



**HAL**  
open science

**Conductance hors-équilibre dans les Jonctions  
métal-supraconducteur : application à l'étude de  
 $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$   
Hadrien Grasland**

► **To cite this version:**

Hadrien Grasland. Conductance hors-équilibre dans les Jonctions métal-supraconducteur : application à l'étude de  $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$ . Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Grenoble Alpes, 2015. Français. NNT : 2015GREAY066 . tel-01314143

**HAL Id: tel-01314143**

**<https://theses.hal.science/tel-01314143>**

Submitted on 10 May 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.

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Physique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

**Hadrien GRASLAND**

Thèse dirigée par **Thierry KLEIN** et  
co-encadrée par **Hervé CERCELLIER**

préparée au sein de l'**Institut Néel**  
et de l'**Université Grenoble Alpes**  
dans l'**École Doctorale de Physique**

## **CONDUCTANCE HORS-ÉQUILIBRE DANS LES JONCTIONS MÉTAL-SUPRACONDUCTEUR : APPLICATION À L'ÉTUDE DE $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$**

Thèse soutenue publiquement le **26/11/2015**,  
devant le jury composé de :

**M. Dimitri RODITCHEV**

Professeur et Directeur de Recherche, ESPCI Paris-Tech et CNRS (Rapporteur)

**M. Pavol SZABÓ**

Senior Researcher and Scientific Director,  
Institute of Experimental Physics – Slovak Academy of Science (Rapporteur)

**M. Christoph RENNER**

Full Professor, Université de Genève (Président)

**M. Louis JANSEN**

Chercheur Ingénieur, CEA – Institut Nanosciences et Cryogénie (Membre)

**M. Thierry KLEIN**

PRCE, Université Grenoble Alpes et CNRS – Institut Néel (Directeur)

**M. Hervé CERCELLIER**

MCF, Université Grenoble Alpes et CNRS – Institut Néel (Co-encadrant)





# Résumé | Abstract

Comprendre la supraconductivité des pnictures et séléniures de fer nécessite de bien connaître leurs propriétés électroniques et magnétiques. Dans ce cadre, j'ai aidé à réaliser et j'ai automatisé un dispositif cryogénique capable d'étudier ces propriétés, à basse température (jusqu'à  $\approx 1\text{ K}$ ) et sous application d'un champ magnétique statique (jusqu'à  $2\text{ T}$ ) ou oscillant. Les techniques implémentées sont la spectroscopie de pointe et la microscopie à sonde de Hall, et le dispositif est conçu de sorte qu'il soit possible de basculer de l'une à l'autre sans manipuler l'échantillon.

J'ai ensuite utilisé ce dispositif pour étudier par spectroscopie de pointe les gaps supraconducteurs du pnicture  $Ba(Fe, Ni)_2As_2$ , puis rechercher la signature du couplage de ses électrons de conduction à des modes bosoniques. Ce faisant, il a été observé dans la conductance différentielle de jonctions métal-supraconducteur un signal oscillant dont la période varie en température comme le gap supraconducteur de l'échantillon  $\Delta(T)$ . Ce signal dépend de la résistance de contact de la jonction d'une façon qui prouve clairement qu'il est issu d'effets hors équilibre.

J'ai modélisé ce signal en étudiant théoriquement la physique de jonctions métal-métal-supraconducteur, dont la seconde région métallique serait formée par transition locale du supraconducteur vers l'état normal. Le modèle que j'ai ainsi construit permet de prédire la conductance différentielle d'une telle jonction, moyennant une connaissance préalable de la loi  $L(V)$  reliant la taille de la seconde région métallique à la tension aux bornes de la jonction. J'ai ensuite proposé plusieurs modèles pour cette loi.

Après comparaison avec l'expérience, il semble possible que la région métallique se forme par dépassement local de la densité de courant critique  $J_d$  du supraconducteur associée à la brisure de paires de Cooper, ou "courant de depairing". Mais il serait aussi vraisemblable que l'injection d'électrons perturbe localement la distribution électronique  $f(E)$  de l'échantillon, au point de déstabiliser l'état supraconducteur. Cette dernière interprétation suppose une forte dépendance en température du couplage électron-boson  $\alpha^2 F(\omega, T)$  à basse énergie.

Enfin, je présente en annexe les fonctionnalités de microscopie magnétique du dispositif réalisé, ainsi que les premiers résultats scientifiques qu'elles ont permis d'obtenir : la mise en évidence du rôle joué par le fluage quantique dans la relaxation des vortex piégés au sein de  $Fe(Se, Te)$ .



Reaching a good understanding of the superconductivity of iron pnictides and selenides requires an accurate knowledge of their electronic and magnetic properties. To this end, I helped building and I automated a cryogenic device that is suitable for the study of these properties, at low temperatures (down to  $\approx 1\text{ K}$ ) and under the application of a magnetic field, either static (up to  $2\text{ T}$ ) or oscillating. The device implements the experimental techniques of point contact spectroscopy and scanning hall probe microscopy, and it allows switching between them without requiring sample manipulations.

I subsequently used this device to study the superconducting gaps of  $Ba(Fe, Ni)_2As_2$  by point contact spectroscopy, before I began looking for signatures of the coupling of conduction electrons to bosonic modes. However, in this process, the differential conductance of metal-superconductor junctions turned out to exhibit oscillating features, whose period evolves in temperature like the superconducting gap of the sample  $\Delta(T)$ . This signal also depends on a junction's contact resistance in such a manner that it appears unmistakably out-of-equilibrium in nature.

I derived a model of this signal by undertaking a theoretical study of metal-metal-superconductor junctions. In these junctions, the second metallic region would emerge from a local transition of the superconductor to the normal state. The resulting model is able to predict the differential conductance of such a junction, given prior knowledge of the  $L(V)$  law linking the size of the second metallic region to the voltage being applied across the junction. I subsequently derived several models for this law.

Comparing these models to experimental data, it appears that the observed phenomenology could emerge from a local increase of current density above the “depairing current”  $J_d$  associated to Cooper pair breaking in the superconductor. Alternatively, electron injection could also locally alter the electron energy distribution  $f(E)$  of the sample to the point of destabilizing the superconducting state. This last explanation requires a strong temperature dependence of the electron-boson coupling  $\alpha^2F(\omega, T)$  at low energies.

Finally, in an appendix, I describe the magnetic microscopy capabilities of the experimental device. Those capabilities enabled us to understand the role played by quantum creep in the relaxation of trapped vortices within  $Fe(Se, Te)$ .

# Remerciements

Toute production scientifique est le fruit de l'interaction chaotique d'un très grand nombre de personnes, et cette thèse n'est pas une exception à la règle.

Dans cette optique, je tiens d'abord à remercier Thierry Klein, mon directeur de thèse, et Hervé Cercellier, mon co-encadrant de thèse, pour m'avoir donné l'occasion d'effectuer ce doctorat sous leur direction. J'ai énormément bénéficié de leur aide et de leur expertise scientifique tout au long de mes travaux.

En particulier, je souhaite remercier Hervé pour avoir pris le temps de m'aider à prendre en main l'environnement technologique et logiciel de nos recherches, pour m'avoir énormément aidé à élaborer les différentes interprétations théoriques de nos travaux, et pour m'avoir soutenu avec une infinie patience face à l'échec incessant de la théorie comme de l'expérience. Et je souhaite remercier Thierry en particulier pour ses explications scientifiques toujours très claires sur les aspects magnétiques de la supraconductivité. Soyez également remerciés, tous deux, de l'effort que vous avez fourni dans la relecture et la "mise au point" de ce manuscrit. Vous fûtes très complémentaires, et tous deux d'une très grande aide, d'un bout à l'autre de mon doctorat.

Je remercie mes rapporteurs, Pavol Szabó, Dimitri Roditchev, et les autres membres de mon jury de thèse, Louis Jansen et Christoph Renner, pour avoir accepté de lire cet imposant ouvrage, d'y proposer des corrections, et de participer à ma soutenance ensuite. C'est un honneur de pouvoir bénéficier de votre expertise scientifique dans cette phase finale de mes recherches.

Ensuite, je souhaite remercier tous les ingénieurs, techniciens et administratifs, de l'Institut Néel comme d'ailleurs, retraités comme en poste, qui m'ont aidé dans mon travail.

Merci, donc, pour commencer, à Danièle Devillers, Christine Martinelli, Louise Infuso, Patricia Poirier, Stéphanie Monfront, Olga Goubine, Sandrine Ferrari et Geneviève Bénard, pour m'avoir aidé à me repérer dans le labyrinthe administratif du CNRS, de Lanef et de l'Université afin d'effectuer toutes mes démarches. Et merci aussi à tous les personnels administratifs de l'ombre que j'ai moins eu l'occasion de rencontrer mais qui ont également contribué à gérer l'immense masse de papier qui me représentait.

Sur un plan plus technique, merci à Pierre Brosse-Marron, Gilles Pont, Anne Gérardin, Emilio Barria, et au reste du Pôle Cryogénie pour leur assistance toujours extrêmement précieuse dans tous les travaux mécaniques de ma thèse. Merci à Jean-Franck Pini et l'ensemble de l'équipe du Liquéfacteur pour nous avoir fourni en abondance le précieux liquide sans lequel nos expériences ne seraient que des tas de ferrailles inutiles. Merci à Fabrice Brunoud, Isabelle Cros, et Nicolas Scarlata du Service Achat et Magasins pour leur accueil toujours chaleureux et leurs conseils toujours avisés. Merci à l'ensemble du Pôle Electronique pour leur expertise partagée sans compter et pour les dispositifs qu'ils ont conçus pour nous. Et merci à Bernard Maire-Amiot, Jean-Sébastien Roch et Patrick Belmain ainsi qu'au reste du pôle Informatique et Réseaux pour leur prestation toujours

excellente en dépit des limites évidentes de leurs moyens humains.

Du côté des chercheurs et enseignants, je souhaite remercier pour commencer Shimpei Ono, qui outre sa compagnie toujours plaisante m'a aussi offert l'occasion de travailler en sa compagnie au CRIEPI et de découvrir le Japon ce faisant. *Doumo arigatou gozaimashita, Ono-sama, osake ga sugoku oishikatta kara.* Un grand merci aussi à son collègue Kazu Miwa, sans lequel je n'aurais pu autant développer ma maîtrise du japonais. *Yarichin no Adorian kara, doumo arigatou gozaimashita..* Je remercie aussi Gaston Garbarino et le reste de la ligne ID27 de l'ESRF pour les excellents moments que nous avons passés ensemble à torturer  $Cu_xTiSe_2$  pour faire parler son onde de densité de charge tout en buvant du matté. Je remercie également Arnaud Ralko, mon génial tuteur à tout faire, ainsi que Florence Lévy-Bertrand et Klaus Hasselbach, pour des discussions amicales et professionnelles enrichissantes. Je remercie enfin Pierre Rodière pour m'avoir donné la clé du mystère du courant critique, et Manuel Nuñez-Regueiro pour nous avoir prêté sa salle de manip quand la nôtre était en travaux.

Je remercie les auteurs de tous les logiciels que j'ai utilisés, d'Igor Pro à Kile en passant par Linux Mint, pour le temps qu'ils m'ont fait gagner à éviter de programmer la même chose moi-même en moins bien. J'émettrais cependant quelques réserves au sujet des auteurs de LaTeX et BibTeX, qui m'ont aussi fait perdre un sacré paquet de temps avec leur insistance à mettre les figures aux pires endroits possibles et à traiter les langues autres que l'anglais comme un poison violent. Mais bon, je les aime bien quand même va.

Je remercie les stagiaires, doctorants, et post-doctorants de l'équipe et de l'Institut Néel en général pour leur compagnie chaleureuse et amicale. En particulier, je tiens à remercier dans ce cadre Bastien, Johanna, Zuzana, Matthias, Olivier, Ketty, Karim, Clément, Emilie, et Yann. Un regret tout de même : Ketty, tu devrais vraiment mettre ces araignées dans le faisceau de neutrons de l'ILL, c'est la découverte scientifique de ta vie que tu manques !

Je remercie mes amis de longue date Florian, Amandine, Alan, et Manu pour leur bonne humeur, leurs nanars, leur soutien face aux démons de la déprime, et leur compréhension vis à vis du temps que j'ai passé si loin ainsi que des horaires pourris que mes trains pouvaient parfois imposer à nos réunions. Florian, si tu lis ces lignes, cette thèse est probablement le pire ramassis de fautes de français que tu auras jamais lu et il est capital que tu m'en fournisses une liste détaillée dans les 24 heures avec tous les grunts qui s'imposent.

Je terminerai cette longue liste par un merci amusé à Aurélie, sans laquelle je ne me serais sans doute jamais lancé dans ce projet, mais surtout un merci franc et massif à Claire dont la rencontre fut sans conteste l'événement le plus heureux de ma troisième année de thèse. Claire, merci pour ton soutien, ton amour, ta compréhension, et tes corrections stylistiques dans la folie de ces derniers mois. C'est un bonheur de tous les jours de te connaître, puissions nous vivre encore moult mois et années aussi agréables ensemble !

# Table des matières

<b>Résumé   Abstract</b>	<b>iii</b>
<b>Remerciements</b>	<b>v</b>
<b>Table des matières</b>	<b>vii</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
1.1 Contexte historique . . . . .	1
1.2 Description BCS du gap supraconducteur . . . . .	3
1.3 Les supraconducteurs à base de fer . . . . .	6
1.3.1 Composés spécifiques étudiés . . . . .	8
<b>2 Spectroscopie de pointe (PCS)</b>	<b>11</b>
2.1 Notion de contact ponctuel . . . . .	11
2.1.1 Régimes de conduction quantiques . . . . .	12
2.1.2 Régimes de conduction semi-classiques . . . . .	13
2.1.3 Conduction balistique . . . . .	15
2.1.4 Anisotropie et collisions élastiques dans l'échantillon . . . . .	16
2.1.5 Collisions élastiques dans la région de contact . . . . .	17
2.1.6 Aspects énergétiques de la formation d'une jonction . . . . .	18
2.1.7 Transport balistique d'un point de vue énergétique . . . . .	20
2.1.8 Collisions inélastiques et régime thermique . . . . .	21
2.2 Fabrication de contacts . . . . .	22
2.3 Approche de la pointe métallique . . . . .	25
2.4 Estimation de la géométrie de jonction . . . . .	26
2.4.1 Cas d'un contact diffusif . . . . .	27
2.4.2 Cas d'un contact balistique . . . . .	28
2.4.3 Interpolation de la résistance de contact . . . . .	29
2.5 Mesures effectuées . . . . .	30
2.5.1 Caractéristique courant-tension . . . . .	30
2.5.2 Signaux physiquement pertinents . . . . .	33
2.5.3 Mesure exacte de $V(I)$ par méthode à quatre fils . . . . .	37
2.6 Utilisation de la détection synchrone . . . . .	38
2.6.1 Motivation . . . . .	38
2.6.2 Principe physique . . . . .	39
2.6.3 Extraction du signal . . . . .	41

<b>3</b>	<b>Etude de gaps supraconducteurs</b>	<b>43</b>
3.1	Conduction par des (quasi-)électrons . . . . .	43
3.2	Réflexion d'Andreev . . . . .	45
3.3	Modèle BTK historique . . . . .	46
3.4	Extensions au modèle BTK . . . . .	49
3.4.1	Effets de température finie . . . . .	50
3.4.2	Paramètre d'élargissement . . . . .	51
3.4.3	Géométrie d'injection à deux et trois dimensions . . . . .	52
3.4.4	Anisotropie du gap supraconducteur . . . . .	54
3.4.5	Gaps supraconducteurs multiples . . . . .	56
3.5	Application à l'étude des pnictures . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Oscillations de conductance hors-équilibre</b>	<b>61</b>
4.1	Observations expérimentales . . . . .	61
4.1.1	Evolution en température . . . . .	62
4.1.2	Effet de la résistance de contact . . . . .	64
4.2	Interprétation théorique du phénomène . . . . .	66
4.2.1	Etat de l'art . . . . .	66
4.2.2	Modélisation d'une jonction métal-métal-supraconducteur . . . . .	67
4.3	Etude de la transition vers l'état métallique . . . . .	76
4.3.1	Dépassement de la densité de courant critique . . . . .	76
4.3.2	Dépassement de la température critique . . . . .	80
4.3.3	Mécanisme diffusif de transition vers l'état métallique . . . . .	82
4.4	Conclusion . . . . .	96
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>99</b>
<b>A</b>	<b>Extraction du signal oscillant</b>	<b>101</b>
<b>B</b>	<b>Jonctions métal-métal-supraconducteur</b>	<b>107</b>
B.1	Modélisation du système . . . . .	107
B.2	Forme de la fonction d'onde . . . . .	109
B.3	Transmission électronique de la jonction . . . . .	110
B.4	Calcul de la conductance différentielle normalisée . . . . .	114
<b>C</b>	<b>Transition thermique vers l'état métallique</b>	<b>117</b>
C.1	Géométrie du problème . . . . .	117
C.2	Propriétés électriques de la jonction . . . . .	118
C.3	Calcul de l'échauffement local . . . . .	120
<b>D</b>	<b>Piégeage des vortex dans Fe(Se,Te)</b>	<b>125</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>133</b>

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Contexte historique

La supraconductivité a été découverte en 1911 par Heike Kammerlingh Onnes [53], à l'université de Leyde (Pays-Bas).

Etant parvenu à liquéfier l'hélium en 1908, Onnes a tenté d'appliquer ce développement technologique à l'étude de la résistivité des métaux à basse température. Dans ce cadre, il s'est naturellement tourné vers le mercure, qui était alors le métal que l'on savait synthétiser avec la plus grande pureté. Il a alors observé qu'à une température critique de  $T_c = 4.15\text{ K}$ , la résistance électrique du mercure chutait brutalement en-dessous de tout seuil mesurable (fig. 1.1).

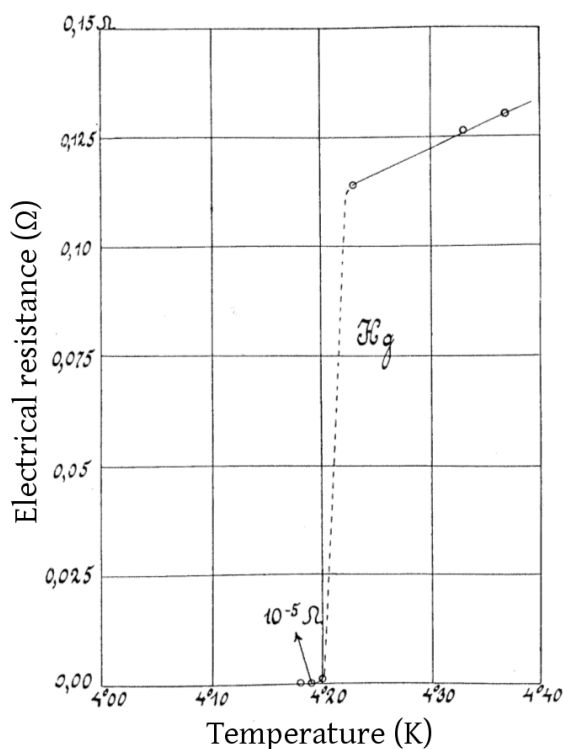


FIGURE 1.1 – Dépendance en température de la résistance d'un échantillon de mercure liquide mesurée par H. K. Onnes [54]

Des expériences ultérieures ont ensuite révélé que d'autres métaux transitaient vers un état de résistance électrique nulle, tels que le plomb à 6 K et l'étain à 3.7 K. Ce résultat était d'autant plus surprenant sur le plan scientifique que ces deux derniers métaux étaient de piètres conducteurs électriques à température ambiante.

Ces observations expérimentales étaient caractéristiques d'une transition vers un nouvel état de la matière, dont les propriétés électriques ne ressemblaient à rien de connu alors. Cet état fut nommé état supraconducteur.

Outre la chute de résistivité qui a permis la découverte de l'état supraconducteur, Walther Meissner et Robert Ochsenfeld ont observé en 1933 [47] qu'un matériau supraconducteur, refroidi en-dessous de sa température critique  $T_c$ , expulsait le champ magnétique en son sein en se comportant comme un diamagnétique parfait.

Cette phénoménologie était distincte de celle attendue dans le cas d'un conducteur électrique parfait, pour lequel on s'attendrait simplement à ce que le matériau s'oppose à une variation du champ magnétique en son sein après entrée dans l'état supraconducteur. Cet effet, qui fut nommé effet Meissner, semblait donc spécifique à l'état supraconducteur.

L'effet Meissner a un coût énergétique pour le supraconducteur, puisqu'il requiert la présence au sein de ce dernier d'une aimantation s'opposant au champ magnétique ambiant. Sa présence implique donc qu'il existe un champ magnétique critique  $H_c$  au-dessus duquel l'état supraconducteur deviendra énergétiquement instable.

En notant  $F_n(T)$  et  $F_s(T)$  les énergies libres par unité de volume de l'état normal et de l'état supraconducteur à une température  $T$  donnée,  $H_c$  peut être déterminé en calculant l'énergie magnétique par unité de volume déstabilisant l'état supraconducteur :

$$\frac{1}{2}\mu_0 H_c^2 = F_n(T) - F_s(T)$$

Il a ensuite été observé expérimentalement que  $H_c(T)$  suivait approximativement une loi parabolique :

$$H_c(T) \approx H_c(0 \text{ K}) \left[ 1 - \left( \frac{T}{T_c} \right)^2 \right]$$

Des mesures de chaleur spécifique ont aussi indiqué que la transition de phase associée à l'entrée du matériau dans l'état supraconducteur était du second ordre en l'absence de champ magnétique extérieur, et du premier ordre en présence d'un champ extérieur, une discontinuité dans la chaleur spécifique apparaissant à  $T = T_c$  dans ce dernier cas.

Il a été de plus observé que si l'on substituait les atomes d'un supraconducteur par d'autres isotopes du même élément chimique, la température critique associée à l'état supraconducteur était modifiée selon une loi puissance  $T_c \propto M^{-\alpha}$  avec  $M$  la masse isotopique du matériau et  $\alpha$  un coefficient numérique dépendant du matériau étudié. Cet effet fut appelé effet isotopique.

Enfin, d'autres observations expérimentales, telles que la mesure d'un coefficient de Thomson nul dans l'état supraconducteur par Daunt et Mendelssohn [13], ont suggéré l'existence d'un gap énergétique  $\Delta$  de l'ordre de  $k_B T_c$ , entre l'état fondamental du système et les premières excitations du système. Cette supposition fut plus tard confirmée expérimentalement de façon plus directe, lorsqu'il fut mis en évidence par Corak et al. [10] que pour  $T < T_c$ , la chaleur spécifique du système avait une dépendance en température exponentielle caractéristique d'un système présentant un tel gap. Parallèlement, une autre

preuve expérimentale de l'existence d'un gap fut apportée par des mesures d'absorptions de radiations électromagnétiques effectuées par Glover et Tinkham [22].

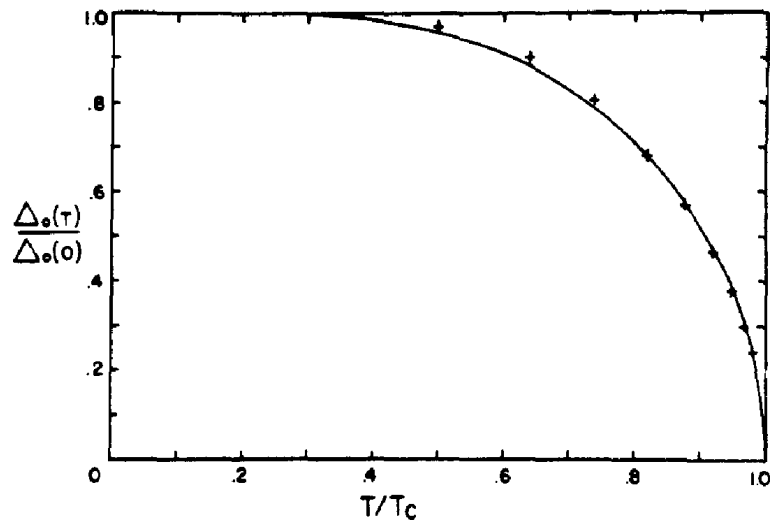


FIGURE 1.2 – Dépendance en température du gap supraconducteur du plomb [71]

L'observation de l'effet isotopique et l'intuition de l'existence d'un gap supraconducteur conduisit à terme John Bardeen, Leon Cooper, et John Robert Schrieffer à proposer la théorie BCS [2], selon laquelle l'état supraconducteur proviendrait du couplage d'électrons dans des états à deux particules, appelés "paires de Cooper", via une interaction médiée par des phonons.

Bien que certains aspects de la théorie BCS, notamment le rôle exact joué par les phonons dans le mécanisme de couplage des paires de Cooper, ne fassent plus consensus dans des matériaux dits "non conventionnels" tels que les cuprates ou les pnictures, la description microscopique de l'état supraconducteur proposée par cette théorie demeure à ce jour globalement acceptée par la communauté scientifique.

## 1.2 Description BCS du gap supraconducteur

Dans la théorie BCS, l'existence d'une interaction attractive entre électron, même d'ampleur infinitésimale à température ambiante, conduit à basse température à une déstabilisation de la surface de Fermi d'un métal. Sur une certaine plage d'énergie autour du niveau de Fermi  $E_F$  du matériau, il devient énergétiquement plus favorable pour les électrons de conduction de ce dernier de se coupler sous forme de paires de Cooper. L'état le plus stable pour ce système à deux particules est généralement composé de deux électrons de spin et de quantités de mouvement opposées, on parle alors d'état singulet.

Comme mentionné précédemment, la théorie BCS supposait historiquement que les électrons de conduction étaient couplés par des phonons. Dans ce modèle, les électrons de conduction polarisent localement le réseau cristallin, de par leur charge opposée à celle des ions qui composent ce dernier. Cette polarisation peut, en retour, influencer la trajectoire d'autres électrons, et c'est par ce mécanisme que des paires de Cooper sont créées en dépit du fait que les électrons qui les composent sont de même charge électrique et de quantités de mouvement opposées.



Dans ce cadre théorique, une interaction attractive nette  $V$  existera entre électrons sur la plage d'énergie  $[E_F - \hbar\omega_D, E_F + \hbar\omega_D]$  avec  $\omega_D$  la pulsation de Debye. Pour  $T < T_c$ , cette interaction attractive sera plus forte que la répulsion coulombienne sur une gamme d'énergie  $\Delta$  autour du niveau de Fermi, et on observera alors une déstabilisation des états monoélectroniques de la bande de conduction du matériau, en faveur de la formation de paires de Cooper de charge  $e^* = 2e$  à partir des électrons originellement localisés dans des états d'énergie  $[E_F - \Delta, E_F + \Delta]$ .

Le gap supraconducteur à température nulle  $\Delta_0$  et la température critique  $T_c$  d'un supraconducteur dépendent tous deux de la densité d'états au niveau de Fermi du matériau et du potentiel attractif  $V$  couplant les électrons. Mais dans la théorie BCS historique, ils en dépendent de la même façon, et on s'attend donc à observer pour tout matériau supraconducteur la relation universelle [69]

$$\frac{2\Delta_0}{k_B T_c} \approx 3.53$$

Le fait que cette relation ne soit plus vérifiée est un signe clair que la supraconductivité d'un matériau ne vérifie plus l'ensemble des hypothèses de la théorie BCS historique. On parlera alors de supraconductivité non conventionnelle.

De plus, lorsque l'on est dans le régime de couplage faible caractérisé par  $\hbar\omega_D \gg k_B T_c$ , la loi  $\Delta(T)/\Delta_0$  est également universelle, et on observe une décroissance monotone de  $\Delta$  avec  $T$  comme illustré figure 1.2. Pour  $T \ll T_c$ , le gap supraconducteur varie lentement avec  $T$ , l'excitation thermique des quasiparticules dans le supraconducteur étant négligeable, tandis que pour  $T \approx T_c$ , on peut approximer la loi  $\Delta(T)$  par la relation analytique simple

$$\frac{\Delta(T)}{\Delta_0} \approx 1.74 \sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}$$

Si on note  $\varepsilon_{\vec{k}}$  la dispersion des états monoélectroniques de la bande de conduction du système dans l'état métallique, et si l'on suit la convention usuelle consistant à poser l'origine des énergies en  $E_F$ , l'énergie  $E_{\vec{k}}$  des excitations élémentaires de l'état supraconducteur à un vecteur d'onde  $\vec{k}$  sera donnée par la relation

$$E_{\vec{k}} = \sqrt{\varepsilon_{\vec{k}}^2 + \Delta^2}$$

Dans l'état supraconducteur, il faut toujours une énergie d'au moins  $2\Delta$  pour briser une paire de Cooper (fig. 1.3). Et contrairement au cas de l'état métallique, l'énergie qu'il est nécessaire d'apporter pour créer une excitation dans le système varie dans l'espace des  $\vec{k}$  : elle atteint sa valeur minimale de  $2\Delta$  au niveau des points de l'espace réciproque correspondant à la surface de Fermi du matériau dans l'état métallique, et elle augmente au fur et à mesure que l'on s'écarte de ces points.

Lorsque l'on étudie un matériau supraconducteur, une bonne connaissance de son gap supraconducteur est cruciale. En effet, le rôle joué par cette quantité dans le spectre d'excitations de l'état supraconducteur signifie qu'elle joue un rôle clé dans les propriétés thermodynamiques de cet état. De plus, il existe un lien très étroit entre gap supraconducteur et mécanisme de couplage des paires de Cooper, puisque la formation d'un gap supraconducteur est une manifestation indirecte de la présence d'une interaction attractive entre électrons dans une certaine portion de la surface de Fermi d'un matériau. Une bonne connaissance du gap supraconducteur d'un matériau dans l'espace réciproque fournit donc un indice précieux pour déterminer l'origine de la supraconductivité d'un matériau.

