ensemble des facteurs de qualité extraits sont présentés dans le tableau 3.1. Les facteurs de qualité que nous trouvons sont de l'ordre de la dizaine pour les deux résonances de plus basse fréquence dus aux dissipations radiative et ohmique importantes dans le terahertz. Cependant, l'article de *Yang et al.* [121] présente le même résonateur avec un facteur de qualité d'environ 4. La résonance à 1.6 THz montre dans les mesures un facteur de qualité autour de 1.6.

Dans le but d'identifier les résonances et de connaître globalement la répartition du champ aux fréquences de résonance, une modélisation du résonateur a été effectuée. La connaissance de la répartition du champ électrique et magnétique est très utile pour déterminer la position de l'objet qui maximise son couplage avec le résonateur. Les logiciels de simulation tels que COMSOL Multiphysics nous permettent d'accéder à la répartition spatiale du champ électrique et magnétique. La simulation a été faite pour un résonateur dans une boîte de $75\mu\text{m} \times 75\mu\text{m}$ avec des conditions aux limites de conductions des champs magnétique et électrique parfaites au bord afin de simuler le métamatériau. Le port de sortie de la simulation a été placé en dessous du substrat de silicium. Les résultats montrent que le mode de plus basse fréquence avec une polarisation horizontale du champ électrique a une résonance située à 0.48 THz. Les simulations montrent aussi un mode situé à 1.04 THz pour une simulation avec un champ électrique orienté verticalement. Ces valeurs sont assez proches de celles que nous avons mesurées par TDS. La norme du champ électrique aux fréquences de résonances dans le plan substrat/air est présenté respectivement dans les figures 3.3a et 3.3b.

La figure 3.3a indique qu'un champ électrique est présent le long de la structure extérieure du résonateur. Le champ est cependant plus intense dans les entrefers du résonateurs où il est concentré (jaune très clair sur la figure). Si nous regardons la décroissance du champ en ces points en s'éloignant du résonateurs, on constate que le champ disparaît au bout de quelques micromètres. Ce mode est le fondamental ou mode "LC" du résonateur mentionné au chapitre 1, qui correspond à la réponse à la fois de l'inductance de la boucle et de la capacité issu des entrefers du résonateur.

La figure 3.3b montre une répartition de la norme du champ électrique totalement

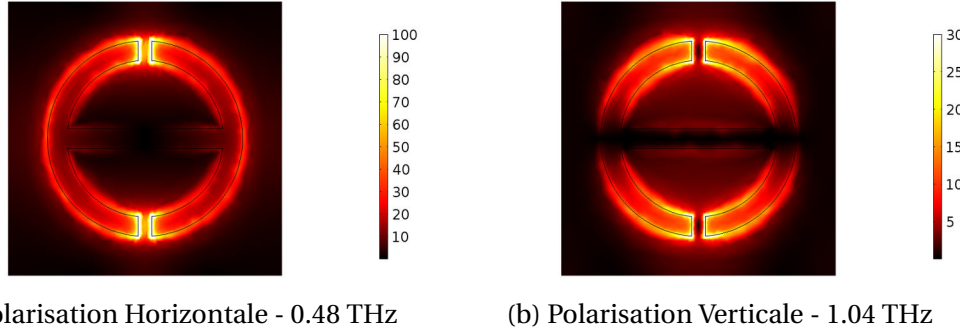


FIGURE 3.3 – Simulation de la réponse en champ électrique du résonateur SRR3 pour les résonances situées à 0.48 THz (a) et 1.04 THz (b). La coupe a été prise à la limite entre le substrat et l'or composant la structure du résonateur. Le champ est en kV/cm.

différente. La réponse du champ est cette fois répartie en deux pôles que nous pouvons observer autour des entrefers du résonateur. Nous pouvons noter que le champ est quasiment inexistant dans l'entrefers du résonateur signalé par une tâche noire au centre. Si nous regardons les valeurs numériques, le champ électrique est 2 à 3 fois moins intense pour le mode apparaissant avec un champ en polarisation verticale que pour le mode LC. Au vu de ces résultats, se coupler au mode LC semble être plus favorable en plaçant notre nanotube de carbone dans l'entrefers du résonateur ou à proximité où la valeur du champ électrique est assez élevée à la résonance.

Dans les mesures présentées dans la dernière partie de ce manuscrit, la boîte quantique est directement connectée avec le résonateur par l'intermédiaire d'une grille supérieure. Toutes les variations de potentiels dues aux résonances seront ressenties par les niveaux électroniques de la boîte quantique permettant d'envisager avec cette structure un couplage à l'ensemble des modes du résonateur. Quelques simulations sur cette configuration sont détaillées dans le paragraphe suivant. Nous avons aussi intégré une source de photons terahertz qui consiste en un fil diffusif de palladium d'une épaisseur de 5 nm⁹. Pour que cette source intégrée à nos échantillons soit couplée le mieux possible aux résonateurs, nous avons effectué quelques modifications en ajoutant des dipôles aux résonateurs SRR3. Cette nouvelle génération se nomme SRR3-DP1 et SRR3-DP2.

3.3.2 Modification de la structure du motif SRR3

Les résonateurs SRR3-DP1 et SRR3-DP2 sont présentés dans les photos prises au microscope 3.4a et 3.4b respectivement. Sur le résonateur SRR3-DP1, deux quarts de cercles métalliques, formant un dipôle, ont été ajoutés au centre duquel se trouve un espace-ment de 1.5 μm dans lequel vient s'insérer notre fil de palladium qui servira de source de photon pour nos mesures de transport. Nous avons choisi de prendre deux quarts de cercle pour maximiser la capacité en regard entre les deux structures et ainsi maximiser l'échange d'énergie avec le résonateur SRR3 d'un objet couplé galvaniquement à ce dipôle¹⁰. L'écart au résonateur SRR3 est de 1 μm . Pour le résonateur SRR – DP2, nous avons

9. Cette source sera décrite dans son contexte au chapitre 4 de ce manuscrit consacré aux résultats des mesures de transport. L'annexe décrit la caractérisation de cette source par des mesures de transport.

10. Nous ne pouvons coupler galvaniquement l'objet au résonateur lui-même car celui-ci est une structure unique avec un seul potentiel. Si nous mettons une différence de potentiel entre deux points du résonateur, l'objet ne sera plus en capacité de résonner.

rajouté un second dipôle avec cette fois une ouverture de $8\ \mu\text{m}$ au centre duquel viendra s'insérer le nanotube de carbone.

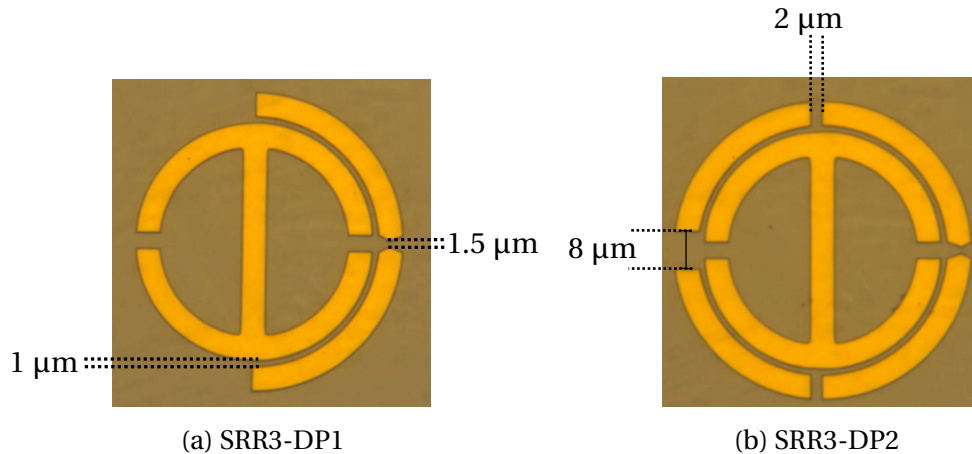


FIGURE 3.4 – Photos prises au microscope des résonateurs SRR3-DP1 (a) et SRR3-DP2 (b)

Pour la caractérisation dans le domaine terahertz, la même technique a été utilisée que pour SRR3 à savoir que nous avons sondé un ensemble de résonateurs aux différences près que ces résonateurs ont été fabriqués en utilisant la lithographie électronique et que ce sont des matrices de 5×5 avec un espacement dans chaque direction de l'espace de $75\ \mu\text{m}$ qui ont été sondés. La référence a été réalisée sur le même morceau de substrat dans une zone sans résonateur. Dans cette configuration, il s'avère qu'une partie du faisceau terahertz ne sonde pas ces résonateurs diminuant la profondeur des pics de résonance. Les conventions de polarisation sont conservées et définies toujours par rapport au résonateur SRR3 à la figure 3.1. Nous nous intéresserons essentiellement aux modes de basse fréquence dans les deux configurations de polarisation.

Les transmissions entre $0.3\ \text{THz}$ et $2\ \text{THz}$ des résonateurs SRR3-DP1 et SRR3-DP2 sont présentées en figure 3.5a et 3.5b respectivement et les résonances sont mentionnées par une flèche marron. Regardons tout d'abord la réponse en polarisation horizontale. Si on compare par rapport à la réponse du résonateur SRR3 présentée à la figure 3.2a, nous observons que la réponse du mode fondamental est toujours présente et se situe à $0.47\ \text{THz}$ et $0.46\ \text{THz}$ pour les résonateurs SRR3-DP1 et SRR3-DP2 respectivement. Cependant, dans ce cas présent, la résonance est plus large que celle du résonateur SRR3 indiquant une modification introduite par les structures dipolaires¹¹. Nous pouvons aussi noter l'atténuation de la résonance à $1.6\ \text{THz}$ aux profits de résonance à plus basse fréquence. Le résonateur SRR3-DP1 a une résonance marquée à $1.15\ \text{THz}$ tandis que le résonateur SRR3-DP2 voit l'apparition de deux résonances à $1.15\ \text{THz}$ et $1.4\ \text{THz}$. La transmission en polarisation verticale du champ électrique terahertz, présentée en figure 3.5b, montre une résonance commune à $0.99\ \text{THz}$, résonance que nous avons déjà observée pour le résonateur SRR3. Le résonateur SRR3-DP2 montre aussi une nouvelle résonance centrée à $1.28\ \text{THz}$. Ces nouvelles résonances sont une conséquence de l'ajout des dipôles autour du résonateur SRR3. Chaque ajout peut être vu comme l'addition d'un circuit résonnant qui se couple avec le résonateur SRR3 et modifie le spectre du résonateur SRR3 en ajoutant ou supprimant les résonances. L'ajout de dipôles ne modifie pas la structure déjà existante du résonateur SRR3 comme on le voit sur les figures 3.5b et 3.5a mais nous avons

11. A l'heure où ce manuscrit est rédigé, une seconde étude est en préparation afin de confirmer cet élargissement et d'étudier la réponse entre $0.15\ \text{THz}$ et $0.3\ \text{THz}$.

maintenant à faire à un spectre plus complexe avec un plus grand nombre de modes susceptibles de se coupler à la boîte quantique.

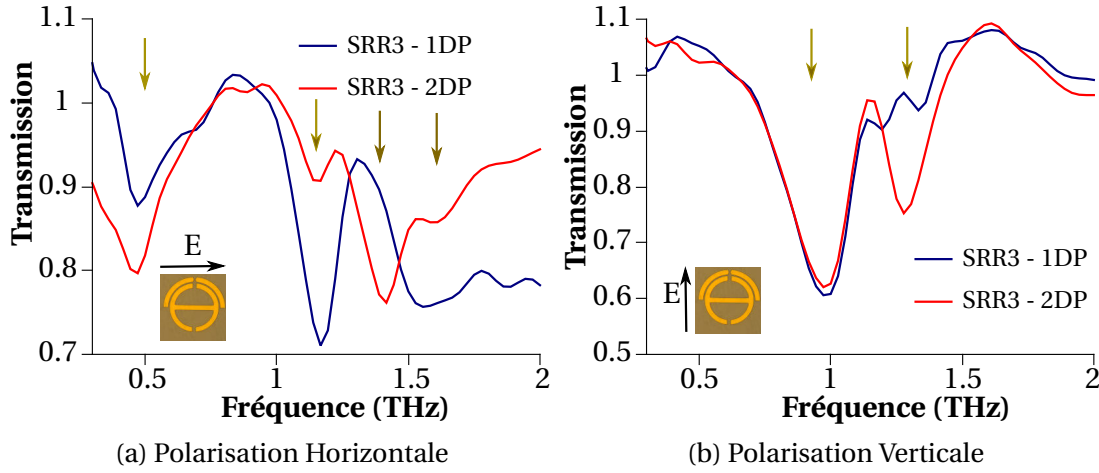


FIGURE 3.5 – Transmission du résonateur SRR3-DP1(en bleu) et SRR3-DP2 (en rouge) en polarisation horizontale (a) ou verticale (b) pour le champ électrique terahertz pour des fréquences situées entre 0.3 THz et 2 THz. Les résonances sont signalées par les flèches marrons pour les deux résonateurs.

TABEAU 3.2 – Valeurs des fréquences de résonance et des facteurs de qualité extraits de la modélisation par une lorentzienne des résonances de SSR3-DP1 selon la polarisation du champ électrique pour la transmission sur un substrat de silicium

Polarisation du champ électrique THz	$\omega_{LC}/2\pi$ (THz)	Q
Horizontale	0.46	2.9
Horizontale	1.18	17
Horizontale	1.6	-
Verticale	0.97	9.9

Les résonances ont été modélisées par des lorentziennes dans le but d'obtenir une estimation du facteur de qualité. Les résultats sont présentés dans les tableaux 3.2 et 3.3. Pour la résonance LC, le facteur de qualité est diminué d'un facteur 4 se rapprochant de ce qui a été observé dans la littérature. La résonance de plus basse fréquence en polarisation verticale montre un facteur de qualité identique au résonateur SRR3. Les nouvelles résonances qui apparaissent ont des comportements différents. La résonance à 1.42 THz en polarisation horizontale montre un facteur de qualité de 17 pour le résonateur SRR3-DP1 tandis que l'estimation du facteur de qualité de la seconde résonance en polarisation verticale du résonateur SRR3-DP2 est de 16. Une possible interprétation est que ces résonances sont de type Fano, i.e. que ce sont des résonances issues d'un couplage entre un continuum d'état et un état discret entre SRR3 et les dipôles ajoutés qui présentent souvent des facteurs de qualité élevés comparés aux autres résonances d'un résonateur [21].

Ce qui nous intéresse c'est de savoir comment les modes fondamentaux sont modifiés. Comme pour SRR3, ces résonateurs ont été modélisés numériquement. Les simulations confirment l'apparition de ces nouveaux modes de résonance par l'ajout des dipôles autour du résonateur SRR3 en plus des modes provenant du résonateur SRR3. Nous allons nous intéresser cependant aux résonances identiques à SRR3 autour de 0.5 THz et 1 THz.

La figure 3.6a nous montre la répartition du champ à la fréquence fondamentale,

TABLEAU 3.3 – Valeurs des fréquences de résonance et des facteurs de qualité extraits de la modélisation par une lorentzienne des résonances de SSR3-DP2 selon la polarisation du champ électrique pour la transmission sur un substrat de silicium

Polarisation du champ électrique THz	$\omega_{LC}/2\pi$ (THz)	Q
Horizontale	0.46	3.2
Horizontale	1.15	-
Horizontale	1.42	3.3
Horizontale	1.6	-
Verticale	0.97	9.9
Verticale	1.28	16

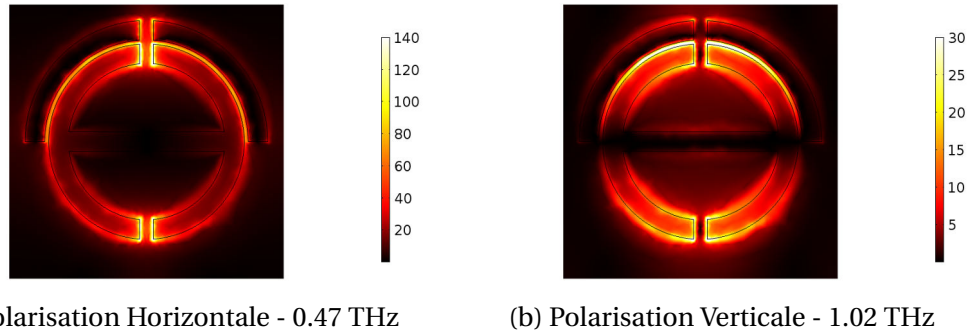


FIGURE 3.6 – Simulation de la réponse en champ électrique du résonateur SSR3-DP1 pour les résonances situées à 1.26 THz (a) et 1.4 THz (b). La coupe a été prise à la limite entre le substrat et l'or composant la structure du résonateur. Le champ est en kV/cm.

$\omega = 0.47$ THz, pour un champ électrique polarisé horizontalement. Nous pouvons constater que le champ électrique se concentre dans l'entrefer du résonateur SRR3 comme sur la figure 3.3a. Cependant, nous pouvons voir aussi un champ électrique de plus faible amplitude apparaître dans l'entrefer de la structure dipolaire. Cela est la conséquence du couplage qui existe entre les deux structures confirmant que nous avons bien une interaction entre le dipôle et le résonateur. Ce couplage explique aussi le léger décalage en résonance que nous avons pour la résonance fondamentale dans les simulations et qui ne peut être distingué expérimentalement de part la résolution fréquentielle du banc de spectroscopie. La figure 3.6b montre la répartition du champ à la fréquence de 1.02 THz lorsque le champ térahertz est polarisé verticalement. Cette fréquence correspond à la fréquence de résonance la plus basse dans cette polarisation du champ électrique térahertz. Identiquement à la figure 3.3b, le champ qui est concentré aux alentours de l'entrefer du résonateur mais sans aucun champ électrique dans les entrefers des deux structures. Nous avons aussi un champ électrique qui est présent de manière assez intense dans l'espacement entre le résonateur SRR3 et le dipôle. Cependant, la structure dipolaire ne semble pas influencer le mode de résonance puisque quasiment aucun champ électrique n'est présent confirmant pourquoi dans les mesures nous ne voyons aucune modification quant au comportement de ce mode dipolaire.

Les figures 3.7a et 3.7b présentent la répartition du champ électrique aux résonances situées à 0.46 THz et 1.03 THz pour le résonateur SSR3-DP2. Les constats que nous pouvons faire sur les figures 3.7a et 3.7b sont identiques en tout point à ce qui a été décrit précédemment pour le résonateur SSR3-DP1. Le couplage existant entre les deux dipôles et le résonateur SRR3 décale légèrement la fréquence de résonance LC dans les simula-

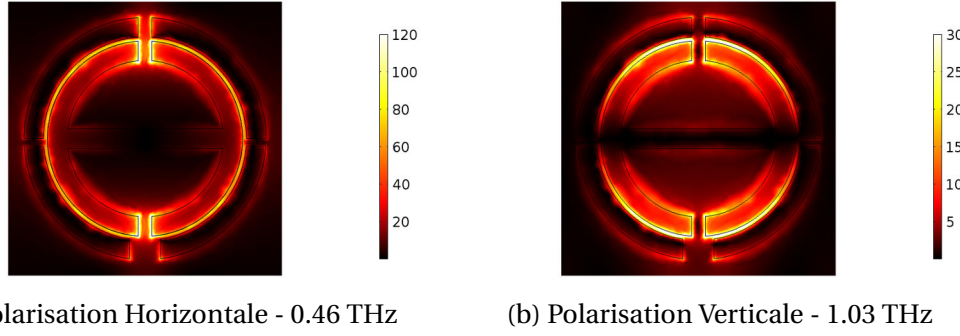


FIGURE 3.7 – Simulation de la réponse en champ électrique du résonateur SRR3-DP1 pour les résonances situées à 1.53 THz (a) et 1.28 THz (b). La coupe a été prise à la limite entre le substrat et l'or composant la structure du résonateur. Le champ est en kV/cm.

tions. La présence de champ électrique dans les entrefers des dipôles ou bien sur les bords confirment l'interaction entre le résonateur et les dipôles avec cependant un effet limité qui est confirmé par la faible répartition du champ dans les structures dipolaires ajoutées sur ces modes. Néanmoins, la présence d'un champ électrique assez intense dans l'espace entre les deux structures et la présence d'un champ électrique dans l'entrefer de la structure dipolaire pour le mode LC montre qu'un objet s'il est placé à cette position pourra interagir avec toute la structure en particulier avec ces deux modes fondamentaux.

3.3.3 Etude de l'influence de la grille supérieure sur les modes du résonateur

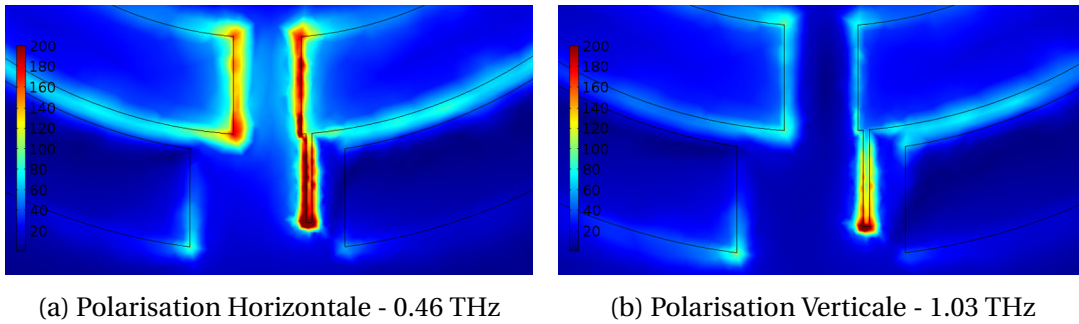


FIGURE 3.8 – Simulation de la réponse en champ électrique du résonateur SRR3-DP2 avec la grille supérieure pour les résonances situées à 0.46 THz (a) et 1.03 THz (b). La coupe a été prise à la limite entre le substrat et l'or composant la structure du résonateur. Le champ est en kV/cm.

Nous avons fait le choix d'un couplage par une grille supérieure sur le nanotube pour maximiser l'interaction entre les photons de la cavité et les niveaux électroniques de la boîte quantique du nanotube de carbone. Cette méthode de couplage a déjà été expérimenté avec succès pour un couplage entre une boîte quantique à base de nanotube de carbone et des photons microondes [124]. Afin de vérifier l'influence de cette grille, une pièce métallique partant du résonateur et allant dans l'entrefer du dipôle comme présenté dans les figures 3.8a et 3.8b a été ajoutée. Même si l'ajout de cette grille sur la simulation ne reflète pas la réalité de l'échantillon, cela donne une idée de l'évolution de la répartition du champ électrique.

Les fréquences de résonance sont très peu influencées par l'ajout de ce morceau mé-

tallique. Nous pouvons observer ici que le champ électrique est fortement concentré à l'extrémité du fil à résonance que ce soit à 0.46 THz et à 1.03 THz comme un effet de pointe. Si nous imaginons une boîte quantique positionnée en dessous de ce fil, de part la concentration du champ électrique aux fréquences de résonance, les électrons piégés dans la boîte quantique ressentiront les fluctuations du champ électrique si toutefois le couplage entre la boîte quantique et la grille est suffisamment élevé pour être perçu lors des mesures de transport électronique et ce pour chaque mode de la cavité. L'ajout de ce fil nous permet en théorie de s'affranchir de la position dans la cavité puisque le champ électrique se concentre dans les deux résonances sur l'extrémité du fil métallique¹².

3.4 Influence du substrat sur la résonance d'une cavité

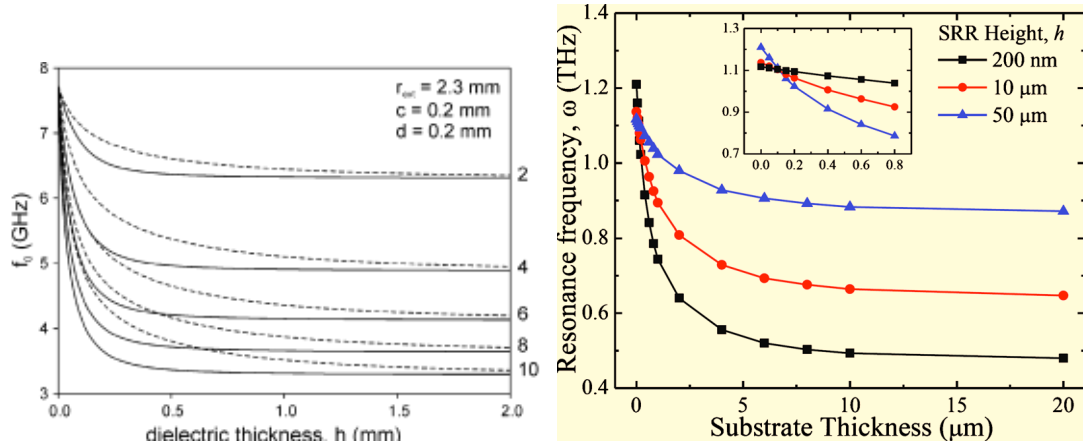
Le choix et l'épaisseur du substrat qui doit être utilisé pour les échantillons est assez crucial à la fois pour la fabrication elle-même et pour la répartition spatiale des champs électrique et magnétique au sein de la structure à la résonance terahertz. Le substrat qui est utilisé est du silicium haute résistivité d'une épaisseur de 500 μm adapté pour les mesures de transport électronique en DC. Cependant, une question ouverte est de savoir si ce substrat est adapté pour les études aux fréquences terahertz. Une étude préliminaire est proposée où nous avons étudié la transmission du résonateur SRR3 sur un autre substrat d'une vingtaine de micromètre, le Topas, et nous l'avons comparé à celle obtenue sur substrat de silicium.

3.4.1 Dépendance du mode en fonction du substrat

La dépendance de la fréquence de résonance pour les SRR en fonction des paramètres du substrat a déjà été étudiée au travers de simulations numériques et de quelques expériences dans les microondes et dans le terahertz. Dans leur article, *Baena et al.* [125] montrent sur la figure 6 (a) tracée à la figure 3.9a que la fréquence de résonance a une forte dépendance à la fois en fonction de la valeur de la permittivité diélectrique et de l'épaisseur du substrat. Ces résultats ont été confirmés et observés toujours dans les microondes par *Sheng et al.* [127]. La modification de l'épaisseur du substrat modifie la valeur de la permittivité relative ressentie par le mode du résonateur. Pour de fortes épaisseurs, nous voyons que la fréquence de résonance ne dépend plus que de la valeur du diélectrique sur lequel le résonateur est fabriqué. Ainsi, le substrat sur lequel nous fabriquons le résonateur peut modifier la fréquence de résonance. Ces investigations ont été confirmées dans le terahertz à travers la publication de *Chiam et al.* [126] qui ont montré numériquement ce même comportement. Dans la figure 2 de leur article présenté en figure 3.9b, ils montrent une courbe de dépendance de la fréquence de résonance en fonction de l'épaisseur du substrat de silicium et de la hauteur de la structure résonante en or. La courbe atteint une valeur de fréquence de résonance constante dès que l'épaisseur du substrat est suffisamment grande identiquement à la figure 3.9a.

Ces deux articles montrent la dépendance forte qu'il existe pour des structures comme des SRR sur la fréquence de résonance. Cependant, nous pouvons nous poser la question

12. L'étape suivante serait de modéliser l'ensemble des électrodes afin de prendre en compte leur influence sur la résonance et sur le mode lui-même. Cependant, la structure à modéliser est très grande et requiert des compétences plus avancées que celles développées dans le cadre de ces travaux.



(a) Figure 6 (a) extraite de l'article de *Baeana et al.* [125] montrant la dépendance de la fréquence de résonance LC en fonction de l'épaisseur du substrat et différentes valeurs de permittivité diélectrique indiquées à droite.

(b) Figure 2(a) issue de l'article de *Chiam et al.* [126] montrant la dépendance de la fréquence de résonance LC en fonction de l'épaisseur du substrat et de l'épaisseur de la structure résonnante

FIGURE 3.9 – Dépendance de la fréquence de résonance du mode en fonction du substrat

de savoir si le changement de substrat peut aussi améliorer le confinement du mode afin d'améliorer le facteur de qualité. Dans notre cas, nous allons comparer le SRR3 sur un substrat de silicium haute restructivité de 1 mm, substrat utilisé pour nos mesures en transmission, et un substrat de topas d'épaisseur 20 μm et nous intéresser à la fois au changement de la fréquence de résonance et à la structure du champ électrique dans l'entrefer du résonateur.

3.4.2 Mesures en transmission du résonateur SRR3 sur topas

Le topas a été choisi car c'est un matériau qui présente des propriétés d'absorption plus faibles que le silicium dans le térahertz [128, 52]. Son indice de réfraction se situe autour de 1.525 et est constant sur toute la gamme térahertz. Une photographie de l'échantillon est présentée en figure 3.10. Le procédé de fabrication est présenté dans le chapitre lié à la fabrication des échantillons.

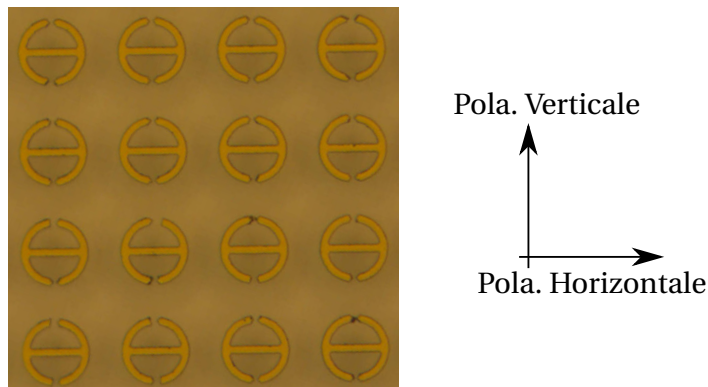


FIGURE 3.10 – Image prise au microscope optique du métamatériau sur topas composé des résonateurs SRR3

Les figures 3.11a et 3.11b présentent les transmissions des résonateurs sondés avec un champ polarisé horizontalement et verticalement. Nous pouvons identifier sur la figure 3.11a une résonance à 0.96 THz et sur la figure 3.11b une résonance autour de 2.1 THz. Ces résonances correspondent aux résonances les plus basses dans chaque polarisation que nous avons identifiées sur le substrat de silicium précédemment. Une lorentzienne a été utilisée pour modéliser les résonances afin d'en extraire les facteurs de qualité.