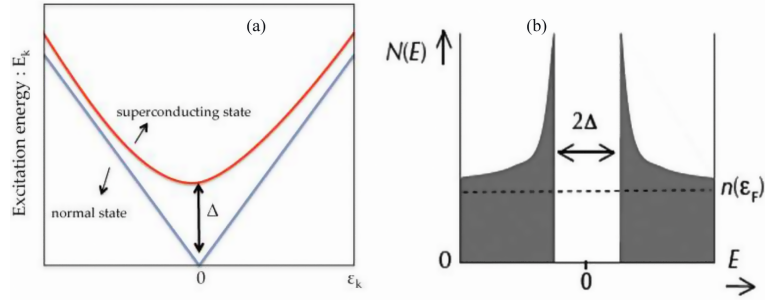


FIGURE 1.3 – Dispersion des excitations d'un matériau à bandes paraboliques dans l'état normal et supraconducteur, et densités d'états associées, d'après [15]

A ce sujet, remarquons que jusqu'à présent, nous avons implicitement supposé que le gap supraconducteur était une quantité homogène sur l'ensemble de la surface de Fermi d'un matériau, autrement dit qu'il ne dépendait pas du vecteur d'onde considéré  $\vec{k}$ . Cette supposition n'est cependant valable que pour le mécanisme de couplage électronique historiquement considéré par la théorie BCS, lui-même basé sur une description théorique très simplifiée du couplage électron phonon.

Dans le cas général, le gap supraconducteur est sujet à varier dans l'espace réciproque, d'une manière qui dépend fortement de l'interaction qui couple les électrons en paire de Cooper dans le matériau considéré. Il peut même s'annuler en certains points de la surface de Fermi du matériau, auquel cas on appelle ces points noeuds et on parle de gap supraconducteur nodal.

Les différentes lois  $\Delta(\vec{k})$  expérimentalement observées sont regroupées d'un point de vue théorique en quelques grandes catégories représentant des symétries simples, définies par analogie avec celles des orbitales de l'atome d'hydrogène. On parle ainsi de gaps *s-wave* lorsque le gap supraconducteur d'un matériau ne présente pas de noeuds, de gaps *p-wave* lorsqu'il s'annule le long d'une ligne de l'espace des  $\vec{k}$ , de gaps *d-wave* lorsqu'il s'annule et change de signe le long de deux lignes orthogonales, et ainsi de suite.

On peut grossièrement associer ces symétries au fait que, dans un certain repère cylindro-polaire de l'espace réciproque, le gap supraconducteur dépend de l'angle azimutal  $\varphi$  du vecteur d'onde  $\vec{k}$  que l'on considère selon les lois suivantes

$$\Delta(\vec{k}) \propto \begin{cases} 1 & \text{pour un gap s-wave isotrope} \\ |\cos(\varphi)| & \text{pour un gap p-wave} \\ \cos(2\varphi) & \text{pour un gap } d_{x^2-y^2} \\ \sin(2\varphi) & \text{pour un gap } d_{xy} \end{cases}$$

Ces différentes lois sont représentées graphiquement figure 1.4.

L'existence de plusieurs feuillet de la surface de Fermi d'un matériau multiplie aussi les possibilités, en permettant l'émergence de gaps supraconducteurs de caractéristiques différentes sur chaque feuillet. Par exemple, dans le cadre du mécanisme de couplage par fluctuations antiferromagnétiques de spin actuellement soupçonné d'être à l'origine de la supraconductivité des pnictures, on s'attend à observer une symétrie dite  $s_{\pm}$ , où le gap supraconducteur n'a aucun noeud sur l'ensemble des feuillet de la surface de Fermi mais est sujet à changer de signe d'un feuillet à l'autre.

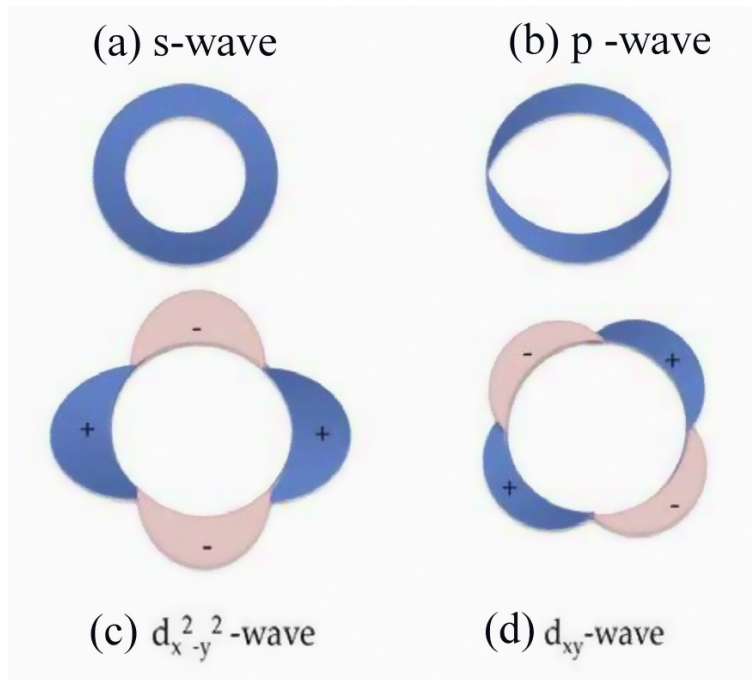


FIGURE 1.4 – Représentations en coordonnées polaires de quelques symétries de gap supraconducteur, d’après [15]

### 1.3 Les supraconducteurs à base de fer

#### Introduction

L’observation historique d’un état supraconducteur de température critique très élevée (jusqu’à plus de 100 K) dans la famille des cuprates [3] suscita un grand regain d’intérêt de la communauté scientifique pour la supraconductivité non conventionnelle. Par leur faible densité d’états au niveau de Fermi, leur structure cristalline lamellaire, leur antiferromagnétisme, la présence d’oxygène en leur sein, et leur caractère isolant en l’absence de dopage, ces composés violaient en effet l’ensemble des règles empiriques [44] sur lesquelles la recherche en supraconductivité se basait alors.

Cependant, cette découverte ne fut pas suivie des avancées théoriques majeures auxquelles on aurait pu s’attendre dans la compréhension des mécanismes de la supraconductivité. Encore aujourd’hui, du fait de l’extrême complexité de leur physique illustrée par la grande richesse de leur diagramme de phase, la supraconductivité à haute température critique des cuprates demeure un mystère pour la communauté scientifique.

Découverts en 2006 par le groupe du professeur Hosono [34], les supraconducteurs à base de fer ont attiré l’attention de la communauté scientifique par le fait que leur supraconductivité présentait elle aussi un caractère non conventionnel, avec des diagrammes de phase similaires à ceux des cuprates (fig. 1.5), tout en étant potentiellement plus simples à étudier sur le plan théorique. Ces matériaux représentent ainsi une nouvelle voie pour l’étude de la supraconductivité non conventionnelle, qui permettra peut-être des avancées scientifiques face à cette énigme de longue date.

Parmi les points communs à l’ensemble des supraconducteurs à base de fer découverts à ce jour, on peut mentionner :

- Une structure cristalline quasi-bidimensionnelle comprenant des plans cristallins

composés de fer et d'un autre élément (typiquement As, P, Se ou Te) en coordination tétraédrique

- Un ordre magnétique dans le diagramme de phase, le plus souvent une onde de densité de spin antiferromagnétique, qui est affaibli lorsqu'un dopage en électrons ou en trous est appliqué en laissant parfois place à un dôme supraconducteur
- Une structure cristalline tétragonale à haute température, avec transition vers une structure orthorhombique à basse température dans les composés sous-dopés

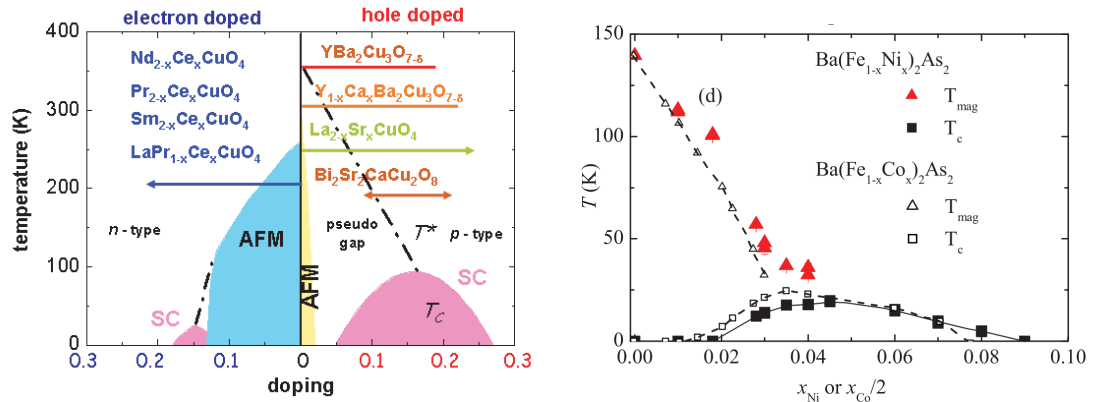


FIGURE 1.5 – Diagrammes de phase simplifié de quelques cuprates [19] et diagramme de phase de pnictures de fer 122 dopés *Ni* et *Co* [52]. Les composés peu dopés présentent un ordre antiferromagnétique, et la supraconductivité apparaît à basse température pour certains dopages.

Ces observations suggèrent que les plans Fe-X (où X est élément chimique quelconque) sont à l'origine de la supraconductivité de ces matériaux, tout comme les plans cristallins planaires Cu-O semblent être à l'origine de la supraconductivité des cuprates. Les éléments chimiques éventuellement intercalés entre ces plans ne serviraient dans cette vision théorique que de réservoirs de charges, apportant au sein des plans Fe-X les porteurs nécessaires à la formation de l'état supraconducteur. Cela expliquerait la grande diversité existant à ce niveau parmi les supraconducteurs à base de fer découverts à ce jour (fig. 1.6).

Enfin, la surface de Fermi des supraconducteurs au fer est généralement composée de cinq feuillettes : trois poches de trous centrées au point  $\Gamma$  de leur première zone de Brillouin, et deux poches d'électrons centrées au point  $M$  [65]. La principale exception à cette règle est le composé  $KFe_2Se_2$ , dont la surface de Fermi ne présente aucune poche de trou autour du point  $\Gamma$  [46]. Une représentation graphique de ces deux grands types de surface de Fermi est donnée figure 1.7.

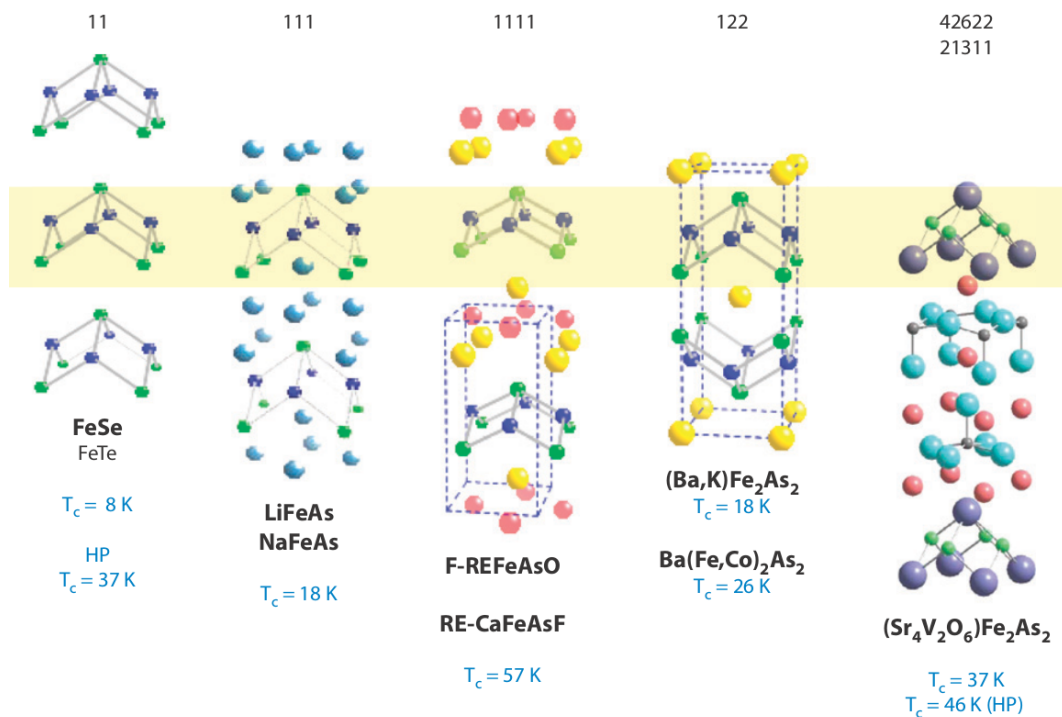


FIGURE 1.6 – Structure cristalline des principaux supraconducteurs à base de fer, d’après [73]. Les plans Fe-X sont mis en valeur. Les températures critiques sont indiquées au dopage optimal, à pression ambiante et haute pression.

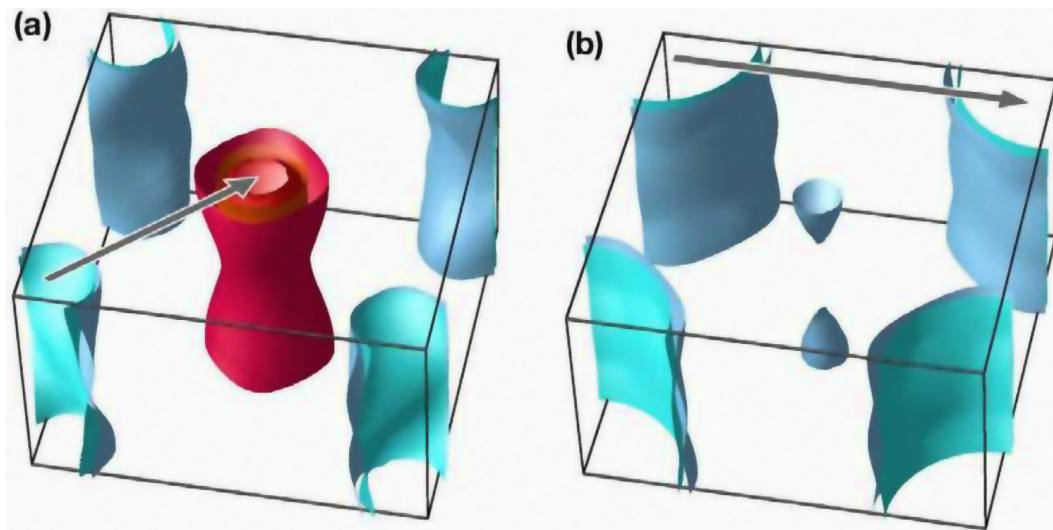


FIGURE 1.7 – Surfaces de Fermi de  $Ba(Fe_{0.97}Co_{0.03})_2As_2$  et  $K_{0.8}Fe_2Se_2$ , d’après [46]. Les flèches indiquent le nesting entre nappes de la surface pouvant conduire à l’émergence de l’onde de densité de spin.

### 1.3.1 Composés spécifiques étudiés

Dans cette thèse, nous avons principalement concentré notre attention sur deux grands types de composés :  $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$  et  $FeSe_{1-x}Te_x$ . Nous allons maintenant présenter

rapidement les deux familles auxquelles appartiennent ces composés, appelées respectivement “122” et “11” dans la littérature scientifique.

La famille 11 a été découverte en 2008. Elle comprend les composés de formule  $FeSe_{1-x}$ , mais aussi des variantes telles que  $FeSe_{1-x}Te_x$  et  $FeT_{1-x}S_x$ . Les supraconducteurs à base de fer de cette famille ont généralement une température critique d’environ 8 K à pression ambiante [29], qui peut augmenter jusqu’à 27 K lorsqu’une pression est appliquée sur le composé [48, 78].

Un autre résultat expérimental particulièrement intéressant, dans cette famille, fut la découverte en 2012 [72] d’une supraconductivité de surface avec des  $T_c$  pouvant aller jusqu’à plus de 100 K [21] dans des hétérostructures composées d’une monocouche de  $FeSe$  déposée sur un substrat de  $SrTiO_3$ . Si le mécanisme sous-jacent n’est pas encore compris, une hypothèse théorique qui semble particulièrement prometteuse à l’heure actuelle serait l’amélioration du couplage électron-phonon de  $FeSe$  par interaction avec le substrat de  $SrTiO_3$  sous-jacent [38].

La famille 122 a aussi été découverte en 2008. Elle comprend les composés de formule  $AFe_2As_2$  où  $A$  est un élément alcalino-terreux. Dans cette famille, le composé parent  $BaFe_2As_2$  n’est pas supraconducteur, mais si on le dope en trous en substituant  $Ba$  par  $K$  [58] ou  $Sr$ , ou si on le dope en électrons en substituant  $Fe$  par  $Co$  [61] ou  $Ni$  [39], on observe l’apparition d’une supraconductivité à basse température. La supraconductivité peut aussi être induite en substituant de façon isovalente  $Fe$  par  $Ru$  [63] ou  $As$  par  $P$  [33].

Au vu de cette grande diversité de dopants possible, tant du point de vue des éléments utilisés que des sites dopés, on pourrait s’attendre à des comportements physiques très variés. Mais en réalité, le diagramme de phase des différents composés est très similaire (fig. 1.8), et tous les composés supraconducteurs présentent une température critique au dopage optimal du même ordre de grandeur (38 K dans  $Ba_{0.6}K_{0.4}Fe_2As_2$  [58]).

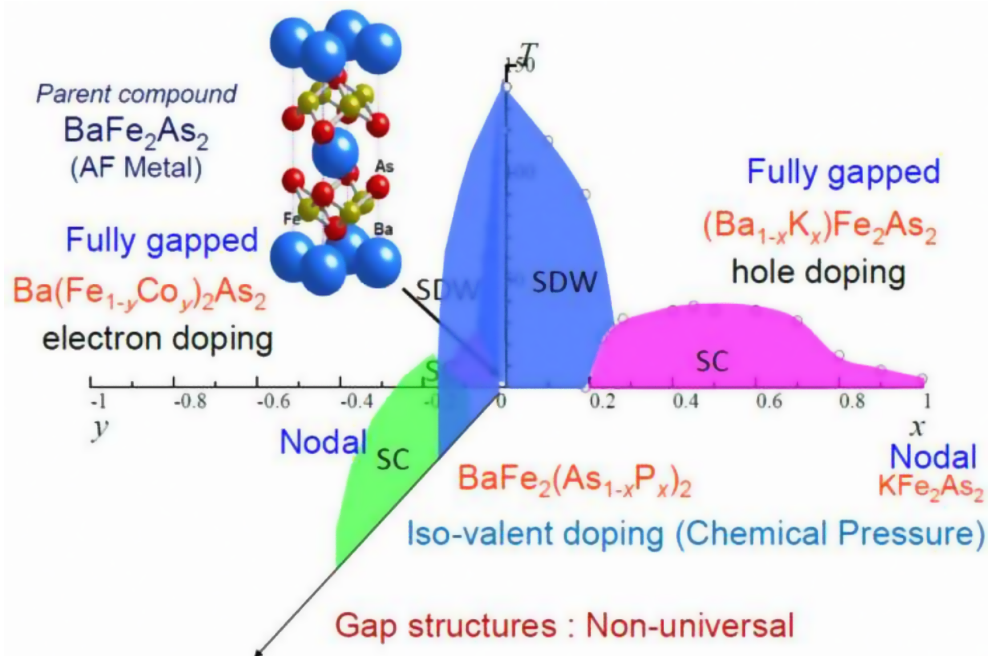


FIGURE 1.8 – Diagramme de phase générique des pnictures 122, d’après [15]

$BaFe_2As_2$  a une structure cristalline tétragonale à haute température, appartenant au groupe d’espace  $I4/mmm$  dans l’état non magnétique. A une température très légèrement

supérieure à celle de la transition vers l'état antiferromagnétique, on observe une transition structurale vers une phase orthorhombique du groupe d'espace  $Fmmm$ . La figure 1.9 représente la structure cristalline de  $BaFe_2As_2$  à basse température ainsi que la configuration magnétique de l'onde de densité de spin qu'il présente à basse température.

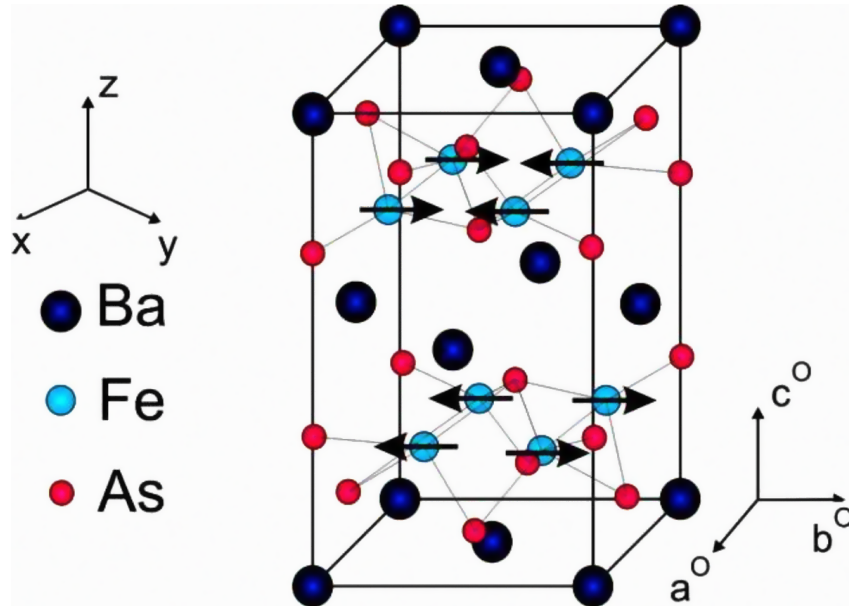


FIGURE 1.9 – Structure cristalline et ordre de spin dans  $BaFe_2As_2$ , d'après [15]. L'orientation des spins des atomes de  $Fe$  est représentée par des flèches.

# Chapitre 2

## Spectroscopie de pointe (PCS)

### Introduction

La spectroscopie de pointe (Point Contact Spectroscopy, ou PCS) est une technique permettant l'étude de nombreuses propriétés de transport électrique d'un matériau conducteur, telle que le couplage de ses électrons de conduction à des modes bosoniques, ou le gap d'un éventuel état supraconducteur. Elle est basée sur la création d'un contact ponctuel entre le matériau étudié et un autre matériau connu, suivie de la mesure des propriétés électriques de la jonction résultante.

Le cas traité ici est celui de jonctions entre un métal normal, tel que l'or, et un matériau supraconducteur. Ce chapitre introduira les méthodes expérimentales permettant de créer de telles jonctions et de mesurer leurs propriétés électriques. Il fournira également une brève introduction aux informations physiques qu'il est possible d'en extraire. La modélisation détaillée des phénomènes observés sera ensuite introduite plus en détail lors de la discussion des résultats obtenus.

Pour des raisons de clarté, les phénomènes de transport électrique discutés ici seront uniquement traités dans le contexte d'électrons circulant de l'électrode métallique au supraconducteur. Il est cependant important de noter que l'ensemble de la discussion qui suit peut être aisément adapté pour décrire une conduction par des trous, où les électrons circulent en fait du supraconducteur au métal normal.

Ainsi, dans le cas usuel où le métal et le supraconducteur mis en contact présentent tous les deux la symétrie électron-trou, le courant circulant dans la jonction est simplement une fonction antisymétrique de la tension appliquée à ses bornes. Traiter le cas particulier où des électrons circulent du métal normal au supraconducteur n'est donc pas limitant pour l'analyse ultérieure.

### 2.1 Notion de contact ponctuel

#### Introduction

Pour tirer des résultats d'une mesure de transport électrique, il est nécessaire de pouvoir déterminer, à partir des mesures effectuées, des quantités physiques qui ne dépendent que des matériaux mis en contact. La dépendance des résultats expérimentaux vis à vis de la nature exacte du contact électrique entre ces matériaux doit donc être relativement faible, et aisée à éliminer lors du traitement des données.



En spectroscopie de pointe, cette condition sera vérifiée pour peu que certaines précautions soient prises dans la réalisation dudit contact, en particulier au niveau de ses dimensions géométriques qui doivent rester suffisamment petites par rapport à des limites physiques que nous expliciterons plus loin. On appelle les contacts vérifiant ces conditions des contacts ponctuels [32].

Pour décrire le type de contacts électriques recherchés en spectroscopie de pointe, nous allons maintenant considérer successivement les différents régimes de conduction électrique qui se présentent lorsque deux matériaux sont progressivement mis en contact, et discuter lesquels nous intéressent ici.

Afin de simplifier la discussion, nous nous focaliserons ici sur le dispositif expérimental “needle-anvil”, le plus fréquemment utilisé pour la création de contacts électriques de propriétés bien contrôlées. Dans ce dispositif une pointe métallique ductile est amenée mécaniquement en contact avec un échantillon électriquement conducteur. La discussion qui suit est cependant généralisable à d’autres méthodes de créations de contacts électriques.

### 2.1.1 Régimes de conduction quantiques

Lorsque la pointe métallique est suffisamment rapprochée de l’échantillon, il apparaît un régime dans lequel les deux matériaux ne sont pas encore en contact à proprement parler, mais sont suffisamment proches pour que des électrons puissent passer de l’un à l’autre par effet tunnel. Il est possible d’étudier les propriétés électriques de telles jonctions pour remonter à celles des matériaux qui la composent, on parle alors de spectroscopie tunnel.

Les propriétés électriques des jonctions tunnels sont sensibles à de nombreuses caractéristiques du dispositif expérimental, incluant notamment...

- La distance pointe-échantillon [56]
- L’état de surface de la pointe [50] et de l’échantillon [7]
- La composition chimique de l’atmosphère expérimentale [1]
- La géométrie de la pointe, en particulier son rayon de courbure [20]
- La symétrie des orbitales électroniques de la pointe [66]

Cette physique très riche est un atout majeur lorsque l’on cherche à étudier l’une de ces propriétés. Par exemple, la technique de microscopie à effet tunnel se base sur la forte sensibilité des propriétés des jonctions tunnels vis à vis de la distance pointe-échantillon pour produire des images topographiques de surfaces avec une résolution atomique.

En revanche, dans le cas où l’on souhaite connaître les propriétés électriques du matériau massif étudié, la grande variabilité du signal tunnel en fonction des conditions expérimentales devient plutôt un problème, dont la résolution nécessite des moyens technologiques complexes allant d’une isolation acoustique très poussée du dispositif expérimental jusqu’à l’utilisation d’enceintes sous ultra-vide, en passant par des protocoles complexes de préparation de pointe et d’échantillon. Il devient alors préférable d’étudier plutôt d’autres types de jonctions électriques, moins sensibles aux caractéristiques du dispositif expérimental.

Si, partant du régime tunnel, on approche encore la pointe de l’échantillon, il vient ensuite un moment où les matériaux entrent véritablement en contact, au sens où les orbitales de leurs électrons de conduction se recouvrent de façon significative. La région de contact où cela se produit est d’abord petite, de l’ordre de la taille de quelques atomes. Dans ce cas, le contact se comporte comme un guide d’onde pour les électrons de conduction, que ces derniers ne peuvent traverser que par le biais d’un nombre assez réduit de modes ondulatoires quantifiés [67].

Les propriétés de conduction du contact sont alors liées à celles de ces modes quantifiés, qui dépendent eux-même de la géométrie exacte du contact [28]. Ce régime, dit de contact ponctuel quantique, reste donc encore peu adapté pour étudier les propriétés électroniques des matériaux mis en contact, sans avoir à contrôler la nature exacte du contact existant entre eux.

### 2.1.2 Regimes de conduction semi-classiques

Supposons maintenant que partant d'un contact ponctuel quantique, la pointe métallique soit davantage pressée contre l'échantillon. Le matériau composant la pointe étant plus ductile que celui composant l'échantillon, l'effet de cette opération sera d'écraser la première contre le second, augmentant ainsi la taille du contact électrique entre les deux matériaux. Ceci permet d'accéder à d'autres régimes de conduction électrique.

Lorsque les dimensions du contact sont grandes devant la longueur d'onde de Fermi, les canaux de conduction électroniques deviennent tellement nombreux, et rapprochés en énergie, qu'il est possible en bonne approximation d'ignorer la nature quantique de la conduction électrique dans le contact. On peut alors utiliser des modèles semi-classiques de conduction électrique, inspirés de la théorie cinétique des gaz.

Dans ces modèles, les électrons de conduction proches du niveau de Fermi sont traités comme des particules ponctuelles, se déplaçant approximativement à la vitesse de Fermi  $v_F$  du matériau où elles résident, et ayant une certaine probabilité de traverser un orifice de surface  $S$  au sein d'une barrière opaque entre les deux matériaux.

Cette approche théorique a été introduite par Sharvin [64] dans le cadre de l'étude du comportement de micro-contacts, et est illustrée par la figure 2.1.

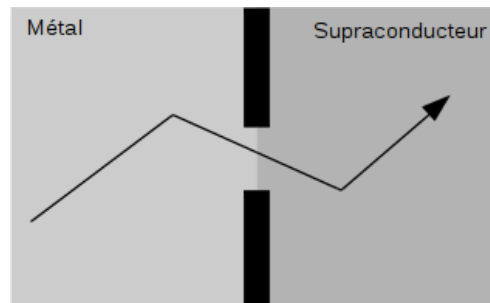


FIGURE 2.1 – Modèle semi-classique de contact ponctuel

Le comportement de ce type de modèle change qualitativement en fonction de la taille du contact. En effet, si le contact est de taille suffisamment faible, les électrons de conduction auront une probabilité négligeable de subir des collisions en le traversant, et on pourra les traiter théoriquement comme des particules libres accélérées par la tension appliquée aux bornes de la jonction. Ils pénétreront alors dans l'échantillon dans un état de haute énergie bien contrôlé, propice à des mesures spectroscopiques.

Si au contraire, le contact est spatialement étendu, il sera plus pertinent de traiter la jonction au moyen d'un modèle de conduction dans un matériau massif diffusif, tel que le modèle de Drude. Les électrons de conduction pénétreront alors dans l'échantillon dans un état proche de l'équilibre thermodynamique.

Il est donc nécessaire, à ce stade, de distinguer trois régimes de conduction électrique possibles, en fonction de la dimension caractéristique  $a$  du contact :

- Pour  $a \ll l_{el}$  avec  $l_{el}$  le libre parcours moyen élastique des électrons de conduction, on parlera de régime balistique.
- Pour  $l_{el} < a \ll l_{in}$  avec  $l_{in}$  le libre parcours moyen inélastique des électrons, on parlera de régime diffusif élastique.
- Pour  $l_{el}, l_{in} < a$ , on parlera de régime diffusif inélastique.

Notons à ce stade que les libres parcours moyens  $l_{el}$  et  $l_{in}$  sont difficiles à mesurer. En effet, au contraire des électrons quasi-libres de plus haute énergie, que l'on peut isoler et étudier par les techniques de photoémission à rayon X et de spectroscopie d'électrons Auger, les électrons de conduction d'un solide sont par définition confinés au sein de ce dernier et en interaction permanente entre eux et avec le réseau cristallin environnant. L'utilisation de modèles est donc nécessaire pour estimer ces quantités.

Le modèle le plus couramment utilisé dans cette optique est celui de Drude, qui suppose que la résistivité des matériaux est entièrement dictée par l'existence de collisions changeant la direction de propagation des électrons de conduction. Ce modèle est donc sensible aux collisions élastiques comme inélastiques, avec un taux de collision total  $\tau_D$  vérifiant la relation  $\frac{1}{\tau_D} = \frac{1}{\tau_{el}} + \frac{1}{\tau_{in}}$  d'où un libre parcours moyen détecté vérifiant  $\frac{1}{l_D} = \frac{1}{l_{el}} + \frac{1}{l_{in}}$ .

Puisque les libres parcours moyens sont des grandeurs positives, on a  $\frac{1}{l_D} < \frac{1}{l_{el}}$  et  $\frac{1}{l_D} < \frac{1}{l_{in}}$ . Le libre parcours moyen  $l_D$  fourni par le modèle de Drude fournit donc une borne supérieure aux libres parcours moyens élastiques et inélastiques des électrons de conduction dans la jonction, et peut être utilisé pour vérifier qu'un contact est dans le régime balistique.

Si on souhaite obtenir les valeurs précises des libres parcours moyens élastique et inélastique d'un matériau au moyen du modèle de Drude, il sera possible de le faire en utilisant la variation en température de la résistivité d'un matériau. En effet, le libre parcours moyen inélastique d'un matériau est gouverné par l'interaction des électrons de conduction avec des modes bosoniques d'énergie non nulle, et l'excitation de ces derniers devient négligeable à basse température.

En conséquence, quand  $T \rightarrow 0$  K les électrons de conduction en mouvement diffusif ne subiront presque plus de collisions inélastiques par interaction avec des modes bosoniques. Leur transport sera donc dominé par les collisions élastiques, et on aura  $l_D \approx l_{el}$ . Pour peu que  $l_{el}$  ne dépende pas trop fortement de la température, il sera ensuite possible de déduire  $l_{in}$  de  $l_D$  à n'importe quelle température en utilisant la relation  $\frac{1}{l_{in}} = \frac{1}{l_D} - \frac{1}{l_{el}}$ .

Le modèle de Drude fournit la relation  $\rho = \frac{p_F}{n_0 e^2 l_D}$  [32], où  $\rho$  est la résistivité du conducteur dans lequel les électrons se propagent,  $p_F$  est son vecteur d'onde de Fermi,  $n_0$  est sa densité d'électrons de conduction semi-classiques dans le solide (telle qu'on la mesure par effet Hall), et  $e$  est la charge élémentaire.

On peut obtenir un ordre de grandeur des libres parcours moyens attendus en injectant dans cette relation les paramètres d'un des matériaux étudiés,  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$ , et en utilisant pour pallier au manque de certaines données dans la littérature sa similarité avec le composé  $Ba(Fe_{0.88}Co_{0.12})_2As_2$ , discutée dans [52]. En utilisant les données de [52] pour la résistivité et la densité d'électrons de conduction semi-classique, [62] pour les paramètres structuraux, et [41] pour la quantité de mouvement de Fermi (via  $\frac{k_F}{a_M}$ ,  $a_M$  le paramètre de maille adéquat, et la relation  $p_F = \hbar k_F$ ), il vient  $l_D \approx 2$  nm.

Ce libre parcours moyen est faible devant le libre parcours moyen électronique d'un bon métal à basse température, qui varie typiquement de plusieurs dizaines de nm à plusieurs centaines de nm. Il est donc raisonnable de considérer que le libre parcours moyen du supraconducteur étudié sera toujours le paramètre limitant pour le calcul des libres parcours moyens électronique dans un contact ponctuel.

### 2.1.3 Conduction balistique

Comme il a été mentionné précédemment, le régime balistique est celui où la taille du contact est faible devant les libres parcours moyens élastique et inélastique des électrons de conduction le traversant. Dans ce régime de conduction, il est possible de faire l'hypothèse que les électrons de conduction ne subissent aucune collision lors de la traversée du contact. Près du contact, on peut donc les traiter simplement comme des particules libres se déplaçant à une vitesse proche de la vitesse de Fermi, dans une direction aléatoire.

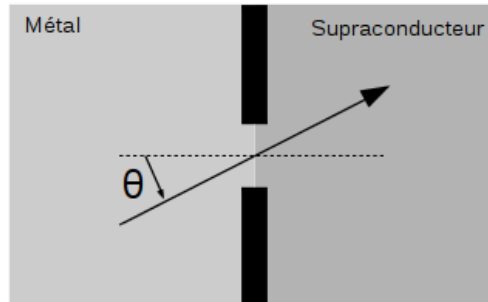


FIGURE 2.2 – Contact mince en régime balistique

Pour modéliser le comportement du contact en régime balistique, prenons pour modèle de contact celui d'un orifice transparent de surface  $S$  percé dans une barrière de potentiel infinie entre les deux matériaux mis en contact. Puis notons  $\theta$  l'angle d'incidence des électrons sur la pupille circulaire. Cette situation est représentée en figure 2.2.

Dans ce régime de conduction, un résultat bien connu de théorie cinétique des gazs est que la probabilité  $p$  de passage de la particule est proportionnelle à la projection de la surface sortante du contact sur l'axe de propagation de la particule, autrement dit  $p \propto S \cos(\theta)$ . Le contact présente par conséquent une sélectivité en vecteur d'onde : plus un électron arrive sous incidence rasante, moins sa probabilité de traverser le contact est grande.

Un autre résultat intéressant est que pour un contact infiniment fin, la forme du contact n'intervient que par le biais de sa surface  $S$ . Ce point est important car en pratique, il est très difficile de mesurer les caractéristiques géométriques exactes d'un contact électrique.

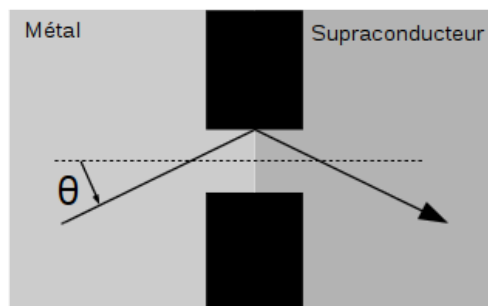


FIGURE 2.3 – Contact cylindrique en régime balistique

Autorisons maintenant, pour augmenter le réalisme de ce modèle, que la région de contact ait une certaine épaisseur. S'il s'agit, tout d'abord, d'un simple cylindre de section  $S$  et de longueur  $l$ , comme représenté en figure 2.3, un simple raisonnement géométrique permet de constater que tout électron qui pourrait pénétrer dans le cylindre (avec une probabilité égale à celle du franchissement d'une pupille infiniment fine) en ressortira après

avoir subi un certain nombre de réflexions totales contre les parois du contact. La seule différence entre un contact cylindrique et un contact plan, du point de vue de la conduction électrique, sera donc une possible inversion de la direction de la vitesse de l'électron incident lors de la traversée du contact.

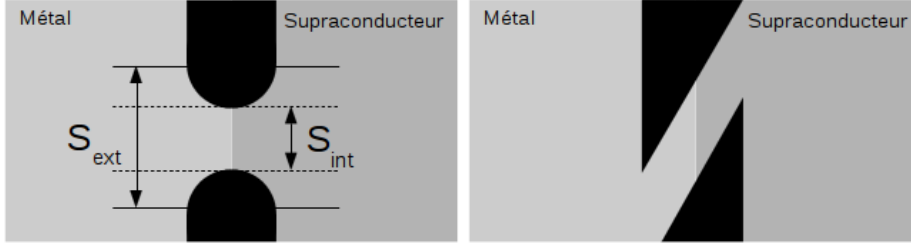


FIGURE 2.4 – Contacts quelconques en régime balistique

Il est plus difficile de prédire de façon générale le comportement exact d'un contact dont les parois sont courbées, tel que celui illustré en figure 2.4. Sous incidence normale, il se comporte comme un contact infiniment mince équivalent de surface  $S_{int}$ , correspondant à la projection de la structure tri-dimensionnelle du contact dans le plan d'incidence d'un électron de trajectoire horizontale. Mais sous incidence quelconque  $\theta$ , cette projection changerait de façon non triviale en fonction de l'angle d'incidence des électrons.

On peut même concevoir des situations où la probabilité pour des électrons de traverser le contact serait faible sous incidence normale, et maximale pour une direction de propagation précise donnée dont la paramétrisation nécessite plus qu'un simple angle d'incidence  $\theta$ . Cette situation est illustrée figure 2.4.

En résumé, en régime balistique, les propriétés électrique du contact dépendent de sa surface de façon triviale, et de l'angle d'incidence des électrons sur le contact de façon non triviale, sous la forme de directions préférentielles de propagation pour les électrons. Les propriétés du contact ne dépendent pas de l'énergie des électrons incidents, puisque ces derniers ne subissent aucune collision inélastique au cours de leur traversée du contact.

#### 2.1.4 Anisotropie et collisions élastiques dans l'échantillon

Dans un matériau dont les propriétés électriques sont isotropes, la sélectivité d'un contact ponctuel en vecteur d'onde électronique n'a pas d'effet particulier. En revanche, dans un matériau anisotrope, son effet doit être considéré avec davantage d'attention. En effet, cette sélectivité peut biaiser les mesures électriques effectuées, et ce d'une façon partiellement imprévisible puisque dépendante de la géométrie exacte du contact étudié.

A l'inverse, bien maîtrisée, elle peut aussi être utilisée pour mesurer des propriétés physiques anisotropes, on parle alors de spectroscopie de pointe directionnelle [12]. La technique a ainsi été employée pour étudier l'anisotropie des gaps supraconducteurs dans  $MgB_2$  [23].

En pratique, un certain nombre de phénomènes tendent cependant à détruire le caractère directionnel de l'injection de courant, à moins qu'il ne soit explicitement recherché par des expériences conçues dans cette optique [12]. Tout d'abord, pour observer l'anisotropie du matériau étudié, les faces de l'échantillon où l'on effectue le contact doivent être extrêmement planes, et orientées selon une direction cristallographique de ce dernier. Dans le cas contraire d'une interface rugueuse, l'injection de courant tendra à s'effectuer par

plusieurs points de contact simultanés, d'orientation aléatoire, ce qui aura pour effet de détruire l'anisotropie d'injection de courant.

De plus, les échantillons étudiés en spectroscopie de pointe directionnelle doivent être d'excellente qualité sur le plan cristallographique. Dans le cas contraire, les diffusions élastiques d'électrons sur les défauts cristallins, qui tendent à homogénéiser les vecteurs d'onde électroniques, auront tôt fait de se produire à un taux si élevé que l'on pourra considérer que les électrons sont revenus à leur distribution en vecteurs d'onde d'équilibre avant que le phénomène que l'on cherche à étudier en spectroscopie de pointe (réflexion d'Andreev, diffusion inélastique par des phonons...) ne se soit produit à un taux significatif.

Dans un cas ou dans un autre, si l'injection d'électrons est en pratique grossièrement isotrope en termes de vecteur d'onde, on observera dans un matériau anisotrope une moyenne des propriétés électriques du matériau à différents angles d'injection. Nous supposerons par la suite que c'est le cas.

### 2.1.5 Collisions élastiques dans la région de contact

Lorsque les dimensions géométriques du contact deviennent de l'ordre du libre parcours moyen électronique élastique  $l_{el}$ , ou plus grandes, on doit considérer la possibilité qu'une collision élastique survienne lorsqu'un électron traverse le contact. L'effet de telles collisions sera de modifier aléatoirement la direction de propagation de l'électron dans la jonction. Entre deux collisions, l'électron sera accéléré par la tension aux bornes de la jonction, avec pour conséquence que la trajectoire de l'électron, bien qu'aléatoire, demeurera globalement orientée du métal vers le supraconducteur. La figure 2.5 illustre cette situation.

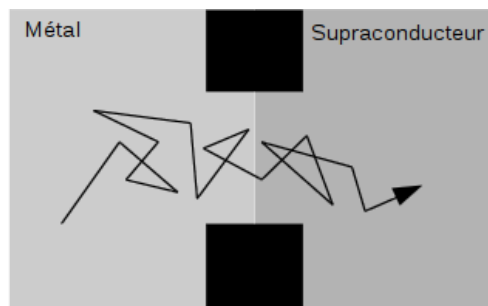


FIGURE 2.5 – Contact cylindrique en régime diffusif élastique

Dans l'ensemble, on constate que l'électron se comportera localement comme dans le cas balistique au cours de la traversée de la jonction, mais que d'un point de vue global, l'information de direction de propagation qu'il portait lors de son arrivée au niveau du contact sera totalement perdue. Il ne sera donc plus pertinent de raisonner en termes d'angle d'incidence  $\theta$  des électrons semi-classiques, en revanche, on pourra pour décrire le comportement de ce système utiliser des modèles adaptés de mouvement brownien en présence d'une force extérieure.

Sans dériver entièrement un tel modèle, il est aisé de prédire ses conclusions les plus simples. Tout d'abord, la probabilité pour un électron de traverser le contact demeurera liée à la surface du contact, mais il deviendra nécessaire de modifier sa définition pour considérer plus particulièrement la probabilité pour l'électron de traverser le contact *en un temps donné*. En effet, aux temps longs, le volume d'espace exploré par une particule en

mouvement diffusif diverge, et il est donc clair qu'un électron pourra toujours traverser un contact électrique si on lui laisse suffisamment de temps pour ce faire.

Ensuite, la sélectivité du contact en angle d'incidence électronique disparaîtra. Elle sera remplacée par une plus grande sensibilité aux dimensions géométriques exactes du contact, puisque l'électron explorera un volume d'espace assez important au cours de sa propagation, au lieu de ne parcourir qu'une trajectoire rectiligne (à quelques réflexions près) au sein de la région de contact.

Enfin, les propriétés du contact demeureront totalement insensibles à l'énergie des électrons incidents. En effet, tant que les électrons se déplacent sur une distance faible devant leur libre parcours moyen inélastique  $l_{in}$ , leur énergie ne sera modifiée que par la présence d'un champ électrique au sein du contact, créé par l'application d'une tension aux bornes de la jonction. Or, la force de Lorentz exercée par le champ électrique sur les électrons de conduction n'étant pas dissipative, ce gain d'énergie ne sera déterminé que par la position de départ et d'arrivée de l'électron, indépendamment de la trajectoire exacte suivie par ce dernier à l'intérieur de la jonction.

### 2.1.6 Aspects énergétiques de la formation d'une jonction

On a vu dans la dernière section que la spectroscopie de pointe est peu sensible aux collisions élastiques dans la région de contact, puisque ces dernières ne font que détruire l'information éventuellement contenue dans l'anisotropie du transport électrique. Or, cette anisotropie est de toute façon très difficile à mesurer et interpréter en spectroscopie de pointe, puisqu'elle est très sensible à la géométrie précise du contact utilisé.

En revanche, nous allons maintenant voir que les collisions inélastiques ont un effet autrement plus important, et délétère, sur les mesures de spectroscopie de pointe. Pour le comprendre, il est d'abord nécessaire de considérer le transport électrique au travers d'un contact ponctuel d'un point de vue énergétique, d'abord dans le cas balistique, puis en étudiant l'effet d'éventuelles collisions inélastiques sur ce dernier.

Afin de simplifier cette discussion, nous nous restreindrons ici au cas où le matériau supraconducteur étudié est dans son état normal, supposé métallique. Une description théorique plus complète des jonctions balistiques métal-supraconducteur, le modèle BTK, sera introduite dans le chapitre 3.

Considérons, donc, deux matériaux métalliques dans le vide, éloignés l'un de l'autre et sans différence de potentiel entre eux. Dans cette situation, la seule quantité énergétique qui soit uniforme dans le système est l'énergie d'un électron immobile dans le vide, que l'on appellera  $E_{vac}$ . Toutes les autres grandeurs énergétiques caractérisant les métaux, à savoir leurs énergies de Fermi  $E_{F,1}$  et  $E_{F,2}$ , et la position du bas de leurs bandes de conduction  $E_{c,1}$  et  $E_{c,2}$ , sont uniformes au sein des matériaux qu'elles caractérisent, mais n'ont a priori aucun lien direct entre elles. Cette situation est représentée figure 2.6.

On définira, dans cette situation, un certain nombre de grandeurs énergétiques caractérisant les métaux étudiés à l'équilibre :

- $E_{F,i}$  le niveau de Fermi du matériau  $i$
- $W_i = E_{vac} - E_{F,i}$  le travail de sortie de ses électrons
- $E_{c,i}$  la position en énergie du bas de sa bande de conduction
- $\Delta_i = E_{F,i} - E_{c,i}$  une grandeur représentative du remplissage de cette bande

Lors de la mise en contact des deux matériaux, des électrons diffuseront du matériau où  $E_F$  est le plus élevé jusqu'à celui où il est le plus faible, analogue à la migration d'électrons

qui serait provoquée par l'application d'une tension  $V_{bi} = \frac{E_{F,2} - E_{F,1}}{-e}$  aux bornes du contact. Ce transfert de charges spontané se poursuivra jusqu'à l'homogénéisation du niveau de Fermi des matériaux étudiés. On pourra alors parler de l'énergie de Fermi de la jonction  $E_F$ .

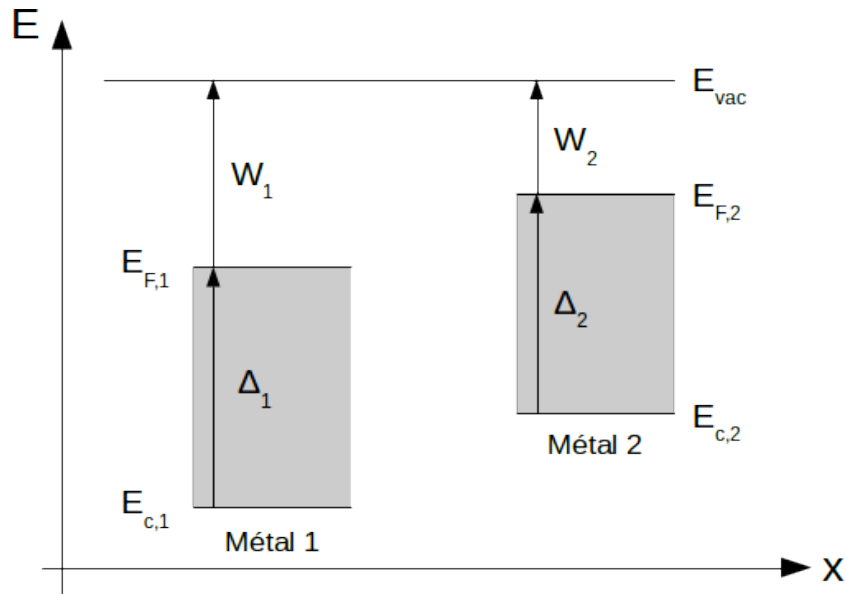


FIGURE 2.6 – Bandes des deux métaux avant la formation d'une jonction

Cette homogénéisation du niveau de Fermi ne s'accompagnera pas d'une modification significative du remplissage des bandes de chaque matériau, car cela causerait une ionisation significative de ces derniers qui serait énergétiquement défavorable. C'est donc seulement à l'interface entre les matériaux que des effets électrostatiques permettront l'alignement des niveaux de Fermi des deux matériaux.

La situation finale résultante est représentée figure 2.7.

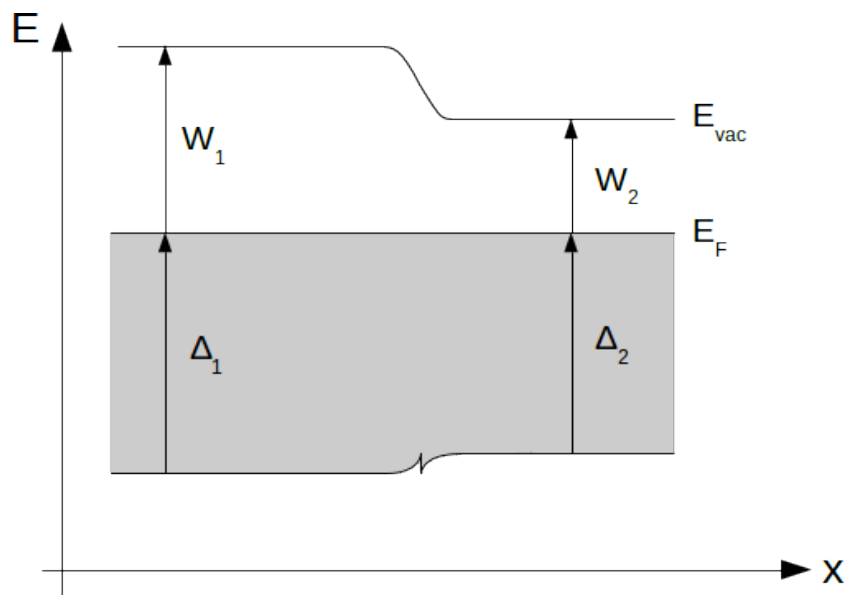


FIGURE 2.7 – Bandes des deux métaux après la formation d'une jonction



### 2.1.7 Transport balistique d'un point de vue énergétique

Lorsqu'une tension  $V$  est appliquée aux bornes d'une jonction, cela a deux effets :

- Le potentiel électrostatique des électrons au sein de la jonction est modifié.
- Sous l'influence de ce potentiel modifié, des électrons se mettent en mouvement de la région de plus forte énergie à celle de plus faible énergie.

Du fait de la très faible symétrie du problème, il est difficile de calculer la forme exacte du potentiel électrostatique. On peut cependant s'épargner ce calcul en remarquant que les sections de la pointe et de l'échantillon (plusieurs centaines de  $\mu m^2$ ) sont bien plus grandes que celle du contact (quelques  $nm^2$ ). On s'attend donc à ce que la région de contact ait une résistance électrique bien plus grande que celle du reste de la jonction, ce qui signifie que l'intégralité de la chute du potentiel électrostatique se produira dans cette région.

Par conséquent, il est possible d'adopter pour décrire ce système un modèle simplifié dans lequel hors d'une région de contact de très faible dimensions, la pointe et l'échantillon demeurent dans un état similaire à celui de l'équilibre thermodynamique, à ceci près que les matériaux ont maintenant des potentiels chimiques distincts séparés d'une énergie  $eV$ . La figure 2.8 illustre ce modèle.

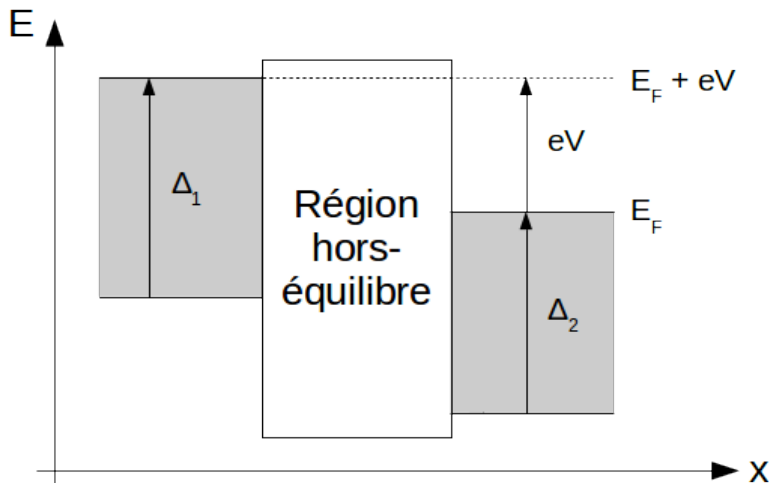


FIGURE 2.8 – Modèle de quasi-équilibre pour le coeur de la pointe et de l'échantillon. La région de contact, au centre, n'est pas décrite par ce modèle.

Avec ceci en tête, nous pouvons maintenant considérer ce qui se passe au sein de la région de contact en régime balistique, donc en l'absence de collision. Au sein de cette dernière, des électrons d'énergie  $E_F$  à  $E_F + eV$  peuvent passer librement de la région de forte énergie, que nous appellerons "métal 1", à la région de faible énergie, que nous appellerons "métal 2". Ils le feront si leur vecteur d'onde est géométriquement compatible avec ce transfert, ce qui implique notamment que sa projection sur l'axe  $x$  soit de signe adéquat ( $k_x > 0$ ). De façon équivalente, on peut aussi dire que des trous d'énergie  $E_F$  à  $E_F + eV$  peuvent passer librement du métal 2 au métal 1 pour peu que leur projection sur l'axe  $x$  soit de signe opposé ( $k_x < 0$ ).

Avec cette description qualitative, on comprend d'ors et déjà que la distribution en énergie des électrons qui sera observée dans l'état stationnaire ne sera pas du tout isotrope en vecteur d'onde : au point de contact, il y aura ainsi un excès d'électrons d'électrons

d'énergie  $E_F$  à  $E_F + eV$  dans la direction d'espace réciproque  $k_x > 0$  par rapport à la distribution au coeur du métal 2, et un excès de trous d'énergie  $E_F$  à  $E_F + eV$  dans la direction d'espace réciproque  $k_x < 0$  par rapport à la distribution au coeur du métal 1. Cette distribution est représentée schématiquement figure 2.9, dans le cas extrême où on considère le centre du contact (point  $x = 0$ ).

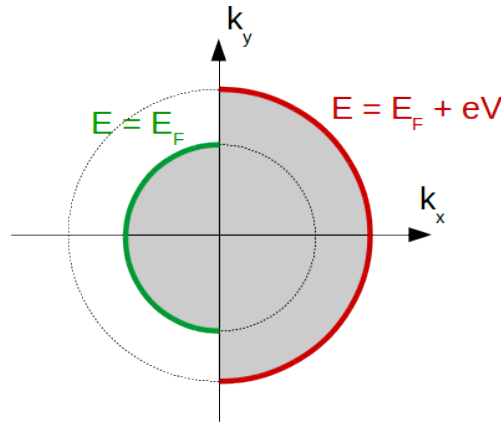


FIGURE 2.9 – Distribution schématique des électrons dans l'espace réciproque au centre du contact. La région grise représente les états électroniques occupés, les lignes pointillées représentent l'occupation électronique d'équilibre au coeur des métaux 1 et 2, et les lignes colorées représentent des surfaces d'énergie particulière.

On peut remarquer ici une spécificité du régime ballistique, qui est qu'il permet d'injecter dans un matériau (ici le métal 2) des électrons d'énergies bien contrôlées. Par exemple, si on fait varier la tension aux bornes de la jonction d'une fraction infinitésimale  $dV$ , le seul effet sur la distribution électronique hors équilibre du matériau d'arrivée sera d'ajouter des électrons dans une calotte sphérique représentant les énergies électroniques  $E_F + eV$  à  $E_F + e(V + dV)$ . Seul ces énergies électroniques contribueront à la variation de courant électrique  $dI$  résultante.

Cette résolution en énergie est directement liée au fait que puisqu'il ne se produit aucune collision inélastique, on peut supposer que l'énergie des électrons ne varie pas au cours du processus d'injection, mais seulement une fois que l'électron a profondément pénétré dans le matériau d'arrivée.

Bien que nous ayons décrit ce modèle dans le cas d'un contact entre métaux, ses conclusions s'appliqueront également au cas des contacts métal-supraconducteur, moyennant une prise en compte du phénomène de réflexion d'Andreev et des modifications de la densité d'états monoélectroniques inhérentes à cet état. Ce scénario sera discuté plus en détail dans le chapitre 3.

### 2.1.8 Collisions inélastiques et régime thermique

Comme nous l'avons vu, par le biais d'un contact ponctuel balistique, il est possible d'injecter dans un matériau des électrons sur une plage d'énergie bien contrôlée par simple application d'une tension électrique. Cette injection permet ensuite d'étudier des processus dépendant de l'énergie des électrons incidents tels que des collisions inélastiques avec des bosons, ou d'éventuelles réflexions d'Andreev.

On comprendra intuitivement qu'en présence de collisions élastiques, cette situation ne sera pas modifiée de façon qualitative. En effet, avec ce type de collision, la direction du vecteur d'onde des électrons traversant le contact sera modifiée, mais pas l'énergie de ces derniers. Le seul effet de collisions élastiques sera donc de modifier l'efficacité d'injection d'électrons dans l'échantillon étudié, et un raisonnement quantitatif sur la relaxation en énergie des électrons demeurera possible.