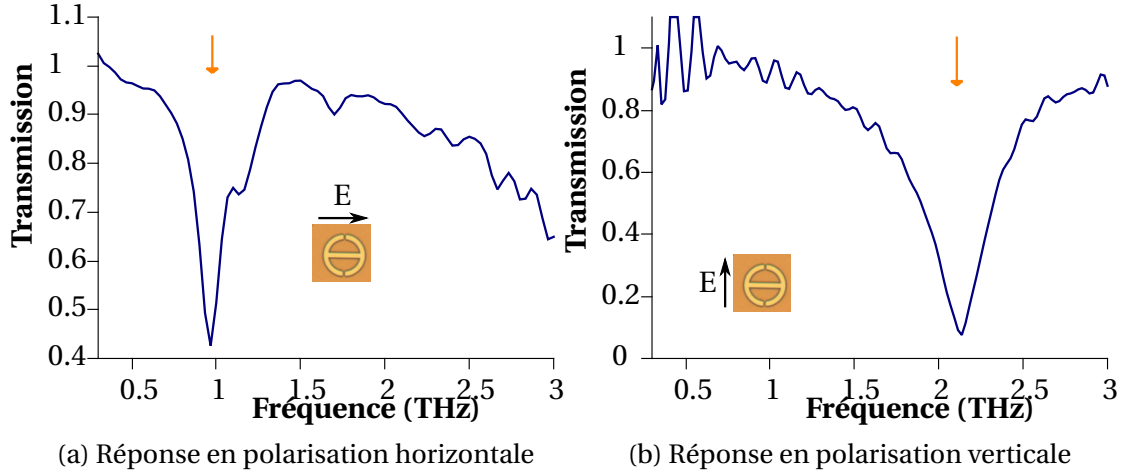


FIGURE 3.11 – Transmission du résonateur SRR3 sur un substrat de topas avec une polarisation horizontale du champ (fig (a)) et une polarisation verticale du champ (fig (b)). Les résonances sont signalées par une flèche orange.

TABLEAU 3.4 – Valeurs des fréquences de résonance, des facteurs de qualité et de la résistance extraites de la modélisation de SSR3 selon la polarisation du champ électrique pour la transmission sur un substrat de Topas

Polarisation du champ électrique THz	$\omega_{LC}/2\pi$ (THz)	Q
Horizontale	0.976	3.8
Verticale	2.11	7.5

Les paramètres extraits pour les modélisations sont présentés dans le tableau 3.4. Les fréquences de résonance sont décalées d'environ un facteur 2 par rapport à la résonance du silicium confirmant les prédictions numériques des articles de *Chiam et al.* et *Baena et al.* [125, 126]. Ce décalage est issu du changement d'indice de réfraction effectif par le changement de substrat. On peut calculer l'indice effectif en considérant qu'à l'endroit où le mode est piégé (i.e. à l'interface air/substrat), la permittivité est la moyenne des permittivités de l'air et du substrat, ce qui donne respectivement dans les deux cas¹³ $n_{\text{eff,Si}} \sim 2.52$ et $n_{\text{eff,Topas}} \sim 1.28$ ¹⁴. Le rapport des deux indices effectifs est de 1.97 or le rapport des résonances est de 2.08 pour le mode LC et 2.13 pour l'autre mode. On trouve ainsi une valeur proche entre les deux rapports. Une valeur plus précise pourrait être apportée avec une meilleure description de l'indice effectif prenant en compte réellement l'épaisseur du substrat.

13.

$$n_{\text{eff}} \approx \sqrt{\frac{\epsilon_{\text{air}} + \epsilon_{\text{sub}}}{2}}$$

où ϵ_{air} et ϵ_{sub} sont les permittivités de l'air et du substrat.

14. L'or à faible épaisseur n'a aucun impact direct si ce n'est pour contraindre l'existence du mode. Cela est d'autant plus vrai que l'épaisseur de l'or est inférieure à l'épaisseur de peau dans le térahertz qui est de quelques micromètres

Les facteurs de qualité du mode LC et du mode dipolaire sont du même ordre de grandeur que dans le cas du silicium. Le changement pour un substrat plus fin ($20\mu\text{m}$) qui présente des propriétés d'absorption plus faible pour les ondes térahertz ne modifie pas le comportement des modes pour les structures de type SRR étudié dans ce manuscrit. Malgré des propriétés d'absorption plus faibles, le topas et le silicium présentent des pertes diélectriques similaires telles que $\tan\delta \approx 1 \times 10^{-3}$ [128, 52]¹⁵. Cela peut expliquer qualitativement pourquoi les facteurs de qualité sont identiques. Cependant, de part ses propriétés, il serait intéressant d'étudier le comportement de cavité de type $\lambda/2$ sur ce type de substrat et d'observer si une résonance est observable avec un facteur de qualité équivalent aux SRRs.

3.5 Conclusion

Nous avons caractérisé le résonateur SRR3 et estimé les facteurs de qualité des résonances. Les facteurs de qualité estimés étaient autour de la dizaine confirmant les pertes importantes dans ce domaine de fréquence. Sur un substrat de silicium, la fréquence fondamentale est autour de 0.5 THz soit 2 meV et un facteur supérieur à 1 correspondant à la valeur que nous avons fixée pour l'étude de l'interaction lumière-matière. Cette structure a été modifiée pour améliorer le contrôle du champ et le couplage avec la cavité par l'ajout de dipôles et leurs caractérisations ont montré un spectre plus complexe que celui de SRR3 avec notamment un élargissement de la résonance du mode LC. Le résonateur SRR3 a aussi été étudié sur un substrat de topas. Le décalage des résonances a été observé dû au changement d'indice effectif avec des facteurs de qualité identiques. Cependant, un meilleur confinement du mode n'a pas été démontré pour les structures type SRR.

Le résonateur que nous avons utilisé pour l'étude du couplage est le résonateur SRR3-DP2 avec un nanotube de carbone connecté au résonateur par une grille supérieure. Nous allons détailler dans le chapitre suivant les premiers résultats expérimentaux de la mesure d'un nanotube de carbone dans une cavité térahertz.

15. Plus précisément, on a pour le Topas une tangente des pertes $\tan\delta \approx 5 \times 10^{-4}$ [129]

Chapitre 4

Premiers résultats expérimentaux du couplage entre la cavité térahertz et la boîte quantique

Sommaire

4.1	Introduction	92
4.2	Etude des niveaux électroniques	93
4.2.1	Etude statistique des niveaux du diagramme de stabilité	93
4.2.2	Etude des niveaux dans des zones du diagramme de stabilité	94
4.2.3	Modélisation des niveaux avec la théorie des états habillés	97
4.3	Influence du fil diffusif	100
4.3.1	Description de la source	100
4.3.2	Effet On/Off du fil diffusif	101
4.4	Modulation des niveaux d'énergie	103
4.4.1	Evénement tunnel assisté par des photons	103
4.4.2	Modulation de l'élargissement de niveau Γ	105
4.4.3	Discussion autour de la valeur de $\hbar\omega_0$	107
4.5	Conclusion	108

4.1 Introduction

Nous allons maintenant développer les mesures de transport effectuées afin d'étudier plus en détail l'interaction entre la boîte quantique et la cavité térahertz et qui sont l'objet de cette thèse. Les mesures qui sont présentées proviennent de la caractérisation de l'échantillon THz-DCB-NT-02/1a. .

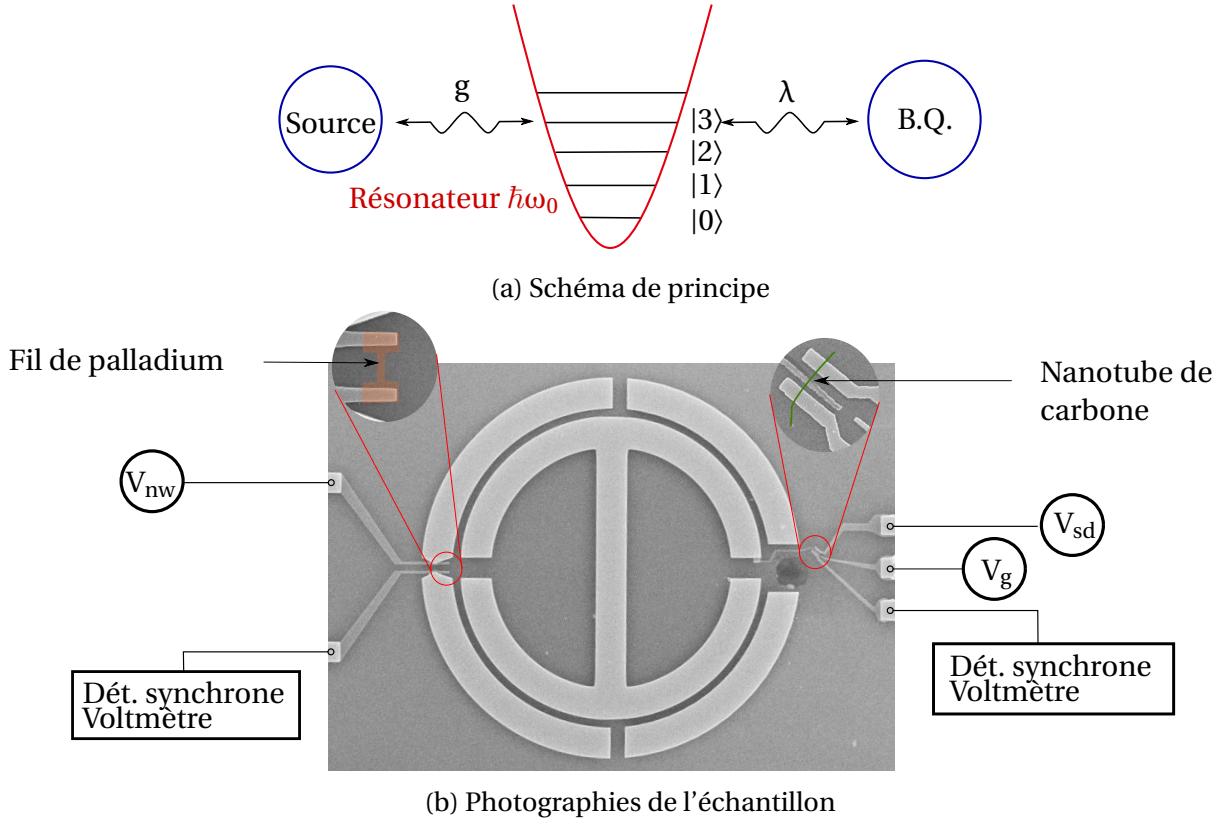


FIGURE 4.1 – Schéma de principe de l'expérience (a) et photographies de l'échantillon avec les différentes connexions aux appareils et source de tension. g est le couplage entre la source et le résonateur et λ est le couplage entre la boîte quantique et le résonateur. Les deux sont des valeurs sans dimensions.

Un schéma de principe et une photographie de l'échantillon sont présentés à la figure 4.1a et 4.1b afin de rappeler toutes les notations utilisées pour ce chapitre. À gauche est positionnée la source qui est composée d'un fil diffusif en palladium. Nous appliquons une tension V_{nw} sur ce fil afin de modifier les potentiels chimiques des électrodes. Le couplage entre le fil et la cavité est caractérisé par g . De l'autre côté, nous avons notre nanotube de carbone en régime de boîte quantique dont les potentiels des électrodes sont contrôlés par la tension V_{sd} . Le potentiel chimique des niveaux électroniques est piloté par la tension V_g . Le couplage à la cavité qui s'effectue par l'intermédiaire d'une grille supérieure sur le schéma est caractérisé par λ . Cette cavité a été caractérisée par mesure térahertz au chapitre précédent et a montré une fréquence fondamentale - qui est une résonance du type LC - autour de $\omega_0 = 0.47$ THz soit une énergie de 1.95 meV. L'étude du couplage s'effectue par l'intermédiaire de mesures de courant et de conductance. Les premières mesures ont montré que cet échantillon est dans un régime de blocage de Coulomb. Nous verrons par la suite que nous pourrions identifier les diamants sur les diagrammes de stabilité. L'énergie de charge de cet échantillon est de l'ordre de la dizaine de

milliélectronvolt (meV) et l'espacement de niveaux est du même ordre de grandeur, justifiant l'étude de ces échantillons dans le domaine térahertz.

Dans ce chapitre, une étude statistique des niveaux électroniques puis une étude des niveaux dans certaines zones précises seront effectuées dans un premier temps. Ces études seront suivies d'une discussion dans l'hypothèse d'états habillés par la cavité. Ensuite, nous analyserons comment le fil diffusif influence les états électroniques de la boîte. Nous terminerons par donner une interprétation un peu plus générale des phénomènes observés sur cet échantillon et quelques pistes d'étude pour la suite.

4.2 Etude des niveaux électroniques

Nous allons tout d'abord étudier les différents niveaux d'énergie du spectre de la boîte en maintenant la tension appliquée sur le fil diffusif à 0 mV. Nous sommes dans la situation où il n'y a aucun photon dans la cavité à l'origine. C'est donc dans une configuration à faible nombre de photons. Au chapitre 1, nous avons vu que la réponse attendue était l'apparition de niveaux électroniques habillés par les photons de la cavité. L'espacement entre deux de ces niveaux est donnée par l'énergie du photon de la cavité $\hbar\omega_0$. Pour observer cela dans le diagramme de conductance, deux stratégies s'offrent à nous,

1. Nous pouvons recenser les différents niveaux d'énergie et regarder l'espacement en énergie des différents niveaux. Ensuite nous pouvons regrouper ces différents espacements dans un histogramme. L'apparition de niveaux habillés doit se manifester par l'apparition d'un pic à la l'énergie du photon présent dans la cavité térahertz . Cette stratégie a été adaptée par *Pasupathy et al.* afin de démontrer le couplage de leurs molécules carbonées à des modes de vibrations [40].
2. Nous pouvons aussi nous concentrer sur les différentes zones présentant des niveaux d'énergie régulièrement espacés. Si ce sont des niveaux habillés, nous devrions voir une atténuation du blocage de Coulomb et des pics de conductance répartie selon une loi poissonnienne comme il a été observé dans l'article de *Leturcq et al.* et de *Ganzhorn et al.* [38, 130].

4.2.1 Etude statistique des niveaux du diagramme de stabilité

Nous allons tout d'abord étudier le diagramme de stabilité. Étudier le spectre de la boîte de cette manière peut représenter un intérêt afin d'identifier les espacements de niveaux caractéristiques que nous avons et de préparer l'étude de certaines zones particulières du diagramme de stabilité que nous détaillerons dans le paragraphe suivant.

La figure 4.2a présente un diagramme de stabilité en conductance. Nous avons mesuré la conductance de la boîte quantique en faisant varier la tension de grille V_g entre 0 V et 1.2 V, et, la tension de polarisation V_{sd} entre -8 mV et 8 mV. Nous pouvons observer les diamants de Coulomb similaires à la description théorique présentée dans la deuxième partie du chapitre 1. Une flèche jaune a été représentée pour mettre en évidence l'énergie de Coulomb E_c qui se situe autour de 10 meV soit une capacité totale $C_\Sigma = q^2/E_c \approx 10$ aF. Entre les diamants, nous avons des zones où le courant est non nul. Ces zones présentent différents niveaux d'énergie qui sont recensés à la fois pour les zones de courant à tension

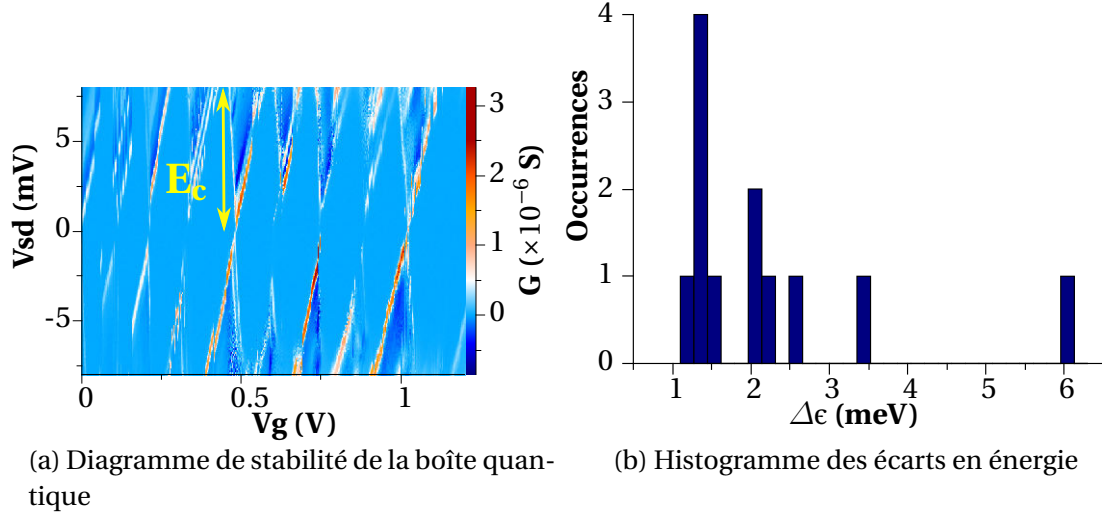


FIGURE 4.2 – Etude des niveaux du diagramme d'énergie d'un diagramme de stabilité et histogramme des niveaux. La figure (a) présente le diagramme de stabilité en conductance de la boîte quantique pour $V_g \in [0 \text{ V}, 1.2]$ et $V_{sd} \in [-8 \text{ mV}, 8 \text{ mV}]$. En (b), histogramme des écarts entre les différents niveaux d'énergie $\Delta\epsilon$ recensés mettant en évidence un pic à 1.3 meV. L'énergie de coulomb de la boîte quantique, mise en évidence par une double flèche jaune se situe autour de 10 meV.

de polarisation positive et négative. L'espacement de niveaux $\Delta\epsilon$ est calculé entre deux niveaux successifs se situant dans une même zone en utilisant l'échelle d'énergie donnée par qV_{sd} ¹.

Un histogramme a été tracé à la figure 4.2b afin de rendre compte du nombre d'occurrences des espacements de niveau. L'amplitude de classe de l'histogramme est prise à 0.2 mV qui est une estimation de l'erreur que nous faisons lors du recensement des niveaux. Nous pouvons observer tout d'abord que nous n'avons pas beaucoup de niveau malgré la visualisation de 8 diamants de Coulomb sur la figure 4.2a. Nous remarquons que certains espacements de niveau sont situés entre 1.3 mV et 1.5 mV où le nombre d'occurrences monte à 4. Si nous regardons à proximité de cette énergie, il y a deux occurrences pour des niveaux séparés de 2 mV. Par contre aucune occurrence pour des espacements de niveau entre 1.5 mV et 2 mV n'est comptabilisée. Nous ne pouvons conclure de manière définitive sur un couplage ou non avec la cavité en utilisant cette méthode. Nous allons donc explorer la deuxième méthode en nous attardant sur quelques zones précises du spectre qui présentent une série de niveaux électroniques régulièrement espacés.

4.2.2 Etude des niveaux dans des zones du diagramme de stabilité

Quelques zones qui présentent des niveaux d'énergie régulièrement espacés. Ces zones sont assez localisés dans le diagramme de stabilité et nous n'observons pas cette régularité de la répartition des niveaux comme dans le cas d'un nanotube de carbone suspendu couplé à des modes de phonon [38]. Dans cette partie sont présentées deux zones particulières qui montrent cette particularité. Elles se nomment zone 36 et zone 41 et ces dé-

1. Pour rappel, la tension appliquée donne directement la différence de potentiel chimique entre les deux électrodes L et R de la boîte quantique. Ce potentiel chimique est à comparer avec le potentiel chimique du niveau électronique de la boîte ce qui nous permet d'avoir la répartition énergétique des niveaux d'énergie en utilisant comme échelle d'énergie la tension de polarisation qV_{sd} .

nomination seront conservées dans ce chapitre. Nous allons analyser dans chaque zone la répartition des niveaux en recensant leur position et leur énergie et observer si l'amplitude de ces niveaux suit une loi de Poisson qui sont deux signatures qui caractérisent les états habillés tels qu'ils sont décrits dans le chapitre 1.

I. Zone 036

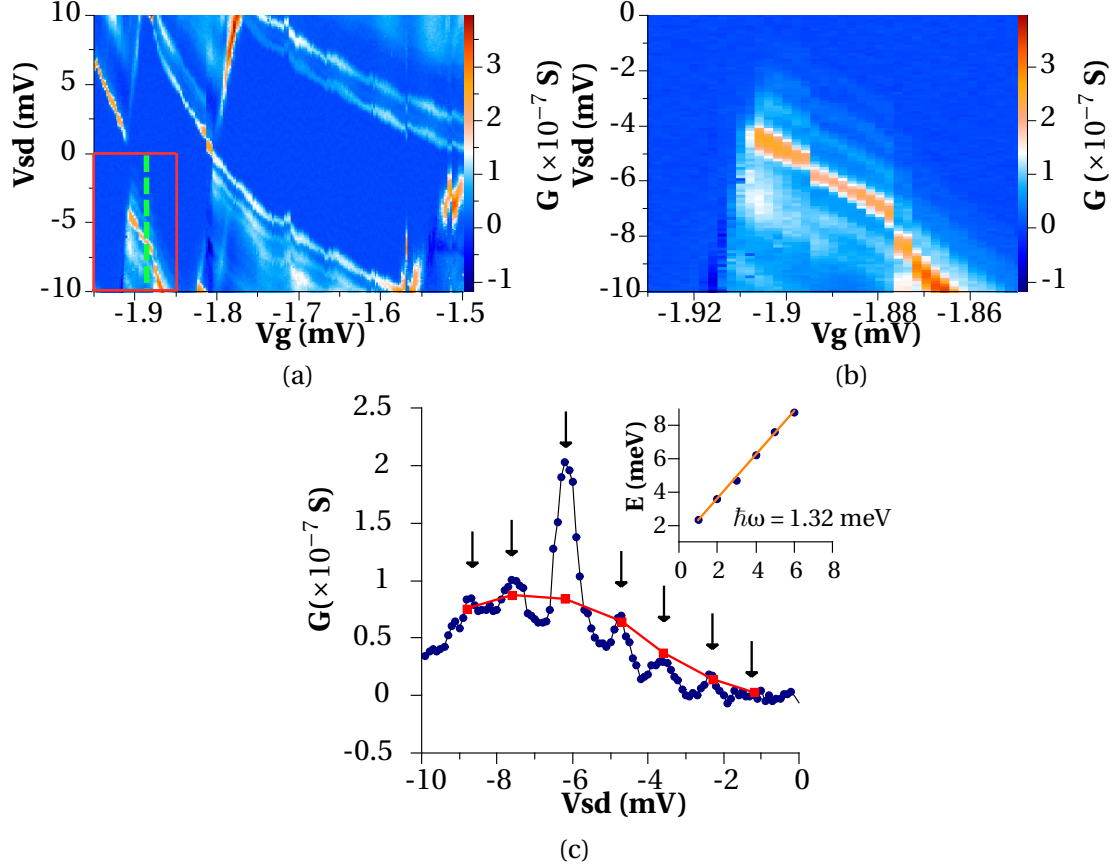


FIGURE 4.3 – Diagramme de stabilité de la zone 36. En (a) est présenté le diagramme de stabilité pour $V_g \in [-1.945 \text{ V}, -1.5 \text{ V}]$ et $V_{sd} \in [-10 \text{ mV}, 10 \text{ mV}]$. La figure (c) est un agrandissement de la zone signalée par un encadré rouge sur la figure (a) et montrant des niveaux régulièrement espacés. Une coupe a été faite en $V_g = -1.875 \text{ V}$ signalée en vert sur la figure (a) et présentée à la figure (b). La courbe rouge est une loi de Poisson $e^{-\lambda} \lambda^n / n!$ avec comme paramètre $\lambda \approx 5.2$. En encart est représenté la position des niveaux en fonction de l'énergie qui suit une loi linéaire de coefficient 1.32 meV .

Le diagramme de stabilité de la zone 36 est présenté à la figure 4.3a ; nous avons mesuré la conductance pour une tension de grille V_g variant entre -1.948 V et -1.5 V et une tension de polarisation V_{sd} variant entre -10 mV et 10 mV . Dans les zones de courant (i.e. hors des diamants de Coulomb) se situant dans les parties où V_{sd} est négative, nous pouvons observer l'apparition de plusieurs niveaux d'énergie. En particulier, un agrandissement a été fait à la figure 4.3b de la zone se situant entre $V_g = -1.93 \text{ V}$ et $V_g = -1.85 \text{ V}$ pour une tension de polarisation se situant entre 0 et -10 mV signalé en rouge sur la figure 4.3a. Une coupe en $V_g = -1.875 \text{ V}$ pour V_{sd} compris entre -10 mV et 0 mV est exposée à la figure 4.3c du panel. Nous pouvons noter que dans la même zone de grille dans la partie où V_{sd} est positive, ces niveaux sont moins identifiables voire totalement absents. Les diamants se déforment dans certaines parties du diagramme de stabilité qui peuvent s'expliquer par localement un changement de couplage entre la grille et la boîte quantique. Une zone

comparable est observable entre $V_g = -1.85$ V et $V_g = -1.55$ V mais les niveaux n'apparaissent pas aussi clairement que dans l'agrandissement à la figure 4.3b.

Intéressons-nous aux figures 4.3b et 4.3c. Nous pouvons visualiser sur la figure 4.3b une succession de niveaux qui semblent régulièrement espacés. Nous ne distinguons pas sur cette figure le point de dégénérescence à $V_{sd}=0$ V et de fait nous ne pouvons visualiser le niveau électronique fondamental. En revanche, nous pouvons aussi observer l'apparition de conductance différentielle négative autour de $V_g=-1.92$ V pour une tension de polarisation proche de -10 mV. Afin de mieux caractériser les niveaux électroniques de la boîte, intéressons-nous à la coupe en figure 4.3c. Nous pouvons visualiser les différents niveaux d'énergie signalés par les pics de conductance et mis en évidence par des flèches noires. Le niveau fondamental n'est pas clairement visible mais a été ajouté en extrapolant le comportement des niveaux d'énergie. On distingue en revanche les autres niveaux électroniques situés à $V_{sd}=-2.4$ mV, -3.6 mV, -4.7mV, -6.2 mV, -7.6 mV et -8.8 mV. Dans l'encart en haut à droite de la figure a été tracé l'énergie du pic en fonction de sa position en définissant la position 0 pour le fondamental. La répartition suit une loi linéaire dont le coefficient directeur est $\hbar\omega = 1.32$ meV, l'écart moyen entre les niveaux et montrant que ces niveaux sont régulièrement espacés. En rouge a été tracée une loi de Poisson de la forme $e^{-\lambda}\lambda^n/n!$ où n réfère à la position et λ est le paramètre de la loi de Poisson. Le courbe rouge suit la répartition des amplitudes de conductance, à l'exception du niveau $n = 5$ qui présente une conductance largement plus élevée que la distribution de cette loi le prédit. Le paramètre λ de la loi qui suit la courbe rouge est 5.2. Si on omet le pic à $n = 5$, l'accord entre la courbe rouge et les pics de conductance est plutôt bon et suit bien une loi de Poisson.

II. Zone 041

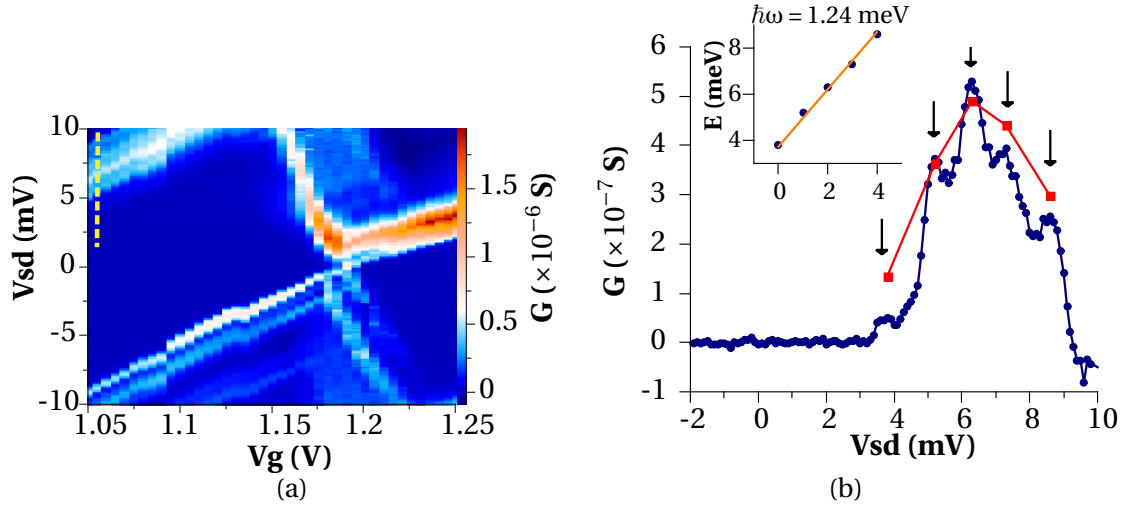


FIGURE 4.4 – Diagramme de stabilité de la zone 41. En (a) est présenté le diagramme de stabilité pour $V_g \in [1.05 \text{ V}, 1.25 \text{ V}]$ et $V_{sd} \in [-10 \text{ mV}, 10 \text{ mV}]$. Une coupe a été effectuée signalée en jaune sur la figure (a) en $V_g = 1.055$ V présentée à la figure (b). La courbe rouge est une loi de Poisson $e^{-\lambda}\lambda^n/n!$ avec comme paramètre $\lambda \approx 2.7$. En encart est représenté la position des niveaux en fonction de l'énergie qui suit une loi linéaire de coefficient 1.24 meV.