En revanche, si le contact étudié devient si grand qu'il existe une probabilité non-négligeable que des électrons subissent des collisions inélastiques en son sein, le résultat sera catastrophique d'un point de vue spectroscopique. Les électrons seront en effet sujets à perdre ou gagner de l'énergie lors de la traversée du contact, d'une façon difficile à analyser d'un point de vue physique puisque les propriétés exactes de la région de contact sont mal connues. Et si ils finissent, au terme d'une série de collisions, par pénétrer dans l'échantillon, ils le feront avec une énergie  $E_{inj}$  différente de l'énergie  $E_{init}$  qu'ils possédaient dans la pointe initialement.

Enfin, dans le cas  $a \gg l_{in}$ , les électrons injectés dans l'échantillon perdront la totalité de leur énergie excédentaire lors de la traversée du contact, et entreront dans le matériau d'arrivée avec l'énergie d'un porteur à l'équilibre dans ce dernier ( $E_F$  dans le cas d'un métal). Il ne sera donc plus possible de mesurer le moindre phénomène dépendant de l'énergie des électrons dans le matériau d'arrivée. On parlera de régime thermique.

## Résumé et conclusion

En spectroscopie de pointe, on cherche à étudier des jonctions entre conducteurs électriques dont les propriétés de transport électrique dépendent fortement des propriétés électroniques des matériaux mis en contact, et faiblement de la nature exacte du contact formé entre les matériaux. En pratique, cette condition est vérifiée lorsque le contact électrique est de grande taille devant la longueur d'onde des électrons de conduction circulant dans le circuit, mais de petite taille devant le libre parcours moyen inélastique des électrons dans le contact. On parle alors de contact ponctuel.

La spectroscopie de pointe n'est pas une technique résolue en vecteur d'onde électronique. Elle ne peut détecter que des phénomènes électriques modifiant l'énergie des électrons de conduction, et ne voit qu'une moyenne des effets modifiant leur vecteur d'onde. De ce fait, la sélectivité intrinsèque des contacts en vecteur d'onde électronique, et sa diminution causée par la présence éventuelle de collisions élastiques, n'ont que peu d'influence sur ses résultats. Par conséquent, si la modélisation de contact ponctuels s'effectue en général en régime balistique pour des raisons de simplicité, les résultats des modèles demeurent largement valables en présence de collisions électroniques élastiques dans la région de contact.

Nous allons maintenant voir comment il est possible, expérimentalement, de construire des contacts ponctuels.

## 2.2 Fabrication de contacts

Plusieurs techniques permettent de fabriquer des contacts ponctuels. Une première technique consiste à déposer une couche d'oxyde sur l'échantillon étudié, puis une électrode métallique, et appliquer sur le tout une différence de potentiel suffisante pour détruire la couche d'oxyde localement par électromigration. Cette technique est d'une grande importance historique, puisque c'est par son biais que Yanson et al. ont mesuré pour la première

fois la fonction d'Eliashberg associée à l'interaction électron-phonon dans un métal [76].

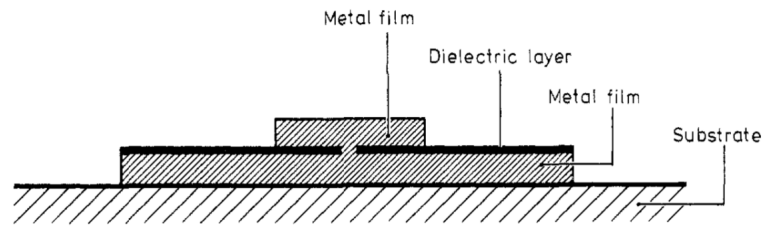


FIGURE 2.10 – Contact ponctuel basé sur une hétérostructure, d'après [32]

De par la présence d'une grande hétérostructure sous-jacente, les jonctions obtenues par cette méthode ont de bonnes propriétés thermiques et une excellente stabilité mécanique. En revanche, le procédé offre peu de contrôle sur les jonctions obtenues, tant au niveau des matériaux utilisables que des propriétés des contacts obtenus. En effet, lorsqu'on tente de créer des contacts ponctuels par électromigration, ils commenceront à se former en tous points de la couche d'oxyde en même temps, d'une façon très imprévisible.

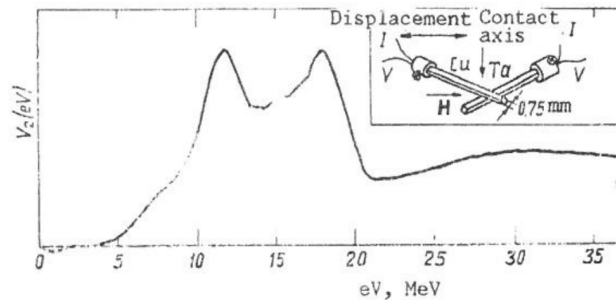


FIGURE 2.11 – Mesure de la caractéristique  $\frac{d^2V}{dI^2}$  d'une jonction Ta-Cu formée par mise en contact de deux fils [77].

Une autre technique consiste à utiliser comme électrode métallique un fil courbé ou un cylindre, et mettre ce dernier en contact avec un fil du matériau étudié. Cette méthode, utilisée par exemple dans [77] pour l'étude du tantale, demeure cependant assez peu employée pour l'étude des supraconducteurs de basse dimensionnalité. On peut peut-être l'expliquer par le fait que la technique se prête mal à l'étude de matériaux anisotropes, et à celle des nouveaux supraconducteurs dont la croissance s'effectue plutôt sous forme de monocristaux larges et plats que de fils cylindriques.

Enfin, une dernière technique, introduite par Jansen et al. dans [31], consiste à amener une pointe métallique en contact avec l'échantillon, par des méthodes analogues à celle de la microscopie à effet tunnel, avec toutefois des contraintes mécaniques nettement moins strictes puisque le but n'est pas de stabiliser une pointe dans le vide à distance nanométrique d'un échantillon.

Cette technique, connue sous le nom de "needle-anvil" dans la littérature, est un peu plus difficile à mettre en oeuvre que les précédentes du fait de la faiblesse mécanique de la pointe. De ce fait, elle ne permet pas d'explorer une gamme de taille de contacts aussi grande que celle offerte par les hétérostructures susmentionnées. Quantitativement, les contacts ponctuels réalisés par le biais d'hétérostructures peuvent atteindre des résistances de contact dépassant 500  $\Omega$ , alors que la technique needle-anvil est typiquement limitée à

des résistances de contact stables de l'ordre de  $50 \Omega$  [32]. Toutefois, cette technique offre en contrepartie un meilleur contrôle des propriétés de la jonction obtenue :

- Il est possible d'utiliser un bien plus grand nombre de matériaux, tant pour la pointe que pour l'échantillon.
- Durant une série de mesures prolongée, il est possible de changer de pointe sans affecter les propriétés de l'échantillon mesuré.
- En ajustant la pression effectuée sur la pointe, pour peu que l'extrémité de cette dernière soit suffisamment ductile, il est possible d'ajuster la taille du contact étudié.
- En déplaçant latéralement la pointe, il est possible d'étudier différentes régions d'un échantillon. On peut ainsi vérifier l'homogénéité de ce dernier, ou s'écarter d'une région de l'échantillon ayant été mécaniquement endommagée par un trop grand nombre de mesures.

C'est pour cette raison que nous avons choisi l'approche needle-anvil pour la réalisation de contacts ponctuels dans notre dispositif expérimental.

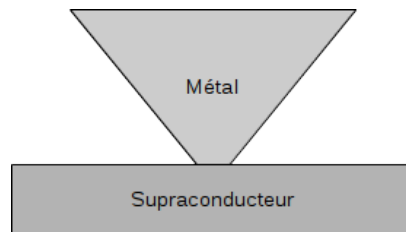


FIGURE 2.12 – Contact ponctuel obtenu par la technique “needle-anvil”

## 2.3 Approche de la pointe métallique

Dans la technique needle-anvil, les contacts métal-supraconducteur étudiés sont donc formés par la mise en contact d'une pointe métallique avec un monocristal supraconducteur. Cette mise en contact doit respecter certaines contraintes technologiques que nous allons maintenant décrire.

Tout d'abord, pour éviter d'endommager la pointe utilisée, ou de créer des contacts trop larges au regard du libre parcours moyen électronique de l'échantillon, les mouvements de la pointe doivent avoir une précision de l'ordre du micromètre. En effet, pour former une jonction de dimensions mésoscopiques, il est nécessaire que les mouvements de la pointe utilisée soient eux aussi mésoscopiques, sous peine de risquer de déformer prématurément la pointe utilisée comme sur la figure 2.13 et d'obtenir des contacts trop larges.

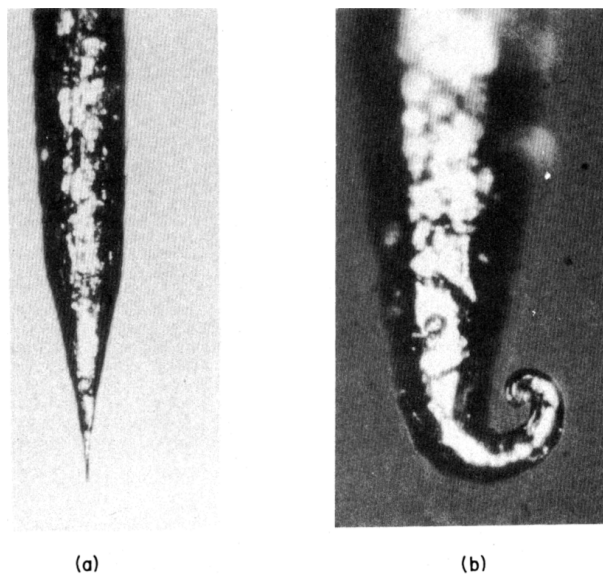


FIGURE 2.13 – Pointe métallique avant (a) et après (b) une expérience de spectroscopie de pointe, d'après [5]. La déformation s'accompagne d'une forte distorsion du signal mesuré.

Bien que le déplacement de la pointe doive être précis, il doit aussi être possible de déplacer cette dernière sur de longues distances. Sur notre dispositif, il est ainsi difficile de positionner l'échantillon étudié à moins de 1 *mm* de la pointe.

Le dispositif utilisé doit aussi être compatible avec les températures cryogéniques où la supraconductivité est présente. Ici, nous travaillons dans un bain d'hélium 4 pouvant être refroidi jusqu'à 1.5 *K* par pompage.

Enfin, les échantillons supraconducteurs étant sensibles aux champs magnétiques, le dispositif de positionnement doit générer un champ magnétique net négligeable. Et il doit être compatible avec les champs que nous sommes susceptibles d'appliquer volontairement, allant jusqu'à 2 T. Ceci exclut toute motorisation utilisant des phénomènes magnétiques.

Les premiers contacts ponctuels de type needle-anvil furent réalisés au moyen de dispositifs dits à vis différentielles, manipulés manuellement par l'opérateur. La figure 2.14 illustre ce type de dispositif, où l'utilisation de deux vis de pas légèrement différents permettait l'obtention de mouvements de faible amplitude, ici 20  $\mu\text{m}$  par tour de la vis supérieure.

Les progrès réalisés depuis par l'industrie de la micromécanique permettent aujourd'hui d'utiliser des moteurs piézoélectriques à la fois plus simples d'utilisation, plus compacts,

plus performants, et plus robustes sur le plan mécanique.

C'est cette approche qui a été retenue dans le dispositif construit au cours du présent doctorat. Nous y utilisons des moteurs piézoélectriques inertiels pas à pas, dits "stick-slip", qui satisfont à l'ensemble de ces critères. Lors d'une approche de pointe, le programme informatique contrôlant le dispositif expérimental, lui aussi réalisé au cours de ce doctorat, commande le déplacement de la pointe vers l'échantillon, en surveillant à chaque pas de moteurs les propriétés électriques de la jonction. Lorsqu'un contact électrique est détecté, le programme arrête l'approche, et le dispositif est prêt à mesurer.

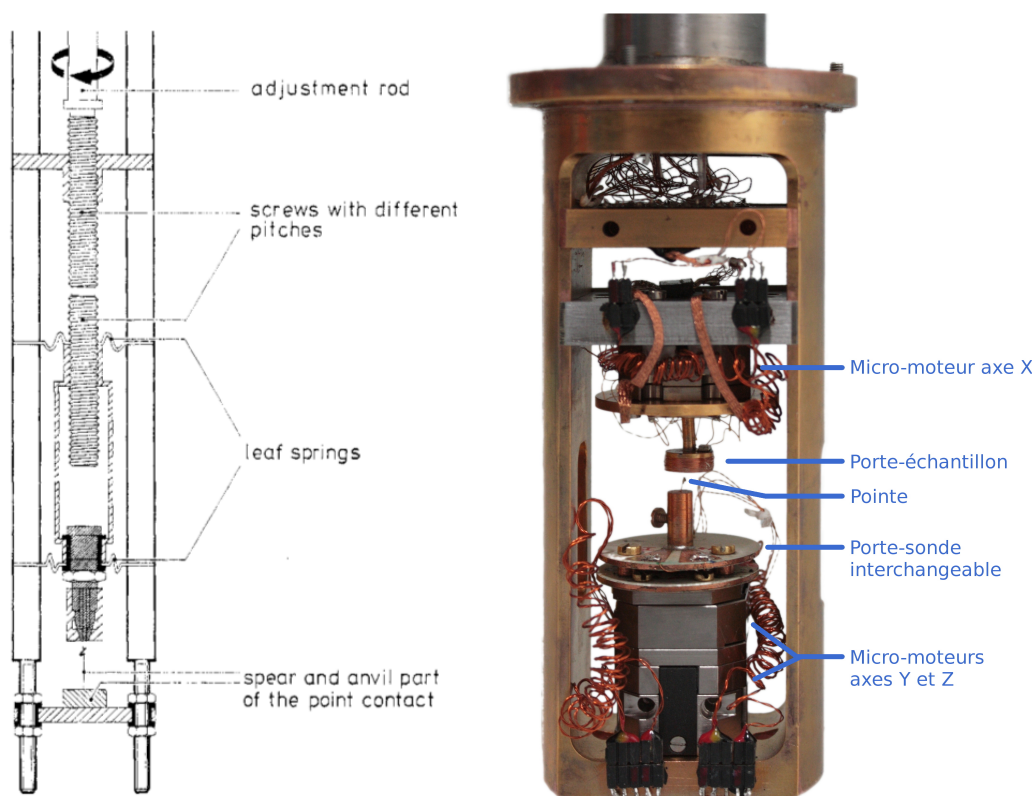


FIGURE 2.14 – Dispositif à vis historiquement utilisé pour la technique needle-anvil, d'après [32], et dispositif construit et utilisé dans le cadre du présent doctorat

## 2.4 Estimation de la géométrie de jonction

### Introduction

Comme il a été discuté précédemment, en spectroscopie de pointe, la taille des contacts utilisés est un paramètre critique. Les contacts doivent en effet être de dimensions faibles devant le libre parcours moyen inélastique du matériau utilisé, sous peine de ne pas pouvoir mesurer de caractéristiques spectroscopiques véritables. Cependant, la taille du contact utilisé n'est pas directement mesurable expérimentalement.

Pour s'affranchir de ce problème, il est nécessaire d'avoir recours à un modèle reliant la taille du contact étudié à une propriété physique plus accessible expérimentalement, telle que sa résistance électrique moyenne dans l'état normal  $R_N$ .

Deux modèles peuvent être utilisés dans cette optique, se basant tous les deux sur un modèle de contact circulaire et infiniment fin de rayon  $a$  (cf figure 2.2). L'un de ces modèles, fourni par Maxwell [45], décrit la résistance moyenne d'un tel contact dans le régime thermique, alors que l'autre, fourni par Sharvin [64], décrit la résistance moyenne du contact dans le régime balistique. Entre ces deux régimes, il est possible d'utiliser une formule d'interpolation fournie par Wexler [74], qui bascule continûment des prédictions d'un modèle à celles de l'autre conformément aux attentes théoriques et observations expérimentales.

### 2.4.1 Cas d'un contact diffusif

Le modèle de Maxwell se base sur la résolution classique de l'équation de Poisson pour le potentiel électrostatique, en supposant l'application d'une tension  $V$  aux bornes de la jonction, le fait que la résistance de jonction soit totalement dominée par celle du contact, et une absence de charges localisées dans le matériau. On a alors  $\Delta\phi(\vec{r}) = 0$ .

En résolvant cette équation en coordonnées sphériques oblongues, adaptées à la symétrie du problème, on obtient le résultat  $\phi(\vec{r}) = \pm\frac{1}{2}eV[1 - \frac{2}{\pi}\tan^{-1}(\frac{1}{\xi})]$ , où le résultat est positif d'un côté de la jonction et négatif de l'autre. La coordonnée sphérique oblongue  $\xi$  utilisée peut être définie à partir du rayon  $r$  d'un système de coordonnées sphériques localisé autour d'un point d'abscisse  $z$  sur l'axe de symétrie de la jonction, via l'équation  $\frac{r^2}{a^2} = (1 + \xi^2)(1 - \frac{z^2}{\xi^2 a^2})$ , où  $a$  est le rayon du contact [32].

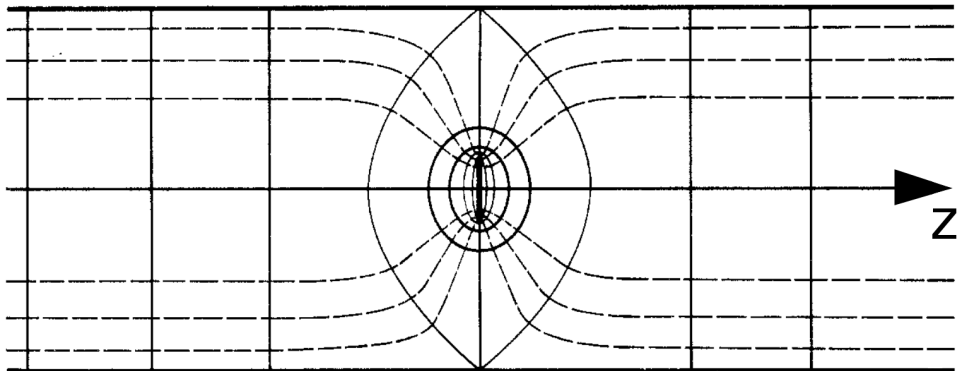


FIGURE 2.15 – Prédications de Maxwell pour un contact circulaire dans la limite thermique, d'après [32]. Les lignes pointillées représentent les lignes du champ électrique, et les courbes en trait plein ses surfaces équipotentielles

Pour déterminer la résistance du contact dans cette limite, il suffit ensuite de se placer sur une surface équipotentielle de  $\phi$  et de diviser la tension  $V$  appliquée aux bornes de la jonction par le courant  $I$  traversant cette dernière. On doit, pour calculer  $I$ , utiliser la loi d'Ohm, qui n'est valable que lorsque les électrons sont en mouvement diffusif. Ceci explique pourquoi le modèle de Maxwell cesse d'être valable lorsqu'un contact ponctuel entre dans le régime balistique. En utilisant dans ce but l'équipotentielle définie par  $\vec{r} = \vec{0}$  et  $\phi(\vec{r}) = 0$ , qui n'est autre que le contact lui-même, il vient

$$I = \int \vec{j} \cdot d\vec{S} = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^a r dr \frac{1}{\rho e} \left( \frac{\partial\phi}{\partial z} \right)_{z=0}$$

Dans cette dernière expression,  $\rho$  est la résistivité de la région de contact (que l'on supposera, pour des raisons de simplicité, être égale à celle du matériau le plus résistif des



deux mis en contact), et  $e$  n'est autre que la charge élémentaire.

En calculant le courant au moyen de la relation donnée précédemment entre  $\xi$  et  $z$  pour le calcul de  $(\frac{\partial\phi}{\partial z})_{z=0}$ , le modèle de Maxwell prédit finalement, pour un contact de rayon  $a$ , une résistance de contact

$$R_M = \frac{\rho}{2a}$$

On a donc, dans le modèle de Maxwell, une relation de proportionnalité inverse très simple entre résistance d'un contact ohmique et rayon  $a$  de ce dernier.

Ainsi, pour un contact  $\text{or-Ba}(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$ , dont la résistance dans l'état normal est de l'ordre de  $10 \Omega$ , et où la résistivité du contact est dominée par celle du pnicture ( $10^{-6} \Omega.m$  [52]) le modèle de Maxwell prédira un rayon de contact de  $50 \text{ nm}$ .

## 2.4.2 Cas d'un contact balistique

Comme mentionné précédemment, le modèle de Maxwell ne peut pas être appliqué à des contacts ponctuels balistiques. Il fait en effet la supposition que la loi d'Ohm s'applique au coeur du contact, ce qui n'est plus vrai dans la limite où les électrons ne subissent pas de collision dans cette région.

Dans cette limite, on peut en lieu et place appliquer l'approche de Sharvin dans [64]. Cette approche consiste à considérer, comme précédemment, que la résistance de la jonction étudiée est entièrement dominée par la région de jonction, et à ajouter à cette hypothèse celle que les bandes des solides étudiés sont paraboliques. Dans ce cas, un électron traversant le contact gagne une énergie cinétique  $\Delta E = eV$ . En supposant que le matériau d'arrivée possède des bandes paraboliques, ce gain d'énergie correspond à un gain de vitesse  $\Delta v = \frac{eV}{p_F}$  avec  $p_F$  le vecteur d'onde de Fermi du matériau d'arrivée des porteurs.

Ce gain de vitesse  $\Delta v$  correspond à la création d'une densité de courant dans la jonction, orientée du matériau de potentiel électrique le plus bas à celui de potentiel électrique le plus élevé, dont la norme est  $\|\vec{j}\| = n_0 e \Delta v$  où  $n_0$  est la densité d'électrons semiclassiques dans le matériau d'arrivée que l'on peut mesurer par effet Hall.

L'intégration de cette densité de courant sur l'ensemble de la surface  $S = \pi a^2$  du contact, et sur l'ensemble des angles d'incidence possibles pour les électrons de conduction, donne le courant final traversant le contact balistique [32].

$$I = \frac{3}{4} \pi a^2 n_0 e \Delta v = \frac{3}{4} \pi a^2 n_0 e \frac{eV}{p_F} = \frac{3\pi a^2 n_0 e^2 V}{4p_F}$$

En se rappelant que dans le modèle de Drude, la résistivité du matériau d'arrivée est donnée par  $\rho = \frac{p_F}{n_0 e^2 l_D}$ , on parvient finalement à une expression simplifiée de la résistance de contact prévue par le modèle de Sharvin,

$$R_S = \frac{V}{I} = \frac{4\rho l_D}{3\pi a^2}$$

Il est intéressant de comparer ce résultat au précédent. Tout d'abord, dans le modèle de Sharvin, la résistance de contact n'est plus proportionnelle à  $\rho$  mais au produit  $\rho l$ , indépendant du libre parcours moyen des matériaux étudiés. Cet effet est caractéristique du régime balistique, où le libre parcours moyen n'est plus un paramètre pertinent pour l'étude du transport électrique.

De plus, la dépendance de la résistance de contact  $R_N$  en fonction du rayon de contact  $a$  est beaucoup plus forte dans le modèle de Sharvin que dans le modèle de Maxwell, puisqu'on a une loi en  $R_N \propto a^{-2}$  au lieu de  $R_N \propto a^{-1}$ . Ceci est un bon moyen empirique de détecter la transition entre les deux régimes au cours d'une expérience.

Enfin, dans le modèle de Maxwell, on utilise une résistivité  $\rho$  représentative de la région de contact, typiquement celle du matériau le plus résistif, alors que dans le modèle de Sharvin, la résistivité considérée est celle du matériau où les électrons arrivent à l'issue de leur transport balistique.

Pour un contact or- $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$  ayant une résistance de  $10 \Omega$  comme précédemment, en utilisant le libre parcours moyen calculé précédemment de  $2 \text{ nm}$ , le modèle de Sharvin prédira quand à lui un rayon de contact d'approximativement  $10 \text{ nm}$ .

### 2.4.3 Interpolation de la résistance de contact

Pour avoir un ordre de grandeur de la taille d'un contact ponctuel, afin de déterminer si ce dernier est dans le régime balistique ou non, il est possible de mesurer la résistance du contact étudié, puis d'utiliser les modèles de Maxwell et Sharvin successivement. On obtiendra alors deux prédictions du rayon de contact  $a$ , et on sera assuré d'être en régime balistique si ces deux prédictions sont inférieures aux libres parcours moyen  $l$  des matériaux mis en contact. A l'inverse, le contact décrit précédemment n'est probablement pas balistique, puisque les deux prédictions donnent  $a \gg l$ .

Cependant, ce raisonnement n'est valable qu'à proximité de la région de transition entre régime balistique et régime diffusif,  $a \approx l$ , où les prédictions des deux modèles demeurent relativement raisonnables. Lorsque l'on considère un contact dont la physique est parfaitement balistique ( $a \ll l$ ) ou diffusive ( $a \gg l$ ), les prédictions du modèle inadéquat deviendront complètement incohérentes, et ne pourront donc plus être utilisées même en tant que borne supérieure de  $a$ .

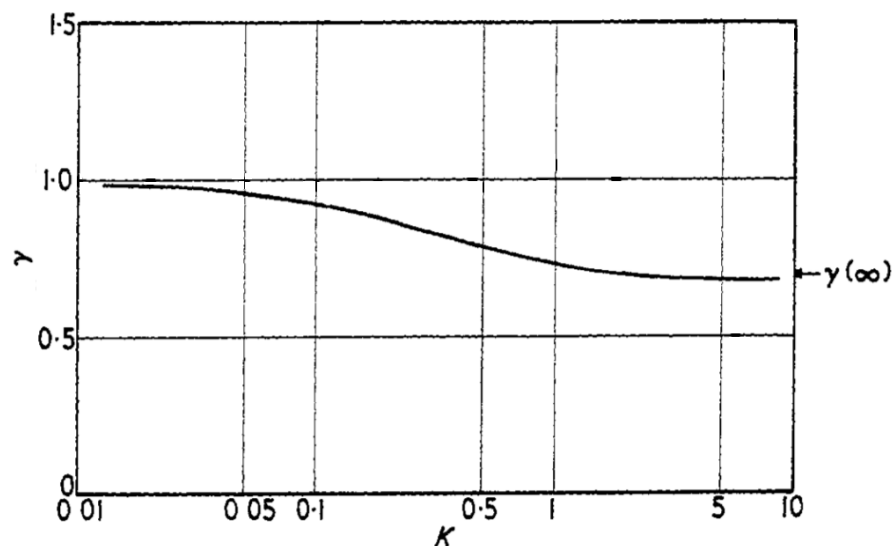


FIGURE 2.16 – Loi  $\gamma(K)$  prédite par Wexler [74] pour un contact circulaire

Pour traiter de façon complète la transition entre régime balistique et régime thermique, il est donc nécessaire d'utiliser un formalisme plus général, pouvant couvrir l'ensemble des

tailles de contacts possibles en régime semi-classique. Ce traitement a été effectué par Wexler dans [74], en utilisant un formalisme basé sur l'équation de Boltzmann reliant la distribution locale des vecteurs d'ondes électroniques  $f(\vec{r}, \vec{k})$  au potentiel électrostatique  $\phi(\vec{r})$ . Il est important de noter que ce formalisme suppose l'existence d'une résistivité homogène au sein de la jonction étudiée, et n'est donc en toute rigueur valable que si les résistivités  $\rho$  utilisées par les modèles de Maxwell et de Sharvin sont égales.

En faisant la supposition que les collisions élastiques jouent un rôle prédominant dans le transport électrique à travers le contact, et en résolvant numériquement cette équation intégral-différentielle, le calcul produit une valeur de la résistance de contact  $R_N$  consistant en une combinaison linéaire des résultats de Sharvin et de Maxwell, via un terme  $\gamma(K)$  dépendant faiblement (voir figure 2.16) du nombre de Knudsen  $K = l/a$  du contact étudié.

$$R_N = \frac{\rho\gamma(K)}{2a} + \frac{4\rho l}{3\pi a^2} = \rho \left( \frac{\gamma(K)}{2a} + \frac{4K}{3\pi a} \right)$$

Les prédictions de ce modèle sont conformes aux attentes des modèles de Maxwell et de Sharvin à faible et fort  $a$ , puisque le premier terme "maxwellien" de  $R_N$  dépend assez peu de  $K$  alors que le second terme "sharvinien" est proportionnel à  $K$ . On voit donc que le premier terme dominera à faible  $K$ , et le second à fort  $K$ . Dans le régime intermédiaire, ce modèle fournit aussi une estimation de la loi  $R_N(a)$ . Il est donc possible, si nécessaire, de prédire précisément le lien entre taille d'un contact ponctuel  $a$  et résistance de contact  $R_N$ , et ainsi de toujours savoir avec certitude si un contact de résistance de contact donnée est bien dans le régime balistique.

## 2.5 Mesures effectuées

### Introduction

Comme il a été discuté précédemment, la spectroscopie de pointe se base sur l'étude du transport électrique dans un contact ponctuel. La mesure la plus simple qui puisse être effectuée pour caractériser ce transport est celle de la caractéristique courant-tension de la jonction pointe-échantillon, c'est à dire la relation entre la tension  $V$  aux bornes de cette jonction, et le courant  $I$  qui y circule. On parle aussi parfois de courbe  $I(V)$  ou  $V(I)$ , pour spécifier la manière dont la caractéristique courant-tension est mesurée, soit en faisant circuler un courant à travers la jonction et mesurant la tension à ses bornes, soit en appliquant une tension à ses bornes et mesurant le courant qui la traverse.