La figure 4.4a présente le diagramme de stabilité de la zone 41. Pour cette mesure, nous avons mesuré la conductance pour des tensions de grille V_g variant entre 1.05 V et 1.25 V et une tension de polarisation V_{sd} variant entre -10 mV et 10 mV. Nous visualisons en partie un diamant de Coulomb et de nouveaux plusieurs états excités à l'extérieur du diamant. La partie de cette zone que nous allons étudier se situe en haut du diamant de

Coulomb compris entre $V_g=1.05$ V et $V_g=1.15$ V. Cette zone possède plusieurs états excités et qui ressemblent un peu à ce que nous avons observé dans la zone 36 mis en évidence par la coupe 4.4b. Cependant, il est à noter que les autres parties de cette zone présentent aussi des états excités mais dont la répartition n'est pas aussi claire que ce que montre la coupe 4.4b.

Afin de mieux visualiser ces différents niveaux, nous avons effectué une coupe entre $V_{sd}=0$ mV et $V_{sd}=10$ mV présentée à la figure 4.4b. Les différents états excités que nous visualisons sont situés en $V_{sd}=3.8$ mV, 5.2 mV, 6.3 mV, 7.4 mV et 8.6 mV. La différence par rapport à la zone analysée précédemment est que les écarts en énergie semblent plus disparates, nous avons soit 1.4 mV ou 1.1 mV. Nous avons résumé dans l'encart en haut à gauche de la figure 4.4b l'énergie en fonction de la position des pics. La distribution est linéaire et le coefficient directeur, donnant l'espacement moyen entre les niveaux, est $\hbar\omega = 1.24$ meV inférieur au coefficient trouvé précédemment de 0.08 meV. Les amplitudes des pics de conductance ont été modélisées par une loi de Poisson, tracée en rouge sur la figure 4.4b avec comme paramètre $\lambda \approx 2.7$. L'accord est un peu moins bon entre la loi et les amplitudes des pics qu'à la figure 4.3c cependant, la tendance de la loi de Poisson est suivie par l'ensemble des pics.

4.2.3 Modélisation des niveaux avec la théorie des états habillés

Les deux zones montrent à la fois des niveaux régulièrement espacés et des répartitions des pics de conductance qui suivent un loi de Poisson. Afin de vérifier si ces niveaux pouvaient être issus d'un couplage avec un mode bosonique, nous avons modélisé la conductance en utilisant la théorie développée dans le chapitre 1 issu de l'article de *Braig et al.* [59] pour les deux coupes 4.3c et 4.4b². Commençons avec la zone 36 où le résultat de la modélisation est présenté à la figure 4.5a en orange. Les paramètres utilisés $\Gamma_L = \Gamma_R = 1.1 \times 10^{-3}$ meV, $\hbar\omega_0 = 1.33$, $\lambda = 5.2$ et $Q = 12$ et $k_b T \rightarrow 0$. Tout d'abord, nous pouvons remarquer que la périodicité des pics est en accord avec la mesure effectuée. Nous pouvons remarquer que le pic situé autour de $V_{sd}=-4.7$ mV est légèrement décentré par rapport à ce que prédit le calcul théorique qui peut s'expliquer par un facteur de qualité assez large. Dans un second temps, si nous comparons l'amplitude des pics entre la modélisation et la théorie, nous pouvons noter un bon accord pour les 3 premiers pic - en partant de $V_{sd} = 0$ mV - et les deux derniers comme observé avec la loi de Poisson. Nous pouvons toutefois remarquer une différence notable d'un facteur 2 entre le modèle et la mesure pour le quatrième pic. Pour expliquer cela, nous envisageons l'existence d'un niveau électronique de la boîte à cette position avec donc un terme de courant supplémentaire et une contribution supplémentaire pour la conductance.

Si nous regardons de plus près les paramètres de la modélisation, les valeurs Γ sont très faibles comparées à l'énergie de charge et l'espacement de niveau corroborant le fait que nous ayons une boîte isolée. Cependant, elles ne semblent pas correspondre à l'élargissement de niveau tel qu'il est observable sur le diagramme de stabilité à la figure 4.3a. Cela provient du couplage avec le mode qui a un facteur de qualité fini et qui se manifeste dans la largeur à mi-hauteur des pics³. La valeur du couplage trouvée $\lambda=5.2$ s'explique

2. Ce modèle a été utilisé par *Weig et al.* [41] afin de modéliser l'interaction d'un électron unique avec un phonon dans une cavité phononique avec un facteur de qualité fini.

3. Le couplage avec un mode quelconque ouvre une voie supplémentaire de dissipation du système qui se manifeste sur les états de la boîte quantique par cet élargissement de niveau.

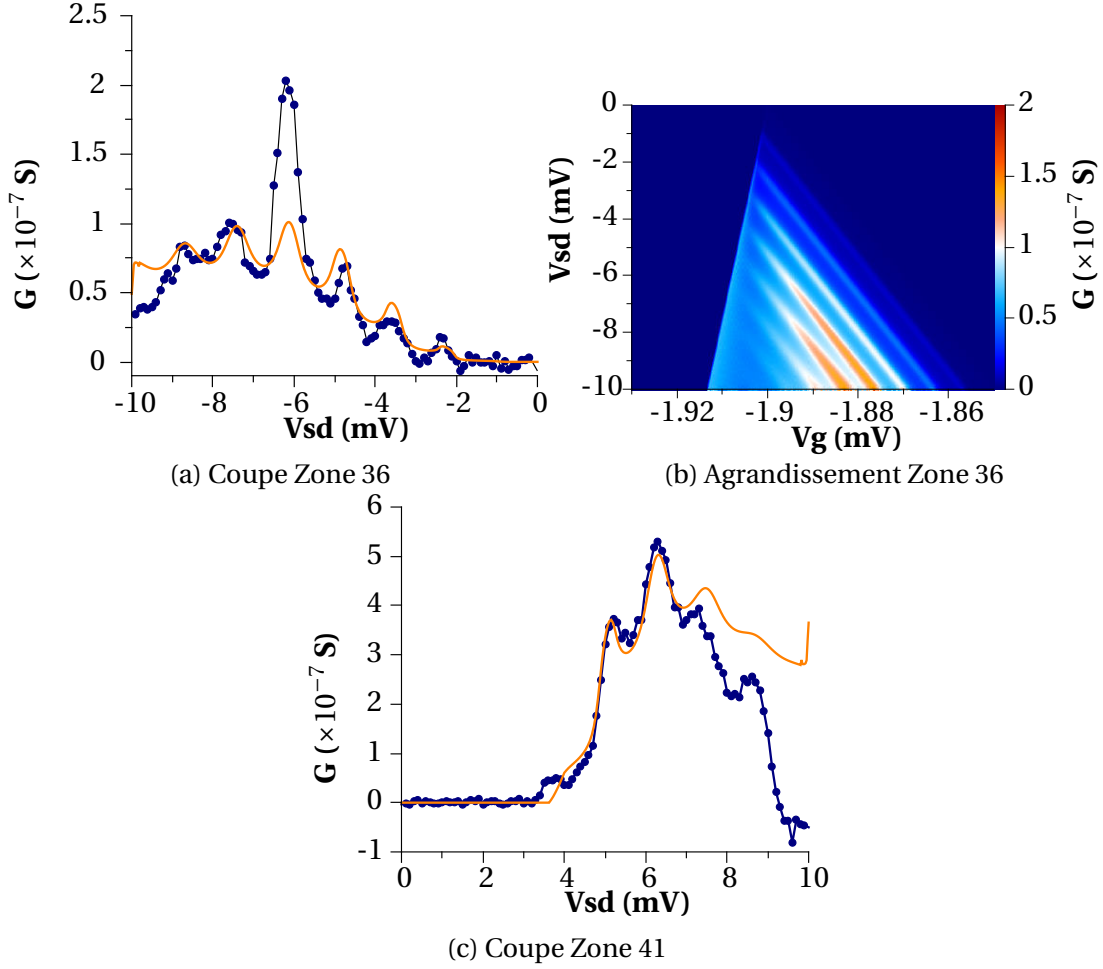


FIGURE 4.5 – Modélisation des niveaux avec la théorie des états habillés. **Zone 36** En (a), modélisation de la coupe 4.3c en utilisant comme paramètre $\Gamma_L = \Gamma_R = 1.1 \times 10^{-3}$ meV, $\hbar\omega_0 = 1.33$ meV, $\lambda = 5.2$ et $Q = 12$. Une modélisation de l'agrandissement 4.3b a été effectuée en figure (b) avec les mêmes paramètres, mais en utilisant un couplage nul avec la cavité pour les événements tunnel de l'électrode de droite $\lambda_r \rightarrow 0$. **Zone 41** Modélisation de la coupe 4.4b en (c) en utilisant les paramètres $\Gamma_R = \Gamma_L = 4.5 \times 10^{-3}$ meV, $\hbar\omega_0 = 1.25$ meV, $\lambda = 2.05$ et $Q = 5$.

par la visualisation d'un grand nombre de pics de conductance que nous supposons être décrits par cette théorie corroborant la valeur trouvée pour la distribution de Poisson à la figure 4.3c. Dans l'hypothèse où le mode observé est un mode de la cavité, la valeur élevée de λ peut être expliquée par la manière dont la boîte quantique est reliée au résonateur grâce à la grille supérieure dans le but de maximiser l'échange d'énergie entre la boîte et la cavité. Le facteur de qualité trouvé semble être cohérent avec tout ce que nous avons pu voir dans le domaine térahertz. L'énergie du mode auquel est couplé ce niveau électronique extraite de la modélisation est $\hbar\omega_0 \approx 1.33$ meV similaire à celle trouvée dans la première partie de cette étude.

Pour avoir une comparaison sur l'ensemble de la zone, la figure 4.3b a été modélisée avec les paramètres extraits de la modélisation de la coupe 4.3c. Nous avons pris soin de relever les coefficients de couplages de la grille qui décrivent les pentes bornant le diamant de Coulomb, $\alpha_R=0.75$ et $\alpha_L=0.2$.⁴ Nous n'observons cependant ces niveaux que dans un seul sens ce que nous pouvons interpréter comme un couplage privilégié pour les processus transitant de l'électrode de gauche vers la boîte et que ce phénomène est inexistant pour les processus allant de la boîte vers l'électrode de droite. Deux valeurs de couplage ont été prises avec $\lambda_L = 5.2$ pour les processus mettant en jeu l'électrode de gauche et $\lambda_R \approx 0$ pour les processus mettant en jeu l'électrode de droite. Le résultat est présenté à la figure 4.5b. Si on compare avec la figure 4.3b, nous pouvons constater que les deux figures se ressemblent fortement laissant à penser que ces niveaux peuvent être issus d'un couplage avec un mode bosonique.

De manière identique, la coupe 4.4b a été modélisée en utilisant la même théorie. Les paramètres extraits sont $\Gamma_L = \Gamma_R = 4.5 \times 10^{-3}$ meV, $Q=5$, $\lambda=2.05$ et $\hbar\omega_0 = 1.25$ meV. Le résultat est présenté à la figure 4.5c. Nous pouvons voir que de nouveau, nous avons globalement un bon accord entre la modélisation et les données expérimentales. Cependant, nous pouvons constater que le niveau fondamental n'est pas totalement visible dans la modélisation comme nous pouvons l'observer dans les mesures expérimentales. Le deuxième point est que de nouveau, nous avons un bon accord sur quelques pics mais un décalage en conductance s'opère pour les derniers pics. S'il s'agit d'un couplage avec un mode bosonique, cela laisse suggérer qu'un autre phénomène agit afin de virtuellement modifier le couplage entre le mode et le niveau électronique dont l'origine pourrait être des interférences entre les photons qui sont émis par notre système et qui diminue virtuellement le nombre de photons dans la cavité et donc ce couplage. C'est une hypothèse qu'a démontrée *Brandes et al.* [131] mais dans le cas où les modes auxquels se couplait une boîte quantique semiconductrice étaient des phonons.

Intéressons-nous aux paramètres. Le facteur de qualité Q est inférieur à celui trouvé précédemment mais reste du même ordre de grandeur et cohérent avec ceux de la cavité térahertz. Les valeurs des taux tunnel utilisés sont plus élevés de part un courant plus important. Cependant, ils restent très faibles comparés à l'énergie de charge et l'espacement de niveau caractéristique. Ces valeurs sont très faibles par rapport à ce que nous pourrions estimer sur la figure 4.4a et peut s'expliquer dans ce cas aussi par un couplage avec un mode bosonique qui vient élargir les niveaux de la boîte quantique. La valeur du couplage λ est inférieure avec à celle estimée avec la loi de Poisson. La loi de Poisson tracée à la figure 4.4b ne montrait pas un accord parfait avec les pics de conductance ce qui peut amener une surestimation de ce couplage. Cette valeur est de nouveau élevée

4. Pour rappel, α_i est défini tel que $\alpha_i = C_i/C_\Sigma$. Pour plus de détail, se référer au calcul électrostatique effectué sur le blocage de Coulomb dans la section 2 du chapitre 1.

mais semble cohérente quant à la valeur que nous avons trouvée dans l'étude de la zone 36 montrant que nous sommes couplés à ce mode assez fortement. Enfin, l'énergie du mode utilisée dans la modélisation est à peu près égal à l'espacement de niveau calculé dans l'étude précédente.

En conclusion, le modèle des états électroniques habillés reproduit assez fidèlement les coupes de conductance 4.5a et 4.5c et certaines zones du diagramme de conductance 4.5b. La valeur de Q extraite est cohérente avec l'état de la cavité mais comme dans lors de l'étude statistique, la valeur de $\hbar\omega_0 \approx 1.3$ meV est basse comparée à l'énergie de la résonance mesurée par spectroscopie. Nous discuterons de cette valeur dans le dernier paragraphe.

4.3 Influence du fil diffusif

Nous allons maintenant regarder comment la source composée d'un fil diffusif modifie le spectre de la boîte quantique lorsqu'on lui applique une tension. Tout d'abord, la source utilisée sera brièvement décrite en expliquant comment fonctionne l'émission de photon. Ensuite, nous étudierons plus précisément comment les niveaux électroniques sont modifiés lorsque la source est active.

4.3.1 Description de la source

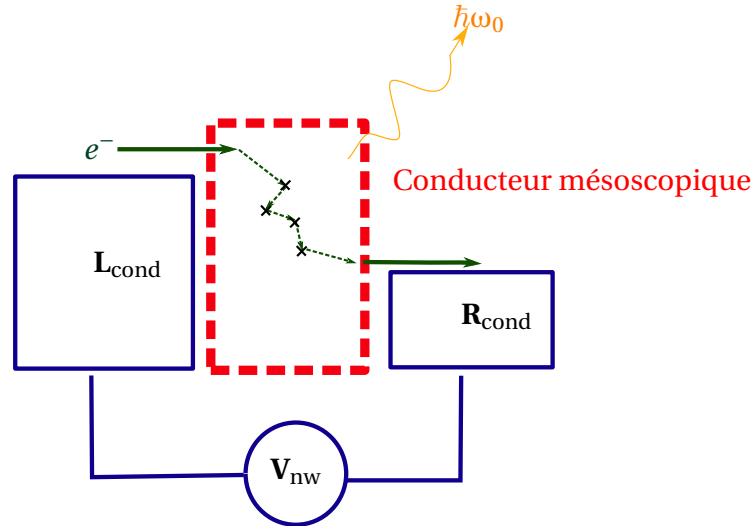


FIGURE 4.6 – Représentation schématique d'un conducteur mésoscopique. L'électron se propage à travers les diffuseurs représentés par les croix noires. Ces diffusions s'accompagnent de bruit qui entraînent des fluctuations de potentiel permettant l'émission de photons. La tension appliquée aux bornes de ce conducteur est V_{nw}

La source utilisée est un conducteur diffusif dont un schéma de principe est présenté à la figure 4.6. Ce conducteur est un fil de palladium de 5 nm d'épaisseur, de 100 nm de large et d'une longueur de $L=1$ μm . Cette longueur L est inférieure à la longueur de cohérence de phase des électrons L_ϕ à basse température. La faible épaisseur du palladium dans ces conducteurs donne un film métallique très désordonné avec beaucoup de défauts qui

permettent la diffusion des électrons durant leur transport. Deux mécanismes d'émission de photons sont possibles.

Le premier mécanisme d'émission provient de la diffusion des électrons à l'intérieur de ce type de conducteur. La diffusion des électrons entraîne des fluctuations de courant qui dépendent de la tension V_{nw} . Ces fluctuations de courant entraînent des fluctuations de potentiel autorisant l'émission de photons [132, 133, 43]. Ces fluctuations peuvent être caractérisées à travers la densité spectrale de bruit en courant $S_I(\omega)$ à travers la relation [134], $\langle \Delta U^2 \rangle(\omega) = R^2 S_I(\omega)$ où R est la résistance du fil. Le second mécanisme d'émission provient directement du corps noir issu du gaz électronique. La thermalisation s'effectue par les électrodes en contact avec le conducteur. Cependant, pour certaines tailles de conducteurs diffusifs, l'échauffement imposé par la diffusion des électrons n'est plus contenu par les réservoirs provoquant une dissipation de type effet Joule [42, 134]. La température électronique est alors augmentée par rapport à celles des réservoirs permettant le rayonnement de photons de plus hautes énergies. La caractérisation de ces fils diffusifs est montrée en annexe F. Nous ne sommes cependant pas en mesure de distinguer pour les photons térahertz le mécanisme d'émission.

4.3.2 Effet On/Off du fil diffusif

Nous allons étudier l'effet de la tension appliquée sur le fil diffusif sur le spectre de la boîte. La figure 4.7a est un agrandissement de la zone 41 entre $V_g=1.05$ V et $V_g=1.12$ V. La figure 4.7b présente un agrandissement d'une mesure de la conductance en fonction de V_{nw} qui varie sur cette figure entre -1.5 mV et -5 mV et V_{sd} qui varie entre -10 mV et 10 mV à $V_g=1.19$ V. Nous pouvons tout d'abord observer que la tension V_{nw} agit sur l'échantillon comme une tension de grille. Cela peut s'expliquer par la configuration de l'échantillon ; l'application d'une tension de grille modifie le potentiel de la grille supérieure qui modifie le potentiel chimique de la boîte. Le couplage électrostatique relevé est $\alpha_{nw} \approx 0.7$. En conséquence, puisque nous modifions aussi le potentiel chimique, cette étude sera plutôt d'ordre qualitatif que quantitatif car il nous est difficile de savoir si cette grille supérieure agit de la même manière sur les niveaux électroniques que la grille que nous avons utilisée jusqu'à maintenant.

Si nous comparons la figure 4.7a et la figure 4.7b, nous identifions les mêmes niveaux électroniques situés à la même position. Nous allons nous intéresser aux niveaux que nous avons étudiés précédemment sur le diagramme de stabilité 4.4a situé dans la zone où $V_{sd} > 0$. Sur la figure 4.7b, entre -3 mV et -4 mV, nous pouvons apercevoir une modulation de la conductance qui est inexistante sur la figure 4.7a signalée par une flèche jaune. La conductance passe de 6×10^{-7} S à 9×10^{-7} S et pour revenir à 6×10^{-7} S. Sur la figure 4.7a, la conductance reste constante autour de 7×10^{-7} S. Nous avons effectué deux coupes issues des deux figures 4.7b et 4.7a. De part les résolutions différentes des deux diagrammes, nous avons tenté de superposer au mieux les deux coupes pour qu'elles soient comparables. Le résultat est présenté à la figure 4.7c. La courbe orange est une coupe de la figure 4.7a prise en $V_g=1.06$ V et la courbe bleue est une coupe prise en $V_{nw}=-2.5$ mV prise de la figure 4.7b. Nous nous concentrons sur les niveaux situés à tension V_{sd} positive. La conductance du niveau j_1 passe de 4.7×10^{-8} S à 9.6×10^{-8} S, celle du niveau j_2 passe de 3.8×10^{-7} S à 4.9×10^{-7} S, le niveau j_3 reste à peu près constant à 5.8×10^{-8} S, la conductance du niveau j_4 chute de 3.9×10^{-7} S à 3.5×10^{-7} S et la conductance du niveau j_5 chute de 2.8×10^{-7} S à 2.2×10^{-7} S. C'est ainsi la manière dont la population est répar-

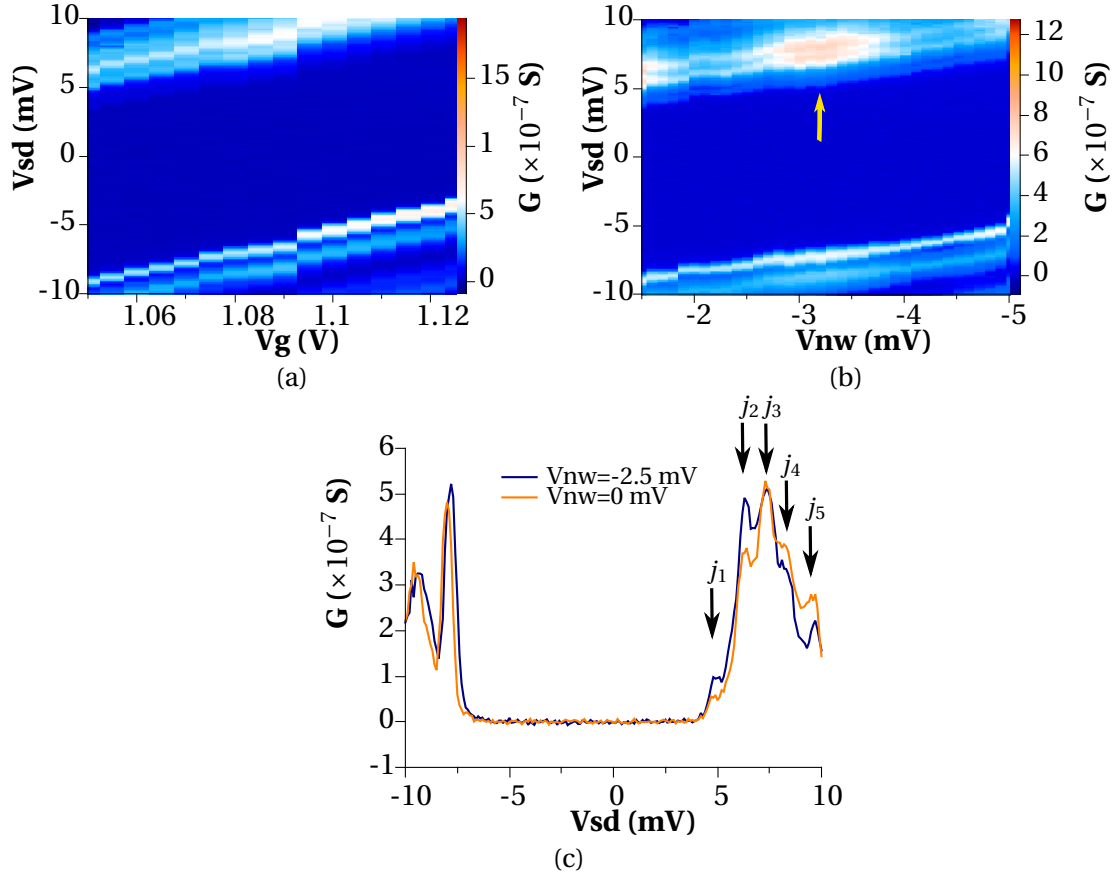


FIGURE 4.7 – Etude de l'effet du fil diffusif en position On/Off. Les figures (a) et (b) sont des parties de deux diagrammes de stabilité. Le diagramme (a) est un agrandissement de la figure 4.4a entre $V_g = 1.05 \text{ V}$ et $V_g = 1.125 \text{ V}$. Le diagramme (b) est un diagramme où la grille est maintenue fixe, $V_g = 1.19 \text{ V}$ et $V_{sd} \in [-10 \text{ mV}, 10 \text{ mV}]$ et $V_{nw} \in [-5 \text{ mV}, 5 \text{ mV}]$. Le diagramme est agrandi entre $V_{nw} = -1.5 \text{ mV}$ et $V_{nw} = -5 \text{ mV}$. La figure (c) présente deux coupes issues de ces deux diagrammes. La coupe issue de (b) a été prise en $V_g = 1.06 \text{ V}$ et la coupe issue de (a) a été prise en $V_{nw} = 2.5 \text{ mV}$.

tie qui est modifiée puisque les probabilités de transition de l'état j_1 à l'état j_2 n'est plus la même. Ce comportement est aussi observable pour les autres niveaux électroniques, j_3 , j_4 et j_5 . Ainsi, appliquée une tension sur le fil diffusif permet de modifier le poids des populations ce qui tend à montrer qu'il y s'agit d'un phénomène plus complexe qu'un simple effet électrostatique. D'autre part, la figure 4.7b montre que ces modulations arrivent pour certaines tensions V_{nw} appliquées sur le fil diffusif. C'est ce que nous allons détailler dans le paragraphe suivant.

4.4 Modulation des niveaux d'énergie

Nous avons vu à la figure précédente que la présence d'une tension aux bornes du fil diffusif permettait de moduler la conductance en modifiant le poids des populations sur l'ensemble du diagramme du stabilité décrit. Nous allons revenir dans un premier temps sur la notion d'événements tunnel assistés par des photons afin d'interpréter les modulations visualisées dans le diagramme de stabilité. Nous terminerons en discutant plus globalement de la valeur de $\hbar\omega_0$ que nous avons trouvée.

4.4.1 Événement tunnel assisté par des photons

Intuitivement, l'ajout d'une tension sur le fil diffusif permet d'augmenter le nombre de photons dans la cavité et de modifier son état. Le champ électrique présent dans la cavité peut alors avoir une influence suffisamment importante pour que des électrons puissent transiter avec l'aide des photons, ce que l'on appelle des événements tunnel photo-assistés. Le champ électrique présent dans la cavité module les niveaux d'énergie et la fonction d'onde propre du nouvel hamiltonien $\mathcal{H} = \epsilon_0 + qV_{ac} \cos(\omega t)$ s'écrit $\psi(t) = \exp(-i\epsilon_0/\hbar t) \sum_k J_k(qV_{ac}/\hbar\omega) \exp(-ik\omega t)$ où J_k est la fonction de Bessel d'ordre k [77]. En conséquence, la présence de ce champ doit faire apparaître des niveaux excités séparés de $\hbar\omega_0$, l'énergie du photon telle que l'amplitude de ces niveaux est pilotée par les fonctions de Bessel de la forme $J_k(\frac{gqV_{nw}}{\hbar\omega_0})$ où k est l'état situé à $k\hbar\omega_0$ de l'état fondamental et g est le couplage sans dimension entre le fil diffusif et la cavité térahertz comme nous l'avons vu au chapitre 1.

Intéressons-nous aux diagrammes de stabilité en V_{nw} , V_{sd} . En 4.8a, est présentée la même mesure qu'à la figure 4.7b à la différence que V_{nw} varie entre -5 mV et 5 mV. A la figure 4.8c, nous avons mesuré la conductance différentielle en maintenant V_g à 1.21 V et en faisant varier V_{nw} entre -4 mV et 4 mV et V_{sd} entre -10 mV et 10 mV. Nous pouvons noter que la conductance dans les zones hors des diamants de Coulomb est aussi modulée. Cela se visualise bien dans la figure 4.8a pour les tensions de polarisation positives.

Une coupe des niveaux d'énergie a été effectuée et est présentée à droite de chaque diagramme. Pour faire cela, nous avons relevé la conductance du niveau pour chaque valeur de V_{nw} . Nous avons sélectionné le niveau j_3 décrit précédemment pour la figure 4.8a en pointillés rouges et le niveau fondamental pour la figure 4.8c décrit aussi en pointillés rouges. Les résultats sont présentés en bleu sur les graphes 4.8b et 4.8d à droite. Ces modulations de conductance reviennent de manière régulière. Sur la figure 4.8b, nous avons des pics de conductance qui surviennent à -3.3 mV, -1.1 mV, 0.9 mV et 2.9 mV. Ces pics semblent revenir tous les 2.1 mV en moyenne. Nous voyons le même phénomène se pro-

duire sur la figure 4.8d où cette fois les pics sont situés à -3.8 mV, -1.8 mV et 0.5 mV soit des pics qui reviennent tous les 1.85 mV dans ce cas. Intéressons-nous maintenant à l'amplitude des oscillations. Dans la coupe à la figure 4.8b, la deuxième et troisième oscillation montre des amplitudes similaires de 5×10^{-7} S, deux fois plus élevées que les amplitudes des premier et quatrième pics. Sur la coupe 4.8d, nous pouvons voir que ces amplitudes sont à peu près constantes autour de 5×10^{-7} S. Cependant, nous visualisons moins d'oscillations et il semble y avoir de plus une dépendance linéaire ou quadratique qui vient s'ajouter en plus.