D'un point de vue théorique, la caractéristique courant-tension d'une jonction contient toute l'information qu'il est possible d'extraire de mesures électriques sur cette jonction. Cependant, en pratique, nous verrons que c'est aussi une mesure dont il est très difficile d'interpréter les résultats bruts sur un système non-trivial, afin par exemple de valider le bon déroulement d'une expérience en cours de déroulement. Nous verrons aussi que les limitations de tout dispositif expérimental réel rendent la mesure de cette seule caractéristique généralement insuffisante.

#### 2.5.1 Caractéristique courant-tension

Considérons le cas d'une jonction balistique à laquelle on applique une tension  $V$ . Comme il a été discuté dans la partie 2.1.7, lorsque l'on effectue cette opération, l'es-

sentiel de la chute de potentiel électrostatique s'effectue dans la région de contact, avec pour résultat que des électrons en provenance de la pointe métallique peuvent pénétrer dans l'échantillon avec un excédent d'énergie de 0 à  $-eV$  par rapport au niveau de Fermi de ce dernier, sans perdre d'énergie lors de la traversée du contact.

Pour décrire qualitativement l'information fournie par la caractéristique courant-tension d'une jonction, nous allons d'abord considérer le cas où il ne se produit ni collision inélastiques ni réflexion Andreev dans les matériaux en contact, et où le transport électrique est donc entièrement déterminé par des phénomènes se produisant autour de la région de contact.

Dans cette situation, le transport électrique balistique au travers du contact peut être décrit par un formalisme analogue à celui du transport balistique à travers une jonction tunnel métal-isolant-métal [35]. On considérera plus exactement la limite dudit formalisme lorsque l'ampleur et l'épaisseur de la barrière tunnel deviennent très faibles, les effets d'interface sont négligés, et les niveaux de Fermi des deux matériaux en contact s'alignent en absence de tension extérieure.

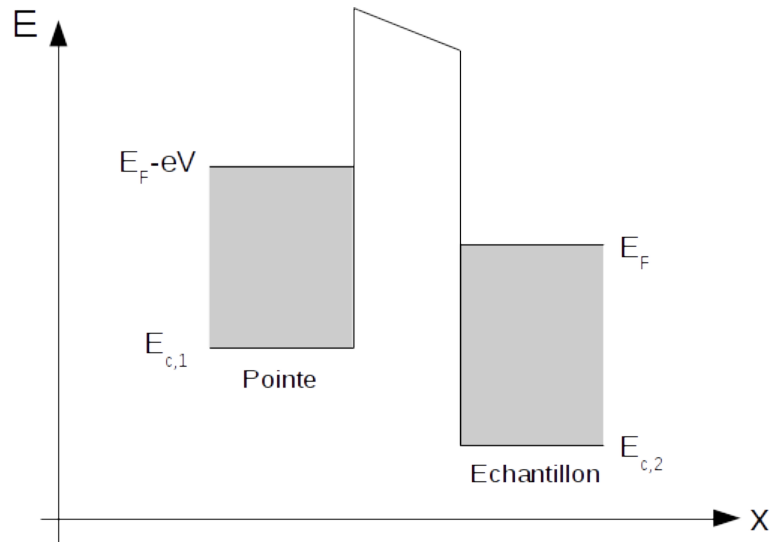


FIGURE 2.17 – Représentation schématique d'une jonction tunnel métal-isolant-métal

Les probabilités qu'un état d'énergie  $E$  soit occupé dans la pointe et dans l'échantillon sont alors données par le système

$$\begin{cases} f_P(E, V) = \left( 1 + \exp\left(\frac{E - (E_F - eV)}{k_B T}\right) \right)^{-1} \\ f_E(E) = \left( 1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{k_B T}\right) \right)^{-1} \end{cases}$$

En présence d'une faible barrière tunnel (et, à fortiori, d'une barrière tunnel négligeable), il existe une probabilité non négligeable pour que des électrons atteignant l'interface pointe-isolant ou isolant-échantillon traversent la barrière de potentiel les séparant. On notera cette probabilité  $D_{PE}(E)$  pour le passage d'un électron de la pointe à l'échantillon, et  $D_{EP}(E)$  pour le passage d'un électron de l'échantillon à la pointe.

Ces probabilités dépendent, bien entendu, des propriétés de la barrière tunnel considérée (hauteur, largeur), mais aussi du quotient des vitesses de Fermi de la pointe et de

l'échantillon. En effet, si ces dernières sont différentes, il en résultera une réflexion partielle des électrons à l'interface pointe-échantillon, par un mécanisme analogue à celui de la réflexion optique à une interface entre diélectriques. Dans le cas où la barrière devient négligeable et les vitesses de Fermi des deux matériaux sont identiques, on a bien entendu  $D_{PE}(E) = D_{EP}(E) = 1$  à toute énergie.

Dans le cas général, les probabilités de passage des électrons dépendent de l'énergie  $E$  de l'électron incident, car elles dépendent de la projection de son vecteur d'onde sur la normale à l'interface  $k_x$ . Cette dépendance est cependant dictée par l'atténuation des fonctions d'onde électroniques au sein de la barrière tunnel, elle-même dépendante de la hauteur et de la largeur. Dans le cas qui nous occupe ici, d'une barrière d'amplitude négligeable, nous négligerons donc cette dépendance, et nous référerons simplement à  $D_{PE}$  et  $D_{EP}$ , quantités supposées indépendantes de  $E$ .

La densité de courant générée par les électrons circulant de la pointe à l'échantillon est alors donnée, par unité de surface du contact, via

$$j_{PE} = -e \int \frac{d^3 \vec{k}_P}{(2\pi)^3} 2v_{P,x} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}$$

Dans cette expression, l'intégrale s'effectue sur l'ensemble des vecteurs d'ondes dans la région de pointe  $\vec{k}_P$  correspondant à des électrons se dirigeant de la pointe vers l'échantillon. Autrement dit, ceux dont la composante sur la direction  $x$  normale à la jonction  $k_{P,x}$  se dirige bien de la pointe à l'échantillon. Le facteur 2 provient de l'existence de deux états de spin possibles par état de vecteur d'onde électronique. Et enfin,  $v_{P,x} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E(\vec{k}_P)}{\partial k_{P,x}}$  correspond à la projection sur  $x$  des vitesses électroniques à l'état considéré.

En passant par le système de coordonnées sphériques  $(k, \theta, \phi)$  tel que  $k$  soit la norme du vecteur d'onde considéré dans l'espace réciproque et  $\theta$  l'angle de ce dernier par rapport à la normale à la surface, on peut réécrire cette expression sous la forme suivante :

$$\begin{cases} j_{PE} = -e \int_0^\infty \frac{N_P(E_P) dE_P}{2} 2v_{F,P,eq} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE} \\ j_{PE} = -e \int_0^\infty dE_P N_P(E_P) v_{F,P,eq} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE} \end{cases}$$

Dans cette expression,  $N_P$  est la densité d'états de la pointe, qui apparaît divisée par deux puisqu'on ne considère que les états de  $k_{P,x}$  positifs. Et  $v_{F,P,eq}$  est la vitesse de Fermi de la pointe, modifiée par un préfacteur prenant en compte la projection sur  $x$  des vitesses électroniques dans l'intégration.

Il existe aussi, d'un point de vue théorique, une densité de courant générée par les électrons circulant de l'échantillon à la pointe :

$$j_{EP} = e \int_0^\infty dE_E N_E(E_E) v_{F,E,eq} f_E(E_E, V) [1 - f_P(E_E)] D_{EP}$$

Cependant, en régime d'injection électronique et à des tensions typiques  $|eV| \gg k_B T$ , ce terme sera négligeable par rapport au précédent, car pour toute énergie  $E_E$  où l'occupation électronique de l'échantillon  $f_E(E_E)$  est non négligeable, l'occupation de la pointe  $f_P(E_E)$  sera de l'ordre de 1.

La densité de courant totale traversant le contact est alors

$$j = j_{PE} + j_{EP} = j_{PE} = -e \int_0^\infty dE_P N_P(E_P) v_{F,P,eq} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}$$

Et en intégrant cette dernière sur la surface du contact S, on trouve le courant total

$$I = jS = -eS \int_0^\infty dE_P N_P(E_P) v_{F,P,eq} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}$$

Notons que dans le cas particulier où la jonction est à température nulle,  $f_E$  et  $f_P$  deviennent des fonctions échelon, et l'on obtient pour le courant la forme simplifiée suivante :

$$I(0\ K) = -eS \int_{E_F}^{E_F - eV} dE_P N_P(E_P) v_{F,P,eq} D_{PE}$$

## 2.5.2 Signaux physiquement pertinents

### Importance de $\frac{dI}{dV}$

On l'a vu, la caractéristique courant-tension d'une jonction est une intégrale des contributions d'électrons en provenance de la pointe ayant différentes énergies  $E_P$ .

Du fait du remplissage des états électroniques de l'échantillon, il n'y aura de contribution non négligeable que pour les électrons d'énergie  $E_F$  à  $E_F - eV$ . En revanche, on comprendra vite que ce signal intégral n'est pas facile à comprendre et analyser, et qu'il serait fortement souhaitable d'en déconvoluer les contributions au courant électrique issues d'électrons possédant une énergie  $E_P$  bien précise.

Pour ce faire, une méthode simple est de dériver la caractéristique  $I(V)$  obtenue par la tension appliquée  $V$ , donc de calculer ou mesurer  $\frac{dI}{dV}(V)$ , comme nous allons le montrer maintenant. En effet, on a

$$\frac{dI}{dV}(V) = -eS \frac{d}{dV} \int \frac{d^3 \vec{k}_P}{(2\pi)^3} 2v_{P,x} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}$$

Les fonctions mathématiques situées dans l'intégrale sont intégrables, dérivables, et de dérivées intégrables, donc il est possible de permuter l'opérateur différentiel  $\frac{d}{dV}$  et le signe intégral. On obtient alors

$$\frac{dI}{dV}(V) = -eS \int \frac{d^3 \vec{k}_P}{(2\pi)^3} \frac{d}{dV} [2v_{P,x} f_P(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}]$$

Parmi les termes de l'intégrale, le seul présentant une dépendance en  $V$  est  $f_P(E_P, V)$ . Par conséquent,

$$\frac{dI}{dV}(V) = -eS \int \frac{d^3 \vec{k}_P}{(2\pi)^3} 2v_{P,x} \frac{df_P}{dV}(E_P, V) [1 - f_E(E_P)] D_{PE}$$

Intéressons nous maintenant un instant à la dérivée de la distribution électronique  $f_P$  présente dans l'expression de  $\frac{dI}{dV}$  :

$$\begin{aligned}
\frac{df_P}{dV}(E, V) &= \frac{d}{dV} \left( 1 + \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \right)^{-1} \\
&= (-1) \cdot \frac{d}{dV} \left[ 1 + \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \right] \left( 1 + \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \right)^{-2} \\
&= -\frac{d}{dV} \left[ \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \right] f_P(E, V)^2 \\
&= -\frac{d}{dV} \left[ \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right] \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) f_P(E, V)^2 \\
\frac{df_P}{dV}(E, V) &= \frac{e}{k_B T} \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \left( 1 + \exp \left( \frac{E - (E_F - eV)}{k_B T} \right) \right)^{-2}
\end{aligned}$$

Quand  $E \rightarrow -\infty$ , cete fonction tendra à s'annuler, car la première fonction exponentielle tendra vers 0. Quand  $E \rightarrow +\infty$ , elle tendra aussi à s'annuler, car la seconde fonction exponentielle tendra vers  $+\infty$  et donc son carré inverse tendra vers 0. Par une étude de fonction plus détaillée, il est possible de montrer que la fonction admet un maximum en  $E = E_F - eV$ , et décroît vers 0 autour de ce point avec une largeur à mi-hauteur d'environ  $3.5k_B T$ .

Par conséquent,  $\frac{dI}{dV}(V)$  contiendra la contribution à  $I(V)$  fournie par des électrons d'énergie  $E - (E_F - eV) \pm 3.5k_B T$ , avec un poids maximal donné aux électrons d'énergie  $E - (E_F - eV)$ . Lorsque les tensions  $V$  considérées sont largement espacées devant  $\frac{k_B T}{e}$  (soit  $8.6 \cdot 10^{-5} V$  à une température de  $1 K$ ), il est donc raisonnable de dire que  $\frac{dI}{dV}(V)$  représente la contribution d'électrons ayant une énergie  $E_P$  bien précise au transport électrique.

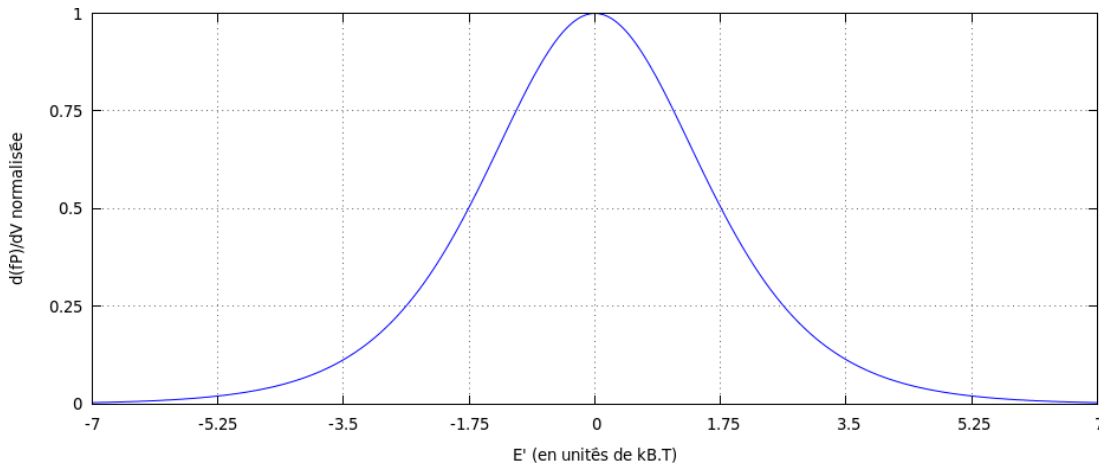


FIGURE 2.18 – Valeurs de  $\frac{df_P}{dV}$  en fonctions de  $E' = E - (E_F - eV)$

## Jonctions métal-supraconducteur et modèle BTK

Une approche analogue est utilisée dans le modèle de Blonder, Tinkham et Klapwijk [6], ou modèle BTK, pour décrire le comportement de contacts ponctuels entre un métal normal et un échantillon dans l'état supraconducteur. Ce modèle fournit  $G(V)$  le quotient entre la conductance différentielle  $\frac{dI}{dV}(V)$  d'une telle jonction, d'une part, et la conductance

de cette même jonction dans l'état normal  $\frac{dI_N}{dV}(V)$  d'autre part. Il sera introduit plus en détail dans le chapitre 3, mais on peut déjà en résumer les principales caractéristiques.

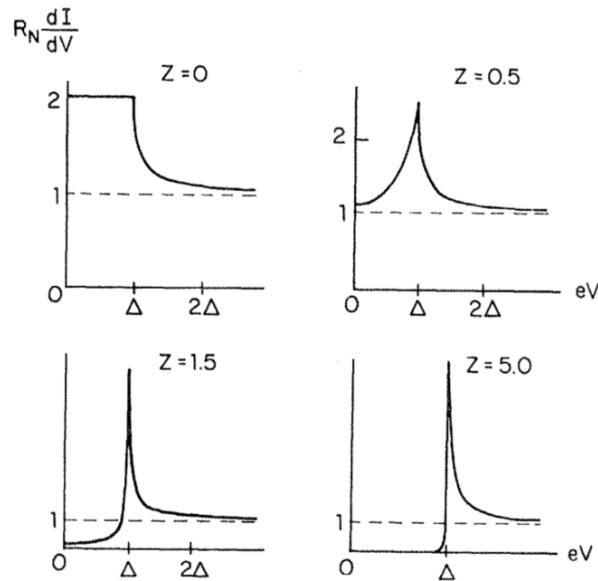


FIGURE 2.19 – Résultats du modèle BTK en termes de  $G(V)$ , pour différentes valeurs du paramètre de barrière  $Z$

Tout d'abord, le modèle BTK permet de décrire des situations de contact électrique non-idéales. Par exemple, il permet de traiter l'existence d'une différence de vitesse de Fermi entre les deux matériaux, source de réflexion électronique spéculaire, ou la présence d'une barrière de potentiel à l'interface entre les deux matériaux. Ces effets sont contenus dans un paramètre de barrière sans dimension  $Z$ , valant 0 pour un contact électrique idéal et tendant vers  $+\infty$  pour une jonction tunnel.

Lorsque l'énergie des électrons incidents se situe dans le gap supraconducteur du matériau étudié ( $|E - E_F| < \Delta$  avec  $E_F$  le niveau de Fermi de l'échantillon dans l'état normal et  $\Delta$  l'amplitude de son gap), les électrons en provenance du métal normal ne peuvent pénétrer dans le supraconducteur que par un processus de réflexion Andreev à deux électrons, car il n'existe pas d'états mono-électroniques au sein du gap supraconducteur.

Ce processus a une probabilité  $p_A$  variable de se produire pour chaque électron incident, qui dépend essentiellement de la bonne ou mauvaise conductivité du contact utilisé, et conduit à l'absorption simultanée de deux électrons par le supraconducteur. Du fait de l'absorption de deux électrons par le supraconducteur pour un électron incident, on a donc, dans cette gamme d'énergie, une conductance différentielle  $\frac{dI}{dV}(V) = 2p_A \frac{dI_N}{dV}(V)$ .

Lorsque l'énergie des électrons incidents est hors du gap supraconducteur de l'échantillon, mais proche des limites de ce dernier ( $|E - E_F| \approx \Delta$ ), la mesure est sensible à la densité d'états monoélectroniques du supraconducteur, qui est fortement perturbée par rapport à celle de l'état normal par l'ouverture du gap supraconducteur. On observe donc un  $\frac{dI}{dV}(V)$  localement beaucoup plus élevé que dans l'état normal.

Enfin, lorsque l'énergie des électrons incidents est très éloignée du gap supraconducteur de l'échantillon  $|E - E_F| \gg \Delta$ , la densité d'états à un électron dans le supraconducteur est très proche de celle dans l'état normal, et on a donc  $\frac{dI}{dV}(V) \approx \frac{dI_N}{dV}(V)$ .



### Interaction électron-boson

On peut également souhaiter mesurer, dans l'échantillon étudié, le couplage des électrons de conduction à des bosons tel que des phonons ou des magnons. Ce couplage est en effet au coeur de la supraconductivité, et bien le comprendre est donc essentiel à une meilleure compréhension théorique de la supraconductivité des matériaux étudiés. On le caractérise en général par la fonction d'Eliashberg  $\alpha^2 F(\hbar\omega)$ , qui n'est autre que la probabilité pour un électron d'interagir avec un boson d'énergie  $\hbar\omega$ .

Par le biais d'un raisonnement basé sur des équations de Boltzmann pour l'occupation locale des états électroniques près de la région de contact,  $f_{\vec{k}}(\vec{r})$ , il est possible de décrire l'effet sur le transport électrique de collisions inélastiques dans l'échantillon. Après un long calcul, on montre [32] que pour des jonctions entre métaux, l'un des métaux pouvant être un supraconducteur dans l'état normal,

$$\frac{d}{dV} \left( \frac{dV}{dI} \right) (V) = \frac{4}{3\pi} \frac{e^3 m^2 v_F}{\hbar^4} a^3 \alpha^2 F(eV)$$

Dans cette formule,  $e$  est la charge élémentaire,  $m$  la masse effective des électrons de conduction,  $v_F$  la vitesse de Fermi de l'échantillon, et  $a$  le rayon du contact étudié.

Expérimentalement, il est parfois plus commode de travailler en termes de dérivées de la tension par rapport au courant, et donc de  $\frac{dV}{dI}$  et  $\frac{d^2V}{dI^2}$ . Certaines données de la littérature sont donc exprimées en ces termes. S'il est trivial de montrer que  $\frac{dV}{dI} = \left( \frac{dI}{dV} \right)^{-1}$ , le calcul de  $\frac{d^2V}{dI^2}$  est un peu plus complexe, à cause de la nature non-linéaire de la dérivée seconde.

$$\begin{aligned} \frac{d^2V}{dI^2} &= \frac{d}{dI} \left[ \frac{dV}{dI} \right] \\ &= \frac{d}{dI} \left[ \left( \frac{dI}{dV} \right)^{-1} \right] \\ &= (-1) \cdot \frac{d}{dI} \left[ \frac{dI}{dV} \right] \left( \frac{dI}{dV} \right)^{-2} \\ &= -\frac{dV}{dI} \frac{d}{dV} \left[ \frac{dI}{dV} \right] \left( \frac{dI}{dV} \right)^{-2} \\ \frac{d^2V}{dI^2} &= -\frac{d^2I}{dV^2} \left( \frac{dI}{dV} \right)^{-3} \end{aligned}$$

On voit qu'il existe un lien direct entre  $\frac{d^2V}{dI^2}$  et  $\frac{d^2I}{dV^2}$ , pour peu que l'on connaisse la conductance différentielle  $\frac{dI}{dV}$  de la jonction étudiée. Cette dernière peut être mesurée, ou bien dans certain cas (notamment dans le cas de contacts métal-métal), elle peut être considérée comme approximativement constante sur l'intervalle de tension étudié, et égale à la résistance du contact utilisé  $R_N$ .

La figure 2.20 illustre le type de résultat qui peut être obtenu par spectroscopie de pointe sur un échantillon métallique, dans le cas d'une mesure effectuée sur un échantillon d'or. On observe un accord qualitatif entre les mesures de spectroscopie de pointe et la mesure de densité d'état de phonons que l'on peut obtenir par diffraction inélastique de neutrons, mais une différence sur le plan quantitatif au niveau de l'intensité du signal observé pour chaque mode bosonique. Cette différence s'explique par le fait que les éléments de matrice

couplant les électrons aux phonons ne sont absolument pas identiques à ceux couplant les neutrons (et les noyaux avec lesquels ils interagissent) à ces modes bosoniques.

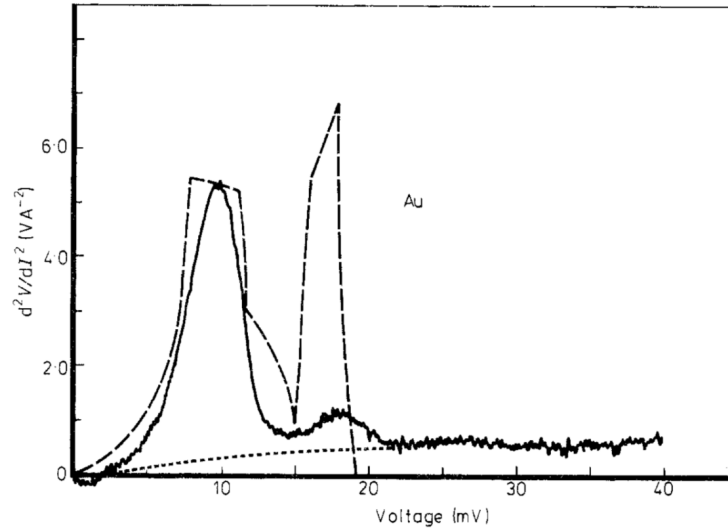


FIGURE 2.20 – Fonction d’Eliashberg  $\alpha^2 F(\omega)$  de l’or, mesurée par spectroscopie de pointe [32] (trait continu), et densité d’états de phonons  $F(\omega)$  mesurée par diffraction inélastique de neutrons [40] (pointillé large). Les pointillés resserrés représentent un fond expérimental qui s’ajoute au signal issu de la fonction d’Eliashberg.

Une autre chose que l’on peut remarquer sur cette figure est l’existence d’un fond continu se superposant au signal de spectroscopie de pointe issu de la fonction d’Eliashberg, et saturant lorsque l’on applique de fortes tensions aux bornes de la jonction. Ce fond est issu [32] de l’excitation des modes bosoniques causée par l’injection d’un grand nombre d’électrons chauds dans l’échantillon. Il peut être réduit en diminuant l’injection d’électrons dans l’échantillon, par l’utilisation de contacts ponctuels plus résistifs.

Jusqu’à présent, la discussion s’est limitée au cas d’un contact ponctuel entre deux métaux normaux, ou entre un métal et un supraconducteur dans son état normal. Il est aussi possible d’observer l’interaction électron-boson d’un supraconducteur par spectroscopie de pointe, mais cette mesure est particulièrement difficile à effectuer et nécessite de posséder une très bonne connaissance théorique préalable du matériau étudié. En effet, on devra alors discriminer, dans le signal de spectroscopie de pointe, l’effet de l’interaction électron-boson en tant que telle, et l’effet des différents canaux de conduction disponibles dans un supraconducteur. Le lecteur intéressé est invité à se référer à [51] et [12] pour une discussion plus approfondie de la physique de ce régime.

### 2.5.3 Mesure exacte de $V(I)$ par méthode à quatre fils

En spectroscopie de pointe, il est aussi important de s’assurer que l’on mesure bien les propriétés de la jonction étudiée, et non celles des autres éléments du dispositif expérimental tels que les fils de mesure. Pour ce faire, il est pertinent d’utiliser la technique de mesure dite “à quatre fils”. Dans cette méthode, on applique un courant au travers de la jonction étudiée via deux fils, et on mesure la tension à ses bornes au moyen de deux autres fils, ce qui permet d’éliminer la contribution des fils de mesure aux propriétés de transport électrique mesurées.

La figure 2.21 illustre le principe général de la méthode, dans le cas le plus simple d'une mesure de résistance. Dans le schéma représenté, on cherche à mesurer la caractéristique courant-tension de la jonction, représentée comme une résistance  $R$ , en utilisant une source de courant émettant un courant  $I$  et un voltmètre mesurant une tension  $V$ . Les appareils sont connectés à la jonction par le biais de 4 fils de mesure dont les résistances respectives  $R_A$ ,  $R_B$ ,  $R_C$  et  $R_D$  sont inconnues.

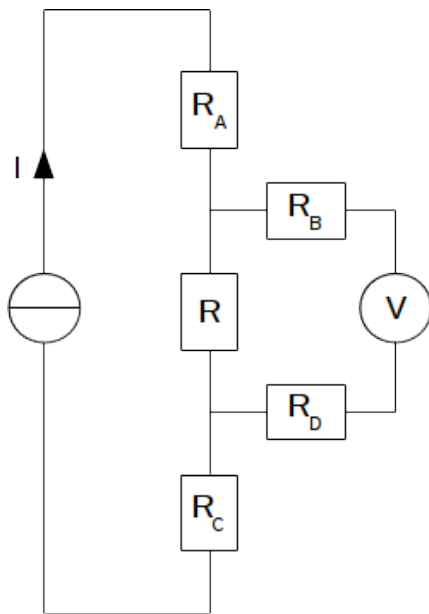


FIGURE 2.21 – Méthode 4 fils pour la mesure de résistances

L'impédance d'entrée du voltmètre utilisé (de l'ordre de  $1\text{ G}\Omega$ ) étant très grande devant celles de la jonction étudiée (de l'ordre de  $100\ \Omega$ ), on voit que la quasi-totalité du courant  $I$  généré par la source de courant passera au travers de la jonction étudiée. On aura donc aux bornes de cette dernière une tension  $V \approx RI$  indépendamment des résistances  $R_A$  et  $R_C$  des fils de courant utilisés.

Cette tension se trouve ensuite répercutée aux bornes du pont diviseur  $R_B$ -voltmètre- $R_D$  situé à droite du schéma. En appliquant le théorème du pont diviseur, la tension aux bornes du voltmètre sera alors de  $V_{mes} = \frac{R_V}{R_B + R_V + R_D} V$  avec  $R_V$  l'impédance d'entrée du voltmètre. Or, on a typiquement  $R_V \approx 10^9\ \Omega$  et  $R_B, R_D \approx 10\ \Omega$ , autrement dit  $R_V \gg R_B, R_D$ . En pratique, on aura par conséquent  $\frac{R_V}{R_B + R_V + R_D} \approx 1$ , et donc  $V_{mes} \approx V \approx RI$ .

Dans la géométrie à quatre fils, pour peu que le voltmètre utilisé soit bien dimensionné, on peut donc mesurer aisément les propriétés électriques de la jonction étudiée sans être sensible à celles du dispositif expérimental, et ainsi mesurer la caractéristique courant-tension exacte du dispositif étudié.

## 2.6 Utilisation de la détection synchrone

### 2.6.1 Motivation

En théorie, mesurer la caractéristique courant-tension  $I(V)$  de la jonction suffit à obtenir toute l'information de transport électrique que cette dernière peut nous fournir, puisqu'il

suffit ensuite de dériver numériquement la courbe obtenue pour obtenir les quantités souhaitées. Mais en pratique, dériver numériquement un signal physique réel, et donc bruité, n'est pas simple.

En effet, lors d'une mesure précise, donc effectuée en un grand nombre de points  $(I, V)$  reserrés les uns par rapport aux autres, le bruit de mesure deviendra du même ordre de grandeur que les petites variations du signal  $dI$  et  $dV$  d'un point expérimental au point suivant, qu'on cherche à utiliser pour la dérivation numérique. Le résultat de la dérivation numérique n'aura alors plus aucun sens physique. Par conséquent, il n'est possible d'obtenir une dérivée numérique de  $I(V)$  qu'avec une résolution en tension de l'ordre du bruit de mesure expérimental sur  $V$ .