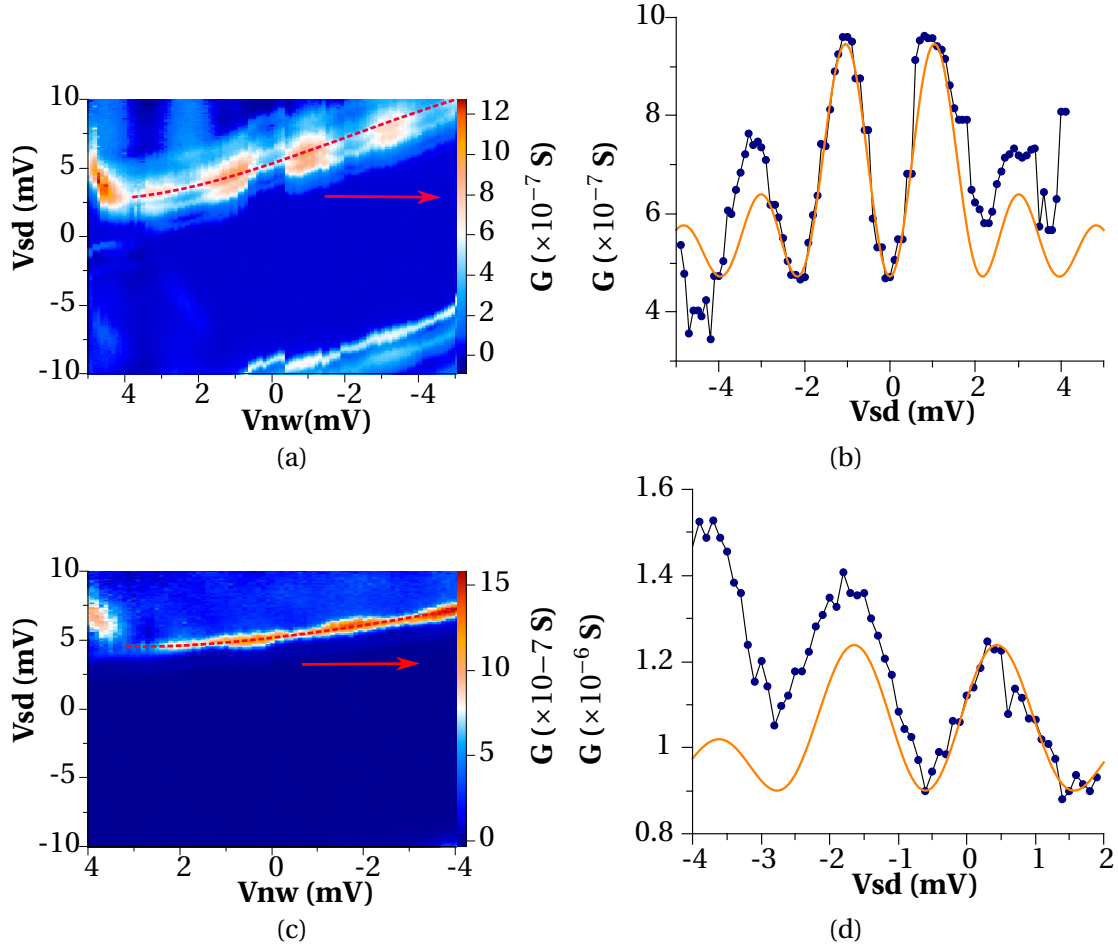


FIGURE 4.8 – Etude de l'évolution des niveaux électroniques en fonction de V_{nw} . En (a), nous avons un diagramme de stabilité pris à $V_g = 1.19$ V en faisant varier $V_{sd} \in [-10 \text{ mV}, 10 \text{ mV}]$ et $V_{nw} \in [-5 \text{ mV}, 5 \text{ mV}]$. La figure à sa gauche est une coupe du niveau électronique dessinée en pointillée rouge. Nous avons rajouter dessus une fonction de Bessel d'ordre 1 en orange. En (b), nous avons un second diagramme de stabilité pris à $V_g = 1.21$ V en faisant varier $V_{sd} \in [-10 \text{ mV}, 10 \text{ mV}]$ et $V_{nw} \in [-5 \text{ mV}, 5 \text{ mV}]$. La figure à sa gauche est une coupe du niveau électronique dessinée en pointillées rouges sur laquelle nous avons rajouter une fonction de Bessel d'ordre 1 en orange.

Des fonctions de Bessel ont été tracées sur les différentes coupes afin de voir si les oscillations pouvaient correspondre à celles des fonctions de Bessel comme dans le cadre d'une théorie photo-assistée. Nous avons pris comme énergie $\hbar\omega_0 = 1.3$ mV identifiée dans les paragraphes précédents. Nous introduisons un paramètre phénoménologique η qui peut être décrit comme l'efficacité d'émission du fil diffusif vers la cavité et qui est donc relié au couplage g du fil avec la cavité. Les résultats sont présentés en orange. Les courbes ont été modélisées avec les fonctions de Bessel d'ordre 1. L'efficacité utilisée était $\eta = 2.1^5$.

5. En réalité, la mesure ne nous permet pas de d'identifier la valeur de l'énergie du mode qui est im-

Cette valeur est encore une fois élevée mais reflète la valeur de λ trouvée pour l'étude des états habillés détaillés pour cette même région auparavant et reste donc cohérente. Nous pouvons constater un bon accord entre les modulations de la conductance et les oscillations de la fonction de Bessel d'ordre 1. Sur la figure 4.8b, les amplitudes des modulations semblent correspondre à celle de la fonction de Bessel. Cela est moins visible sur la figure 4.8d. Cependant, nous ne voyons pas suffisamment d'oscillations pour conclure définitivement quant au type de fonction que suivent ces modulations. Nous pouvons aussi noter qu'il n'y a pas de mise en évidence d'états excités comme sur les travaux de *Ishibashi et al.* [24] qui apparaît lorsque les nanotubes de carbone en régime de boîte quantique étaient irradiés par un rayonnement térahertz.

D'autre part, dans la théorie développée dans l'annexe F sur l'étude des fils diffusifs dans une cavité, le couplage se manifeste par un effet de seuil, c'est-à-dire, si la tension V_{nw} appliquée sur le fil diffusif est supérieure à l'énergie du mode $\hbar\omega_0$ de la cavité, il y a une possibilité pour le système de se dissiper vers la cavité ce qui ouvre des canaux de transport supplémentaires, est donc une augmentation du courant circulant à travers le fil. Cet effet de seuil n'est pas observé sur les mesures exposées aux figures 4.8c et 4.8d. Pour une meilleure compréhension du phénomène, seule une description théorique de l'ensemble du système permettra d'expliquer en détail ces modulations et la disparition de cet effet de seuil.

4.4.2 Modulation de l'élargissement de niveau Γ

Nous allons avancer quelques pistes de réflexion pour comprendre ce qui se passe au vue des différents éléments que nous avons jusqu'à maintenant en nous focalisant sur le diagramme 4.8a. Un agrandissement de cette zone est présenté à la figure 4.9a. La modulation des niveaux d'énergie que nous voyons est régulière et agit à la fois aussi bien sur les niveaux électroniques et sur les zones où la conductance est normalement nulle. Ce dernier élément laisse suggérer que ce sont les taux d'évènement tunnel $\gamma = \Gamma/\hbar$ qui sont modulés en fonction de la tension V_{nw} , i.e. que la modification de la répartition des populations peut être interprétées comme une modification de l'élargissement des niveaux. C'est d'ailleurs cette hypothèse qui est avancée par *Kouwenhoven et al.* [135] pour expliquer les modulations qu'ils observent pour les niveaux de la boîte quantique lorsqu'ils sont irradiés par une radiation micro-onde. Cette même hypothèse est étayée par *K. Flensberg* [136] afin de pouvoir expliquer le cotunneling photo assisté⁶ sous la forme,

$$\tilde{\Gamma}(\epsilon) = \sum_n |U(n, V)|^2 \Gamma(\epsilon + n\hbar\omega_0) \quad (4.1)$$

où $U(n, V) = J_n(\alpha_n)$ dans le cas d'une modulation par un potentiel harmonique de type $\cos(\omega_0 t)$ avec n le nombre de photons et V le potentiel ressenti par les niveaux électroniques, et Γ est l'élargissement de niveau en l'absence de photons. Nous ne constatons pas dans nos mesures cette dépendance en fonction du nombre de photons, comme expliqué dans la section précédente mais nous allons conserver l'idée que les Γ sont modulées avec la tension V_{nw} par les fonctions de Bessel en écrivant de manière phénoméno-

pliquée, c'est le rapport $\eta/\hbar\omega_0 \approx 1.6 \text{ meV}^{-1}$ qui est impliqué ici et on en déduit une efficacité si on prend $\hbar\omega_0 = 1.3 \text{ meV}$.

6. Le cotunneling est un événement tunnel d'ordre supérieur qui permet de passer directement à un électron de passer de l'électrode de gauche à l'électrode de droite.

logique⁷,

$$\Gamma \rightarrow \Gamma_0 + \Gamma_1 J_1 \left(\frac{\eta q V_{nw}}{\hbar \omega_0} \right)^2 \quad (4.2)$$

où $\eta=2.1$ d'après notre étude à la partie précédente. Le terme $\Gamma_1 J_1 (\eta q V_{nw} / \hbar \omega_0)^2$ ajouté traduit la modification de la répartition des populations dans la boîte quantique. Nous allons de plus supposer que les états excités que nous visualisons sont issus d'un couplage avec un mode bosonique d'après les résultats obtenus dans la première partie de ce chapitre. De part l'étude que nous avons faite sur la zone 41, le couplage calculé dans ce cas était $\lambda = 2.05$. Encore une fois, seul les processus de l'électrode de gauche vers la boîte quantique semblent être couplés, cela est pris en compte en fixant le couplage λ_r à 0. En reprenant les paramètres identiques à la modélisation qui nous ont servis à la figure 4.5c, en tenant compte de l'effet de grille imposé par V_{nw} et en prenant en considération la modulation des Γ telle qu'elle est définie à la figure 4.2 avec $\Gamma_0 = 4.5 \times 10^{-3}$ meV et $\Gamma_1 = 2 \times 10^{-2}$ meV, nous avons modélisé la conductance. Le résultat est présenté à la figure 4.9b.

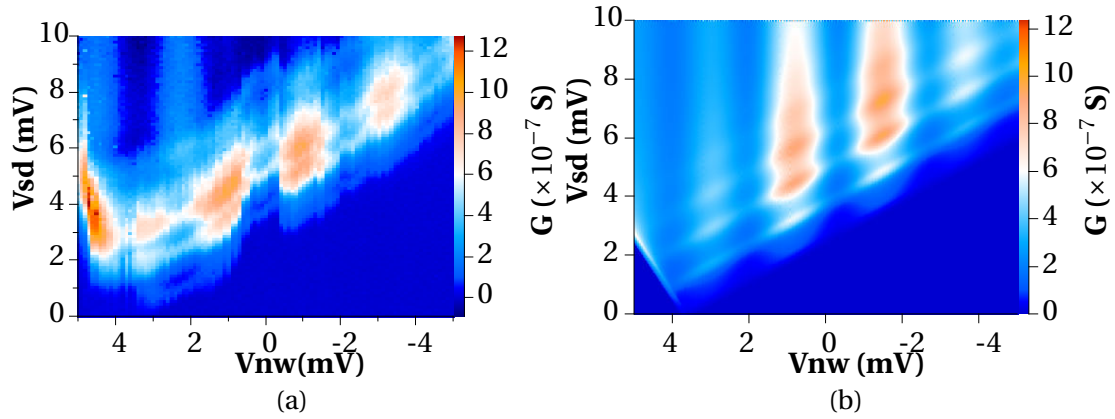


FIGURE 4.9 – Modulation des taux d'évènement tunnel - Comparaison entre le mesure et modèle phénoménologique. Le diagramme présenté en (a) est un agrandissement du diagramme décrit à la figure 4.8a. Nous avons modélisé cette figure de manière phénoménologique en modifiant les taux tunnel $\Gamma \rightarrow \Gamma_0 + \Gamma_1 J_1 (2.1 q V_{nw} / \hbar \omega_0)^2$ avec $\Gamma_0 = 4.5 \times 10^{-3}$ meV et $\Gamma_1 = 2 \times 10^{-2}$ meV, et la formule du courant développée au chapitre 1 dans le cadre de l'étude des états habillés. Le résultat du calcul est présenté en (b).

Nous pouvons observer que la figure 4.9b reproduit les comportements aperçus dans la figure 4.9a, à savoir, les modulations de conductance en fonction de V_{nw} mais aussi, une modulation du fond de la conductance. Les valeurs de conductance sont similaires dans les deux figures et les contrastes des pics de conductance visionnée à la figure 4.8b apparaissent aussi. Cependant, on peut noter que la conductance ne semble pas totalement descendre à 0 comme sur la mesure. Il nous faut nous demander quelle est l'origine de cette modulation de Γ . Nous avons vu que la tension V_{nw} modifie le poids des populations j_i . L'effet de V_{nw} est à priori de rajouter des photons dans la cavité et donc de modifier son état. Si les états électroniques visualisés sur cette mesure sont des états habillés par les photons, ils seront nécessairement influencés car la probabilité d'occupation d'un état est directement liée à l'état de la cavité comme nous l'avons vu au chapitre 1. En conséquence, l'ajout de photons va modifier la probabilité d'occupation qui va se refléter par un changement des poids dans les populations. Ainsi, les mesures observées pourraient

7. Pour expliquer cette formule, il faut noter que $\sum_i J_i^2(x) = 1$ quelque soit x . En conséquence, on peut imaginer que nous avons un terme Γ_0 qui est habillé par les fonctions de Bessel en terme correctif.

réfléter un couplage entre la boîte quantique et la cavité THz. Cependant, plusieurs questions restent en suspens. La première d'entre elles est à propos de la dépendance de Γ en énergie. Cette hypothèse a été faite après un constat expérimental mais la raison physique est encore mal appréciée - peut-être cela provient-il du fait que nous avons des états électroniques habillés. De même, nous avons supposé que la source envoyait des photons mais nous ne connaissons pas encore très bien le mécanisme d'émission des photons du fil diffusif. La dernière grande question est à propos de la valeur $\hbar\omega_0$ que nous avons extraite et qui est plus basse que celle mise en évidence par les mesures de spectroscopie dont nous allons discuter dans le paragraphe suivant.

4.4.3 Discussion autour de la valeur de $\hbar\omega_0$

Dans les deux modélisations que nous avons effectuées, nous avons trouvé une énergie $\hbar\omega_0$ qui valait 1.33 meV dans le premier cas et 1.25 meV dans le second cas. Ces valeurs sont similaires et elles sont cohérentes avec le pic que nous avons trouvé dans l'histogramme à la figure 4.2b. Cependant, elles ne correspondent pas à la valeur du mode LC situé à 1.95 meV que nous avons mesurée en spectroscopie térahertz. De fait, nous pouvons nous demander, dans l'hypothèse d'un couplage avec un mode bosonique, si ce mode est issu de la cavité et si oui, pour quelle raison avons-nous une énergie autour de 1.3 meV. Tout d'abord comme mentionné lors de l'étude des résonateurs, la résonance autour du mode LC est assez large laissant une incertitude quant à la présence d'une résonance entre 0.15 THz et 0.5 THz. Une mesure plus précise dans cette partie du spectre de SRR3-DP2 est aussi nécessaire pour voir si un mode à 1.3 meV est présent. Ensuite, les mesures de spectroscopie ont été faites sur un métamatériau et un couplage peut s'opérer entre toutes les structures résonantes du matériau. Ce couplage peut modifier la fréquence de résonance mais pas sur des variations de 30% [120]. Surtout, la variation de la fréquence de résonance d'un résonateur unique irait dans le sens opposé à ce que nous pouvons observer expérimentalement.

L'autre hypothèse est que ces modes pourraient être des phonons. Cependant, notre tube n'est pas suspendu, il est déposé sur le substrat de silicium. La grille supérieure recouvre la partie supérieure du tube. Les énergies trouvées sont de plus supérieures aux énergies qu'ont pu être relevées lors des études de transport assisté par les phonons par *Sapmaz et al.* et *Leturcq et al.* [39, 38] qui ont identifié des énergies de vibrations respectivement à 0.53 meV pour une boîte de longueur 140 nm, 0.69 meV pour une boîte de longueur 420 nm, 0.14 meV pour une boîte de longueur 1.2 μm dans la première étude et 0.8 meV pour une boîte de longueur 200 nm pour la seconde étude. Ces énergies sont issues du mode de phonon nommé *stretching* du nanotube de carbone. Dans notre cas, en se basant sur les prédictions de *Sapmaz et al.* présentées à la figure 4 de leur article, pour un nanotube de carbone de 300 nm, nous devrions avoir une énergie de vibration pour les phonons autour de 0.7 meV, inférieur à la valeur $\hbar\omega_0$ que nous avons identifiée. Si nous regardons l'énergie de vibration provenant du mode de courbure du nanotube de carbone, nous sommes encore deux ordres de grandeur en dessous pour notre taille de nanotube de carbone. Ainsi, l'hypothèse d'être couplé à un mode de phonons du nanotube de carbone semble être assez faible mais nous ne pouvons l'exclure totalement.

D'autre part, nous ne connaissons pas l'impact sur le mode du résonateur du fil diffusif lorsqu'il est contacté galvaniquement ou bien de la boîte quantique lorsque celle-ci est reliée au résonateur par l'intermédiaire de la grille supérieure. Le couplage inhérent

qui peut exister entre l'ensemble de ces structures peut aussi provoquer un décalage de la fréquence de résonance du résonateur par l'ajout de capacité en parallèle. Ainsi, *Cottet et al.* ont montré que dans le cas d'un couplage entre une les niveaux électroniques de la boîte quantique et la cavité, il s'opérerait un décalage de la fréquence de résonance de la cavité qui est d'autant plus élevé que le couplage est grand [137],

$$\Delta\hbar\omega_0 \approx \frac{2}{\pi} \frac{(\lambda\hbar\omega_0)^2}{\Gamma} \quad (4.3)$$

où λ est toujours le couplage sans dimension et Γ l'élargissement des niveaux de la boîte quantique. Dans cette théorie, le couplage défini est différent de celui introduit dans la théorie de *Braing et al.*. Ainsi, si nous prenons une valeur du couplage issue de la littérature dans un contexte de couplage fort, $\lambda = 0.4$ (*Scalari et al.*, [33]) et que nous utilisons la valeur de Γ identifiée dans nos mesures, soit $\Gamma = 0.6$ meV, nous trouvons un décalage $\Delta\hbar\omega_0$ de l'ordre de 0.6 meV ce qui est exactement le décalage observé entre le mode fondamental LC mesuré par spectroscopie terahertz et le mode identifié par les mesures de transport. Cependant, seule une théorie complète mettant en avant cette formule et appliquée sur le système mesuré permettra de démontrer un couplage entre la boîte quantique et la cavité terahertz.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats de transport électronique d'un nanotube de carbone dans une cavité terahertz. Nous avons identifié certaines zones présentant des niveaux électroniques avec un espacement de niveau autour de 1.3 meV et une distribution suivant une loi de Poisson. La modélisation avec la théorie des états habillés donne une excellente correspondance avec les mesures. L'application d'une tension du fil diffusif a montré que cela avait un effet sur ces niveaux électroniques en faisant apparaître une modulation. L'étude des différents niveaux semble indiquer que le poids des populations est changé par l'application d'une tension sur le fil diffusif. Le comportement périodique de ces modulations peut laisser penser à un phénomène de transport tunnel photo-assisté. Un calcul phénoménologique a montré que nous pouvions reconstruire une figure similaire à la mesure présentée à la figure 4.9b en prenant en compte la modulation des Γ par les photons et les états électroniques habillés par un mode bosonique.

De manière globale, plusieurs questions restent ouvertes avec ces résultats et nous ne pouvons conclure définitivement quant au couplage avec la cavité. Plusieurs indices laissent croire que ce couplage serait issu de la cavité comme en particulier, la modulation des niveaux de la conductance qui semble suivre le comportement des fonctions de Bessel ou bien le fait que nous puissions reproduire le comportement de la conductance avec la théorie des états habillés avec des paramètres probants. Mais des études complémentaires sont nécessaires pour tenter lever les incertitudes quant à l'origine de valeur de $\hbar\omega_0$ trouvée ou du modèle phénoménologique développé.

Conclusion Générale

Dans ce travail de thèse, nous avons effectué une étude du couplage lumière-matière avec des photons situés dans la gamme térahertz. Un outil a été développé dans le but d'analyser finement cette interaction pour un nanotube de carbone en régime de boîte quantique inséré dans une cavité térahertz, un "split ring resonator" (SRR). Le couplage est étudié par des mesures de transport électronique, à travers le courant et la conductance dans le nanotube de carbone en régime de boîte quantique.

Le montage TDS développé pour la caractérisation des résonateurs térahertz possède une large bande de détection dans le térahertz rendue possible grâce à l'utilisation d'un laser dont la durée des impulsions infrarouges est de 15 fs. L'émetteur utilisé pour la génération térahertz est une antenne interdigitée à grande surface fabriquée sur un substrat d'arséniure de gallium épitaxié à basse température. La détection du rayonnement térahertz est effectuée par un échantillonnage du champ térahertz par les impulsions infrarouges dans un cristal électro-optique. La bande de détection atteinte avec ce système de spectroscopie s'étend de 0.3 THz jusqu'à 20 THz. Nous avons également étudié comment les paramètres d'émission (tension appliquée sur l'antenne, puissance optique) influencent la bande de détection du banc expérimental en montrant que la diminution de la puissance optique modifiait très peu la bande passante mais que l'application d'une trop faible tension sur l'antenne rend le rayonnement haute fréquence difficilement détectable. Une seconde étude a aussi été effectuée avec plusieurs cristaux électro-optiques où il a été mis en évidence que l'utilisation de cristaux avec une épaisseur élevée ne permet pas une détection efficace des composantes hautes fréquences. Les spectres acquis lors de cette phase d'étude ont été modélisés en prenant en compte l'émission du champ térahertz et la réponse du cristal électro-optique. La modélisation a montré un excellent accord avec les mesures avec cependant une durée d'impulsion infrarouge utilisée pour la modélisation de 45 fs. Cette durée, plus longue que la durée mesurée de 15 fs, est attribuée à des effets capacitifs de l'antenne qu'il serait possible de prendre en compte dans un modèle plus complexe.

Afin de bénéficier d'une meilleure résolution spatiale pour sonder des objets de dimensions micrométriques et d'une meilleure sensibilité en détection, nous avons mis en place et démontré un concept très simple qui permet de confiner le champ térahertz à la limite de diffraction. Il s'agit d'une méthode originale d'excitation de l'antenne photoconductrice utilisant un front d'onde sphérique. Par une mesure de la taille du faisceau THz focalisé basée sur la technique de la lame de rasoir, un confinement du champ THz limité par les optiques utilisées sur le montage TDS est montré. La performance de détection atteinte avec ce concept dépasse alors 20 THz et est comparée à la situation d'excitation avec le front d'onde plan où la performance ne dépasse pas 13 THz. Pour la suite, une amélioration simple du montage serait d'utiliser des éléments optiques de

plus courtes focales pour arriver à des performances permettant d'extraire la résonance d'un SRR unique hors du bruit du montage ou de sonder le système hybride composé du nanotube de carbone avec la cavité térahertz.

Nous avons ensuite effectué la spectroscopie des résonateurs, et, en particulier du résonateur SRR3. La mesure de transmission a mis en évidence une résonance fondamentale LC autour de 0.5 THz soit 2 meV. Cependant, afin d'améliorer son couplage avec le nanotube de carbone, nous avons conçu, fabriqué et étudié un autre résonateur sur lequel des structures dipolaires ont été ajoutées au résonateur SRR3. Les mesures montrent l'apparition de nouveau mode de résonance avec une conservation du mode fondamental qui présente une réponse plus large que le résonateur SRR3. Ces résonateurs ont été simulés afin d'analyser la répartition du champ électrique dans l'entrefer du résonateur et notre étude a montré la présence d'un champ électrique intense à la résonance fondamentale. Le choix qui a cependant été retenu est de coupler directement le nanotube de carbone au résonateur par l'utilisation d'une grille supérieure afin de confiner le champ électrique à résonance et d'optimiser le couplage avec la boîte quantique.

Enfin, le couplage entre le nanotube de carbone et la cavité térahertz a été étudié par des mesures de courant à basse température. Un fil diffusif a été ajouté dans la cavité comme source de photons terahertz. Dans un premier temps, une étude des états situés dans certaines zones a montré des niveaux régulièrement espacés autour de 1.3 meV et une distribution des pics de conductance suivant une loi de Poisson avec comme paramètre $\lambda = 5.2$ dans la zone 36 et $\lambda = 2.7$ dans la zone 41. Une modélisation par une théorie des états habillés montre une bonne correspondance avec les mesures expérimentales effectuées laissant supposer que ces états sont issus d'un couplage avec un mode bosonique. Dans un second temps, nous avons analysé l'influence du fil diffusif sur les niveaux visualisés de la zone 41. Une modulation de la conductance en fonction de la tension appliquée sur le fil a été observée suivant celle d'une fonction de Bessel d'ordre 1 pouvant rentrer dans le cadre d'évènements tunnel photo-assistés. Une modélisation d'une des mesures a été faite en incluant à la fois la théorie des états habillés et une expression pour les élargissements de niveau Γ phénoménologique issue de la théorie d'évènements tunnel photo-assistés. Cette modélisation montre là aussi une bonne correspondance avec la mesure effectuée. Un faisceau d'indice semble donc montrer un couplage avec un mode bosonique issu de la cavité. Cependant, plusieurs questions restent en suspend comme la modélisation phénoménologique développée, le fonctionnement de la source et son mécanisme d'émission et la fréquence du mode observée.

Annexe A

Le Fabry Perot Electronique

Plaçons dans les conditions $E_c \ll k_b T \ll \Gamma < \Delta\epsilon$. Les système étudié est donc dominé par l'espacement des canaux électroniques accessibles dans la boîte quantique et la transmission des barrières tunnel. Dans ce contexte, la boîte quantique peut être décrite comme un conducteur mésoscopique avec la présence d'un diffuseur de transmission D . Un schéma décrivant la situation est présentée à la figure A.1. Sur ce schéma, le conducteur mésoscopique est représenté par le contour pointillé bleu. Il est composé des deux barrières tunnel et de la boîte quantique dont les niveaux orbitaux sont espacés de $\Delta\epsilon$ représentés en vert. L'énergie de charge est négligée par la suite dans cette section.

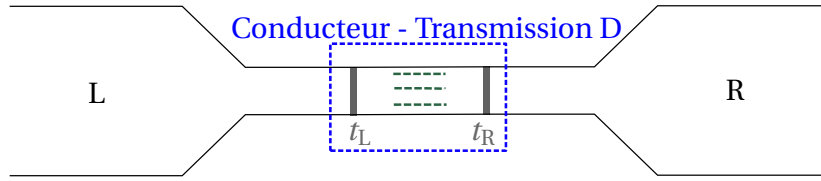


FIGURE A.1 – Schéma du Fabry-Pérot électronique. Les deux jonctions tunnel et les canaux accessibles entre les jonctions forment un conducteur de transmission D décrit par la formule de Breit-Wigner proche de la résonances dans le cadre des faibles transmission.

Formulation du courant Intéressons nous tout d'abord au courant traversant le conducteur à travers un canal dont la transmission dépend de l'énergie $D(\epsilon)$. Les probabilités de transition pour un électron peuvent s'écrire de manière phénoménologique en établissant que les probabilités d'occupation des réservoirs sont fixés par les distributions de Fermi-Dirac et que la transmission D est la probabilité de passer de gauche à droite pour un électron - ou vice et versa. Pour un électron d'énergie ϵ fixée, la probabilité qu'il passe du réservoir de gauche à celui de droite à travers l'impureté s'écrit,

$$P_{l \rightarrow r} = D(\epsilon) f_L(\epsilon) (1 - f_R(\epsilon))$$

De même, la probabilité qu'un électron circule du réservoir de droite vers le réservoir de gauche s'écrit,

$$P_{r \rightarrow l} = D(\epsilon) f_R(\epsilon) (1 - f_L(\epsilon))$$

Connaissant les probabilité de transition, l'expression du courant moyen s'écrit en utilisant la formule de Landauer [138] :

$$\begin{aligned} \langle I \rangle &= \frac{q}{h} \int d\epsilon (P_{l \rightarrow r} - P_{r \rightarrow l}) \\ &= \frac{q}{h} \int d\epsilon D(\epsilon) (f_L(\epsilon) - f_R(\epsilon)). \end{aligned}$$

où q est la charge élémentaire. On peut généraliser cette formule pour les p canaux accessibles ce qui donne :

$$\langle I \rangle = \sum_{i=1}^p \frac{q}{h} \int d\epsilon D_i(\epsilon) (f_L(\epsilon) - f_R(\epsilon)) \quad (\text{A.1})$$

Calcul de la transmission D Pour calculer le courant, il faut déterminer l'expression de la transmission D du conducteur qui est constitué de deux barrières de coefficient de transmission t_L et t_R . L'expression de D peut être déterminée en utilisant le formalisme des matrices de diffusion explicité à la figure A.2. a et b sont des fonctions d'onde. Sur le schéma, les fonctions d'onde a_α et b_α sont reliées aux fonctions d'onde $a_{\alpha P}$ et $b_{\alpha P}$ par la matrice S_α telle que

$$\begin{pmatrix} a_L \\ b_L \end{pmatrix} = S_L \begin{pmatrix} a_{LP} \\ b_{LP} \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

$$\begin{pmatrix} a_{RP} \\ b_{RP} \end{pmatrix} = S_R \begin{pmatrix} a_R \\ b_R \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

avec,

$$S_\alpha = \begin{pmatrix} \sqrt{1 - t_\alpha^2} e^{i\phi_\alpha} & -i t_\alpha \\ -i t_\alpha & \sqrt{1 - t_\alpha^2} e^{-i\phi_\alpha} \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

où t_α est le coefficient de transmission pour la barrière L ou R et ϕ est la phase accumulée lors de la transmission ou de la réflexion contre la barrière. S_P est la matrice de propagation à travers le nanotube de carbone de longueur L dont l'expression est donnée par :

$$S_P = \begin{pmatrix} e^{i\delta} & 0 \\ 0 & e^{i\delta} \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

où δ est la phase accumulée lors de la propagation.

En tenant compte des multiples réflexions qui peuvent se produire aux interfaces des barrières tunnel nous pouvons établir l'expression du coefficient de transmission s_{RL} reliant les fonctions d'onde a_R et a_L . Ce coefficient a pour expression [4]¹ :

1. Le lecteur est encouragé à lire la thèse de Matthieu Delbecq [4] qui donne l'ensemble du détail du calcul en utilisant ce formalisme dans l'annexe A de son manuscrit

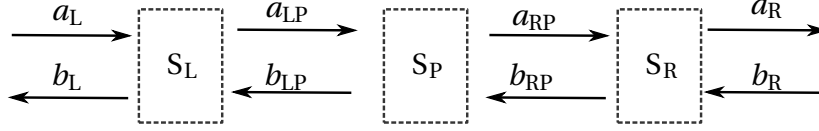


FIGURE A.2 – Représentation schématique de la propagation des fonctions d'onde électronique dans notre système. S_L et S_R sont reliés aux transmissions des barrières tunnel. S_P est relié à la propagation dans le nanotube de carbone.

$$s_{RL} = \frac{e^{i\delta} t_L t_R}{1 - e^{i(2\delta - (\phi_L + \phi_R))} \sqrt{(1 - t_L^2)(1 - t_R^2)}} \quad (\text{A.6})$$

Le module de ce coefficient de transmission devient maximal si $2\delta - (\phi_L + \phi_R) = 2\pi n$ où $n \in \mathbb{N}$. δ dépend de l'énergie ϵ et L la longueur de la boîte quantique telle que $\delta = \epsilon L / \hbar v_f$. Cela nous donne les conditions de résonance en énergie suivantes :

$$\epsilon_n = n\Delta\epsilon + \frac{\hbar v_f}{2L} (\phi_R + \phi_L) \quad (\text{A.7})$$

Nous retrouvons l'espacement des niveaux électroniques $\Delta\epsilon$ à l'intérieur de la boîte quantique. Les conditions de résonances dépendent de la longueur de la boîte comme dans le cas d'une cavité Fabry-Pérot optique, c'est pour cela qu'il est nommé Fabry-Pérot électronique. Proche de la résonance et dans le régime de faibles transmissions des barrières tunnel, on peut démontrer que la transmission $D = s_{RL} s_{RL}^*$ a pour expression la formule de Breit-Wigner,

$$D_i(\epsilon) = \frac{T_L T_R}{\left(\frac{T_L + T_R}{2} \right)^2 + \left(\frac{\epsilon - \epsilon_i}{\frac{\hbar v_f}{2L}} \right)^2} \quad (\text{A.8})$$

Expérimentalement, la première visualisation d'un effet Fabry-Pérot électronique dans les nanotubes de carbone date de 2001 par *Liang et al.* [68, 139].

Annexe B

Calcul du courant dans le régime du blocage de Coulomb

Nous allons établir la formule du courant dans le cas où la boîte quantique est dans un régime de blocage de Coulomb. Pour cela, nous allons établir l'expression en utilisant le formalisme de l'équation maîtresse d'évolution des probabilités des états d'occupation de la boîte quantique car la boîte est dans une situation où elle est isolée, i.e. $\Gamma \ll k_b T$. En conséquence, ce formalisme est pleinement adapté pour notre étude car les probabilités d'occupation des états sont quasistationnaires.

Les états propres de la boîte sont couplés à un environnement que sont les mers de Fermi des électrodes. Comme dans le cadre de la décohérence des populations en mécanique quantique, une évolution des probabilités d'occupation (ou population) sous la forme d'une équation maîtresse peut être écrite. On nomme p_n les probabilités d'occupation des états propres $|n\rangle$ de la boîte décrit par l'hamiltonien $\mathcal{H}_{\text{BQ}}$. L'équation maîtresse pour l'évolution de la probabilité d'un état $|n\rangle$ de la boîte s'écrit,

$$\frac{\partial p_n}{\partial t} = \sum_{v \neq n} -p_n W_{n \rightarrow v} + p_v W_{v \rightarrow n} \quad (\text{B.1})$$

où $W_{n \rightarrow v}$ sont les éléments de la matrice probabilités de transition d'un état $|n\rangle$ à un état $|v\rangle$ de la boîte appelé qui se décomposent en deux termes pour la barrière de gauche $W_{n \rightarrow v, \text{L}}$ et la barrière de droite $W_{n \rightarrow v, \text{R}}$ soit $W_{n \rightarrow v} = W_{n \rightarrow v, \text{L}} + W_{n \rightarrow v, \text{R}}$. On ne prend en compte dans notre modèle que les transitions à un électron donc $v = \{n - 1, n + 1\}$.

Ces éléments de matrice W prennent en compte le taux de transition tunnel à travers la barrière concernée et la distribution des états dans les électrodes donnée par les fonctions de Fermi. Ainsi,

$$W_{n, n+1, \alpha} = f_{\alpha}(\mu_n) \gamma_{\alpha} \quad (\text{B.2})$$

$$W_{n, n-1, \alpha} = (1 - f_{\alpha}(\mu_n)) \gamma_{\alpha} \quad (\text{B.3})$$

où $\mu_n = \epsilon_n + (n - 1)E_c + \alpha_g V_g$ est le potentiel chimique du niveau orbital dans la boîte concerné par la transition en tenant compte de l'effet de grille. Il est à noter qu'il n'y a plus de dépendances explicites en degré de spin de ces expressions. Par ailleurs, l'effet de la tension de polarisation V_{sd} est prise en compte dans les fonctions de Fermi comme

dans le cadre du Fabry-Pérot électronique via les potentiels chimiques des électrodes tel que $\mu_L = \mu_0 + V_{sd}/2$ et $\mu_R = \mu_0 - V_{sd}/2$.

Une expression phénoménologique du courant peut être écrite. Pour cela, il faut comptabiliser les électrons qui passent de gauche à droite et de droite à gauche à partir d'un point d'observation qui est soit la barrière tunnel de gauche ou de droite. Il faut aussi tenir compte de l'état d'occupation de la boîte via les probabilités p_n et considérer toutes les transitions possibles contribuant au courant à travers les éléments de matrice $W_{n \rightarrow v}$. La formule sera en conséquence assez similaire à B.1,

$$\langle I_L \rangle = \frac{q}{h} \sum_{v \neq u} -p_u W_{u \rightarrow v, L} + p_v W_{v \rightarrow u, L} \quad (B.4)$$

Nous pouvons dériver l'expression analytique du courant pour un niveau orbital d'énergie ϵ_d de la boîte quantique. Les 4 états d'occupation de ce niveau sont donnés par le nombre d'électron qu'il peut accueillir soit $\{0, \uparrow, \downarrow, 2\}$. $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$ sont les états à un électron en prenant en compte la dégénérescence de spin. Pour simplifier le problème on suppose que $E_c = +\infty$, c'est à dire que nous nous plaçons au voisinage de la transition entre les états $|0\rangle$ et les états $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$. On ne considère que trois états d'occupation possible à savoir l'état vide et les états à un électron avec les différents spins.

Il y a 3 probabilités $P = \{P_0, P_\uparrow, P_\downarrow\}$ à trouver en résolvant l'équation $\frac{\partial P}{\partial t} = WP$ où W est la matrice des probabilités de transitions qui s'écrit conformément à l'équation B.1 :

$$W = \begin{pmatrix} -2W_{0 \rightarrow 1} & W_{1 \rightarrow 0} & W_{1 \rightarrow 0} \\ W_{0 \rightarrow 1} & 0 & -W_{1 \rightarrow 0} \\ W_{0 \rightarrow 1} & -W_{1 \rightarrow 0} & 0 \end{pmatrix} \quad (B.5)$$

L'évolution des probabilités est donc quasistationnaire, $\frac{\partial P}{\partial t} \approx 0$. La valeur des probabilités est donnée par $W.P \approx 0$ ce qui donne 3 équations. La normalisation des probabilités doit aussi être prise en compte. Les équations obtenues sont les suivantes,

$$\begin{cases} -2W_{0 \rightarrow 1}P_0 + W_{1 \rightarrow 0}(P_\uparrow + P_\downarrow) = 0 & (a) \\ W_{0 \rightarrow 1}P_0 - W_{1 \rightarrow 0}P_\uparrow = 0 & (b) \\ W_{0 \rightarrow 1}P_0 - W_{1 \rightarrow 0}P_\downarrow = 0 & (c) \\ P_0 + P_\downarrow + P_\uparrow = 0 & (d) \end{cases} \quad (B.6)$$

Des équations (b) et (c), nous en déduisons que $P_\downarrow = P_\uparrow = P_1$. La résolution de ces équations donnent

$$P_0 = \frac{W_{1 \rightarrow 0}}{2W_{0 \rightarrow 1} + W_{1 \rightarrow 0}} \quad (B.7)$$

$$P_1 = \frac{W_{0 \rightarrow 1}}{2W_{0 \rightarrow 1} + W_{1 \rightarrow 0}} \quad (B.8)$$

En se référant à l'équation B.4, nous pouvons établir l'expression du courant,

$$\begin{aligned} \langle I_L \rangle &= \frac{q}{h} (2P_0 W_{0 \rightarrow 1, L} - 2P_1 W_{1 \rightarrow 0, L}) \\ &= \frac{2q}{h} \frac{W_{1 \rightarrow 0, R} W_{0 \rightarrow 1, L} - W_{0 \rightarrow 1, R} W_{1 \rightarrow 0, L}}{2W_{0 \rightarrow 1} + W_{1 \rightarrow 0}} \end{aligned} \quad (B.9)$$

En remplaçant les probabilités et les éléments de matrice W par leurs expressions, l'expression finale devient,

$$\langle I_L \rangle = -2 \frac{q}{h} \gamma_L \gamma_R \frac{f_R(\mu_d) - f_L(\mu_d)}{(1 + f_L(\mu_d)) \gamma_L + (1 + f_R(\mu_d)) \gamma_R} \quad (\text{B.10})$$

Annexe C

Recettes et procédés pour la fabrication des échantillons

C.1 Recettes pour la lithographie optique

La résine AZ5214 se dépose par dépôt centrifuge (*spin coating* en anglais). Nous utilisons les paramètres suivants pour le dépôt une vitesse de 4000 tours par minute (tr/min) avec une accélération de 4000 tr/min² durant 30 secondes ce qui nous permet d'avoir une épaisseur de 1.5µm sur silicium. Elle est ensuite cuite à 125 degrés pendant 2 minutes (min) sur une plaque chauffante.

Le procédé détaillé est pour la fabrication d'un masque négatif, c'est-à-dire que la résine est retirée aux endroits où les motifs sont fabriqués. Un masque en verre est utilisé sur lequel les motifs à fabriquer sont présents¹ qui est apposé sur un masqueur optique. Le substrat avec la couche de résine est déposé en dessous du masque. Le substrat est plaqué sur le masque puis les zones qui ne sont pas masquées par les motifs sont insolées avec les photons U.V. durant 2 sec². La résine est recuite durant 1 min 25 sec à 120 degrés puis entièrement exposée de nouveau aux U.V. pendant 25-30 sec. Les motifs sont ensuite développés durant 1 min 30 sec dans un développeur adapté. La recette n'est que peu modifiée si le topas est utilisé comme substrat. Le temps de première exposition doit être diminué à une durée inférieure à 1 sec car le topas étant déposé sur une couche d'aluminium, la réflexion des photons U.V. est plus importante que sur le silicium ayant pour conséquence de surexposer la résine. Le reste de la recette est inchangé.

Les informations sont résumées dans le tableau suivant :

TABLEAU C.1 – Résumé des temps d'exposition, de cuisson pour la photolithographie.

	Temps Cuisson	1 ^{ère} exposition	Temps recuit	2 ^{ème} exposition
Substrat Si	2 min	2 sec	1 min 25 s	25 sec
Substrat Topas	2 min	1 sec	1 min 25 s	25 sec

1. Les motifs sont préparés via un procédé de lithographie et la couche de métal déposé est du chrome sur quelques dizaines de nanomètre.

2. Ce temps est relatif à la puissance de la lampe U.V. utilisé. Plus la puissance est élevée, plus le temps d'exposition doit être réduit en conséquence.

C.2 Dépôt de résine et développement pour la lithographie électronique

La résine principalement utilisée pour la lithographie électronique et qui le sera dans tous les procédés de fabrication dans ce manuscrit est le PMMA A6. Sous une accélération de 4000 tr/min², avec une vitesse de 4000 tr/min durant 30 sec, on dépose sur le silicium une couche variant entre 450 nm et 500 nm d'épaisseur³. La partie insolée est aussi facilement éliminée grâce à l'utilisation d'un développeur, le méthylisobuthylcétone (MIBK) concentré à 1 :3 dans du propane-2-ol (IPA). Le temps de développement caractéristique que nous utilisons est 2 min en agitant vivement l'échantillon dans le bêcher. Cela permet d'enlever un maximum de résine dans les zones que nous insolons. Dans les étapes où les nanotubes de carbone ne sont pas déposés, une étape de gravure sèche sous un plasma d'oxygène est ajoutée afin d'éliminer toute trace de résine qui subsisterait après le développement.

C.3 Méthode de fabrication des tampons

La préparation des tampons s'effectuent en trois étapes : nettoyage, lithographie et gravure. Ensuite, on dépose du catalyseur et on précède à la croissance des nanotubes dans le four de croissance.

Nettoyage

1. Laver les quartz dans un bain d'ultrasons d'une durée de 5 min dans un bêcher d'acétone puis de IPA.
2. Effectuer une gravure sèche afin d'enlever tous les résidus de résine subsistant avec un programme de plasma O₂ (stripping) à faible puissance.
3. Effectuer de nouveaux un lavage de quartz dans un bain d'ultrasons de 5 min dans un bêcher d'acétone et puis de propane-2-ol.
4. Déposer une double couche de PMMA A6 en utilisant comme paramètre 4000 tr/min² pour l'accélération, 4000 tr/min pour la vitesse sur une durée de 30 sec. Le temps de séchage de la résine pour chaque couche est de 15 min à une température de 165 degrés. On veillera à bien refroidir le quartz avant de déposer la deuxième couche.

Lithographie et évaporation

1. Déposer 15 nm d'aluminium sur le quartz.
2. Faire le réglage de focus et d'astigmatisme pour une ouverture du canon à électron de 10 µm. Effectuer le "write field alignment" avec cette ouverture pour un champ d'écriture de 100 µmx100 µm.
3. Effectuer la lithographie des piliers avec une dose de 420 µC/cm² et une ouverture pour le faisceau de 10 µm.

3. Cette épaisseur varie à cause de l'âge de la résine. Plus elle est vieille, plus l'épaisseur déposée sera importante.

4. Retirer la couche d'aluminium en plongeant le quartz dans une solution d'hydroxyde de potassium. Rincer le quartz dans un bain d'eau.
5. Développer la lithographie dans le MIBK (en concentration 1 :3 dans de l'IPA) durant 2 min puis rincer dans une solution d'IPA durant 30 sec pour arrêter le développement.
6. Effectuer une gravure sèche afin d'enlever tous les résidus de résine subsistant avec un programme de plasma O₂ (stripping) à faible puissance durant une vingtaine de secondes.
7. Evaporer 250 nm de Nickel.
8. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film de Nickel en utilisant une pipette.

Gravure, dépôt de catalyseur et croissance

1. La gravure du quartz se fait sous plasma dans une RIE. Le programme utilisé est le même que pour graver l'oxyde de silicium. Avec les paramètres de la RIE pour ce programme, nous sommes capables d'effectuer 3 cycles de 30 min ce qui correspond à une hauteur de pilier de 4.3 µm environ.
2. Effectuer la gravure du Nickel restant dans une solution de FeCl₃ en plongeant le quartz pendant 30 sec. Nettoyer le quartz dans deux bains d'eau successifs durant 20 sec puis faire un troisième bain d'eau dans les ultrasons pendant 5 min.
3. Préparer le catalyseur en le plongeant durant 1 heure dans les ultrasons et en laissant sédimenter la solution pendant 45 min (le temps que les particules de molybdène et de fer restent à la surface)
4. Déposer le catalyseur en mettant une goutte sur le quartz. Laisser poser 1 sec et évacuer la goutte avec un flux d'azote.
5. Effectuer la croissance des nanotubes de carbone.

C.4 Méthodes de fabrication des échantillons THz-DCB-NT

Nous allons détailler dans cette partie les recettes de fabrication pour les résonateurs pour leur caractérisation par TDS et des échantillons THz-DCB-NT qui seront mesurés à froid via des mesures de courant.

C.4.1 Fabrication des résonateurs sous forme de métamatériaux

Nettoyage

1. Prendre un substrat de silicium haute résistivité poli double-face et le plonger dans un bain d'acétone dans les ultrasons pendant 5 min. Répéter le même procédé avec un bain d'IPA.
2. Déposer la résine AZ 6214 sous une accélération de 4000 tr/min² avec une vitesse de 4000 tr/min durant 30 sec.
3. Chauffer l'échantillon durant 2 min à une température de 120 degrés.

Lithographie et Evaporation

1. Faire la lithographie optique des résonateurs térahertz (voir la partie concernant la photolithographie).
2. Déposer une couche d'adhérence de 2 nm de titane (Ti) puis évaporer 150 nm d'or (Au).
3. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film métallique en utilisant une pipette.

Préparation et développement des résonateurs sur un substrat de Topas

1. Sur un substrat de silicium, déposer 1 μm d'aluminium.
2. Effectuer un recuit de déshydratation de 5 min à 165 degrés.
3. Déposer le Topas à une vitesse de 3000 tr/min sous une accélération de 600 tr/min² durant 30s.
4. Effectuer les étapes de lithographie et d'évaporation décrites précédemment.
5. Graver la couche d'aluminium dans une solution d'hydroxyde de potassium. Cette étape est longue (environ 1 journée).
6. Décoller délicatement la couche de Topas du substrat de silicium.

C.4.2 Fabrication des échantillons THz-DCB-NT

Toutes les lithographies de l'échantillon se font en lithographie électronique. La résine utilisée est le PMMA A6 et la recette de dépôt sera toujours la même, 4000 tr/min² pour l'accélération, 4000 tr/min pour la vitesse sur une durée de 30 sec. Le temps de séchage de la résine est de 15 min à une température de 165 degrés. De même le développement sera toujours identique : développer la lithographie dans le MIBK durant 2 min puis rincer dans une solution d'IPA durant 30 sec pour arrêter le développement.

Nettoyage

1. Prendre un substrat de 1 cmx1 cm de silicium haute résistivité. Nettoyer le substrat en le plongeant dans un bûcher d'acétone dans les ultrasons pendant 5 min. Répéter le même procédé avec un bain d'IPA.
2. Effectuer une gravure sèche de plasma O₂ (stripping) à faible puissance pour enlever la résine restante.
3. Réitérer l'étape 1.

Croix d'alignement, résonateur et fils Cette première lithographie permet de réaliser les croix d'alignement qui nous seront utiles pour toutes les étapes de fabrication suivantes (et que nous pouvons voir à la figure C.3), le résonateur et les fils métalliques permettant la mesure de l'échantillon.

1. Déposer le PMMA.

2. Charger l'échantillon et effectuer les réglages de focus et d'astigmatisme pour les ouvertures de 120 μm et 10 μm du canon. Effectuer le "write field alignment" avec ces ouvertures pour un champ d'écriture de 100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$.
3. Effectuer la lithographie des croix d'alignement avec une dose de $470 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de dépassement de la platine de 20 nm en x et en y et une ouverture du canon de 10 μm .
4. Effectuer la lithographie des résonateurs avec une dose de $300 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de déplacement de la platine de 10 nm en x et en y une ouverture du canon de 10 μm .
5. Effectuer la lithographie des fils avec une dose de $400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de déplacement de la platine de 20 nm en x et en y une ouverture du canon de 120 μm .
6. Faire le développement de la lithographie.
7. Effectuer un plasma O_2 (stripping) de quelques dizaines de secondes pour nettoyer la résine restante.
8. Déposer 2 nm de titane et 150 nm d'or.
9. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film métallique en utilisant une pipette.

Fil de palladium Le fil de palladium a une longueur de 1 μm sur une largeur de 150 nm. A ces extrémités sont rajoutés des grandes languettes afin d'accueillir les électrodes lors des lithographies suivantes et de maximiser le contact. Une photo du fil à la fin de la fabrication est présentée en figure C.1.

1. Déposer le PMMA.
2. Charger l'échantillon et effectuer les réglages de focus et d'astigmatisme pour l'ouverture du canon à 10 μm . Effectuer un alignement (couche 63 pour le logiciel) précis dans la zone de 100 $\mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ dans laquelle la lithographie sera faite.
3. Effectuer la lithographie du film de palladium avec une dose de $470 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de déplacement de la platine de 20 nm en x et en y et une ouverture du canon de 10 μm .
4. Faire le développement de la lithographie.
5. Effectuer un plasma O_2 (stripping) de quelques dizaines de secondes pour nettoyer la résine restante.
6. Déposer 5 nm de palladium.
7. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film métallique en utilisant une pipette.

Tamponnage et localisation des nanotubes de carbone Notre échantillon est maintenant prêt à accueillir les nanotubes de carbone. Nous pouvons effectuer le tamponnage et ensuite d'effectuer la localisation des nanotubes de carbone.

Cette étape permet de sélectionner les nanotubes de carbone qui ont été tamponnés. Elle s'effectue avec le microscope à balayage électronique. Il est important de garder une tension d'accélération de 2 kV afin de minimiser l'impact des électrons sur les nanotubes de carbone. Le tube idéal recherché est d'une longueur raisonnable pour chaque zone (quelque μm) et qui est légèrement courbé. Il ne doit présenter aucun signe de fusions avec d'autres nanotubes présents afin de s'assurer du caractère simple paroi nettement plus simple à interpréter lors des mesures de transport.

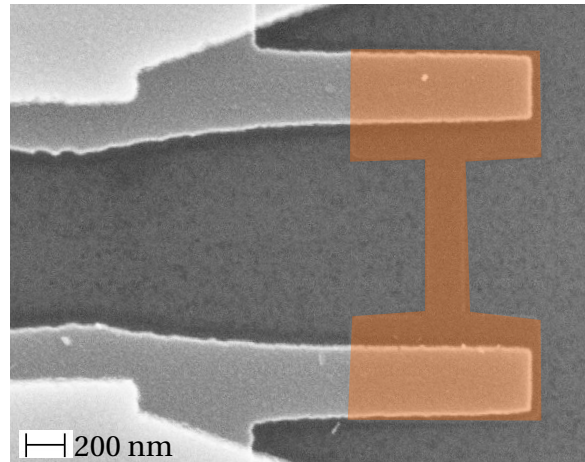


FIGURE C.1 – Photographie prise au microscope à balayage électronique du nanofil. L'échelle de la photographie est inscrite en bas à gauche. Le nanofil est coloré en orange afin de mieux le visualiser.

Grille supérieure Nous allons fabriquer maintenant la grille permettant de relier le nanotube de carbone au résonateur. L'électrode de grille a une largeur de 100 nm au niveau du nanotube de carbone. A cette étape, elle n'est pas directement reliée au résonateur mais est amenée à sa proximité. Elle sera contactée au résonateur via l'ajout d'une pastille de palladium à l'étape suivante. Une photographie de la grille supérieure est visible à la figure C.2.

1. Déposer le PMMA.
2. Charger l'échantillon et effectuer les réglages de focus et d'astigmatisme pour l'ouverture de 10 μm du canon. Effectuer un alignement (couche 63 pour le logiciel) précis dans la zone de 100 μm x 100 μm dans laquelle la lithographie sera faite.
3. Effectuer la lithographie des fils de contact des nanotubes avec une dose de 470 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de dépassement de la platine de 20 nm en x et en y et une ouverture du canon de 10 μm .
4. Faire le développement de la lithographie.
5. Déposer une couche de 3 nm d'aluminium puis oxyder le métal durant une période de 10 min avec de l'oxygène sous une pression de 1 mbar. Répéter cette procédure 2 fois puis déposer une couche de 3 nm d'aluminium suivi 40 nm de palladium.
6. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film métallique en utilisant une pipette.

Contact des nanotubes de carbone et du fil de palladium La distance entre les électrodes de source et de drain est de 300 nm. L'électrode de grille est placée au milieu des deux électrodes de source et drain à une distance de 100 nm. La distance entre le nanotube et la grille est variable selon les échantillons. Une photographie de la lithographie après évaporation est présentée à la figure C.2. Nous réalisons durant cette étape la pastille de palladium qui fait 2 μm x 2 μm qui relie la grille supérieure au résonateur. Les électrodes du film de palladium ont une largeur de 250 nm et sont aussi en contact avec le résonateur via le dipôle qui entoure le résonateur SRR3. On peut voir ces contacts sur la photographie de la figure C.1.

La photographie de la figure C.3 montre l'échantillon après toutes les étapes de fabrication.

1. Déposer le PMMA.
2. Charger l'échantillon et effectuer les réglages de focus et d'astigmatisme pour l'ouverture de 10 μm du canon. Effectuer un alignement (couche 63 pour le logiciel) précis dans la zone de 100 μm x 100 μm dans laquelle la lithographie sera faite.
3. Effectuer la lithographie des fils de contact avec une dose de 470 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ et un incrément de déplacement de la platine de 20 nm en x et en y et une ouverture du canon de 10 μm .
4. Faire le développement de la lithographie.
5. Déposer 70 nm de palladium en ayant préalablement laisser dégazer l'échantillon dans l'enceinte de l'évaporateur au moins une journée.
6. Effectuer le lift-off en mettant le quartz dans de l'acétone chaud (50 degrés) et retirer le film métallique en utilisant une pipette.

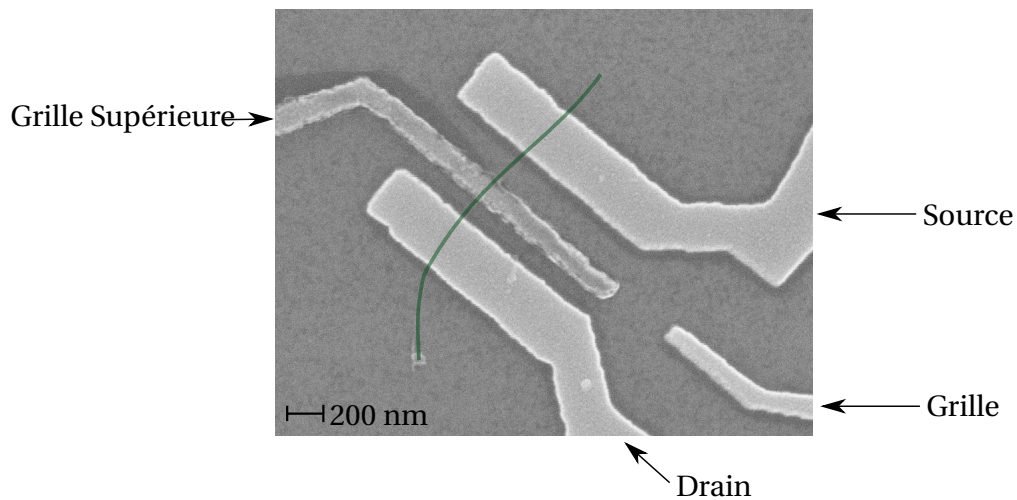


FIGURE C.2 – Photographie prise au microscope électronique à balayage du nanotube de carbone contacté par les électrodes de source et drain avec la grille supérieure et la grille. La nanotube signalé en vert afin de mieux visualiser sa position sur l'échantillon.

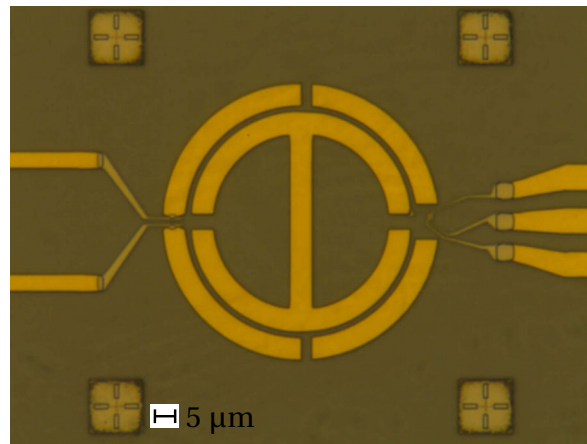


FIGURE C.3 – Photographie prise au microscope après toutes les étapes de fabrication des échantillons de la zone autour du résonateur. Les électrodes de couleur jaune sont en or, les électrodes de couleur grises sont faites en palladium. Les croix qui entourent le résonateur sont les croix d'alignement effectué lors de la première étape de lithographie.