De plus, les voltmètres et ampèremètres modernes travaillent avec des signaux numériques, et procèdent donc à une conversion analogique-numérique en entrée. Au cours de cette conversion, les signaux  $I$  et  $V$  sont quantifiés sur une plage de valeurs de précision limitée. La précision obtenue est relative au calibre de l'appareil de mesure, et dépend donc de la plage totale de  $I$  et de  $V$  couverte au cours de l'acquisition. Or, cette dernière peut être très grande devant les variations de  $I$  et  $V$  d'un point de mesure au point suivant.

En pratique, la quantification produira alors un signal qui varie par paliers brusques, plutôt que de façon continue. Cette situation est très défavorable au calcul d'une dérivée numérique, transformant une dérivée constante en un peigne de Dirac comme l'illustre la figure 2.22. Une nouvelle fois, pour échapper à cet effet, on devra se restreindre à des dérivées numériques de basse résolution, moyennant l'effet de plusieurs points de mesure.

Pour toutes ces raisons, il est préférable de mesurer des signaux physiques qui sont directement proportionnels aux quantités physiques recherchées, plutôt que d'obtenir ces dernières par dérivation numérique. C'est la raison pour laquelle les mesures de spectroscopie de pointe, y compris celles qui sont présentées ici, sont effectuées en utilisant un amplificateur à détection synchrone, ou "lock-in amplifier", qui est capable de fournir un tel signal. Nous allons maintenant décrire brièvement le fonctionnement d'un tel dispositif.

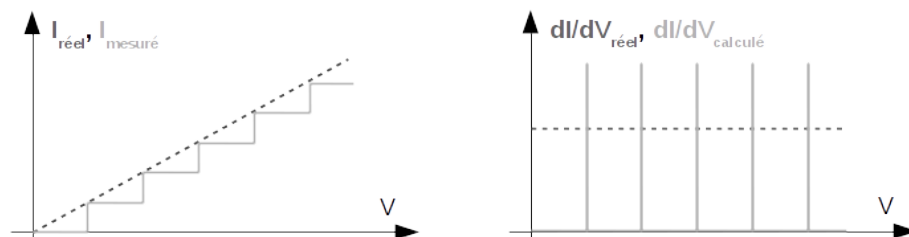


FIGURE 2.22 – Dérivation numérique d'un signal quantifié

## 2.6.2 Principe physique

Un amplificateur à détection synchrone moderne est composé d'un générateur de tensions sinusoïdales, qui sert à exciter le système étudié, et d'un dispositif capable de détecter des signaux de même fréquence que la tension fournie par le générateur, ou plus généralement de fréquence multiple de cette dernière, pour analyser la réponse du système.

En régime linéaire, le principe de la détection synchrone est le suivant :

- Soit  $V_{exc} = A_{exc} \cdot \sin(2\pi ft)$  la tension d'excitation, on peut montrer par un développement de Taylor que la réponse du système sera  $V_{rep} = \frac{dV_{rep}}{dV_{exc}} V_{exc} + O(V_{exc}^2)$ .
- Pour des petites tensions d'excitation, on a donc  $V_{rep} \approx \frac{dV_{rep}}{dV_{exc}} V_{exc}$ .

- Par conséquent,  $V_{rep} = \frac{dV_{rep}}{dV_{exc}} \cdot A_{exc} \sin(2\pi ft)$ .
- En détectant la composante de Fourier de fréquence  $f$  de la réponse du système, on mesure donc sa réponse différentielle  $\frac{dV_{rep}}{dV_{exc}}$ .

On peut s'assurer que l'on est bien dans le régime linéaire en variant légèrement l'amplitude de  $V_{exc}$  et en s'assurant que  $V_{rep}$  répond linéairement à cette variation. Dans le cas contraire, les termes non-linéaires de  $V_{rep}$  en  $(V_{exc})^n$ ,  $n > 1$  ne sont plus négligeables, et il est nécessaire de diminuer l'amplitude de  $V_{exc}$ .

La fréquence  $f$  de la tension d'excitation est un paramètre important en détection synchrone. Tout d'abord, dans le cas d'une jonction idéale purement résistive, où toutes les fréquences d'excitation seraient équivalentes du point de vue de la physique mesurée, il serait désirable de travailler à fréquence aussi élevée que possible. Cela permet en effet de s'affranchir du bruit électromagnétique basse fréquence issu de l'alimentation électrique des appareils de mesure.

Cependant, du fait de leurs dimensions réduites et de leur géométrie, les jonctions needle-anvil réelles présentent également des effets capacitifs. La jonction étudiée sera en pratique équivalente à une résistance  $R$  en parallèle avec une capacité  $C$ , cette dernière dépendant de la géométrie exacte du contact formé. Si l'on travaille à une fréquence trop élevée, ces effets capacitifs offriront une contribution au signal mesuré de plus en plus importante, au dépens du signal en résistance recherché.

Cet effet peut être détecté par l'apparition d'un déphasage entre l'excitation  $V_{exc}$  et la réponse  $V_{rep}$  du système, les capacités répondant en quadrature de phase aux excitations. Il limitera la plage de fréquences utilisable pour les mesures de spectroscopie de pointe.

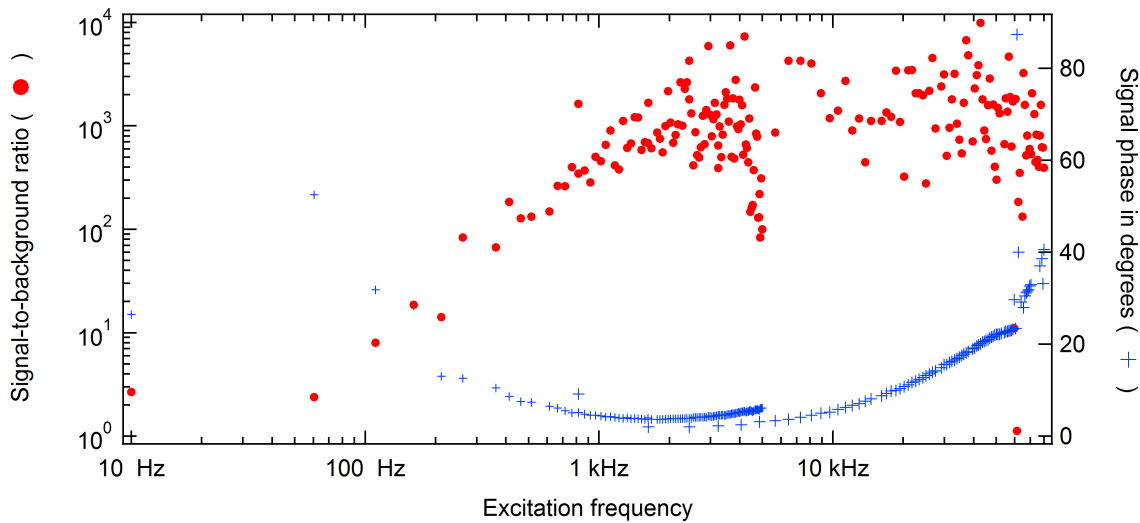


FIGURE 2.23 – Réponse en fréquence d'une jonction typique à une excitation en courant oscillante, qui serait proportionnelle à  $\frac{dV}{dI}$  en l'absence d'effets capacitifs

La figure 2.23 illustre l'effet de la fréquence sur le comportement d'une jonction typique de spectroscopie de pointe. Les ronds rouges y représentent le rapport entre l'amplitude du signal mesuré lorsqu'on excite la jonction par un courant alternatif, et le fond instrumental présent même lorsque la jonction n'est pas excitée. On souhaite que ce rapport soit aussi élevé que possible. Les croix bleues représentent, quand à elles, le déphasage entre le signal mesuré et le courant d'excitation. On constate qu'à haute fréquence, ce déphasage augmente, signe d'une contribution plus grande des effets capacitifs au signal mesuré. Pour

cette jonction, la fréquence d'excitation optimale semble donc se situer autour de  $2 \text{ kHz}$ , car c'est le meilleur compromis entre rapport signal/fond élevé et faibles effets capacitifs.

### 2.6.3 Extraction du signal

Pour isoler la portion oscillante de la réponse du signal à une fréquence donnée, l'amplificateur à détection synchrone effectue le traitement suivant :

- Élever, si besoin est, la tension d'excitation  $V_{exc}$  à la fréquence harmonique  $n \cdot f$ , via un système non-linéaire.
- Mettre la tension de référence  $V_{ref}$  résultante en phase avec  $V_{rep}$ .
- Avec un multiplieur, générer la tension  $V_{prod} \propto V_{ref} \cdot V_{rep}$ .
- Extraire la composante continue de  $V_{prod}$ , correspondant à la composante à fréquence  $n \cdot f$  de  $V_{ref}$ , via un filtre passe bas.

L'utilisation d'un filtre passe bas à la dernière étape de la mesure doit s'accompagner de certaines précautions expérimentales. En effet, si  $\frac{dV_{rep}}{dV_{exc}}$  varie plus rapidement que le temps de réponse du filtre passe-bas utilisé, sa variation sera partiellement coupée par le filtre passe-bas, causant un lissage involontaire du signal mesuré.

Il faudra donc choisir le temps de réponse du filtre en fonction de la vitesse d'acquisition désirée, sachant qu'un temps d'intégration plus élevé correspond à une meilleure sélectivité en fréquence, donc à un signal de sortie moins bruité, plus représentatif de  $\frac{dV_{rep}}{dV_{exc}}$  réel.

En pratique, pour mesurer directement une résistance différentielle  $\frac{dV}{dI}$ , l'amplificateur à détection synchrone est utilisé de la façon suivante :

- Générer un courant sinusoïdal  $I_{exc}$  à partir de  $V_{exc}$ , en utilisant un dispositif de conversion tension-courant.
- Mesurer la portion sinusoïdale de la réponse du système.
- En déduire la résistance différentielle  $\frac{dV_{rep}}{dI_{exc}}$ .

Le dispositif de mesure utilisé est résumé par la figure 2.24. La conversion de la tension émise par l'amplificateur à détection synchrone en courant est assurée par une résistance de charge  $R_{li} \approx 100 \text{ k}\Omega$ , très grande devant les résistances du reste du dispositif.

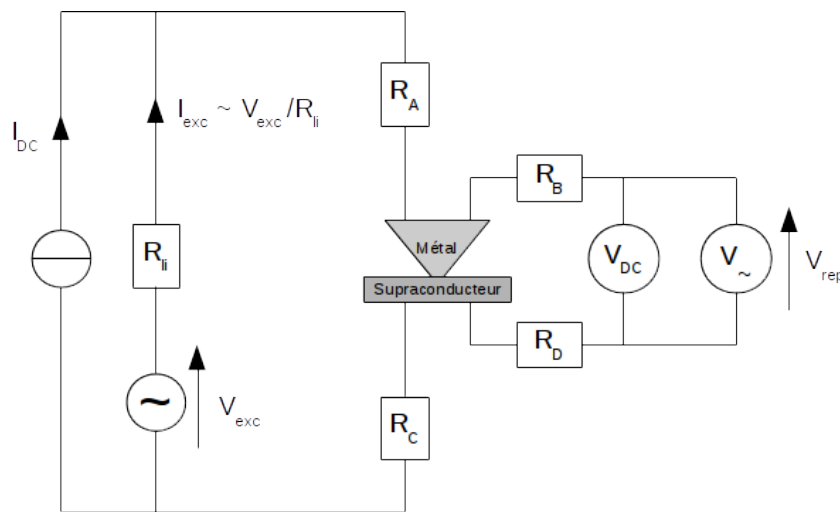


FIGURE 2.24 – Dispositif électrique utilisé pour les mesures de spectroscopie de pointe

## Conclusion

Le dispositif expérimental utilisé a donc pour objectif de mesurer les caractéristiques du transport électrique dans des contacts ponctuels métal-supraconducteur, obtenus par la méthode “needle-anvil”, où une pointe métallique est mise en contact avec un monocristal du matériau étudié.

La qualité de la jonction obtenue est déterminée en supposant sa géométrie du contact circulaire, et en estimant son rayon via différents modèles. Ce rayon représente la dimension caractéristique du contact obtenu, cette dernière doit être très inférieure au libre parcours moyen inélastique des électrons dans les deux matériaux mis en contact.

Dans le cas où cette condition est vérifiée, les mesures de transports obtenues ne dépendent pas de la nature exacte du contact électrique effectué, et les électrons injectés dans le dispositif sont capable de traverser le contact métal-échantillon de façon balistique, sans perte d'énergie. Il est donc possible de tirer des informations spectroscopiques des mesures de transport électriques, décrivant les propriétés des électrons dans le matériau étudié.

Les signaux particuliers qu'on souhaite étudier sont la caractéristique courant tension  $I(V)$  de la jonction, ainsi que deux de ses dérivées,  $\frac{dI}{dV}(V)$  et  $\frac{d^2I}{dV^2}(V)$ . Pour s'affranchir de l'influence du dispositif expérimental sur les grandeurs mesurées, on utilise la méthode à quatre fils. La seule mesure de  $I(V)$  étant insuffisante du fait de sa faible valeur intrinsèque et des problèmes de la dérivation numérique, la détection synchrone est également employée afin de mesurer directement les dérivées de cette caractéristique en parallèle de cette dernière.

# Chapitre 3

## Etude de gaps supraconducteurs

### Introduction

La technique de spectroscopie de pointe permet notamment de mesurer les gaps de matériaux supraconducteurs. Dans cette partie, nous commencerons par explorer qualitativement la conduction électrique dans un contact ponctuel métal-supraconducteur, puis nous en tirerons des prédictions quantitatives, et nous montrerons comment ces prédictions peuvent être utilisées pour extraire de mesures de spectroscopie de pointe l'amplitude d'un ou plusieurs gaps supraconducteurs.

### 3.1 Conduction par des (quasi-)électrons

Dans une jonction métal-métal ou métal-isolant-métal, il n'existe que deux scénarios possibles pour un électron circulant d'une électrode métallique à l'autre :

- L'électron peut parvenir à traverser l'interface et l'électrode d'arrivée, offrant une contribution nette positive au courant électrique traversant la jonction.
- L'électron peut être réfléchi à l'interface ou à l'intérieur de l'électrode d'arrivée et revenir dans la région d'origine, offrant une contribution nette négative au courant.

On parlera de transmission dans le premier cas et de réflexion normale dans le second. La situation est illustrée d'un point de vue semi-classique figure 3.1.

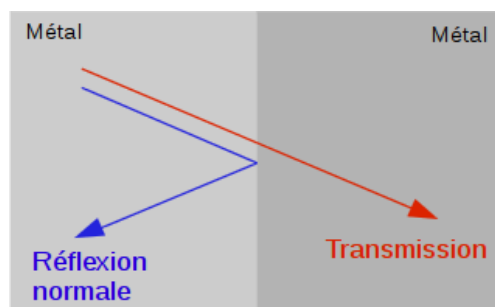


FIGURE 3.1 – Conduction à une interface métal-métal

Dans le cas d'une jonction métal-supraconducteur, ce processus de conduction par des électrons isolés (ou, pour être précis, par des excitations du condensat supraconducteur ayant des propriétés similaires) est modifié, car le passage dans l'état supraconducteur



modifie profondément la structure de bande du matériau. Si on note  $E_{F,supra}$  l'énergie du niveau de Fermi du supraconducteur et  $\Delta$  l'amplitude du gap supraconducteur, on observe notamment une destruction de la surface de Fermi du métal, remplacée par une absence d'états mono-électroniques entre  $E_{F,supra} - \Delta$  et  $E_{F,supra} + \Delta$ , et une augmentation de la densité d'états mono-électroniques hors du gap, à proximité de ces énergies (cf section 1.2).

Cette transformation, illustrée figure 3.2, est une conséquence du fait qu'il est énergétiquement plus favorable, pour des électrons ayant une énergie située à l'intérieur du gap supraconducteur, d'être couplés sous forme de paires de Cooper plutôt que de se propager de façon isolée.

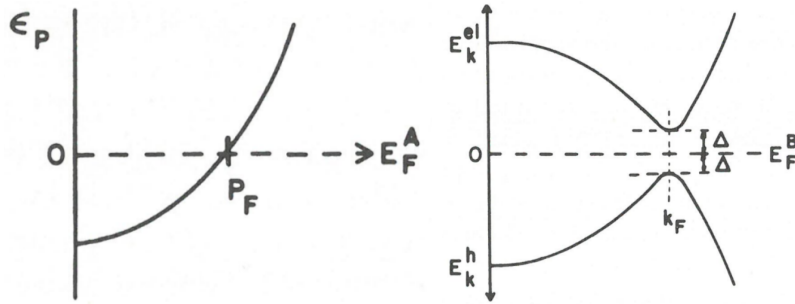


FIGURE 3.2 – Etats mono-électroniques d'un métal normal avec une bande de conduction parabolique, et du même métal dans l'état supraconducteur, d'après [35]

En termes de conduction électrique dans un contact ponctuel métal-supraconducteur, l'ouverture du gap supraconducteur signifie que des électrons d'énergie comprise entre  $E_{F,supra} - \Delta$  et  $E_{F,supra} + \Delta$  en provenance de la pointe métallique ne pourront pas traverser entièrement la jonction, en tous cas pas sans changer de nature. En effet, il n'existera plus d'états mono-électroniques dans le supraconducteur à ces énergies pour les accueillir. A l'inverse, au-delà du gap supraconducteur mais à proximité de ce dernier, la densité d'états électroniques sera plus élevée que précédemment dans le supraconducteur.

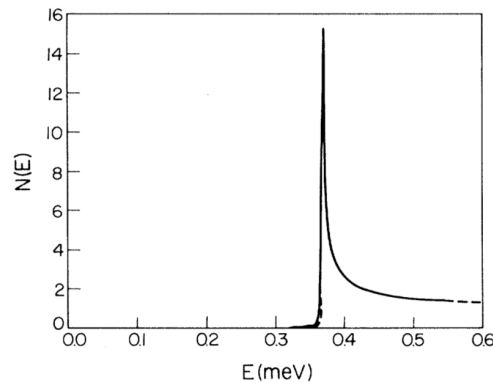


FIGURE 3.3 – Densité d'états à un électron d'un supraconducteur, extraite de mesures de spectroscopie tunnel [18]

En considérant uniquement le transport électrique par des électrons isolés, comme dans la section 2.5.1, on s'attendrait donc à ce qu'une jonction métal-supraconducteur ait une conductance différentielle  $\frac{dI}{dV}(V)$  nulle pour  $|V| < \frac{\Delta}{e}$ , et fortement augmentée autour de  $|V| \approx \frac{\Delta}{e}$ , la conductance différentielle d'une jonction étant proportionnelle à la densité

d'état jointe de cette dernière. En pratique, c'est effectivement ce qui est observé lors de mesures de spectroscopie tunnel sur des jonctions métal-isolant-supraconducteur, comme celle présentée figure 3.3.

Mais dans le cas d'une jonction métal-supraconducteur, on observe en lieu et place une augmentation de la conductance différentielle par rapport à l'état normal dans la région  $|V| < \frac{\Delta}{e}$ , liée au phénomène de réflexion d'Andreev, dont la compréhension nécessite la prise en compte des effets collectifs dans le supraconducteur.

## 3.2 Réflexion d'Andreev

Lorsqu'un électron d'énergie comprise entre  $E_{F,supra} - \Delta$  et  $E_{F,supra} + \Delta$  est injecté dans un supraconducteur, il existe une probabilité qu'il se lie avec un autre électron ayant des propriétés adéquates, présent dans le supraconducteur au même moment, pour former une paire de Cooper et rejoindre le condensat supraconducteur. Par exemple, dans le cas d'une supraconductivité singulet, un électron de spin up et de vecteur d'onde  $\vec{k}$  peut se lier avec un autre électron de spin down et de vecteur d'onde  $-\vec{k}$ .

On parlera alors de réflexion d'Andreev, en référence au fait que ce phénomène peut être vu comme l'absorption par le supraconducteur d'un électron de vecteur d'onde  $\vec{k}$ , et la réémission dans la pointe métallique d'un trou de vecteur d'onde  $-\vec{k}$  [11]. L'appellation de réflexion donnée à ce phénomène est toutefois quelque peu trompeuse, puisque le vecteur d'onde de l'électron finalement réémis est exactement inverse de celui de l'électron incident, et non symétrique de ce dernier par rapport à un plan comme dans le cas d'une réflexion normale à l'interface métal-supraconducteur. De plus, là où une réflexion électronique normale offre une contribution négative au courant électrique circulant dans la jonction, la réflexion d'Andreev n'interrompt pas le flux du courant électrique, qui continue de circuler au sein du supraconducteur sous la forme d'un supercourant.

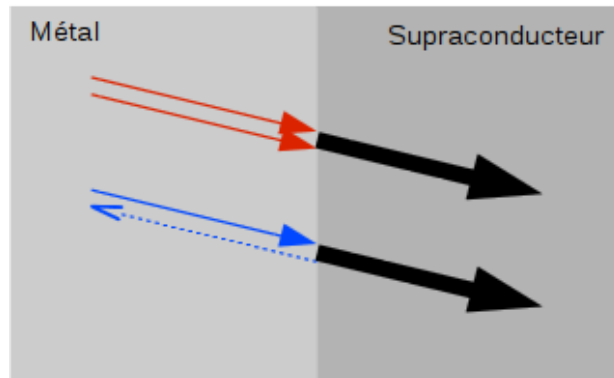


FIGURE 3.4 – Deux points de vue équivalents sur la réflexion d'Andreev à une interface normale-supraconducteur : absorption de deux électrons, ou absorption d'un électron et réémission d'un trou, avec création d'une paire de Cooper

La réflexion d'Andreev est un phénomène à deux particules, et en tant que tel, ne se produira qu'en présence d'une interface métal-supraconducteur fortement transparente. En effet, si les électrons en provenance de la pointe métallique n'ont qu'une faible probabilité de traverser l'interface normal-supraconducteur, la probabilité qu'ils interagissent ce faisant avec un autre électron en provenance de la pointe métallique ayant exactement les propriétés adéquates, et donc hors équilibre puisque situé à l'intérieur du gap supraconducteur,

devient infinitésimale. C'est la raison pour laquelle ce phénomène n'est pas observable en spectroscopie tunnel.

L'énergie des électrons absorbés par le supraconducteur dans une réflexion Andreev participe à la création d'un supercourant à l'intérieur de ce dernier. Ce dernier se propagera sans dissipation à l'intérieur du supraconducteur, jusqu'à atteindre les contre-électrodes de la jonction normal-supraconducteur étudiée. En ce point, il se produira un phénomène dit de réflexion Andreev inverse, où des paires de Cooper seront brisées pour former des électrons de conduction. C'est ce qui fermera le circuit électrique, et permettra l'observation finale d'un courant net au travers de la jonction.

### 3.3 Modèle BTK historique

A ce stade, nous avons introduit tous les processus de conduction électrique qui peuvent se produire dans un contact ponctuel métal-supraconducteur : un électron en provenance de la pointe métallique peut être réfléchi normalement vers cette dernière, pénétrer dans le supraconducteur tel quel via une des branches d'états mono-électroniques disponibles hors du gap supraconducteur, ou se lier à un autre électron de propriétés adéquates et pénétrer dans le supraconducteur sous la forme d'une paire de Cooper via le processus de réflexion Andreev. En ajoutant à ces possibilités celle d'une réflexion Andreev inverse, c'est à dire la brisure d'une paire de Cooper à l'interface métal-supraconducteur, on a décrit l'ensemble des possibilités pour la conduction électrique à une telle interface.

Avec cette phénoménologie en tête, il est possible de construire un modèle théorique quantitatif prédisant la conduction électrique à une interface normal-supraconducteur, et à fortiori les propriétés d'un contact ponctuel de ce type. C'est ce qui a été fait par Blonder, Tinkham et Klapwijk dans [6]. En supposant le contact balistique, et en se plaçant dans une géométrie unidimensionnelle pour simplifier les calculs, ces derniers ont été capables d'utiliser les équations de Bogoliubov – de Gennes pour prédire les propriétés de conduction électrique d'un tel contact.

Dans cette partie, nous allons commencer par nous intéresser à la forme historique de ce modèle, que nous appellerons BTK par la suite. Sa simplicité théorique et son élégance théorique sont en effet préférables dans un cadre pédagogique. Toutefois, la modélisation de systèmes réels, à température non nulle par exemple, nécessite l'introduction de certaines corrections dans le modèle BTK, que nous décrirons brièvement par la suite.

Le modèle BTK historique se place à température nulle, et n'a pour paramètres ajustables que le gap supraconducteur  $\Delta$  du matériau étudié, et un paramètre  $Z$  déterminé de façon empirique représentant les différents types de barrières pouvant s'opposer à la conduction électrique. On peut mentionner parmi ces dernières une différence entre les vecteurs d'ondes de Fermi des états propres de la pointe métallique et du supraconducteur, ou encore l'existence d'une barrière de potentiel à l'interface entre métal normal et supraconducteur, causée par exemple par une oxydation de la pointe métallique.

Ce modèle énumère les probabilités des différents phénomènes susmentionnés, pour des électrons incidents au supraconducteur à une énergie  $E$  donnée. En introduisant les quantités  $E' = E - E_{F,pointe}$ ,  $u_0^2 = 1 - v_0^2 = \frac{1}{2}(1 + [(E'^2 - \Delta^2)/E'^2]^{\frac{1}{2}})$ , et  $\gamma^2 = [u_0^2 + Z^2(u_0^2 - v_0^2)]^2$ , on distingue ainsi quatre phénomènes possibles :

$$\begin{aligned}
\text{— Réflexion d'Andreev : } A(E') &= \begin{cases} \frac{\Delta^2}{E'^2 + (\Delta^2 - E'^2)(1 + 2Z^2)^2} & \text{pour } |E'| < \Delta \\ \frac{u_0^2 v_0^2}{\gamma^2} & \text{pour } |E'| > \Delta \end{cases} \\
\text{— Réflexion normale : } B(E') &= \begin{cases} 1 - A & \text{pour } |E'| < \Delta \\ \frac{(u_0^2 - v_0^2)^2 Z^2 (1 + Z^2)}{\gamma^2} & \text{pour } |E'| > \Delta \end{cases} \\
\text{— Transmission normale : } C(E') &= \begin{cases} 0 & \text{pour } |E'| < \Delta \\ \frac{u_0^2 (u_0^2 - v_0^2)^2 (1 + Z^2)}{\gamma^2} & \text{pour } |E'| > \Delta \end{cases} \\
\text{— Transmission avec inversion de } \vec{k} : D(E') &= \begin{cases} 0 & \text{pour } |E'| < \Delta \\ \frac{v_0^2 (u_0^2 - v_0^2)^2 Z^2}{\gamma^2} & \text{pour } |E'| > \Delta \end{cases}
\end{aligned}$$

L'existence de deux canaux de conduction possibles pour la transmission d'électrons s'explique par le fait que la gap supraconducteur s'ouvre non seulement en  $k_F$  le vecteur d'onde de Fermi du matériau, mais aussi en  $-k_F$ . Dans un modèle à une dimension, pour un électron incident de vecteur d'onde  $q^+$ , il existe donc deux états de dispersion positive disponibles dans le supraconducteur, un de vecteur d'onde positif  $k^+$ , et un de vecteur d'onde négatif  $-k^-$ .

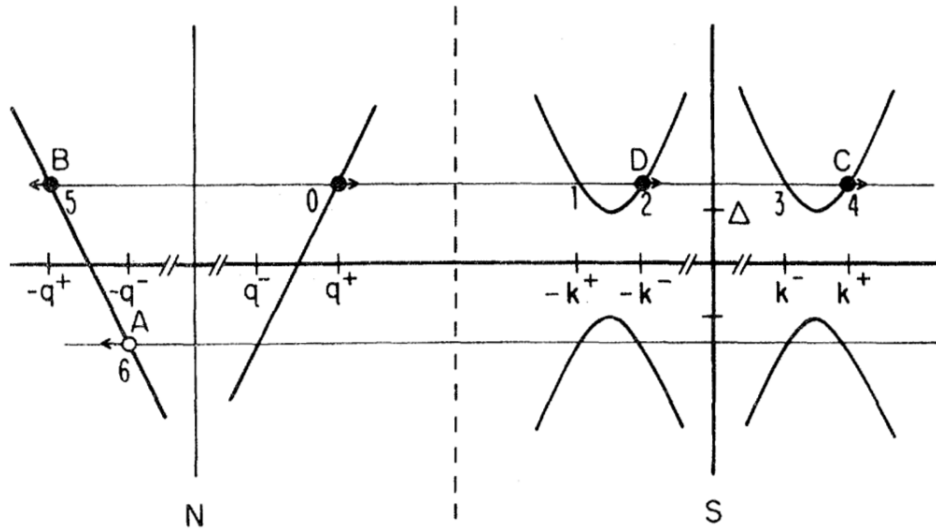


FIGURE 3.5 – Canaux de conduction considérés par le modèle BTK, d'après [6]

La figure 3.5 illustre les différents canaux de conduction présentés ci-dessus, pour un électron partant du métal normal en l'état 0 : la réflexion Andreev correspond à la réflexion d'un trou dans l'état 6, la réflexion normale à la réflexion d'un électron dans l'état 5, la transmission normale à la transmission d'un électron dans l'état 4, et la transmission avec inversion de  $\vec{k}$  à la transmission d'un électron dans l'état 2.

Ayant en tête les probabilités de chaque phénomène, et le nombre d'électrons transmis et réfléchis dans chaque cas, il est trivial d'utiliser ce modèle pour prédire la conductance différentielle d'une jonction normal-supraconducteur de gap  $\Delta$  donné à différents paramètres

de barrière  $Z$ , et la figure 3.6 illustre le résultat.

Comme annoncé précédemment, lorsque la barrière  $Z$  est forte, la probabilité de réflexion Andreev devient négligeable et on observe un signal analogue à celui observé en spectroscopie tunnel, reflétant la densité d'états monoélectroniques du matériau. Mais lorsque la barrière  $Z$  est réduite, le signal de réflexion Andreev augmente, au point de changer qualitativement la forme du spectre mesuré à faible  $Z$ . Pour une barrière nulle, on observe ainsi une conductance différentielle deux fois plus élevée que dans l'état normal à faible tension, illustrant le fait que les électrons de conduction pénètrent dans le matériau par paires.

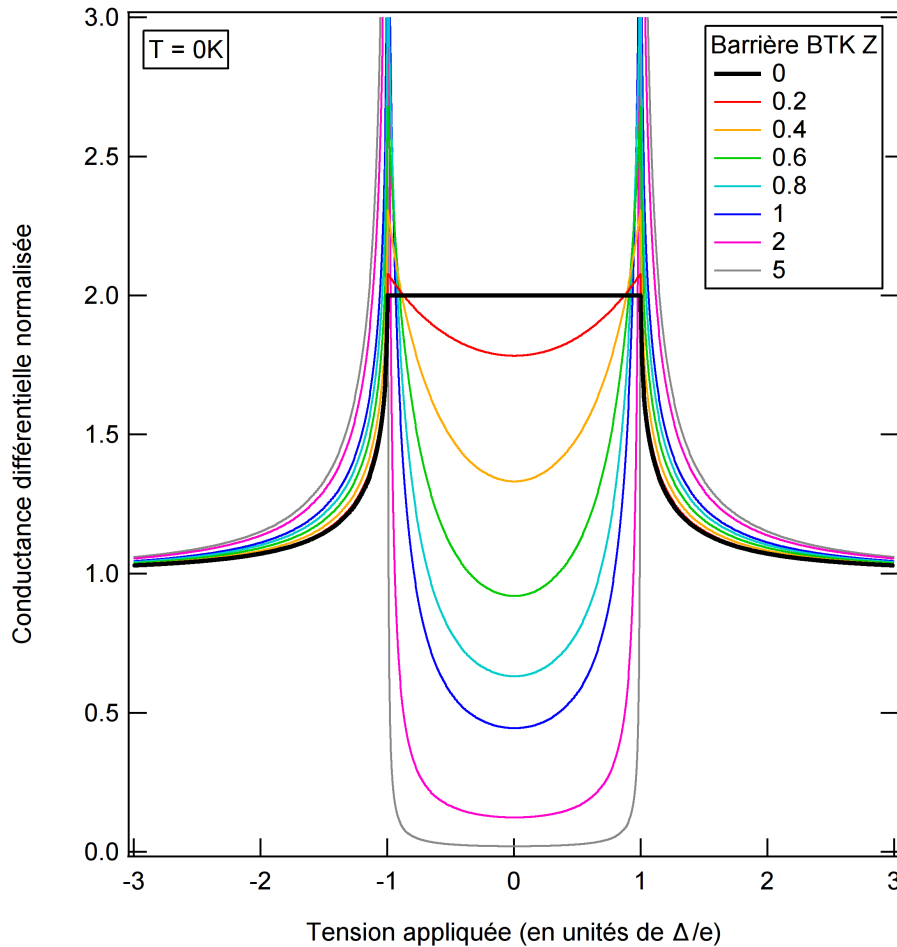


FIGURE 3.6 – Conductance différentielle normalisée prévue par le modèle BTK

L'intérêt expérimental du modèle BTK réside dans sa capacité à extraire le ou les gaps supraconducteurs d'une mesure de spectroscopie de pointe effectuée avec une pointe métallique sur un matériau supraconducteur. Les effets de  $Z$  et  $\Delta$  sur  $\frac{dI}{dV}$  étant qualitativement distincts, il est en effet aisé de déterminer les valeurs de ces paramètres qui correspondent au mieux à une mesure donnée, via un ajustement non linéaire du modèle aux données expérimentales.

Cependant, on constatera alors bien vite que le modèle BTK, sous sa forme historique, n'est pas tout à fait suffisant pour reproduire précisément la physique d'un contact ponctuel normal-supraconducteur réel :

- Le modèle BTK ne fournit que des prédictions à température nulle.

- Il considère uniquement une géométrie 1D où les électrons en provenance de la pointe métallique arrivent sous incidence normale à l'interface métal-supraconducteur.
- Il ne traite que des interfaces idéales, parfaitement planes et d'épaisseur nulle.
- Il suppose les surfaces de Fermi des deux matériaux sphériques, et l'existence d'un unique gap supraconducteur isotrope.

Nous allons maintenant décrire comment le modèle peut être étendu pour obtenir une description plus réaliste de contacts ponctuels réels.

## 3.4 Extensions au modèle BTK

### Introduction

Une excellente revue des extensions au modèle BTK a été donnée par Daghero et Gonnelli dans [12], et ce chapitre s'en inspirera très largement. Le lecteur est fortement encouragé à explorer davantage cette référence pour une discussion plus approfondie de certaines extensions au modèle BTK qui ne sont pas nécessaires à la discussion des travaux présentés ici, telle que la prise en compte de la forme exacte de la surface de Fermi du matériau étudié, ou l'effet de l'application d'un champ magnétique sur les spectres de conductance différentielle obtenus.

Tout d'abord, si la formulation historique du modèle BTK en termes de probabilité de différents événements est aisée à comprendre, elle n'est pas des plus simples sur le plan calculatoire, et les expressions mathématiques qu'elle fournit sont un peu délicates à manipuler. Mais en pratique, lorsqu'on calcule la conductance différentielle finale de la jonction métal-supraconducteur, de nombreux termes de la somme résultante se simplifient, et on arrive à une expression beaucoup plus simple.

Commençons d'abord par introduire quelques quantités utiles aux calculs. On pose  $E = E_{F,pointe} - eV$  l'énergie des électrons incidents au supraconducteur, avec  $V$  la tension appliquée aux bornes de la jonction,  $E' = E - E_{F,pointe}$ ,  $Z$  la barrière BTK s'opposant au passage des électrons au niveau du contact,  $\frac{dI_{NS}}{dV}(V)$  la conductance différentielle de la jonction métal-supraconducteur étudiée,  $\frac{dI_{NN}}{dV}(V)$  celle de la même jonction dans l'état normal,  $G = \frac{dI_{NS}}{dV}(V)/\frac{dI_{NN}}{dV}(V)$  la conductance différentielle normalisée, ainsi que les quantités  $N_q(E') = \frac{E'}{\sqrt{E'^2 - \Delta^2}}$ ,  $N_p(E') = \frac{\Delta}{\sqrt{E'^2 - \Delta^2}}$ , et  $\gamma(E') = \frac{N_q(E') - 1}{N_p(E')} = \frac{E - \sqrt{E^2 - \Delta^2}}{\Delta}$ .

Pour des électrons arrivant sous incidence normale à l'interface métal-supraconducteur, le modèle BTK fournit également la notion de transparence de barrière  $\tau_N = \frac{1}{1+Z^2}$ , décrivant la probabilité pour un électron de traverser la barrière entre métal normal et supraconducteur plutôt que d'être réfléchi par cette dernière. Dans le modèle BTK historique, on a  $\frac{dI_{NN}}{dV}(V) = \tau_N$ .

On peut alors montrer [12, 36], que la conductance de la jonction dans le modèle BTK, pour des électrons incidents d'énergie  $E$ , est

$$\sigma(E') = \frac{dI_{NS}}{dV}(V) = \tau_N \frac{1 + \tau_N |\gamma(E')|^2 + (\tau_N - 1) |\gamma(E')|^2}{|1 + (\tau_N - 1) \gamma(E')|^2}$$

Et que la conductance normalisée  $G$  est donc

$$G(E') = \frac{1 + \tau_N |\gamma(E')|^2 + (\tau_N - 1) |\gamma(E')|^2}{|1 + (\tau_N - 1) \gamma(E')|^2}$$

### 3.4.1 Effets de température finie

Lorsque la jonction étudiée n'est plus à température nulle, cela a deux effets distincts sur le transport électrique en son sein.

D'une part, le gap supraconducteur sera modifié. Il diminuera lorsque la température de l'échantillon supraconducteur augmente, jusqu'à s'annuler à une certaine température critique. Décrire cet effet n'est pas du ressort d'un modèle de transport électrique, on se référera plutôt pour cela à des théories de la supraconductivité telles que la théorie BCS.

D'autre part, la distribution en énergie des électrons dans la pointe métallique  $f(E)$  ne sera plus discontinue en  $E = E_{F,pointe}$ , mais variera lentement en suivant une distribution de Fermi-Dirac. Cela aura pour effet, comme nous l'avons vu en section 2.5.2, de lisser les spectres de conductance différentielle mesurés sur une largeur en énergie caractéristique de  $3.5k_B T$ . Ce lissage limitera la résolution en énergie accessible expérimentalement.

Comme il a été montré section 2.5.2, ce lissage thermique peut être reproduit en convoluant le spectre prévu par le modèle BTK à température nulle, par la dérivée d'une distribution de Fermi-Dirac de température appropriée, centrée en  $E' = 0$ .

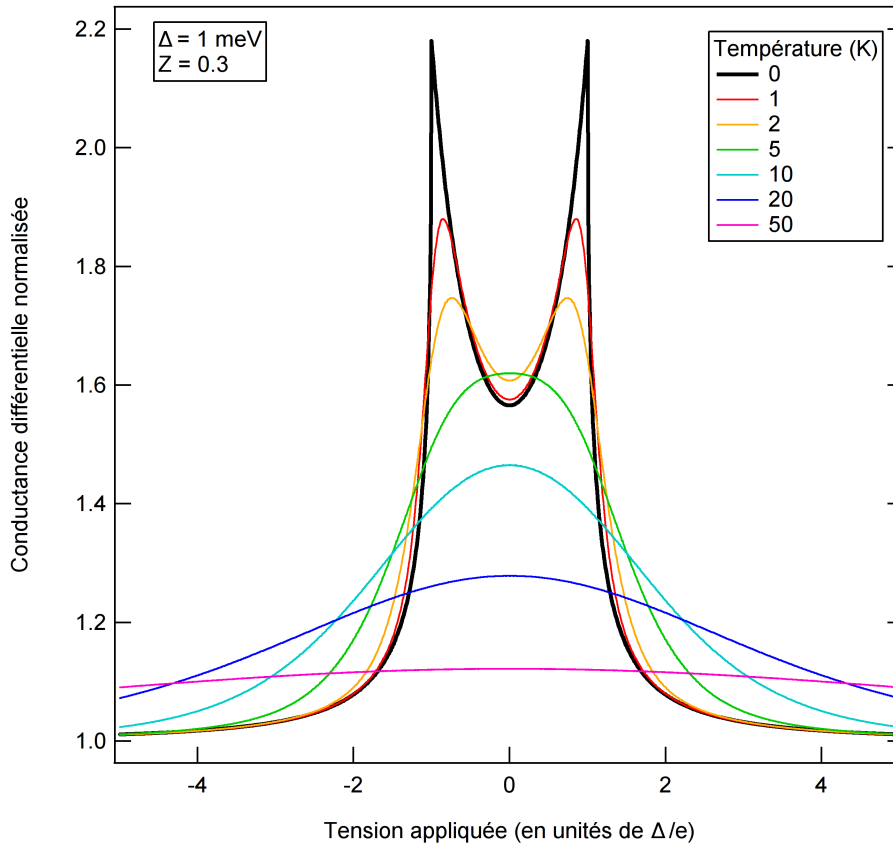


FIGURE 3.7 – Lissage thermique des spectres prévus par le modèle BTK

L'effet est représenté figure 3.7. Il est important de noter qu'au contraire de l'effet de la barrière d'interface  $Z$ , ces effets thermiques dépendent de la valeur absolue du gap supraconducteur considéré. Plus le gap supraconducteur étudié sera faible, plus il suffira d'une énergie thermique  $k_B T$  faible pour détruire les structures liées au gap supraconducteur dans les spectres de conductance différentielle étudiés.

### 3.4.2 Paramètre d'élargissement

En général, même en prenant en compte l'élargissement thermique des spectres mesurés, le modèle BTK prédit des spectres de conductance différentielle aux formes beaucoup plus effilées que ce qui est observé expérimentalement. Un tel élargissement des spectres expérimentaux peut avoir des origines très nombreuses [12] :

- Le temps de vie fini des quasi-particules hors équilibre injectées dans le supraconducteur, avant que des processus inélastiques ne les thermalisent
- D'éventuels phénomènes inélastiques à l'interface normal-supraconducteur
- Une distribution de gaps supraconducteurs inhomogène
- La destruction de paires de Cooper par un champ magnétique

Tant que ces phénomènes parasites sont d'ampleur faible, il est empiriquement possible de reproduire leur effet en ajoutant une partie imaginaire à l'énergie des quasi-particules injectées dans le supraconducteur, autrement dit en effectuant la transformation  $E \rightarrow E + i\Gamma$ , avec  $\Gamma = \hbar/t_{broad}$  où  $t_{broad}$  est un temps caractéristique représentant la durée de vie effective donnée aux quasi-particules injectées dans le supraconducteur par l'un ou l'autre de ces phénomènes.

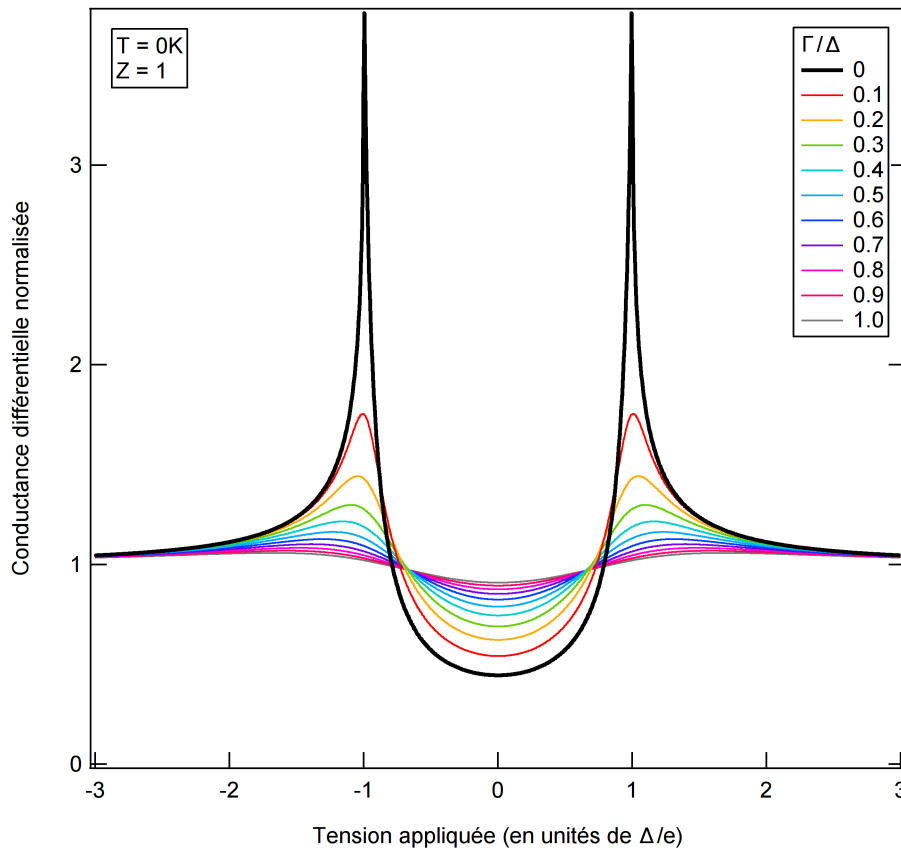


FIGURE 3.8 – Effet du paramètre d'élargissement  $\Gamma$  sur les prédictions du modèle

$\Gamma$  est aussi appelé paramètre d'élargissement, et son effet est illustré figure 3.8. Ce paramètre est en général ajusté à partir des données expérimentales, car il est difficile à prédire théoriquement au vu de ses nombreuses origines possibles.



### 3.4.3 Géométrie d'injection à deux et trois dimensions

Comme mentionné précédemment, le modèle BTK est basé sur une géométrie unidimensionnelle, et ne considère que l'injection d'électrons sous une direction normale à l'interface métal-supraconducteur. Dans le cas de contacts ponctuels réels, il s'agit bien sûr d'une approximation assez forte, puisque des électrons peuvent atteindre le contact étudié sous une large gamme d'angles d'incidence  $\theta$ , comme illustré figure 3.9.

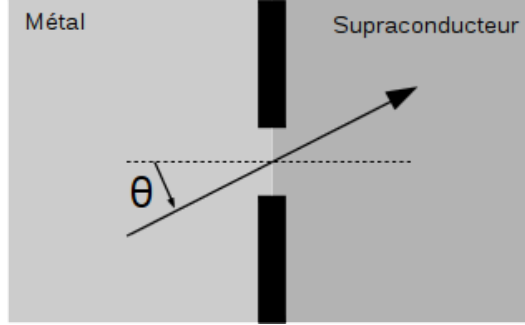


FIGURE 3.9 – Porteur incident à l'interface métal-supraconducteur sous un angle  $\theta$

Pour modéliser correctement ce phénomène, il est nécessaire d'utiliser une forme modifiée de la transparence BTK  $\tau_N$  pour chaque angle d'incidence  $\theta$  possible pour les porteurs de charge en provenance de la pointe. En utilisant la conservation de la quantité de mouvement transverse des électrons traversant la barrière à l'interface métal-supraconducteur, il vient [12] :

$$\tau_{N,2D}(\theta) = \frac{\cos(\theta)^2}{\cos(\theta)^2 + Z^2}$$

Pour comprendre qualitativement l'effet de cette anisotropie de la transparence de barrière, on peut noter qu'à  $Z$  élevé, on a  $Z^2 \gg \cos(\theta)^2$  et donc  $\tau_{N,2D}(\theta) \approx \left(\frac{\cos(\theta)}{Z}\right)^2$ . Par conséquent, tout se passe comme si on observait une augmentation de la barrière BTK  $Z$  effective à un angle  $\theta$  donné. Autrement dit, en prenant en compte les différents angles d'incidence possibles pour les porteurs de charge, la jonction étudiée se comportera comme si elle présentait une plus forte barrière d'interface par rapport à une pure injection 1D.

On peut alors construire, en supposant que toutes les directions d'injection sont équiprobables, une théorie de transport bidimensionnel dans les jonctions métal-supraconducteur. Pour ce faire, il suffit de sommer les contributions de tous les angles  $\theta$  à la conductance normalisée finale  $G$ . Partant du cas à une dimension  $G_{1D} = \frac{\sigma(E)}{\tau_N}$ , et en notant le facteur multiplicatif  $\cos(\theta)$  apparaissant dans la surface de contact effective pour des porteurs de charge sous incidence non normale (voir section 2.1.3), il vient en deux dimensions :

$$G_{2D}(E) = \frac{\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \sigma_{2D}(E, \theta) \cos(\theta) d\theta}{\int_{-\pi/2}^{\pi/2} \tau_{N,2D}(\theta) \cos(\theta) d\theta}$$

où  $\sigma_{2D}(E, \theta)$  n'est autre que le  $\sigma(E)$  à une dimension, modifié pour intégrer la transparence bidimensionnelle  $\tau_{N,2D}(\theta)$  introduite précédemment.

$$\sigma_{2D}(E) = \tau_{N,2D}(\theta) \frac{1 + \tau_{N,2D}(\theta) |\gamma(E)|^2 + (\tau_{N,2D}(\theta) - 1) |\gamma(E)|^2}{|1 + (\tau_{N,2D}(\theta) - 1) \gamma(E)|^2}$$

L'effet de cette injection bidimensionnelle est représenté sur la figure 3.10 pour  $Z = 0.4$ . On observe que même pour cette barrière relativement faible, le modèle BTK bidimensionnel se comporte comme un modèle unidimensionnel une barrière effective plus forte, et donc un taux de réflexion Andreev moins élevé, en accord avec la discussion précédente. Par contre, lorsque l'on aura  $Z \approx 0$  ou  $Z \gg 1$ , les prédictions du modèle bidimensionnel tendront vers celles du modèle unidimensionnel, puisque dans le premier cas il n'y aura plus de barrière à la réflexion d'Andreev à quelque angle que ce soit, et dans le second cas la barrière sera tellement grande à  $\theta = 0$  que son augmentation pour  $\theta \neq 0$  n'aura plus tellement d'importance.

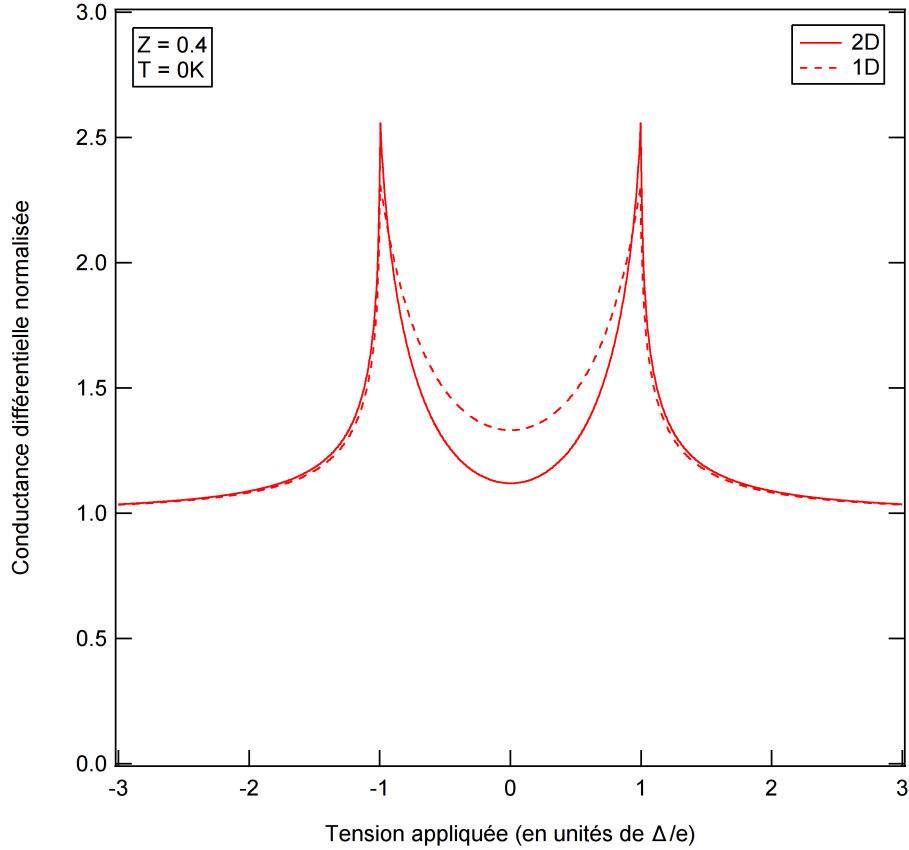


FIGURE 3.10 – Effet d'une injection 2D d'électrons sur les prédictions du modèle BTK

Le lecteur attentif aura remarqué qu'un angle d'incidence de  $\theta$  par rapport à la normale à l'interface métal-supraconducteur ne définit pas une unique direction d'injection possible, mais un demi-cône de directions d'injection, paramétrisable par un angle azimutal  $\phi$ . Dans le cas où les surfaces de Fermi et gaps supraconducteurs des matériaux considérés sont isotropes, cette distinction n'aura pas d'importance, car les propriétés de l'interface métal-supraconducteur ne dépendront pas de cet angle. Mais pour traiter le cas de supraconducteurs ou de métaux aux propriétés anisotropes dans le cadre du formalisme BTK, il est utile d'introduire une expression plus générale de  $G$  prenant en compte l'ensemble des directions d'injection de porteurs possibles :

$$G_{3D}(E) = \frac{\int_0^{2\pi} d\phi \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\theta \sigma_{3D}(E, \theta, \phi) \cos(\theta)}{\int_0^{2\pi} d\phi \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\theta \tau_{N,2D}(\theta) \cos(\theta)} = \frac{\int_0^{2\pi} d\phi \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\theta \sigma_{3D}(E, \theta, \phi) \cos(\theta)}{2\pi \int_{-\pi/2}^{\pi/2} d\theta \tau_{N,2D}(\theta) \cos(\theta)}$$

Dans cette expression, il est fait usage de  $\sigma_{3D}(E)$ , nouvelle généralisation de  $\sigma(E)$  prenant en compte la possibilité pour les différentes quantités physiques considérées de dépendre de l'angle azimutal  $\phi$ . Nous allons maintenant montrer un exemple de ce  $\sigma(E)$  généralisé en discutant du traitement de gaps supraconducteurs anisotropes dans le cadre du modèle BTK.

### 3.4.4 Anisotropie du gap supraconducteur

Jusqu'ici, nous avons implicitement supposé l'existence d'un gap supraconducteur isotrope, autrement dit que l'on pouvait écrire  $\Delta(\vec{k}, T) = \Delta_0(T)$  pour tout vecteur d'onde électronique  $\vec{k}$  de la surface de Fermi du matériau, et que la notion de vecteur d'onde de Fermi  $\vec{k}_F$  était bien définie. Toutefois, en pratique, cette approche théorique simple cesse d'être valable dans deux situations :

- Quand la surface de Fermi d'un matériau possède plusieurs feuillets de propriétés physiques distinctes, donnant lieu à l'émergence de plusieurs gaps supraconducteurs dans l'espace réciproque.
- Quand les feuillets de la surface de Fermi du matériau, ou l'interaction à l'origine de la supraconductivité, sont anisotropes, ce qui donne lieu à l'émergence de gaps supraconducteurs anisotropes.

Afin de rester dans la continuité de la discussion précédente, nous allons commencer par nous intéresser à la seconde situation.

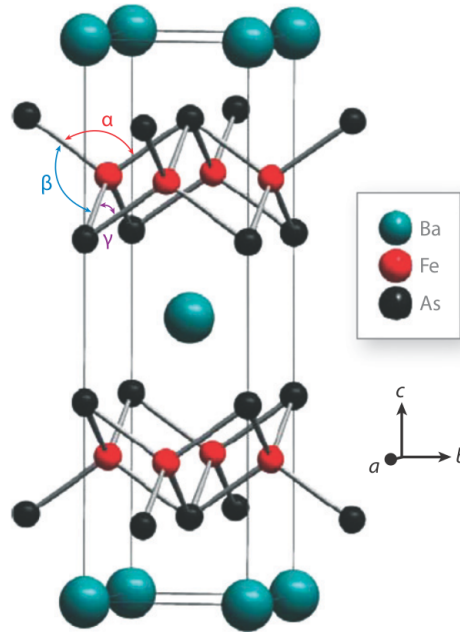


FIGURE 3.11 – Structure cristalline de  $BaFe_2As_2$ , d'après [73]

La technique de spectroscopie de pointe est, on s'en souvient, faiblement résolue en vecteur d'onde électronique  $\vec{k}$ . Il ne sera donc pas possible de l'utiliser pour mesurer directement la forme exacte du gap supraconducteur dans l'espace réciproque. Toutefois, on vient aussi de voir que l'information mesurée contient des contributions issues d'une large plage de vecteurs d'ondes. Si le gap supraconducteur étudié varie fortement dans l'espace

réciproque, on s'attend donc à ce que cela laisse une signature dans le signal physique mesuré, qui peut être comparée aux prédictions d'un modèle de gap spécifique.

L'injection dans un contact ponctuel n'étant pas parfaitement isotrope (cf section 3.4.3), les ingrédients d'un tel modèle seront :

- $\Delta(\vec{k})$  l'évolution du gap supraconducteur étudié dans l'espace réciproque
- $\hat{k}_0$  le vecteur d'onde unitaire pour lequel l'injection de courant est maximale, correspondant à la normale à l'interface métal-supraconducteur dans l'espace réel

Muni de ces informations, il est possible d'exprimer le gap supraconducteur étudié  $\Delta(\vec{k})$  en coordonnées polaires dans l'espace réciproque, selon les angles  $\theta$  et  $\phi$  introduits en 3.4.3, et donc de déterminer la conductance différentielle associée au gap étudié dans les conditions d'injection électrique étudiées.

Par exemple, dans le cas d'un gap supraconducteur de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  orienté selon les plans  $(Fe, Ni)As$  de  $Ba(Fe, Ni)_2As_2$  et analysé par un contact orienté selon l'axe crystallographique  $\hat{c}$  perpendiculaire à ces plans, on prédit des spectres de conductance différentielle de la forme observable figure 3.12.