Annexe D

Spectroscopie d'un échantillon dans le domaine THz

Nous avons expliqué comment était généré et détecté le champ térahertz sur le banc TDS dans le chapitre 2. Nous allons détailler maintenant comment ce champ est utilisé pour faire la spectroscopie d'un échantillon dans le domaine térahertz. Le schéma D.1 présente le fonctionnement de la spectroscopie TDS d'un échantillon sur un substrat. Nous supposons que les échantillons sont sondés par un champ térahertz qui arrive à la normale de l'échantillon. La spectroscopie complète nécessite d'effectuer deux mesures afin de remonter à la transmission T_{ech} (ou le réflexion) de l'échantillon qui donne accès aux informations sur le comportement d'un matériau dans ce domaine de fréquence. La première mesure qui est faite est d'envoyer un champ sonder l'échantillon et son substrat (qui peut être de l'air). Afin d'éliminer l'influence du substrat, une deuxième mesure est effectuée où cette fois le champ térahertz sonde uniquement le substrat. La transmission est le rapport des amplitudes des deux champs que nous allons calculer en fonction de l'indice de réfraction complexe de l'échantillon $\tilde{n}_{ech}$. Il est important de préciser que pour effectuer ce type de mesure, les caractéristiques du substrat dans le térahertz doivent être connues à travers l'indice complexe de réfraction $\tilde{n}_{sub}$ ou la permittivité complexe $\tilde{\epsilon}$. Ce sera notre élément de référence pour la spectroscopie.

Notre antenne génère une impulsion térahertz $E_{THz}(\omega)$ qui se propage à travers le banc de spectroscopie. Cette impulsion est transmise à travers l'échantillon puis le substrat du matériau avant d'être détectée. Nous faisons l'hypothèse d'absence d'échos provenant de l'échantillon. Le champ complexe détecté s'écrit [140] :

$$E_{THz,ech+sub}(\omega) = T_{air \rightarrow ech}(\omega) P_{ech}(\Omega, L_{ech}) T_{ech \rightarrow sub}(\omega) P_{sub}(\omega, L_{sub}) T_{sub \rightarrow air}(\Omega) \eta(\Omega) E_{THz}(\omega) \quad (D.1)$$

où T_i sont les transmissions complexes entre l'air et l'échantillon, l'échantillon et le substrat, et le substrat et l'air ; P_i sont les coefficients de propagation dans le matériau et le substrat et η est le coefficient de propagation dans l'air environnant l'échantillon. Les expressions des coefficients T_i et P_i sont données par les équations de Maxwell et les coefficients de Fresnel, $P_i(\omega, L) = \exp\left(-i \frac{\tilde{n}_i 2\pi\omega L}{c}\right)$ et $T_{a \rightarrow b}(\omega) = \frac{2\tilde{n}_a}{\tilde{n}_a + \tilde{n}_b}$ où $\tilde{n}_i$ sont les indices de réfraction complexes qui dépendent de la fréquence¹. Pour pouvoir remonter directement à la transmission de l'échantillon, il faut retirer l'influence du substrat présent via les

1. On n'ajoutera pas la dépendance explicitement en Ω pour ne pas alourdir les équations.

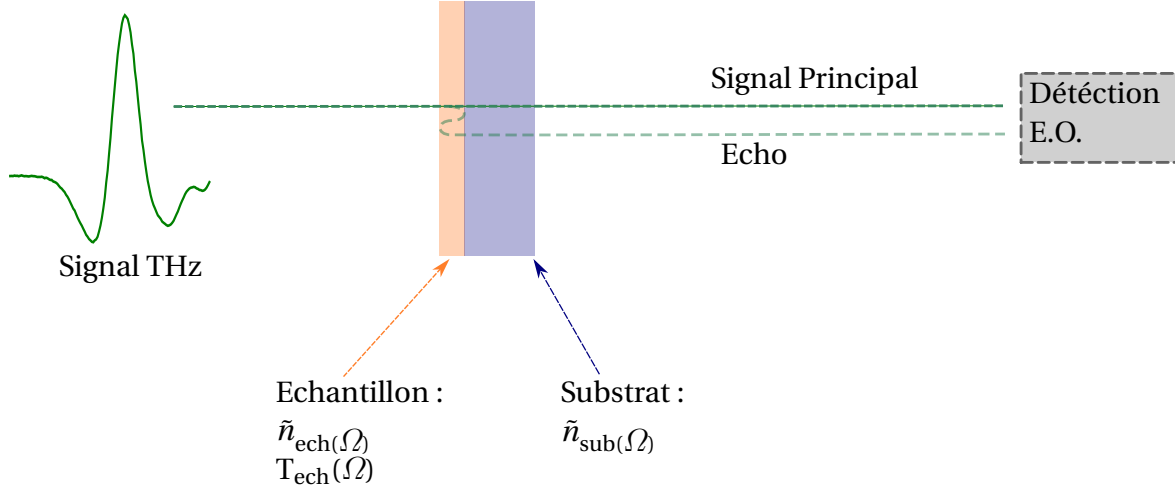


FIGURE D.1 – Schéma de principe de la spectroscopie TDS d'un matériau dans le domaine térahertz. Le champ térahertz vient sonder l'échantillon. Sa transmission à travers le substrat dépend de la réponse de l'échantillon et du substrat dans le térahertz. Pour s'affranchir de l'effet du substrat, il faut effectuer une seconde mesure avec le substrat seul. Une partie de l'impulsion térahertz est réfléchiée à l'intérieur de l'échantillon donnant naissance à un écho temporel du signal principal.

termes $P_{\text{sub}}(\omega, L_{\text{sub}})$ et $T_{\text{sub} \rightarrow \text{air}}(\omega)$) sur la propagation de l'impulsion térahertz. Pour cela, le substrat seul est sondé avec l'impulsion térahertz pour obtenir le spectre de référence. Le champ s'écrit dans ce second cas,

$$E_{\text{THz,sub}}(\omega) = P_{\text{air}}(\omega, L_{\text{ech}}) T_{\text{air} \rightarrow \text{sub}}(\omega) P_{\text{sub}}(\omega, L_{\text{sub}}) T_{\text{sub} \rightarrow \text{air}}(\omega) \eta(\omega) E_{\text{THz}}(\omega) \quad (\text{D.2})$$

En combinant les formules D.1 et D.2, nous pouvons remonter directement à la transmission du matériau en effectuant le rapport des deux champs soit :

$$T_{\text{ech}}(\omega) = \frac{2\tilde{n}_{\text{ech}}(\tilde{n}_{\text{sub}} + 1)}{(\tilde{n}_{\text{sub}} + \tilde{n}_{\text{ech}})(\tilde{n}_{\text{ech}} + 1)} \exp\left(-i \frac{(\tilde{n}_{\text{ech}} - 1)L_{\text{ech}}2\pi\Omega}{c}\right) \quad (\text{D.3})$$

En effectuant deux mesures, nous sommes capables de connaître la réponse dans le térahertz de l'échantillon contenu dans l'indice de réfraction et donc de connaître les raies d'absorption qui peuvent être interprétées dans le cadre d'une spectroscopie rigoureuse. Par ailleurs, la connaissance de l'indice de réfraction complexe $\tilde{n}_{\text{ech}}$ nous permet de remonter à d'autres grandeurs telle que la conductivité du matériau dans le domaine térahertz².

Les échantillons sondés en transmission peuvent entraîner un décalage en temps du signal térahertz dont il faut tenir compte lors de l'acquisition temporelle. Ce décalage provient de la différence d'indice de réfraction entre le milieu ambiant l'air, l'échantillon et le substrat qui modifie la vitesse de propagation de l'onde térahertz. On peut estimer le décalage dans le temps à partir de ces indices :

$$\Delta t = \frac{(n_{\text{sub}} - 1)L_{\text{sub}} + (n_{\text{ech}} - 1)L_{\text{ech}}}{c} \quad (\text{D.4})$$

2. Dans le cas où le substrat de l'échantillon est l'air, la formule D.3 se simplifie et s'écrit :

$$T_{\text{ech}}(\omega) = \frac{4\tilde{n}_{\text{ech}}}{(\tilde{n}_{\text{ech}} + 1)^2} \exp\left(-i \frac{(\tilde{n}_{\text{ech}} - 1)L_{\text{ech}}\omega}{c}\right)$$

où L_i sont les longueurs traversées par l'impulsion térahertz du matériau sondé et du substrat, n_i sont les indices de réfraction dans le térahertz du matériau et du substrat et c est la vitesse de la lumière. Ceci n'est qu'une estimation car dans beaucoup de cas, les matériaux sondés sont dispersifs et donc les composantes de l'impulsion térahertz ne se propagent pas tous à la même vitesse.

Selon l'épaisseur de l'échantillon, un écho du signal peut arriver plus rapidement que l'écho provenant de l'antenne (voir figure D.1). Si on souhaite conserver une résolution fréquentielle élevée, les échos doivent être inclus dans l'acquisition du signal. Le traitement de données devient plus complexe. *Duvillaret et al.* ont développé une méthode afin d'exploiter les données dans ce cadre [140].

Annexe E

Principe de la mesure de la taille du faisceau térahertz

Dans cette annexe, nous allons nous intéresser au fonctionnement de la mesure de la taille du faisceau térahertz à la lame de rasoir. Commençons par décrire cette technique de mesure et les informations qui peuvent en être extraites sur les propriétés du faisceau térahertz. Le faisceau térahertz est focalisé par un miroir parabolique. Le principe de la méthode de mesure de la taille du faisceau à la lame de rasoir utilise une lame très fine qui vient découper le faisceau térahertz [118, 117]. Pour chaque position de la lame, une acquisition temporelle est effectuée qui par transformée de Fourier donne accès à l'amplitude spectrale de chaque composante en fonction de la position de la lame. Le champ à la fréquence Ω mesuré par effet Pockels avec le champ optique de retard τ et selon l'axe propre i du cristal E.O. s'exprime [35] ¹,

$$E(\Omega, \tau)_i \propto \int \int \int_0^{l_{\text{Cristal}}} d\omega dr dz \chi^{(2)}(\omega; \Omega, \omega - \Omega) \varrho_i(\Omega, \omega, z) E_{\text{THz}}(\omega, r) E_{\text{opt}}(\Omega - \omega - \Omega_0, r) \exp(-i\omega\tau) \quad (\text{E.1})$$

où $\varrho_i(\Omega, \omega, z)$ est une fonction prenant en compte le désaccord de phase à la position z dans le cristal entre les composantes rentrant en jeu dans l'effet non-linéaire dans l'axe propre i du cristal électro-optique, l_{Cristal} est la longueur du cristal électrooptique utilisé, Ω_0 est la fréquence angulaire du champ optique et ω est la fréquence angulaire du champ térahertz, E_{opt} est le champ électrique optique et E_{THz} est le champ électrique térahertz. Le déphasage induit par la biréfringence de la composante s'exprime alors comme,

$$\delta\phi(\Omega, \tau)_i = \frac{E(\Omega, \tau)_i}{E_{\text{opt}}(\Omega)}$$

L'effet de la lame de rasoir va modifier la répartition spatiale du champ térahertz au niveau de l'échantillon entre la position $x = -\infty$ et $x = x_0$ la position de la lame. Cela a pour conséquence de modifier le champ térahertz au niveau du cristal $E_{\text{THz}}(\omega, r)$. L'amplitude de $E(\Omega, \tau)_i$ sera modifiée et donc, l'amplitude du déphasage $\delta\phi$ mesurée aussi. Ainsi, le signal TDS permet de remonter directement à la répartition spatiale du champ térahertz pour toutes les composantes du champ qui la compose.

1. La dépendance spatiale a été introduite de manière phénoménologique.

Analysons maintenant le profil théorique du champ térahertz. L'ouverture du miroir parabolique de focalisation étant circulaire et le faisceau térahertz recouvrant entièrement celui-ci, l'intensité térahertz aura une distribution en forme de tâche d'Airy au point focal du miroir parabolique (i.e. à l'emplacement de l'échantillon) dont le lobe principal peut être approximé par une gaussienne. Nous garderons cette approximation pour décrire le champ térahertz dans la suite. La mesure à la lame de rasoir permet de reconstruire la valeur du champ électrique en fonction de la position de la lame de rasoir. La valeur du champ électrique mesurée en fonction de la position est décrite par une fonction erreur,

$$A = A_0 \operatorname{erfc}\left(\frac{x - x_p}{r_{\text{THz}}}\right) + B \quad (\text{E.2})$$

où A_0 est l'amplitude maximum du champ électrique détectée, B est une constante qui représente le bruit de fond moyen du banc, x_p est la position centrale du champ térahertz dans le référentiel de la lame de rasoir et r_{THz} est le rayon du faisceau térahertz.

Afin d'avoir une résolution spatiale suffisamment élevée, il est nécessaire de prendre des pas pour la lame qui soit au moins deux fois plus petits que la longueur d'onde si l'on souhaite caractériser un faisceau focalisé en limite de diffraction. Par exemple, à 10 THz, les composantes auront une répartition de l'ordre de $\lambda_{\text{THz}} = 30 \mu\text{m}$. Cependant, la mesure en elle même prend du temps et il faut aussi prévenir toute dérive provenant des fluctuations du laser qui peuvent déséquilibrer la balancée de l'ellipsométrie. Nous avons choisi un pas intermédiaire de déplacement de la lame de $10 \mu\text{m}$.

Sur le banc optique développé, il est possible de basculer simplement en condition d'excitation de l'antenne avec un faisceau infrarouge de front d'onde plan en modifiant le trajet du faisceau infrarouge de pompe. La forme attendue de l'intensité térahertz au niveau de l'échantillon est là aussi une tâche d'Airy mais dont l'extension spatiale est constante et vaut $176 \mu\text{m}$ - voir figure 2.18. Nous approximations dans ce cas aussi le lobe principal de la tâche d'Airy par une gaussienne. La formule E.2 s'appliquera aussi pour les profils en champ. Pour la mesure dans ce régime d'excitation par un faisceau infrarouge à front d'onde plan, un déplacement élémentaire de la lame de rasoir de $25 \mu\text{m}$.

Enfin, au niveau de la détection électro-optique, nous avons sondé le champ térahertz avec un faisceau infrarouge dont le rayon mesuré est inférieur à $100 \mu\text{m}$. Le cristal utilisé est du tellure de zinc (ZnTe) de longueur $20 \mu\text{m}$ nous permettant de bénéficier d'une large bande passante de détection comme nous l'avons vu précédemment. Ce faisceau optique peut être pris plus petit que l'extension spatiale du champ térahertz au niveau du cristal [118]. Ce qui importe, c'est que les deux faisceaux soient centrés l'un par rapport à l'autre et qu'ils soient colinéaires.

Le dernier élément important concerne la détermination de la position où le faisceau térahertz est focalisé qui n'est pas simple à localiser. Nous avons procédé en deux étapes. Tout d'abord, nous avons effectué des acquisitions très rapides de la valeur du champ électrique en fonction de la position de la lame aux positions des extrema du pic principal du signal temporel. Cela a permis de circonscrire une zone dans laquelle se trouvait la zone de focalisation du faisceau térahertz d'une taille $\delta z = 1.5 \text{ cm}$ sur une distance entre les deux paraboliques de 31 cm . Nous avons effectué plusieurs acquisitions à la lame de couteau à différentes positions de la lame en z entre les miroirs 2 paraboliques afin de déterminer par itération la position précise du point de focalisation du faisceau térahertz.

Annexe F

Etude d'un fil diffusif cohérent dans une cavité térahertz

F.1 Introduction

Le fil diffusif est la source de photons térahertz que nous souhaitons utiliser pour étudier le couplage avec les nanotubes de carbone en régime de boîte quantique. Cependant, le fil diffusif en lui-même est un objet intéressant qui peut être étudié à part afin de sonder le couplage entre les différents canaux électroniques et la cavité et analyser le couplage avec cette cavité et, le principe d'échange de photons avec la cavité. Le couplage d'un conducteur mésoscopique avec un environnement donne lieu à un phénomène nommé blocage de Coulomb dynamique dans le transport électronique avec l'apparition d'une anomalie à énergie nulle (*zero bias anomaly* en anglais). Cependant, l'apparition de ce phénomène avec un conducteur diffusif n'est pas trivial car sur l'ensemble des canaux de transport, certains ont une transmission proche de 1. Cependant, *Golubev et al.* et Yeyati et al. [141, 142] ont montré en considérant un environnement électromagnétique perturbatif (soit, que l'échange d'énergie entre le conducteur et l'environnement électromagnétique est faible) que nous retrouvions de nouveau cette signature du blocage de Coulomb dynamique. Plus précisément, le blocage de Coulomb dynamique dans un conducteur cohérent va être réduit en amplitude par rapport à un conducteur mesoscopique telle qu'une jonction tunnel par le facteur de Fano $F = \frac{\sum_n T_n(1 - T_n)}{\sum_n T_n}$ où T_n est la transmission du canal n dans le conducteur mésoscopique¹. Dans cette annexe, nous détaillerons la théorie du blocage de Coulomb dynamique dans le cas d'un conducteur mésoscopique inclus dans une cavité et nous montrerons que par des mesures de transport, nous pouvons montrer qu'il est possible de remonter aux caractéristiques de l'environnement et en particulier de la cavité. Dans un deuxième temps, les comment

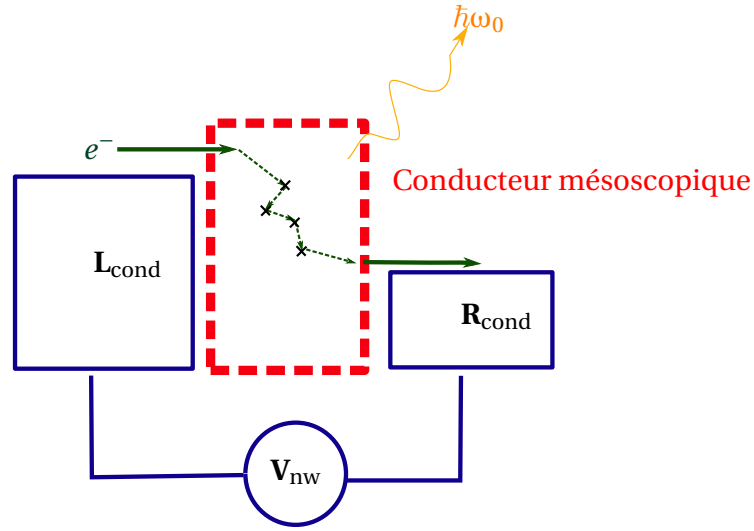


FIGURE F.1 – Représentation schématique d'un conducteur mésoscopique. L'électron se propage à travers les diffuseurs représentés par les croix noirs. Ces diffusions s'accompagnent de bruit qui entraînent des fluctuations de potentiel permettant l'émission de photons. La tension appliquée aux bornes de ce conducteur est V_{nw}

F.1.1 Description de la source

Le conducteur est un film de palladium de 5 nm d'épaisseur, de 100nm de large et d'une longueur de $L=1 \mu\text{m}$. Cette longueur L est inférieure à la longueur de cohérence de phase des électrons L_ϕ à basse température. La faible épaisseur du palladium dans ces conducteur donne un film métallique très désordonné avec beaucoup de défauts qui permettent la diffusion des électrons durant leur transport. Deux mécanismes d'émission de photons sont possibles.

Le premier mécanisme d'émission provient de la diffusion des électrons à l'intérieur de ce type de conducteur. La diffusion des électrons entraîne des fluctuations de courant qui dépendent de la tension V_{nw} . Ces fluctuations de courant entraînent des fluctuations de potentiel autorisant l'émission de photons [132, 133, 43]. Ces fluctuations peuvent être caractérisées à travers la densité spectrale de bruit en courant $S_I(\omega)$. Lorsque qu'un conducteur mésoscopique cohérent à deux terminaux est utilisé - une jonction tunnel par exemple - comme source de photons, l'émission de photons est issu de fluctuations de courant dans ce conducteur. La valeurs moyenne quadratique des fluctuations du potentiel aux bornes du conducteur est directement liée à sa densité spectral de bruit $S_I(\omega)$ par [134], $\langle \Delta U^2 \rangle(\omega) = R^2 S_I(\omega)$. La source est couplée à la cavité qui est sensible aux fluctuations de potentiel. Cependant, la cavité a une fonction de transmission $T(\omega, \omega_0, Q)$ qui filtre les composantes spectrales. Les fluctuations de tension au niveau de la boîte quantique ne sont perçues que dans les régions du spectre où la cavité résonne. En prenant en compte cela dans notre calcul, $\langle (\delta V)^2 \rangle$ s'écrit,

$$\langle (\delta V_i)^2 \rangle = R^2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega g_i^2 S_I(\omega) T(\omega, \omega_0, Q) \quad (\text{F.1})$$

où g_i est le coefficient de couplage entre les niveaux orbitaux ou les réservoirs avec la source. La formule F.1 est assez générique et dépend de la source utilisée. De part l'inté-

1. Pour plus de détails sur le sujet, le lecteur pourra s'intéresser à la thèse d'HDR de Frédéric Pierre (LPN, Marcoussis) qui a traité de ce sujet en couplant un conducteur cohérent avec une cavité microonde.

gration sur le spectre de la transmission, les fluctuations dépendront directement des fréquences de résonance de la cavité et certaines marques particulières devraient apparaître lorsque la tension appliquée au borne du conducteur sera égale à l'énergie du photon.

Le second mécanisme d'émission provient directement du corps noir issu du gaz électronique. La thermalisation s'effectue par les électrodes en contact avec le conducteur. Cependant, pour certaines tailles de conducteurs diffusifs, l'échauffement imposé par la diffusion des électrons n'est plus contenu par les réservoirs provoquant une dissipation de type effet Joule [42, 134]. La température électronique est alors augmentée par rapport à celles des réservoirs permettant le rayonnement de photons de plus hautes énergies.

F.2 Etude théorique du blocage de Coulomb dynamique avec un environnement photonique

Nous allons dans cette section établir l'expression du courant de manière analytique. Il est intéressant de détailler la théorie afin d'introduire la fonction $P(E)$ (dont nous avons déjà brièvement parlé au chapitre 1). Nous introduisons les grandeurs du problème, C la capacité décrivant les interactions de Coulomb, R la résistance du fil, $\Omega = 1/RC$ la fréquence liée au RC du circuit, ω_0 la fréquence du résonateur avec Q le facteur de qualité lié à la résonance du circuit RC.

On définit les fonctions de Fermi-Dirac par $f_i(\epsilon) = \frac{1}{1 + \exp(\beta(\epsilon - \mu_i))}$ où i réfère à l'électrode de gauche (L) ou de droite (R) et $\beta = 1/k_B T$. Les potentiels chimiques seront pris de telle que $\mu_L = \mu_0 + qV_{nw}/2$ et $\mu_R = \mu_0 - qV_{nw}/2$.

Ecrivons le courant I circulant dans le fil. C'est un conducteur avec plusieurs canaux électroniques pouvant transporter les électrons de l'électrode de gauche à l'électrode de droite². Nous définissons la transmission du canal électronique i pour un électron passant d'une énergie ϵ à une énergie ϵ' par $T_i(\epsilon, \epsilon')$. On considère que le fil diffusif est composé de n canaux de transmission T_i . Lorsque l'environnement est perturbatif, nous pouvons alors écrire le courant sous la forme [143],

$$I = \frac{q}{2\pi\hbar} \sum_n \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon d\epsilon' T_n(\epsilon, \epsilon') (f_L(\epsilon)(1 - f_R(\epsilon'))P_{L,R}(\epsilon, \epsilon') - f_R(\epsilon')(1 - f_L(\epsilon))P_{R,L}(\epsilon', \epsilon)) \quad (F.2)$$

Les termes $P_{i,j}(\epsilon, \epsilon')$ sont les fonctions de probabilité d'excitation de l'environnement qui sont similaires aux fonctions $P(E)$ qui apparaissent dans l'article de *Ingold et al.* [75]. Cette fonction décrit la probabilité d'échanger de l'énergie avec l'environnement et c'est donc elle qui va moduler le transport électronique à travers les canaux du fil diffusif. Si on analyse cette expression, on se rend compte que nous ne pouvons avoir un courant non nul dans le cadre d'un couplage avec un environnement que si les fonctions $P_{i,j}$ ne sont non nulles, soit qu'il y a un échange d'énergie avec l'environnement. Nous avons vu que l'interaction avec l'environnement modifiait la phase de la fonction d'onde de l'électron (perte de cohérence), en conséquence, la fonction $P(E)$ est liée à la phase de l'électron. Nous pouvons l'écrire sous la forme $P(E) = \mathcal{F}(\exp(J(t)))$ où $J(t)$ est la fonction de corréla-

2. Nous verrons que la résistance de nos fils est autour de $2k\Omega$.

tion phase-phase définie par $\langle \hat{\Phi}(t)\hat{\Phi}(0) \rangle = -\hat{\Phi}(0)^2$ ³. Dans notre cas, cette fonction s'écrit sous la forme,

$$P_{L,R}(\epsilon, \epsilon') = \frac{q}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i(\epsilon - \epsilon')t/\hbar) \exp(J(t)) \quad (E3)$$

Les termes $P_{i,j}$ et $P_{j,i}$ sont reliés par une égalité de balance détaillée liée au théorème de fluctuation-dissipation $P_{i,j}(\epsilon, \epsilon') = \exp(\beta(\epsilon - \epsilon')) P_{j,i}(\epsilon', \epsilon)$.

Expression de J(t) Afin de calculer le courant total circulant dans le fil, il nous faut connaître l'expression de $J(t)$. Cette fonction décrit la dissipation du système et fait intervenir l'impédance totale du système⁴. La formule de $J(t)$ s'écrit [142],

$$J(t) = G_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \frac{\exp(-i\omega t) - 1}{1 - \exp(-\beta\hbar\omega)} \quad (E4)$$

L'impédance $Z(\omega)$ comprend deux termes distincts,

1. L'impédance du fil lui-même ; c'est un circuit RC parallèle où R est la résistance du fil et C la capacité décrivant les interactions coulombiennes. L'impédance est donnée par $Z_{\text{fil}}(\omega) = \frac{1}{1/R + 1/i\omega C}$.
2. Le résonateur de fréquence ω_0 que nous décrirons comme un circuit RLC avec $\omega_0 = 1/\sqrt{L_0 C_0}$ et R_r la résistance liée au résonateur. L'impédance de ce type de circuit s'écrit, $Z(\omega) = R_r + i\omega L_0 + \frac{1}{i\omega C_0}$

L'impédance totale est la somme des deux impédances. La partie réelle de l'impédance s'écrit donc,

$$\text{Re}(Z(\omega)) = \frac{R}{1 + (\omega/\Omega)^2} + \frac{R_r}{1 + (\omega/\omega_0)^4 - A(\omega/\omega_0)^2}$$

où $A = 2 - 1/Q^2$. Connaissant l'impédance, on peut estimer le couplage g entre le fil et l'environnement en effectuant le rapport de l'impédance sur le quantum de résistance [75]. Dans notre cas, $R \approx 2000 \Omega$, $R_r = 20 \Omega$, $\omega_0/2\pi = 0.5 \text{ THz}$, et $\hbar\Omega = 0.004 \text{ meV}$ ce qui nous fait une impédance à résonance autour de 100Ω . Le couplage g nous donne une valeur de $g \sim 5 \times 10^{-2}$. Ce calcul tend bien à indiquer que l'environnement a un effet limité sur le fil diffusif soit que $J(t) \ll 1$ justifiant ainsi les hypothèses dans lequel nous avons décrit notre système. Nous pouvons donc faire un développement limité sur l'exponentielle, $\exp(J(t)) \approx 1 + J(t)$. Nous pouvons ainsi calculer la fonction $P_{L,R}$,

$$P_{L,R}(\epsilon, \epsilon') = \delta(\epsilon - \epsilon') + G_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \frac{\delta((\epsilon - \epsilon') - \hbar\omega) - \delta(\epsilon - \epsilon')}{1 - \exp(-\beta\hbar\omega)} \quad (E5)$$

Nous pouvons maintenant injecter l'expression E5 dans l'expression du courant E2. En notant que $-f_R(\epsilon - \hbar\omega) \exp(-\beta\hbar\omega) + f_R(\epsilon) = (1 - \exp(-\beta\hbar\omega)) f_R(\epsilon - \hbar\omega) f_R(\epsilon)$, on peut établir l'expression finale du courant,

$$I = \frac{q}{h} \sum_n \int_{-\infty}^{+\infty} d\epsilon T_n(\epsilon) (f_L(\epsilon) - f_R(\epsilon)) \left[1 - \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega G_0 \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} f_R(\epsilon - \hbar\omega) \right] \quad (E6)$$

3. Il est à noter que dans cette description, la phase qui est mentionnée est la phase macroscopique du système $\hat{\Phi}$ qui est la variable conjuguée de $\hat{N}$ le nombre total d'électron du système

4. Les raisons sont expliquées dans la référence [75] à la page 36. L'impédance décrit directement la relaxation de la charge du système.

On retrouve ainsi la formule de Landauer avec un terme correctif Y qui décrit l'effet de la présence de l'environnement,

$$Y(\epsilon, \mu_R) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega G_0 \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} f_R(\epsilon - \hbar\omega)$$

Nous pouvons effectuer une intégration formelle en utilisant les fréquences de Matsubara. L'expression finale nous donne,

$$Y(\epsilon, \mu_R) = G_0 \left(-\frac{R+R_r}{2} \text{Re}(\psi(1/2 + i(\epsilon - \mu_R)\tilde{\beta})) + \frac{R}{2} \text{Re}(\psi(1/2 + \hbar\Omega\tilde{\beta} + i(\epsilon - \mu_R)\tilde{\beta})) \right. \\ \left. - \frac{R_r}{2} \zeta_1 \text{Re}(\psi(1/2 + i(\epsilon - \mu_R - \omega_0\nu_1)\tilde{\beta})) + \frac{R_r}{2} \zeta_2 \text{Re}(\psi(1/2 + i(\epsilon - \mu_R + \omega_0\nu_2)\tilde{\beta})) \right) \quad (\text{E.7})$$

où $\tilde{\beta} = \beta/2\pi$, $\psi(z)$ est la fonction digamma, $\nu_1 = \sqrt{(2 + i\sqrt{4-A^2})/2}$ et $\nu_2 = \sqrt{(A - i\sqrt{4-A^2})/2}$ et $\zeta_i = \frac{i}{\nu_i^2 \sqrt{4-A^2}}$. Nous pouvons voir que le premier terme dépend de toutes les résistances présentent dans l'environnement. C'est un terme qui apparaît naturellement lorsque nous décrivons une dissipation avec l'environnement et qui décrit un pic à énergie nulle. Cela démontre que quel que soit l'environnement dissipatif dans lequel votre système se trouve, vous aurez toujours l'apparition d'un pic à énergie nulle dans la conductance du conducteur mesuré⁵.

Limite à température nulle $T \rightarrow 0$ Trouver une expression analytique de la conductance pour toute température T est assez compliquée de part la complexité de l'expression finale. Cependant, il est possible de trouver une expression pour la limite à température nulle dans le cas où la transmission est indépendante de l'énergie. Afin de rendre plus simple le calcul, on établit les potentiels chimiques des électrodes de la manière suivante, $\mu_L = \mu_0 - qV_{nw}$ et $\mu_R = \mu_0$. Les fonctions de Fermi-Dirac sont assimilables à des distributions de Heaviside lorsque la température est nulle,

$$\lim_{T \rightarrow 0} f_i(\epsilon) = \Theta(\mu_i - \epsilon)$$

En prenant la limite, on modifie les bornes de l'intégrale. Le courant s'écrit dans cette limite,

$$I = \frac{q}{h} \sum_n \int_{-qV_{nw}}^0 d\epsilon T_n \left[1 - \int_{\epsilon+qV_{nw}}^{+\infty} \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \right]$$

La dérivation de cette expression par rapport à V_{nw} nous donne l'expression de la conductance différentielle.

5. Afin de tenir compte de l'aspect cohérent du conducteur, il suffit de rajouter le facteur de Fano F en préfacteur tel que,

$$Y(\epsilon, \mu_R) = F \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega G_0 \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} f_R(\epsilon - \hbar\omega)$$

$$G = \frac{\partial I}{\partial V_{nw}} = \sum_n T_n \frac{q^2}{h} \left[1 - \int_0^{+\infty} d\omega \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \right] + \sum_n \frac{q^2}{h} T_n \int_{-qV_{nw}}^0 d\omega \frac{\text{Re}(Z(\epsilon + qV_{nw}))}{\epsilon + qV_{nw}}$$

En effectuant le changement de variable $\epsilon + qV_{nw} \rightarrow \omega$ dans la seconde intégrale, nous obtenons l'expression finale pour la conductance,

$$G = \sum_n T_n \frac{q^2}{h} \left[1 - \int_{qV_{nw}}^{+\infty} d\omega \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \right]$$

On peut donc extraire directement la variation de conductance due à la présence de l'environnement $\frac{\delta G}{G} = \frac{G(V_{nw} \rightarrow \infty) - G(V_{nw})}{G(V_{nw} \rightarrow \infty)}$,

$$\frac{\delta G}{G} = \int_{qV_{nw}}^{+\infty} d\omega \frac{\text{Re}(Z(\omega))}{\omega} \quad (E8)$$

qui est similaire à la formule (11) de l'article de *Yeyati et al.* [142]. Cette formule permet de mettre en évidence de nouveau l'origine de la modification de la conductance qui est due à la dissipation de la charge dans l'environnement par des processus décrits dans l'impédance, soit les interactions d système ou bien la présence d'une cavité.

Calcul numérique de la conductance Nous avons tracé la conductance en utilisant la formule E.7 et en effectuant une dérivation numérique. Nous avons utilisé comme paramètres $R = 1500 \Omega$, $R_r = 1 \Omega$, $Q = 10$, $\hbar\omega_0 = 2 \text{ meV}$, $k_b T = 0.025 \text{ meV}$ et $\hbar\Omega = 0.003 \text{ meV}$. Le résultat du calcul est présenté à la figure E2.

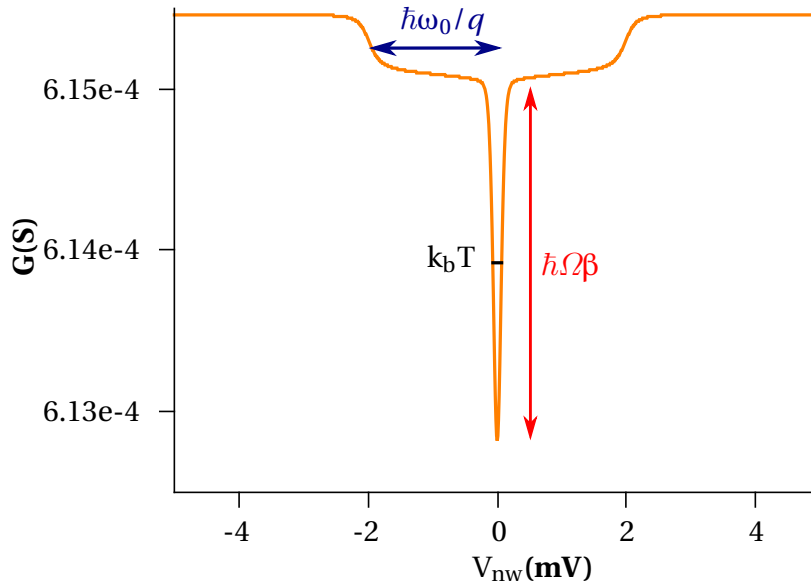


FIGURE E2 – Conductance G en fonction de la tension V_{nw} appliquée. L'intervention des échelles d'énergie du problème sont résumées sur le graphe, les interactions coulombiennes modélisées à travers Ω modifient la profondeur du pic à énergie nulle, la température $k_b T$ régule la largeur à mi hauteur du pic à énergie nulle et la fréquence de la cavité $\hbar\omega_0$ définit la longueur de la marche de conductance.

Nous pouvons observer l'apparition d'un pic à énergie nulle comme il a été observé par les différentes expériences décrites précédemment. Nous voyons aussi apparaître les

paliers issus de la la présence du résonateur. Les contributions des différents termes de la formule E.7 ont été placés sur le graphe afin de comprendre leur effet sur la conductance. L'énergie $\hbar\Omega$ va moduler la profondeur de l'anomalie à énergie nulle. Plus la capacité sera faible, plus les interactions seront fortes et donc plus la dissipation avec l'environnement sera importante. L'autre énergie importante est la température. Elle est présente dans tous les termes de Υ et a un rôle important dans la forme de la conductance. Si la température est élevée, le contraste du pic devient très faible. Cela peut s'expliquer par une plus faible cohérence du système lorsque la température augmente entraînant un brouillage de l'information. De même, la température est l'échelle de grandeur que nous retrouvons pour la largeur à mi-hauteur de l'anomalie à énergie nulle. L'échelle d'énergie $\hbar\omega_0$ définit la longueur de la marche comme nous l'avons vu précédemment. La pente de la marche est elle fixée par le facteur de qualité Q et la hauteur de la marche par la résistance R_r du circuit RLC décrivant le résonateur.

F.3 Blocage de Coulomb dynamique d'un fil diffusif dans une cavité térahertz

Nous allons maintenant détailler les mesures de transport que nous avons effectuées sur nos fils diffusifs. Nous présenterons l'échantillon dans un premier temps ainsi que la technique de mesure que nous avons adoptée. Puis, nous expliciterons les mesures dans un second temps en les modélisant.

F.3.1 Présentation de l'échantillon et méthode de mesure

Comme détaillé dans le chapitre lié à l'étude des résonateurs térahertz, nous avons modifier le résonateur SRR3 pour pouvoir coupler de la manière la plus forte possible un nanoobjet, ici notre fil diffusif, en rajoutant un dipôle le long de la courbure du résonateur. Cela a, en théorie, pour effet de maximiser la capacité et donc l'énergie échangée entre les deux composantes de ce résonateur. Ce résonateur a été caractérisé au chapitre 3 et présente une résonance fondamentale lorsqu'il est sous forme de métamatériau autour de 0.47 THz soit une énergie située autour de 1.9 meV. Le design de cet échantillon est présenté à la figure F.3 avec une photo prise au microscope optique et en insert, une photo prise au microscope électronique du fil lui-même.

Le design présenté ici est pour une étude. L'échantillon a été inséré dans l'entrefer du résonateur et est contacté galvaniquement au dipôle épousant la forme du résonateur. Cela permet dans un premier temps de coupler au maximum l'échange de photons entre le dipôle et le fil diffusif. Le fil est connecté à deux électrodes L_{cond} et R_{cond} qui sont reliés aux appareils de mesure comme décrit au chapitre 2. Afin d'avoir un signal clair, nous avons effectué 60 fois la même mesure qui ont été moyennées pour obtenir les courbes expérimentales. Le temps d'intégration de la détection synchrone choisi était de 200 ms.

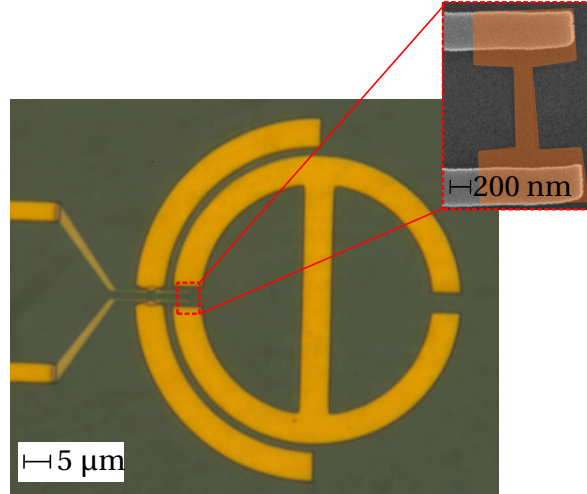


FIGURE E3 – Image prise au microscope de l'échantillon avec le résonateur SRR3-DP1 avec le fil diffusif disposé dans l'entrefer de la cavité. Les contacts sont en palladium. En insert, une image prise au microscope électronique du fil diffusif en palladium.

F.3.2 Présentation des résultats expérimentaux

Les données expérimentales de 4 échantillons sont présentées à la figure F.4. Sur chaque donnée, nous avons modéliser la conductance en incluant quand c'était possible la présence d'un mode d'énergie $\hbar\omega_0$. Ce sont les courbes oranges continues sur chaque graphe.

Commentaires sur l'allure des courbes Toutes les courbes (a), (b), (c) et (d) présentent une anomalie à énergie nulle signifiant que nous avons un couplage à un environnement. Nous pouvons observer que le contraste de ce pic est souvent de l'ordre de 0.3% ce qui est 10 fois plus faible comparé à la figure obtenue par *Holst et al.* [144] qui ont étudié une jonction tunnel couplé à une cavité micro-onde. Nous avons en conséquence un facteur 3 de différence sur la profondeur du pic à cause du facteur de Fano [142]⁶.

Nous pouvons aussi constaté des oscillations qui apparaissent régulièrement sur tout le long de la courbe de conductance. Ces fluctuations entraînent par ailleurs une forte asymétrie de la courbe entre les tensions négatives et les tensions positives. Les oscillations que nous voyons apparaître opèrent des modulations de conductance de l'ordre 0.01%. Ces oscillations peuvent être interprétées comme des fluctuations universelles de conductance décrites par *Lee et al.* en 1985 [145]. Nous avons plusieurs canaux de disponibles. Les électrons circulant à l'intérieur du conducteur ont de multiples choix possibles pour atteindre le réservoir opposé ce qui provoque des phénomènes d'interférence qui se distinguent par des oscillations dans la conductance. Ces oscillations ont été observées par *Petit et al.* [146] dans des nanogaps métalliques. La figure 2 de l'article nous montre un comportement similaire aux courbes que nous avons obtenues.

Le point le plus important est que nous ne distinguons par de marches claires et nettes comme le modèle peut le montrer à la figure F.2 à des tensions autour de $V_{nw} \approx 1.5$ mV. Nous pouvons voir apparaître des marches mais à plus basse énergie comme nous pouvons le voir sur la figure (a) où nous constatons que nous avons des marches

6. Le facteur de Fano est défini par $F = \frac{\sum_n T_n(1 - T_n)}{\sum_n T_n}$ et vaut en moyenne 1/3 dans le cas d'un conducteur diffusif.

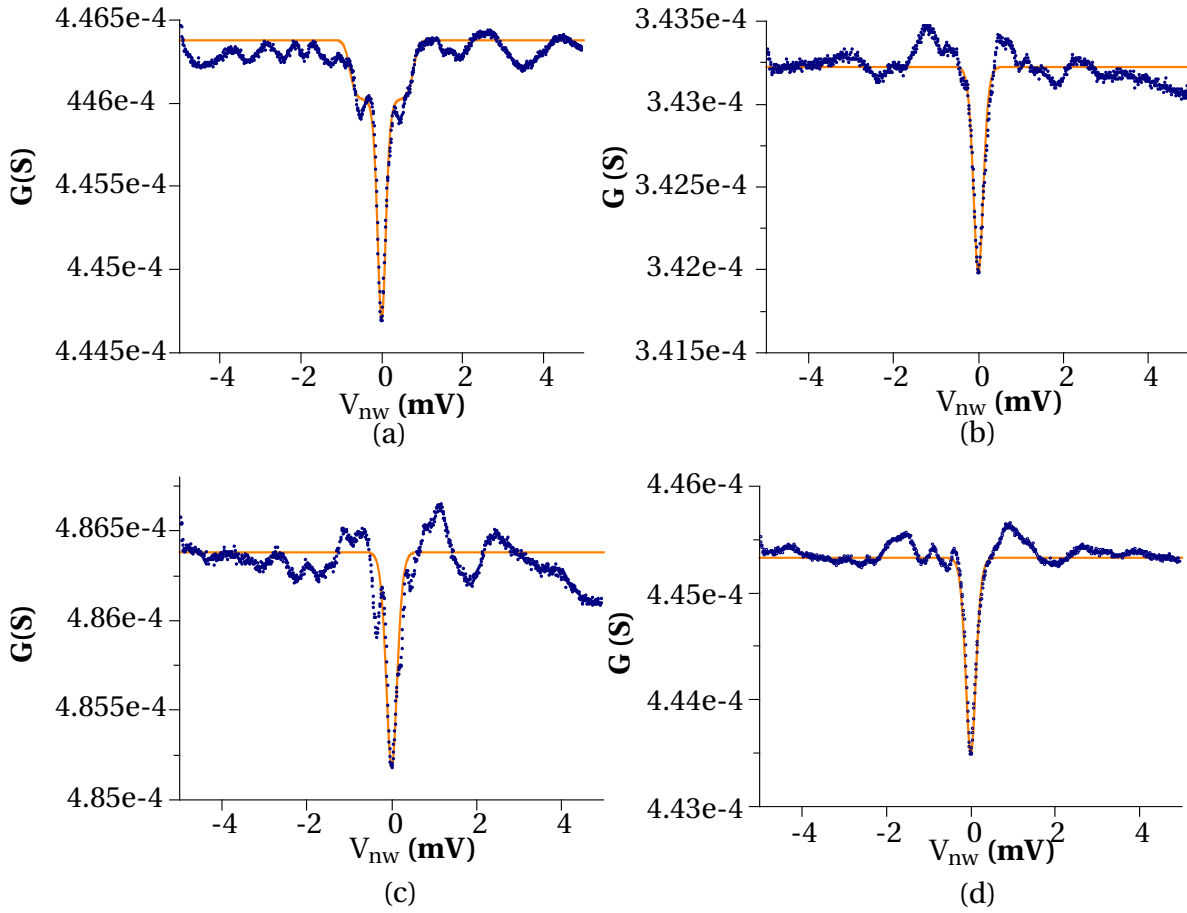


FIGURE F4 – Mesures expérimentales de la conductance dans les fils diffusifs dans une cavité térahertz avec en (a) THz-DCB-06a, (b) THz-DCB-06e, (c) THz-DCB-06h et (d) THz-DCB-06l. Pour chaque mesures, une courbe théorique a été modélisée afin d'extraire les paramètres $k_b T$ et Ω du modèle.

située à $V_{nw} = \pm 0.79$ mV ou à la figure (c) où cette fois nous avons une marche à $V_{nw} = -0.45$ mV et $V_{nw} = +0.6$ mV. Nous avons pu voir que avec nos paramètres on pouvait d'attendre à un couplage $g \approx 0.05$ ce qui reste relativement faible. Les moindres perturbations - qu'elles soient thermiques ou qu'elles proviennent des fluctuations universelles de conductance - dans le signal peuvent empêcher de distinguer clairement un signal issu d'un couplage avec la cavité. En conséquence, la nature de l'émission des photons térahertz par cette source est difficilement qualifiable.

Modélisation des courbes Nous avons modélisé les conductances obtenues en utilisant la formule F.2 afin d'estimer la température du gaz électronique et la valeur de l'énergie $\hbar\Omega$. Nous avons utilisé la plupart du temps le modèle sans inclure l'influence du résonateur (i.e. $R_r \rightarrow 0$) sauf pour l'échantillon THz-DCB-06a. Les paramètres de la modélisation sont résumés dans le tableau F.1.

TABLEAU F.1 – Tableau résumant les paramètres de modélisation pour les courbes de la figure F.4.

	$1/R$ (S)	$1/\beta$ (meV)	$\hbar\Omega$ (meV)	$\hbar\omega_0$ (meV)	R_r (Ω)	Q
THz-DCB-06a	4.46×10^{-4}	0.04	0.0029	0.79	0.22	60
THz-DCB-06e	3.42×10^{-4}	0.05	0.0031	-	-	-
THz-DCB-06h	4.86×10^{-4}	0.055	0.0033	-	-	-
THz-DCB-06l	4.454×10^{-4}	0.052	0.0048	-	-	-

Pour effectuer cette modélisation, nous avons fixé le paramètre R en prenant la résistance du fil à fort biais. Nous avons aussi supposé que les transmissions de tous les canaux étaient indépendantes de l'énergie nous permettant d'établir que $\sum_n T_n q^2/h = 1/R$ ce qui permet de simplifier grandement la modélisation.

Regardons d'abord les températures que nous avons trouvées. Les échantillons étaient refroidies à une température avoisinant les 250 mK ce qui nous fait une énergie thermique autour de 0.021 meV. Les températures trouvées sont toutes plus élevées d'un facteur 2 signifiant que nous avons un gaz électronique plus chaud que l'environnement dans lequel il est inséré. Comme nous avons vu précédemment, la circulation des électrons à travers le fil peut provoquer un échauffement du gaz électronique car les électrodes qui servent de réservoir thermique ont du mal à refroidir le gaz du fil dans son ensemble. Cet échauffement augmente les effets de décohérence dus à la température et donc peut brouiller le signal que la cavité peut imprimer dans la mesure de la conductance. Par ailleurs, si nous regardons les valeurs du paramètre $\hbar\Omega$, celle-ci se situent autour de 0.003 meV pour les trois premiers échantillons et 0.005 meV ce qui nous donne des capacités de l'ordre de 1×10^{-13} F. Nous pouvons observer le contraste du pic de la figure F.4(d) est plus élevé que les autres expliquant en particulier pourquoi nous trouvons une valeur plus élevée dans la modélisation. Les interactions électroniques sont plus importantes dans cet échantillon comparé aux autres. Intéressons-nous maintenant à la modélisation des marches de conductance de l'échantillon THz-DCB-06a. Cet échantillon présente deux marches à $V_{nw} = \pm 0.79$ V que nous avons modélisées. La résistance du circuit RLC trouvée est de 0.22Ω ce qui nous fait un couplage $g \approx Z(\omega_0) q^2/h \approx 0.03$. Nous pouvons constater une bonne modélisation de ces marches avec ce paramètre malgré la présence des oscillations qui tendent à brouiller ce signal. L'origine de ce mode peut être multiple. Il est trop bas en énergie pour être le mode de la cavité mais cependant peut venir d'un effet des fils métalliques qui connectent l'échantillon (effet d'aller retour entre deux impuretés comme dans

une cavité qu'il est difficile de maîtriser).

F.4 Conclusion

Nous avons étudié le fil diffusif dans une cavité térahertz pour mettre en évidence le couplage avec une cavité térahertz et donc l'échange d'énergie entre ces deux objets. Le couplage d'un conducteur mésoscopique - jonctions tunnel, fils diffusifs- avec un environnement entraînent l'apparition d'un pic à énergie nulle et donc un blocage du courant appelé blocage de Coulomb dynamique. La dissipation d'énergie est souvent issue des interactions coulombiennes du conducteur lui-même. La présence d'une cavité peut elle aussi bloquer le courant si l'énergie des électrons n'est pas suffisamment haute pour pouvoir exciter ses modes.

Dans nos mesures nous avons pu visualiser l'anomalie à énergie nulle ce qui nous a permis de déterminer la température électronique et la capacité modélisant les interactions électroniques. Cependant, nous n'avons pu mettre en évidence le couplage avec la cavité que nous pouvons expliquer plusieurs raisons. Tout d'abord dans ces conditions, nous nous attendons à un couplage faible et donc à de faibles signatures dans la conductance. Ensuite, nous avons remarqué que le gaz électronique était plus chaud que la température du bain dans lequel il était provenant de la difficulté à facilement thermaliser le gaz électronique. Pour terminer, nous avons aussi constaté l'apparition de fluctuations universelles de conductance qui brouillent le signal de conductance que nous pourrions observer. Enfin, les marches que nous avons observées sont trop faibles en énergie pour être reliées à un mode de résonance du résonateur.

Références

- [1] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche. Colloquium : Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity. *Reviews of Modern Physics*, 73(3) :565–582, 2001. 3
- [2] Cj Hood, Tw Lynn, Ac Doherty, A S Parkins, and Hj Kimble. The atom-cavity microscope : single atoms bound in orbit by single photons. *Science (New York, N.Y.)*, 287(5457) :1447–53, 2000. 3
- [3] M. Delbecq, V. Schmitt, F. Parmentier, N. Roch, J. Viennot, G. Fève, B. Huard, C. Mora, a. Cottet, and T. Kontos. Coupling a Quantum Dot, Fermionic Leads, and a Microwave Cavity on a Chip. *Physical Review Letters*, 107(25) :1–5, dec 2011. 3
- [4] M.R. Delbecq, L.E. Bruhat, J.J. Viennot, S. Datta, a. Cottet, and T. Kontos. Photon-mediated interaction between distant quantum dot circuits. *Nature Communications*, 4 :1400, jan 2013. 3, II
- [5] J. J. Viennot, M. C. Dartiailh, A. Cottet, and T. Kontos. Coherent coupling of a single spin to microwave cavity photons. *Science*, 349(6246) :408–411, jul 2015. 3
- [6] A Wallraff, D I Schuster, A Blais, L Frunzio, J Majer, S Kumar, S M Girvin, and R J Schoelkopf. Strong coupling of a single photon to a superconducting qubit using circuit quantum electrodynamics. *Nature*, 431(September) :162–167, 2004. 3
- [7] Bradley Ferguson and Xi-Cheng Zhang. Materials for terahertz science and technology. *Nature materials*, 1(1) :26–33, 2002. 3
- [8] Masayoshi Tonouchi. Cutting-edge terahertz technology. *Nature Photonics*, 1 :97–105, 2007. 3
- [9] Naoto Nagai, Ryoichi Kumazawa, and Ryoichi Fukasawa. Direct evidence of intermolecular vibrations by THz spectroscopy. *Chemical Physics Letters*, 413(4-6) :495–500, 2005. 3
- [10] R a Kaindl, M a Carnahan, D Hägele, R Lövenich, and D S Chemla. Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron-hole gas. *Nature*, 423(6941) :734–738, 2003. 3
- [11] G. L. Pilbratt, J. R. Riedinger, T. Passvogel, G. Crone, D. Doyle, U. Gageur, a. M. Heras, C. Jewell, L. Metcalfe, S. Ott, and M. Schmidt. Herschel Space Observatory. *Astronomy and Astrophysics*, 518 :L1, jul 2010. 3

- [12] Rüdiger Köhler, Alessandro Tredicucci, Fabio Beltram, Harvey E Beere, Edmund H Linfield, a Giles Davies, David a Ritchie, Rita C Iotti, and Fausto Rossi. Terahertz semiconductor-heterostructure laser. *Nature*, 417(6885) :156–159, 2002. 3
- [13] Peter R Smith, David H Auston, and Martin C Nuss. Subpicosecond Photoconducting Dipole Antenna. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24(2) :255–260, 1988. 3, 48
- [14] X. C. Zhang, Y. Jin, and X. F. Ma. Coherent measurement of THz optical rectification from electro-optic crystals. *Applied Physics Letters*, 61(23) :2764–2766, 1992. 3
- [15] T. Oosterkamp, L. Kouwenhoven, a. Koolen, N. van der Vaart, and C. Harmans. Photon Sidebands of the Ground State and First Excited State of a Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 78 :1536–1539, 1997. 4
- [16] Kathryn Todd, Hung Tao Chou, Sami Amasha, and Goldhaber Gordon David. Quantum dot behavior in graphene nanoconstrictions. *Nano Letters*, 9(1) :416–421, 2009. 4
- [17] a.I. Ekimov, Al.L. Efros, and a.a. Onushchenko. Quantum size effect in semiconductor microcrystals. *Solid State Communications*, 56(11) :921–924, 1985. 4
- [18] M. Bockrath, David H Cobden, Paul L McEuen, Nasreen G Chopra, A Zetti, Andreas Thess, and R.E. Smalley. Single-Electron Transport in Ropes of Carbon Nanotubes. *Science*, 275(5308) :1922–1925, 1997. 4, 18
- [19] SJ Tans, MH Devoret, and H Dai. Individual single-wall carbon nanotubes as quantum wires. *Nature*, 386 :474–477, 1997. 4, 15, 16
- [20] Ranjan Singh, Ibraheem a I Al-Naib, Martin Koch, and Weili Zhang. Asymmetric planar terahertz metamaterials. *Optics express*, 18(12) :13044–50, jun 2010. 4, 11, 13, 79
- [21] Ranjan Singh, Ibraheem a I Al-Naib, Martin Koch, and Weili Zhang. Sharp Fano resonances in THz metamaterials. *Optics express*, 19(7) :6312–9, mar 2011. 4, 79, 84
- [22] Cheryl Feuillet-Palma, Yanko Todorov, Robert Steed, Angela Vasanelli, Giorgio Biasiol, Lucia Sorba, and Carlo Sirtori. Extremely sub-wavelength THz metal-dielectric wire microcavities. *Optics express*, 20(27) :29121–30, 2012. 4, 10
- [23] B Paulillo, J M Manceau, a Degiron, N Zerounian, G Beaudoin, I Sagnes, and R Colombelli. Circuit-tunable sub-wavelength THz resonators : hybridizing optical cavities and loop antennas. *Optics Express*, 22(18) :21302–21312, 2014. 4, 10
- [24] K Ishibashi, S Moriyama, T Fuse, Y Kawano, S Toyokawa, and T Yamaguchi. Artificial atom and quantum terahertz response in carbon nanotube quantum dots. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 20(45) :454203, nov 2008. 4, 105
- [25] M Rinzan, G Jenkins, H D Drew, S Shafranjuk, and P Barbara. Carbon Nanotube Quantum Dots As Highly Sensitive Terahertz-Cooled Spectrometers. *Nano letters*, pages 1–4, jun 2012. 4
- [26] Kenji Yoshida, Kenji Shibata, and Kazuhiko Hirakawa. Terahertz Field Enhancement and Photon-Assisted Tunneling in Single-Molecule Transistors. *Physical Review Letters*, 115(13) :138302, 2015. 4

- [27] K. Shibata, a. Umeno, K. M. Cha, and K. Hirakawa. Photon-Assisted Tunneling through Self-Assembled InAs Quantum Dots in the Terahertz Frequency Range. *Physical Review Letters*, 109(7) :077401, aug 2012. 4
- [28] Zhaohui Zhong, Nathaniel M Gabor, Jay E Sharping, Alexander L Gaeta, and Paul L McEuen. Terahertz time-domain measurement of ballistic electron resonance in a single-walled carbon nanotube. *Nature nanotechnology*, 3(4) :201–5, apr 2008. 4
- [29] Joel D. Chudow, Daniel F. Santavicca, Chris B. McKitterick, Daniel E. Prober, and Philip Kim. Terahertz detection mechanism and contact capacitance of individual metallic single-walled carbon nanotubes. *Applied Physics Letters*, 100(16) :163503, 2012. 4
- [30] Diego Kienle and François Léonard. Terahertz Response of Carbon Nanotube Transistors. *Physical Review Letters*, 103(2) :026601, jul 2009. 4
- [31] Y. Todorov, a. M. Andrews, I. Sagnes, R. Colombelli, P. Klang, G. Strasser, and C. Sirtori. Strong light-matter coupling in subwavelength metal-dielectric microcavities at terahertz frequencies. *Physical Review Letters*, 102(18) :1–4, 2009. 4, 10, 23
- [32] Markus Geiser, Fabrizio Castellano, Giacomo Scalari, Mattias Beck, Laurent Nevou, and Jérôme Faist. Ultrastrong Coupling Regime and Plasmon Polaritons in Parabolic Semiconductor Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 108(10) :106402, 2012. 4
- [33] G. Scalari, C. Maissen, D. Turcinkova, D. Hagenmuller, S. De Liberato, C. Ciuti, C. Reichl, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Beck, and J. Faist. Ultrastrong Coupling of the Cyclotron Transition of a 2D Electron Gas to a THz Metamaterial. *Science*, 335(6074) :1323–1326, mar 2012. 4, 12, 23, 108
- [34] a. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy, and M. Helm. High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor. *Applied Physics Letters*, 86(12) :121114, 2005. 5, 50, 62
- [35] G. Gallot and D. Grischkowsky. Electro-optic detection of terahertz radiation. *Journal of the Optical Society of America B*, 16(8) :1204, aug 1999. 5, 48, 52, 53, 73, XVIII
- [36] a Tomasino, a Parisi, S Stivala, P Livreri, a C Cino, a C Busacca, M Peccianti, and R Morandotti. Wideband THz Time Domain Spectroscopy based on Optical Rectification and Electro-Optic Sampling. *Scientific reports*, 3 :3116, jan 2013. 5, 47, 49, 61, 62
- [37] a Gurtler, C Winnewisser, H Helm, and P U Jepsen. Terahertz pulse propagation in the near field and the far field. *Journal of the Optical Society of America. A, Optics, image science, and vision*, 17(1) :74–83, 2000. 5, 61
- [38] Renaud Leturcq, Christoph Stampfer, Kevin Inderbitzin, Lukas Durrer, Christofer Hierold, Eros Mariani, Maximilian G. Schultz, Felix von Oppen, and Klaus Ensslin. Franck–Condon blockade in suspended carbon nanotube quantum dots. *Nature Physics*, 5(5) :327–331, apr 2009. 5, 93, 94, 107
- [39] S. Sapmaz, P. Jarillo-Herrero, Ya M. Blanter, C. Dekker, and H. S J Van Der Zant. Tunneling in suspended carbon nanotubes assisted by longitudinal phonons. *Physical Review Letters*, 96(2) :1–4, 2006. 5, 107

- [40] a N Pasupathy, J Park, C Chang, a V Soldatov, S Lebedkin, R C Bialczak, J E Grose, L a K Donev, J P Sethna, D C Ralph, and P L McEuen. Vibration-assisted electron tunneling in C140 transistors. *Nano letters*, 5(2) :203–7, feb 2005. 5, 93
- [41] E M Weig, R H Blick, T Brandes, J Kirschbaum, W Wegscheider, M Bichler, and J P Kotthaus. Single-electron-phonon interaction in a suspended quantum dot phonon cavity. *Physical review letters*, 92(4) :046804, 2004. 5, 97
- [42] Andrew Steinbach, John Martinis, and Michel Devoret. Observation of Hot-Electron Shot Noise in a Metallic Resistor. *Physical Review Letters*, 76(20) :3806–3809, 1996. 6, 101, XXII
- [43] R. Schoelkopf, P. Burke, a. Kozhevnikov, D. Prober, and M. Rooks. Frequency Dependence of Shot Noise in a Diffusive Mesoscopic Conductor. *Physical Review Letters*, 78(17) :3370–3373, apr 1997. 6, 101, XXI
- [44] D. Grischkowsky, I.N. Duling, J. C. Chen, and C.-C. Chi. Electromagnetic Shock Waves from Transmission Lines. *Physical Review Letters*, 59(23) :2666–2669, 1987. 10, 13
- [45] Michael Y. Frankel, Shantanu Gupta, Janis a. Valdmanis, and Gerard a. Mourou. Terahertz attenuation and dispersion characteristics of coplanar transmission lines. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 39(6) :910–916, 1991. 10, 13
- [46] Lei Cao, Anne-Sophie Grimault-Jacquin, and Frédéric Aniel. Comparison and Optimization of Dispersion, and Losses of Planar Waveguides on Benzocyclobutene (Bcb) At Thz Frequencies : Coplanar Waveguide (Cpw), Microstrip, Stripline and Slotline. *Progress In Electromagnetics Research B*, 56(October) :161–183, 2013. 10, 13
- [47] D. Gacemi, J. Mangeney, R. Colombelli, and A. Degiron. Subwavelength metallic waveguides as a tool for extreme confinement of THz surface waves. *Scientific Reports*, 3(1369) :1–7, 2013. 10, 78
- [48] Y Todorov, L Tosetto, J Teissier, a M Andrews, P Klang, R Colombelli, I Sagnes, G Strasser, and C Sirtori. Optical properties of metal-dielectric-metal microcavities in the THz frequency range. *Optics express*, 18(13) :13886–907, jun 2010. 10
- [49] W. N. Hardy and L.A. Whitehead. Split-ring resonator for use in magnetic resonance from 200–2000 MHz. *Review of Scientific Instruments*, 52(2) :213, 1981. 11
- [50] Xinjian Zhou, Ji-Yong Park, Shaoming Huang, Jie Liu, and Paul L McEuen. Band structure, phonon scattering, and the performance limit of single-walled carbon nanotube transistors. *Physical review letters*, 95(14) :146805, 2005. 11, 15
- [51] D Dietze, a Benz, G Strasser, K Unterrainer, and J Darmo. Terahertz meta-atoms coupled to a quantum well intersubband transition. *Optics express*, 19(14) :13700–6, jul 2011. 12, 23
- [52] Peter Haring Bolivar, Martin Brucherseifer, Jaime Gómez Rivas, Ramón Gonzalo, Iñigo Ederra, Andrew L. Reynolds, M. Holker, and Peter De Maagt. Measurement of the dielectric constant and loss tangent of high dielectric-constant materials at

- terahertz frequencies. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 51(4 I) :1062–1066, 2003. 12, 88, 90
- [53] Alexandra Boltasseva and Harry a Atwater. Materials science. Low-loss plasmonic metamaterials. *Science (New York, N.Y.)*, 331(6015) :290–291, 2011. 13
- [54] Lei Zhu, Fan Yi Meng, Liang Dong, Jia Hui Fu, and Qun Wu. Low-loss magnetic metamaterial at THz frequencies by suppressing radiation losses. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 3(6) :805–811, 2013. 13
- [55] Yutaka Kadoya, Masayuki Onuma, Shinji Yanagi, Tetsuya Ohkubo, Naoko Sato, and Jiro Kitagawa. THz wave propagation on strip lines : Devices, properties, and applications. *Radioengineering*, 17(2) :48–55, 2008. 13
- [56] G. Scalari, C. Maissen, S. Cibella, R. Leoni, and J. Faist. High quality factor, fully switchable terahertz superconducting metasurface. *Applied Physics Letters*, 105 :261104, 2014. 13
- [57] Dongwei Wu, Jianjun Liu, Hao Han, Zhanghua Han, and Zhi Hong. A high Q terahertz asymmetrically coupled resonator and its sensing performance. *Frontiers of Optoelectronics*, 8(1) :68–72, 2014. 13
- [58] Wei Cao, Ranjan Singh, Ibraheem a. I Al-Naib, Mingxia He, Antoinette J. Taylor, and Weili Zhang. Low-loss ultra-high-Q dark mode plasmonic Fano metamaterials. *Optics Letters*, 37(16) :3366, 2012. 13
- [59] Stephan Braig and Karsten Flensberg. Vibrational sidebands and dissipative tunneling in molecular transistors. *Physical Review B*, 68(20) :205324, nov 2003. 14, 27, 97
- [60] Sumio Iijima. Helical microtubules of graphitic carbon. *Nature*, 354(6348) :56–58, 1991. 14
- [61] Ray H Baughman, Anvar a Zakhidov, and Walt a de Heer. Carbon nanotubes — the route toward applications. *Science*, 297(5582) :787–92, 2002. 14
- [62] J Nygård, D H Cobden, and P E Lindelof. Kondo physics in carbon nanotubes. *Nature*, 408(6810) :342–346, 2000. 14
- [63] T. a. Fulton and G. J. Dolan. Observation of single-electron charging effects in small tunnel junctions. *Physical Review Letters*, 59(1) :109–112, 1987. 15
- [64] P. R. Wallace. The band theory of graphite. *Physical Review*, 71(9) :622–634, 1947. 15
- [65] E. a. Laird, F. Kuemmeth, G. Steele, K. Grove-Rasmussen, J. Nygård, K. Flensberg, and L. P. Kouwenhoven. Quantum transport in carbon nanotubes. *Arxiv preprint arXiv :1403.6113*, mar 2014. 15, 16
- [66] Noriaki Hamada, Shin-ichi Sawada, and Atsushi Oshiyama. New one-dimensional conductors : Graphitic microtubules. *Physical Review Letters*, 68(10) :1579–1581, 1992. 15
- [67] R. Saito, M. Fujita, G. Dresselhaus, and M S Dresselhaus. Electronic structure of chiral graphene tubules. *Applied Physics Letters*, 60(18) :2204–2206, 1992. 15

- [68] W Liang, M Bockrath, D Bozovic, J H Hafner, M Tinkham, and H Park. Fabry - Perot interference in a nanotube electron waveguide. *Nature*, 411(6838) :665–669, 2001. 16, III
- [69] Leonid I Glazman. Single Electron Tunneling. *Journal of Low Temperature Physics*, 118 :247–269, 2000. 18
- [70] L. P. Kouwenhoven, N. C. Vaart, a. T. Johnson, W. Kool, C. J. P. M. Harmans, J. G. Williamson, a. a. M. Staring, and C. T. Foxon. Single electron charging effects in semiconductor quantum dots. *Zeitschrift fur Physik B Condensed Matter*, 85(3) :367–373, 1991. 18
- [71] M.R. Delbecq. *Coupling quantum dots to microwave cavities*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2013. 22
- [72] Yanko Todorov and Carlo Sirtori. Few-Electron Ultrastrong Light-Matter Coupling in a Quantum LC Circuit. *Physical Review X*, 4(4) :041031, nov 2014. 24
- [73] C Bergenfeldt and P. Samuelsson. Microwave quantum optics and electron transport through a metallic dot strongly coupled to a transmission line cavity. *Arxiv preprint arXiv :1110.6833*, pages 36–41, 2011. 26
- [74] Jens Koch, Felix von Oppen, and a. Andreev. Theory of the Franck-Condon blockade regime. *Physical Review B*, 74(20) :1–19, nov 2006. 27, 29
- [75] Gert-Ludwig Ingold and Yu. V. Nazarov. Charge Tunneling Rates in Ultrasmall Junctions. 294 :87, 2005. 29, XXII, XXIII
- [76] A.O Caldeira and A.J Leggett. Quantum tunnelling in a dissipative system. *Annals of Physics*, 149(2) :374–456, sep 1983. 30
- [77] P. K. Tien and J. P. Gordon. Multiphoton process observed in the interaction of microwave fields with the tunneling between superconductor films. *Physical Review*, 129(2) :647–651, 1963. 32, 103
- [78] Antti-Pekka Jauho, Ned S Wingreen, and Yigal Meir. Time-dependent transport in interacting and non interacting mesoscopic systems. *Physical Review B*, 50(8) :5528, 1994. 32
- [79] Y. Kawano, T. Fuse, S. Toyokawa, T. Uchida, and K. Ishibashi. Terahertz photon-assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots. *Journal of Applied Physics*, 103(3) :034307, 2008. 33
- [80] J. J. Viennot, J. Palomo, and T. Kontos. Stamping single wall nanotubes for circuit quantum electrodynamics. *Applied Physics Letters*, 104(11) :10–13, 2014. 39
- [81] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting, and X. C. Zhang. A direct comparison between terahertz time-domain spectroscopy and far-infrared Fourier transform spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 89(4) :2357–2359, 2001. 45
- [82] P. Uhd Jepsen, W. Schairer, I. H. Libon, U. Lemmer, N. E. Hecker, M. Birkholz, K. Lips, and M. Schall. Ultrafast carrier trapping in microcrystalline silicon observed in optical pump-terahertz probe measurements. *Applied Physics Letters*, 79(9) :1291–1293, 2001. 45

- [83] Y. C. Shen, P. C. Upadhyaya, E. H. Linfield, H. E. Beere, and a. G. Davies. Ultra-broadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters. *Applied Physics Letters*, 83(15) :3117, 2003. 45, 48, 49, 50
- [84] R. Huber, a. Brodschelm, F. Tauser, and a. Leitenstorfer. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz. *Applied Physics Letters*, 76(22) :3191, 2000. 45, 47, 49
- [85] R. Huber, C. Kübler, S. Tübel, a. Leitenstorfer, Q. T. Vu, H. Haug, F. Köhler, and M. C. Amann. Femtosecond formation of coupled phonon-plasmon modes in InP : Ultra-broadband THz experiment and quantum kinetic theory. *Physical Review Letters*, 94(2) :1–4, 2005. 45
- [86] J. Faure, J. Van Tilborg, R. A. Kaindl, and W P Leemans. Modelling laser-based table-top THz sources : Optical rectification , propagation and electro-optic sampling. *Optical and Quantum Electronics*, 36 :681–697, 2004. 46
- [87] Ingrid Wilke and Suranjana Sengupta. Nonlinear optical techniques for terahertz pulse generation and detection—optical rectification and electrooptic sampling. In *Terahertz Spectroscopy : Principles and Applications*, . . . , pages 41–72. 2008. 46, 49
- [88] Ajay Nahata, Aniruddha S. Weling, and Tony F. Heinz. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling. *Applied Physics Letters*, 69(16) :2321, 1996. 47, 49, 55
- [89] Tobias Kampfrath, Jan Notzold, and Martin Wolf. Sampling of broadband terahertz pulses with thick electro-optic crystals. *Applied Physics Letters*, 90(23) :231113, 2007. 47, 55
- [90] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction. *Physical Review Letters*, 71(17) :2725–2728, 1993. 47
- [91] Mark D Thomson, Volker Blank, and Hartmut G Roskos. Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields. *Optics Express*, 18(22) :23173–23182, 2010. 47
- [92] Lionel Duvillaret, Frédéric Garet, Jean-françois Roux, and Jean-louis Coutaz. Analytical Modeling and Optimization of Terahertz Time-Domain Spectroscopy Experiments Using Photoswitches as Antennas. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 7(4) :615–623, 2001. 48, 51, 61
- [93] P. Uhd Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding. Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas. *Journal of the Optical Society of America B*, 13(11) :2424, nov 1996. 48, 50
- [94] Masaaki Ashida. Ultra-broadband terahertz wave detection using photoconductive antenna. *Japanese Journal of Applied Physics*, 47(10 PART 2) :8221–8225, 2008. 48
- [95] Paul C. M. Planken, Han-Kwang Nienhuys, Huib J. Bakker, and Tom Wenckebach. Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe. *Journal of the Optical Society of America B*, 18(3) :313, 2001. 48, 49, 52

- [96] Q. Wu and X.-C. Zhang. 7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor. *Applied Physics Letters*, 70(14) :1784, 1997. 49
- [97] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox. Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling : Experiment and theory. *Applied Physics Letters*, 74(11) :1516, 1999. 49, 53, 54
- [98] B. B. Hu, J. T. Darrow, X. C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith. Optically steerable photoconducting antennas. *Applied Physics Letters*, 56(10) :886–888, 1990. 50
- [99] J. T. Darrow, X. C. Zhang, and D. H. Auston. Power scaling of large-aperture photoconducting antennas. *Applied Physics Letters*, 58(1) :25–27, 1991. 50
- [100] J Madéo, N Jukam, and D Oustinov. Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas. *Electronic Letters*, 46(9) :611–612, 2010. 50
- [101] P J Hale, J Madeo, C Chin, S S Dhillon, J Mangeney, and J Tignon. 20 THz broadband generation using semi- insulating GaAs interdigitated photoconductive antennas. *Optics Express*, 22(21) :164–166, 2014. 50, 73
- [102] M Tani, S Matsuura, K Sakai, and S Nakashima. Emission characteristics of photoconductive antennas based on low-temperature-grown GaAs and semi-insulating GaAs. *Applied optics*, 36(30) :7853–7859, 1997. 50, 51, 52
- [103] S. Gupta, M. Y. Frankel, J. a. Valdmanis, J. F. Whitaker, G. a. Mourou, F. W. Smith, and a. R. Calawa. Subpicosecond carrier lifetime in GaAs grown by molecular beam epitaxy at low temperatures. *Applied Physics Letters*, 59(25) :3276–3278, 1991. 50, 51
- [104] P K Benicewicz and a J Taylor. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased InP photoconductors. *Optics letters*, 18(16) :1332, 1993. 51
- [105] Matthew C. Beard, Gordon M. Turner, and Charles a. Schmuttenmaer. Subpicosecond carrier dynamics in low-temperature grown GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 90(12) :5915–5923, 2001. 51
- [106] S. Casalbuoni, H. Schlarb, B. Schmidt, B. Steffen, P. Schmüser, and a. Winter. Numerical studies on the electro-optic sampling of relativistic electron bunches. *Proceedings of the IEEE Particle Accelerator Conference*, 2005 :3070–3072, 2005. 52, 53, 54, 55, 57
- [107] W. L. Faust and Charles H. Henry. Mixing of visible and near-resonance infrared light in GaP. *Physical Review Letters*, 17(25) :1265–1268, 1966. 53, 54
- [108] T. Hattori, Y. Homma, A. Mitsuishi, and M. Tacke. Indices of refraction of ZnS, ZnSe, ZnTe, CdS, and CdTe in the far infrared. *Optics Communications*, 7(3) :229–232, 1973. 55
- [109] Y. C. Shen, P. C. Upadhyaya, E. H. Linfield, H. E. Beere, and a. G. Davies. Terahertz generation from coherent optical phonons in a biased GaAs photoconductive emitter. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 69(23) :1–4, 2004. 56, 71

- [110] Julian B D Soole and Hermann Schumacher. InGaAs metal-semiconductor-metal photodetectors for long wavelength optical communications. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 27(3) :737–752, 1991. 58
- [111] V Blank, M D Thomson, and H G Roskos. Spatio-spectral characteristics of ultra-broadband THz emission from two-colour photoexcited gas plasmas and their impact for nonlinear spectroscopy. *New Journal of Physics*, 15(7) :075023, 2013. 60
- [112] Jiayu Zhao, Wei Chu, Lanjun Guo, Zhi Wang, Jing Yang, Weiwei Liu, Ya Cheng, and Zhizhan Xu. Terahertz imaging with sub-wavelength resolution by femtosecond laser filament in air. *Scientific reports*, 4 :3880, 2014. 61
- [113] Mostafa Shalaby and Christoph P. Hauri. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness. *Nature Communications*, 6 :5976, 2015. 61
- [114] E Budiarto, N W Pu, S Jeong, and J Bokor. Near-field propagation of terahertz pulses from a large-aperture antenna. *Optics letters*, 23(3) :213–215, 1998. 61
- [115] Toshiaki Hattori, Kazuhiro Egawa, Shin-ichi Ookuma, and Taro Itatani. Intense Terahertz Pulses from Large-Aperture Antenna with Interdigitated Electrodes. *Japanese Journal of Applied Physics*, 45(No. 15) :L422–L424, 2006. 61
- [116] H. Bethe. Theory of Diffraction by Small Holes. *Physical Review*, 66(7-8) :163–182, oct 1944. 62
- [117] Hungyen Lin, Christophe Fumeaux, Bernd Michael Fischer, and Derek Abbott. Modelling of sub-wavelength THz sources as Gaussian apertures. *Optics express*, 18(17) :17672–17683, 2010. 62, XVIII
- [118] Marco Peccianti, Matteo Clerici, Alessia Pasquazi, Lucia Caspani, Sze Phing Ho, Fabrizio Buccheri, Jalil Ali, Alessandro Busacca, Tsuneyuki Ozaki, and Roberto Morandotti. Exact reconstruction of THz sub-lambda source features in knife-edge measurements. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 19(c) :1–1, 2012. 68, XVIII, XIX
- [119] John F. O’Hara, Evgenya Smirnova, Abul K. Azad, Hou-Tong Chen, and Antoinette J. Taylor. Effects of Microstructure Variations on Macroscopic Terahertz Metafilm Properties. *Active and Passive Electronic Components*, 2007 :1–10, 2007. 77, 79
- [120] Philippe Gay-Balmaz and Olivier J F Martin. Electromagnetic resonances in individual and coupled split-ring resonators. *Journal of Applied Physics*, 92(5) :2929–2936, 2002. 77, 107
- [121] Yuanmu Yang, Ran Huang, Longqing Cong, Zhihua Zhu, Jianqiang Gu, Zhen Tian, Ranjan Singh, Shuang Zhang, Jiaguang Han, and Weili Zhang. Modulating the fundamental inductive-capacitive resonance in asymmetric double-split ring terahertz metamaterials. *Applied Physics Letters*, 98(12) :121114, 2011. 77, 79, 80, 81
- [122] Dibakar Roy Chowdhury, Ranjan Singh, Matthew Reiten, Hou-Tong Chen, Antoinette J Taylor, John F O’Hara, and Abul K Azad. A broadband planar terahertz metamaterial with nested structure. *Optics express*, 19(17) :15817–23, aug 2011. 79

- [123] V. Fedotov, M. Rose, S. Prosvirnin, N. Papasimakis, and N. Zheludev. Sharp Trapped-Mode Resonances in Planar Metamaterials with a Broken Structural Symmetry. *Physical Review Letters*, 99(14) :5–8, oct 2007. 79
- [124] J. J. Viennot, M. R. Delbecq, M. C. Dartailh, A. Cottet, and T. Kontos. Out-of-equilibrium charge dynamics in a hybrid circuit quantum electrodynamics architecture. *Physical Review B*, 89(16) :165404, 2014. 86
- [125] JD Baena and Jordi Bonache. Equivalent-circuit models for split-ring resonators and complementary split-ring resonators coupled to planar transmission lines. *Microwave Theory*, 53(4) :1451–1461, 2005. 87, 88, 89
- [126] Sher Yi Chiam, Ranjan Singh, Weili Zhang, and Andrew a. Bettiol. Controlling metamaterial resonances via dielectric and aspect ratio effects. *Applied Physics Letters*, 97(19) :2008–2011, 2010. 87, 88, 89
- [127] Zhongyan Sheng and Vasundara V. Varadan. Tuning the effective properties of metamaterials by changing the substrate properties. *Journal of Applied Physics*, 101(1), 2007. 87
- [128] Paul D. Cunningham, Nestor N. Valdes, Felipe a. Vallejo, L. Michael Hayden, Brent Polishak, Xing-Hua Zhou, Jingdong Luo, Alex K.-Y. Jen, Jarrod C. Williams, and Robert J. Twieg. Broadband terahertz characterization of the refractive index and absorption of some important polymeric and organic electro-optic materials. *Journal of Applied Physics*, 109(4) :043505, 2011. 88, 90
- [129] Abdallah Chahadih, Serkan Keya, Abbas Ghaddar, Tahsin Akalin, Magdalena Chudzik, Israel Arnedo, Ivan Arregui, Fernando Teberio, Aintzane Lujambio, and Txema Lopetegui. Low loss transitions and microstrip lines on cyclo-olefin co-polymer substrate for terahertz applications. *2013 13th Mediterranean Microwave Symposium (MMS)*, pages 1–3, 2013. 90
- [130] M. Ganzhorn, S. Klyatskaya, M. Ruben, and W. Wernsdorfer. Strong spin-phonon coupling between a single-molecule magnet and a carbon nanotube nanoelectromechanical system. *Nature nanotechnology*, 8(3) :165–9, 2013. 93
- [131] Tobias Brandes and Bernhard Kramer. Spontaneous Emission of Phonons by Coupled Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 83(15) :3021–3024, oct 1999. 99
- [132] H. Nyquist. Thermal agitation of electric charge in conductors. *Physical Review*, 32(1) :110–113, 1928. 101, XXI
- [133] Eva Zakka-Bajjani, J. Dufouleur, N. Coulombel, P. Roche, D. C. Glatli, and F. Portier. Experimental determination of the statistics of photons emitted by a tunnel junction. *Physical Review Letters*, 104(20) :1–4, 2010. 101, XXI
- [134] Ya.M. Blanter and M. Büttiker. Shot noise in mesoscopic conductors. *Physics Reports*, 336(1-2) :1–166, sep 2000. 101, XXI, XXII
- [135] L. P. Kouwenhoven, S Jauhar, K. McCormick, D Dixon, P. L. McEuen, Yu V. Nazarov, N. C. Van Der Vaart, and C. T. Foxon. Photon-assisted tunneling through a quantum dot. *Physical Review B*, 50(25) :2019–2022, 1994. 105

- [136] Karsten Flensberg. Coherent-photon-assisted cotunneling in a Coulomb blockade device. *Physical Review B*, 55(19) :13118–13123, 1997. 105
- [137] A. Cottet, T. Kontos, and B. Douçot. Electron-photon coupling in mesoscopic quantum electrodynamics. *Physical Review B*, 91(20) :1–16, 2015. 108
- [138] Y V Nazarov and Ya M Blanter. [BOOK] *Quantum Transport : Introduction to Nanoscience*. 2009. II
- [139] Wenjie Liang, Marc Bockrath, and Hongkun Park. Shell filling and exchange coupling in metallic single-walled carbon nanotubes. *Physical review letters*, 88(12) :126801, 2002. III
- [140] L. Duvillaret, F. Garet, and J.-L. Coutaz. A reliable method for extraction of material parameters in terahertz time-domain spectroscopy. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2(3) :739–746, 1996. XV, XVII
- [141] Dmitrii S. Golubev and Andrei D. Zaikin. Coulomb Interaction and Quantum Transport through a Coherent Scatterer. *Physical Review Letters*, 86(21) :4887–4890, 2001. XX
- [142] A. Yeyati, A. Martin-Rodero, D. Esteve, and C. Urbina. Direct Link between Coulomb Blockade and Shot Noise in a Quantum-Coherent Structure. *Physical Review Letters*, 87(4) :046802, jul 2001. XX, XXIII, XXV, XXVII
- [143] H.T. Imam, V.V. Ponomarenko, and D.V. Averin. Coulomb blockade of resonant tunneling. *Physical Review B*, 50(24) :18288, 1994. XXII
- [144] T Holst, D Esteve, C Urbina, and MH Devoret. Effect of a transmission line resonator on a small capacitance tunnel junction. *Physical review letters*, 73(25) :3455–3459, 1994. XXVII
- [145] P. a. Lee and a. Douglas Stone. Universal conductance fluctuations in metals. *Physical Review Letters*, 55(15) :1622–1625, 1985. XXVII
- [146] P. Petit, A. Anthore, M. L. Della Rocca, and P. Lafarge. Conductance fluctuations in metallic nanogaps made by electromigration. *Journal of Applied Physics*, 109(1), 2011. XXVII

Sujet : Dynamique térahertz des nanotubes de carbone

Résumé : Le développement de circuits mesoscopiques avec une architecture hybride cette dernière décennie a permis d'étudier l'interaction lumière matière dans son aspect fondamental avec des photons dans le régime micro-ondes. Ces développements permettent aujourd'hui d'étudier cette interaction dans le domaine térahertz, gamme spectrale s'étendant de 0.1 THz à 10 THz (0.4 meV-41,3 meV). L'apparition de sources performantes et de méthodes de spectroscopie efficaces telles que la spectroscopie dans le domaine temporel sont des outils utilisables pour l'étude de l'interaction lumière matière dans ce domaine spectral. Dans ce travail de thèse, nous avons développé un outil afin d'étudier cette interaction dans son aspect le plus fondamental composé d'un nanotube de carbone en régime de boîte quantique et d'une cavité térahertz. Le nanotube de carbone est un élément d'autant plus adapté que sa structure électronique est régie par des énergies dont la fréquence équivalente se situe dans le térahertz. La cavité térahertz est un "split ring resonator". Le travail s'est décomposé en deux aspects, avec dans un premier temps le développement d'un banc de spectroscopie térahertz large bande (0.3 THz-20 THz) dans le domaine temporel pour l'étude des résonateurs. En utilisant un procédé original de contrôle du front d'onde d'émission de l'antenne, nous démontrons que le champ térahertz est focalisé en limite de diffraction ce qui ouvre la possibilité d'étudier des résonateurs uniques. Dans un second temps, des mesures de transport électronique ont été effectuées afin de mettre en évidence un couplage entre le résonateur et la boîte quantique. Un couplage avec un mode bosonique est observé. La conductance de ces états est modulée par la source de photons utilisée dans cette étude. Cependant, l'énergie du mode est inférieure à celle observée par les mesures de spectroscopie ne permettant pas de conclure de manière définitive sur l'origine de ce mode.

Mots clés : Nanotubes de carbone, térahertz, boîte quantique, physique mesoscopique, spectroscopie térahertz dans le domaine temporel, antennes photoconductives interdigitées, limite de diffraction

Subject : Terahertz dynamics of carbon nanotubes

Abstract : In the last ten years, research has been devoted to the development of hybrid architecture mesoscopic circuit to study the light-matter interaction in the microwaves range. These improvements allow us to study this interaction in the terahertz range extending from 0.1 THz to 10 THz (0.4 meV - 41.3 meV). Moreover, new efficient sources and new spectroscopy schemes like time domain spectroscopy set-up are some tools that can be used to study the light-matter interaction in this range. In this work, we developed a paradigm to study the interaction composed of a carbon nanotube in a quantum dot regime embedded in a terahertz cavity. Carbon nanotube quantum dot is well adapted because of its electronic levels which are separated by energy in the terahertz range. The cavity used for the study is a "split ring resonator". This thesis is decomposed in two parts. Firstly, we built an ultrabroadband terahertz time domain spectroscopy set-up (0.3 THz -20 THz) to study the terahertz resonators. We demonstrated that the terahertz field is focused at the diffraction limit by exciting the antenna with an original scheme based on a control wavefront of the emitted terahertz field. Then, electronic transport measurements have been done to highlight the coupling between the cavity and the quantum dot. A coupling with a bosonic mode is observed. The conductance of these states is modified by the source that we used in this work. These first observations are some clues that highlight the coupling between the terahertz photons and the electronic level of the quantum dot. These works open perspectives for the study of mechanisms in the terahertz range in this kind of system.

Keywords : Carbon nanotubes, terahertz, quantum dot, mesoscopic physics, terahertz time-domain spectroscopy, interdigitated photoconductive antennas, diffraction limit