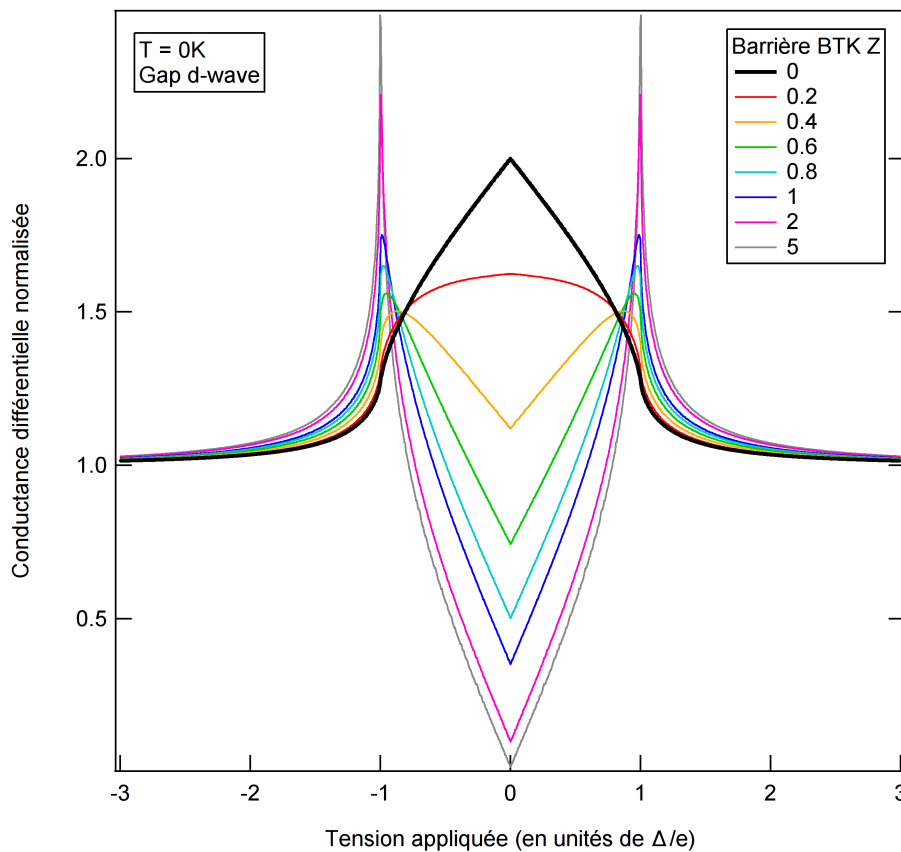


FIGURE 3.12 – Prédiction du modèle BTK dans le cas d'un supraconducteur de gap  $d_{x^2-y^2}$

Ces spectres présentent des différences qualitatives par rapport à ceux prédits dans le cas d'un gap supraconducteur isotrope. En particulier, on peut noter dans le cas d'une barrière  $Z$  élevée que la conductance différentielle prévue ne s'annule pas sur l'ensemble de l'intervalle de  $V$  correspondant au gap supraconducteur, mais présente des valeurs non nulles. Ce résultat trahit l'existence d'excitations de basse énergie dans le supraconducteur, caractéristiques d'un gap supraconducteur nodal. Ces excitations sont aussi responsables

de la forme plus piquée des spectres de conductance différentielle prévus lorsque la barrière d'interface  $Z$  est faible.

### 3.4.5 Gaps supraconducteurs multiples

Comme mentionné précédemment, il peut exister plusieurs gaps supraconducteurs dans un même matériau. Cela se produit lorsque la surface de Fermi d'un matériau comporte plusieurs feuillets, chacun pouvant devenir supraconducteur séparément. C'est ainsi le cas de la famille de pnictures dite "122", basée sur le composé parent  $BaFe_2As_2$ . Dans cette dernière, en effectuant des mesures d'ARPES sur le composé  $(Ba, K)Fe_2As_2$  (voir fig. 3.13), il a été observé qu'il se forme deux gaps supraconducteurs de 6 et 12 meV autour du point  $\Gamma$  central de l'espace réciproque, et un autre gap de 12 meV autour du point  $M$ .

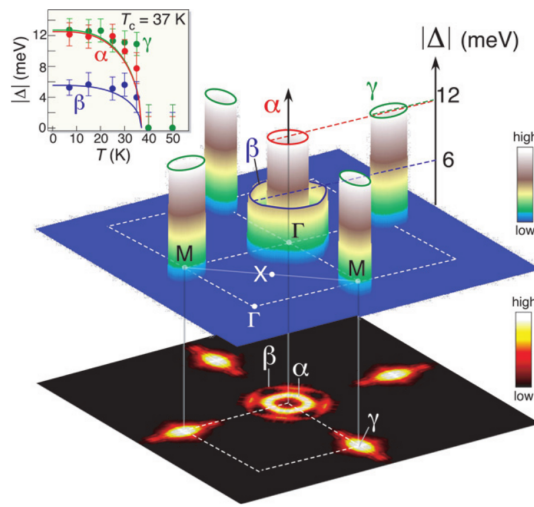


FIGURE 3.13 – Gaps supraconducteurs mesurés par ARPES dans  $(Ba, K)Fe_2As_2$  [17], avec leur évolution en température en encadré

Pour étudier cette supraconductivité à gaps multiples en spectroscopie de pointe, il est encore une fois nécessaire d'étendre le modèle BTK. L'existence de gaps supraconducteurs multiples signifie qu'il existe des canaux de conduction supplémentaires dans le matériau, puisqu'un électron en provenance du métal normal peut pénétrer dans le supraconducteur par le biais de chacun de ses gaps supraconducteurs.

En pratique, la conductance normalisée obtenue dans le modèle BTK pour un supraconducteur à plusieurs gaps est une moyenne pondérée de celle obtenue pour chacun de ses gaps pris isolément [8], et on a pour conductance totale de la jonction :

$$G_{\text{tot}}(E) = \sum_i \omega_i G_i(E, \Delta_i, Z_i, \Gamma_i) \text{ avec } \sum_i \omega_i = 1$$

La détermination théorique des poids  $\omega_i$  des différentes bandes associées à chaque gap est possible, mais complexe et d'un intérêt physique limité. On lui préférera donc généralement un ajustement empirique lors du traitement des données. En revanche, il est très important de noter que l'on doit employer des paramètres BTK  $Z_i$  et  $\Gamma_i$  distincts pour chacune des bandes considérées. En effet, les processus physiques sous-jacents n'ont pas de raison d'avoir un comportement identique d'une bande à l'autre. Par exemple, la contribution à  $Z_i$  issue

de la différence de vitesse de Fermi entre la pointe métallique et une bande  $i$  donnée est différente pour chaque bande considérée.

### 3.5 Application à l'étude des pnictures

Le grand nombre de paramètres ajustables dans le modèle BTK étendu que nous venons de présenter conduit à des ambiguïtés d'interprétation. Considérons ainsi l'ajustement d'un spectre de conductance différentielle mesuré sur  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$  dans le cadre de cette thèse, figure 3.14, dans deux scénarios théoriques possible. L'un d'eux suppose que tous les gaps supraconducteurs du composé sont isotropes, tandis que l'autre suppose l'existence d'un gap nodal de symétrie  $d_{x^2-y^2}$ . Bien que présentant des différences qualitatives énormes, ces deux modèles offrent en pratique un accord très similaire aux données expérimentales après ajustement de leurs paramètres respectifs.

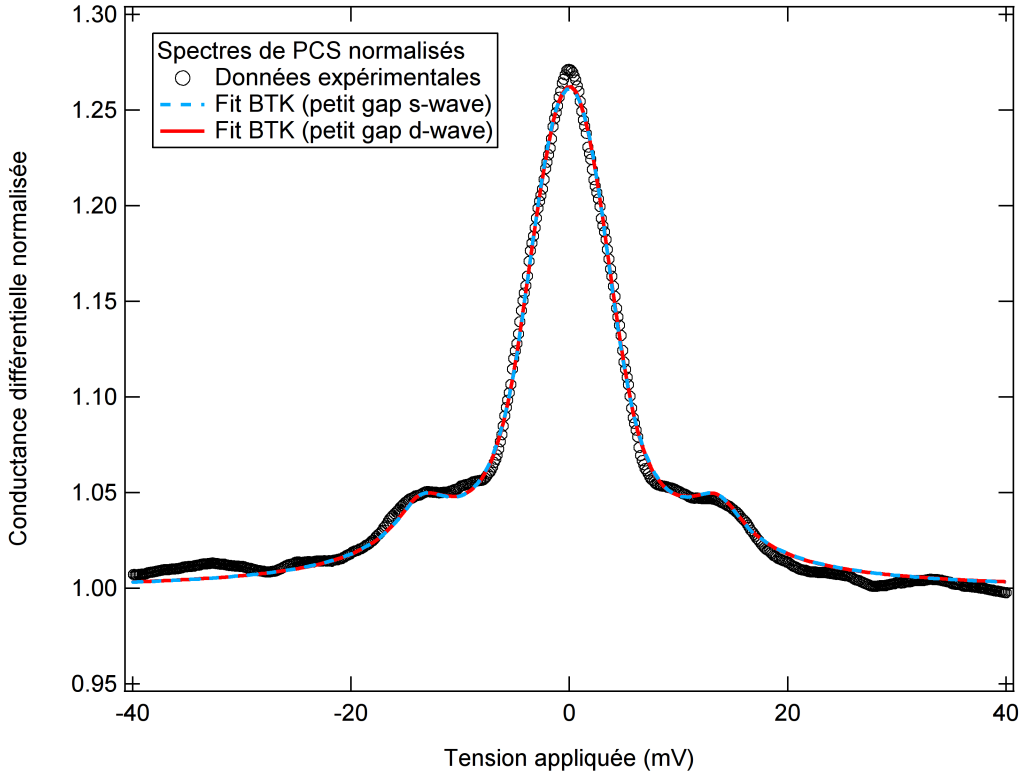


FIGURE 3.14 – Mesures et modèle BTK à deux gaps isotropes (bleu) ou un grand gap isotrope et un gap de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  (rouge) sur  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$

Détaillons un peu ces deux interprétations. La première suppose l'existence de deux gaps isotropes, l'un dont l'amplitude est de l'ordre de  $10\text{ meV}$ , et l'autre dont l'amplitude est de l'ordre de  $4\text{ meV}$ , en accord avec les mesures d'ARPES de [17] sur  $(Ba, K)Fe_2As_2$  et les mesures de chaleur spécifique de [27] sur  $Ba(Fe, Co)_2As_2$ .

Pour ce modèle, nous pouvons comparer nos résultats à ceux obtenus par Pecchio et al. [55] sur  $Ba(Fe_{0.90}Co_{0.10})_2As_2$ . Le nickel ayant une valence double de celle du cobalt, le composé qui serait strictement équivalent à celui que nous avons étudié serait  $Ba(Fe_{0.88}Co_{0.12})_2As_2$ , mais nous n'avons pas trouvé de données de spectroscopie de pointe sur ce dernier dans la littérature scientifique.

Dans ce modèle, la température de l'échantillon est imposée, puisqu'elle est bien connue expérimentalement, et la forme du gap est une supposition dont nous voulons tester la vraisemblance. Les autres paramètres du modèle sont laissés ajustables, dans la limite de certaines contraintes représentant la limite du physiquement vraisemblable :

- Nous autorisons un léger facteur multiplicatif sur les valeurs du spectre calculé (de l'ordre de 0.95 à 1.05), motivé par le fait que la calibration de nos mesures de résistance différentielle n'est pas parfaite, et que la normalisation des spectres à basse température par ceux à haute température n'est pas un procédé idéal non plus. On devrait en effet, pour reproduire expérimentalement les résultats du modèle BTK, comparer le spectre de la jonction dans l'état normal et dans l'état supraconducteur, tous les autres paramètres environnementaux comme  $T$  et  $H$  étant gardés constants, ce qui est physiquement impossible.
- Le poids relatif des deux gaps supraconducteurs est laissé ajustable entre 0 et 1, en imposant la contrainte mathématique que leur somme doit valoir 1. Ici, on trouve que 95% du signal vient du petit gap supraconducteur et 5% du grand gap, ce qui est compatible avec l'observation expérimentale d'un pic de basse énergie beaucoup plus intense que le pic de haute énergie, mais très éloigné du poids de 50 % ajusté par Pecchio et al. sur  $Ba(Fe_{0.90}Co_{0.10})_2As_2$ . Cependant, il convient de se rappeler que dans un matériau anisotrope, ce poids peut dépendre des conditions de contact.
- Les barrières BTK sont laissées ajustables entre 0 et  $+\infty$ . On trouve après ajustement une barrière BTK négligeable pour le petit gap et une barrière BTK pour le grand gap de  $0.48 \pm 0.03$ . Cependant, nous sommes peut-être ici victimes de la difficulté mathématique d'ajuster correctement une somme de fonctions ayant chacune de nombreux paramètres, et il est possible qu'un accord similaire avec l'expérience puisse être obtenu avec des barrières d'interface plus semblables pour les deux gaps. La barrière BTK dépend des conditions de contact et ne peut donc pas être comparée aux données de la littérature scientifique.
- En imposant des amplitudes de gap supraconducteur positives, on trouve pour le petit gap une amplitude de  $3.62 \pm 0.09$  meV et pour le grand gap une amplitude de  $14.0 \pm 0.2$  meV. L'amplitude ajustée pour le grand gap est anormalement élevée au regard des 8.8 meV observés dans [55], et nous pensons que c'est lié à la présence d'un signal oscillant à forte tension qui fausserait son ajustement. Ce signal sera exploré davantage dans le chapitre 4.
- En imposant un élargissement positif, on trouve un élargissement de  $2.5 \pm 0.1$  meV pour le petit gap et  $1.4 \pm 0.2$  meV pour le grand gap. Un élargissement relativement élevé du petit gap est nécessaire, dans ce modèle, pour expliquer la forme triangulaire du pic de basse énergie observé. L'élargissement observé pour le grand gap est nettement plus faible que celui de 7.4 meV observé dans [55], mais comme cet élargissement provient en partie de phénomènes d'interface, il est possible que cette différence ne fasse que refléter des conditions de contact différentes.

Une autre interprétation à la forme triangulaire du pic de basse énergie serait toutefois l'observation d'un gap supraconducteur nodal, de symétrie  $d$  par exemple. Au nombre des éléments de la littérature scientifique suggérant l'existence de noeuds dans le gap supraconducteur de  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$ , on peut mentionner :

- La dépendance en température et en champ magnétique de la chaleur spécifique de  $Ba(Fe_{0.9}Co_{0.1})_2As_2$  mesurée dans [30], incompatible avec un modèle de gaps isotropes mais compatible avec un modèle où au moins l'un des gaps supraconducteurs

du composé présente des noeuds.

- La dépendance en température et en champ magnétique de la chaleur spécifique de  $Ba(Fe_{0.942}Ni_{0.058})_2As_2$  mesurée dans [49], elle aussi incompatible avec un modèle de gap isotrope et compatible avec un modèle de gap nodal.
- La dépendance en température de la longueur de pénétration magnétique de la famille  $Ba(Fe_{1-x}Ni_x)_2As_2$ , mesurée dans [43], qui suggère la présence de noeuds dans le gap supraconducteur des composés surdopés, tels que celui étudié ici.

Nous avons donc également testé une interprétation des données expérimentales en termes d'un petit gap nodal de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  mesuré sur l'axe  $\hat{c}$  du cristal, interprétation qui semblait peut-être plus à même de décrire la forme triangulaire du pic de basse énergie observé. Mais comme mentionné précédemment, après ajustement, ce modèle s'est révélé présenter un accord identique aux données expérimentales (fig. 3.14). Toutefois, il est intéressant de mentionner les différences d'interprétation existant entre ces deux modèles à basse température :

- Le modèle de symétrie  $d$  conduit à la prédiction d'un petit gap supraconducteur d'amplitude un peu plus élevée ( $4.7 \pm 0.1$  meV).
- L'élargissement prévu pour le petit gap est un peu plus faible ( $1.97 \pm 0.09$  meV), la forme pointue du spectre observée étant mieux reproduite par le modèle  $d$  à élargissement faible.

Les autres paramètres du modèle ajusté ne sont, comme on pourrait s'y attendre, pas modifiés de façon significative par ce changement d'interprétation.

On peut aussi suivre l'évolution des gaps supraconducteurs ajustés en température (fig. 3.15). Les deux modèles conduisent à des prédictions relativement raisonnables, compatibles avec la température critique d'environ 14 K mesurée sur cet échantillon.

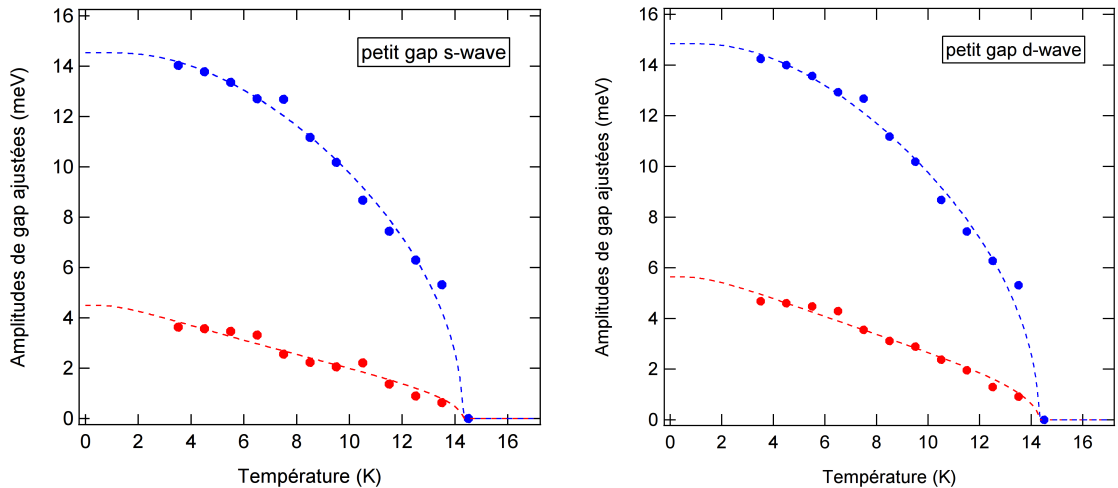


FIGURE 3.15 – Evolution en température des gaps ajustés par le modèle BTK en supposant que le petit gap soit isotrope (gauche) et de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  (à droite). Les lignes pointillées sont des guides à l'œil.

Il n'est donc pas possible, à partir des mesures effectuées ici, de discriminer entre ces deux hypothèses théoriques. Pour ce faire, il sera plus pertinent d'avoir recours à des techniques de mesures plus fortement résolues en vecteur d'onde, telles que l'ARPES et la spectroscopie à effet tunnel.





# Chapitre 4

## Oscillations de conductance hors-équilibre

### 4.1 Observations expérimentales

#### Introduction

Lors de mesures effectuées sur  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$  dans le but de déterminer ses gaps supraconducteurs via le modèle BTK, un signal supplémentaire a été observé dans les spectres de conductance différentielle correspondant à des jonctions fortement conductrices, c'est à dire à faible barrière dans le modèle BTK. Le signal se présente sous la forme d'une série de maxima locaux sur les spectres de conductance différentielle observés (fig. 4.1), espacés de façon relativement régulière avec un espacement moyen d'environ 4 mV, et d'amplitude décroissante avec la tension observée.

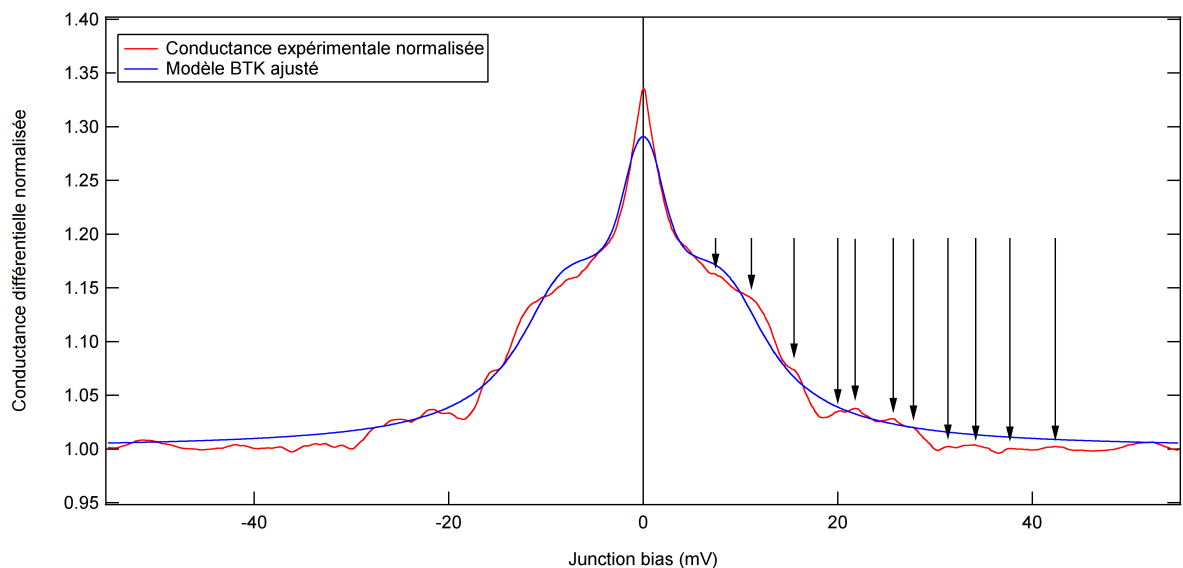


FIGURE 4.1 – Conductance différentielle d'une jonction à faible barrière (rouge) et modèle BTK à deux gaps (bleu). On peut constater la présence d'une série de maxima locaux (flèches noires) dont l'existence n'est pas prévue par le modèle BTK. Notez que les premiers maxima sont assez intenses pour interférer avec l'ajustement du modèle.

Ces maxima sont symétriques en tension, et extrêmement reproductibles d'une mesure à l'autre sur une jonction donnée. Ils sont également bien trop nombreux pour être interprétés comme autant de gaps supraconducteurs dans le modèle BTK, ou comme le signe de l'interaction des porteurs de charge injectés dans l'échantillon avec autant de modes bosoniques. Il semble donc plus raisonnable d'interpréter les spectres observés comme la somme du signal attendu par ces deux interprétations avec un autre signal, oscillant et quasi-périodique, de faible amplitude.

La faible amplitude de ce signal n'est toutefois pas un obstacle, puisque nous pouvons utiliser son caractère rapidement oscillant pour l'extraire du fond intense prédit par le modèle BTK, via une procédure de traitement du signal présentée dans l'annexe A. Les résultats de cette procédure de filtrage sont fournis pour référence figure 4.2, où on peut observer qu'elle permet efficacement de séparer le signal oscillant étudié du fond intense prédit par le modèle BTK. On peut aussi observer sur la transformée de Fourier du signal filtré qu'il est assez éloigné d'une sinusoïde pure, mais que l'essentiel de son énergie est néanmoins concentrée aux fréquences  $50 - 200 \text{ V}^{-1}$ .

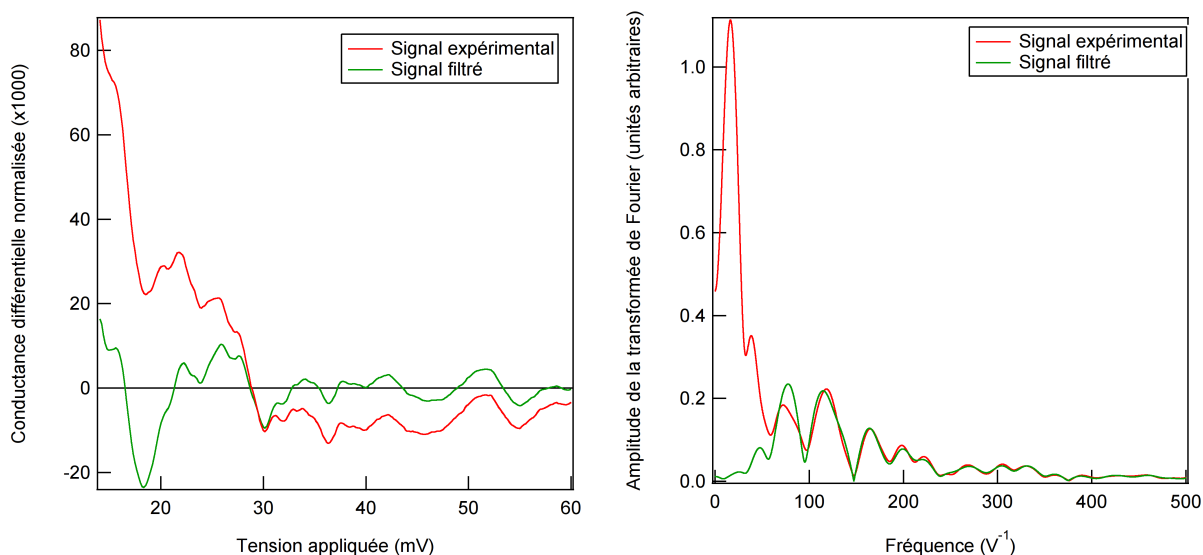


FIGURE 4.2 – A gauche, signal expérimental (rouge) et filtré (vert). A droite, amplitudes de leurs transformées de Fourier respectives.

Cependant, la procédure de traitement du signal utilisée ne permettra pas d'éliminer d'autres contributions au signal de conductance différentielle observé qui ne sont pas prévues par le modèle BTK, telles que la signature d'un éventuel mode bosonique.

### 4.1.1 Evolution en température

Une fois l'oscillation étudiée extraite du signal de conductance différentielle, il est beaucoup plus facile d'étudier son évolution lorsque les paramètres de contrôle de l'expérience sont modifiés. La figure 4.3 représente ainsi son évolution lors de deux séries de mesures distinctes, où la température de l'échantillon a été variée de 5.5 K à 12.5 K.

On peut constater que le signal observé n'est pas seulement translaté en tension lorsque  $T$  augmente, comme on s'y attendrait dans le cas d'un phénomène spectroscopique à un électron déplacé en énergie par l'ouverture du gap supraconducteur [42, 60]. L'espacement

entre ses maxima locaux se resserre en effet de façon significative sur la gamme de température observée. Ce comportement suggère que le phénomène étudié est directement influencé par la température, et peut-être par la valeur du gap supraconducteur.

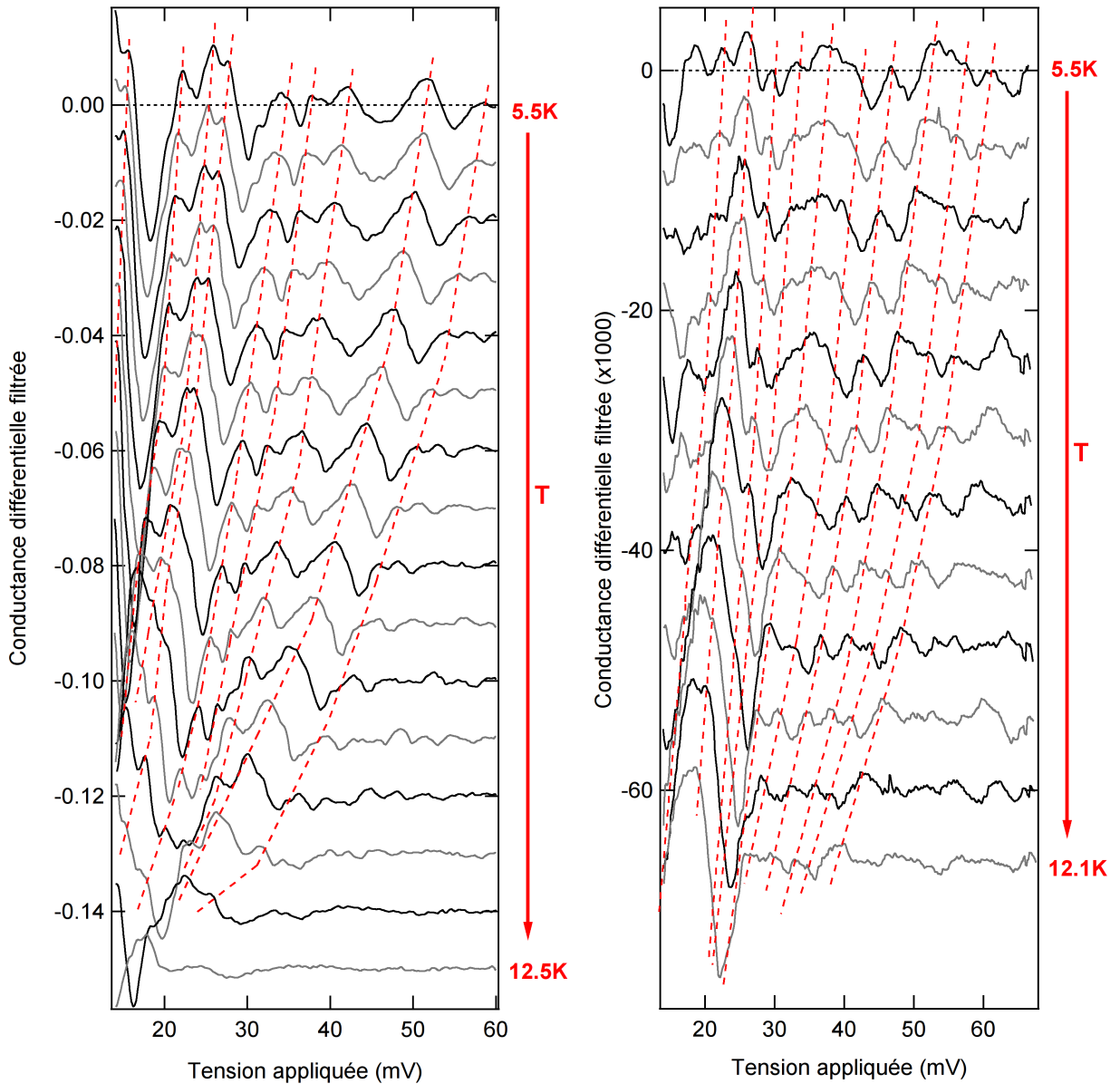


FIGURE 4.3 – Evolution en température des oscillations étudiées, sur deux contacts ponctuels de résistance dans l'état normal  $R_N \approx 6 \Omega$  : des traces supérieures aux traces inférieures, on a représenté le signal extrait pour des températures croissantes. Les pointillés rouges sont des guides à l'oeil suivant le déplacement des maxima locaux du signal.

De plus, l'intensité du signal observé diminue à haute température, et ce dernier n'a jamais été observé au-dessus de la température critique de l'échantillon. Cet effet montre qu'il existe un lien entre les oscillations étudiées et la supraconductivité de l'échantillon.

En essayant de tracer le signal observé sur une abscisse renormalisée par l'amplitude d'un des gaps de l'échantillon, celui de plus faible amplitude par exemple, on peut aussi remarquer que sur cette échelle horizontale, la position des maxima locaux repérés précédemment est presque constante (fig. 4.4). Ceci montre que l'espacement entre maxima

successifs est approximativement proportionnel au gap supraconducteur, et fournit donc une preuve supplémentaire de l'existence d'un lien entre le phénomène observé et la supraconductivité de l'échantillon.

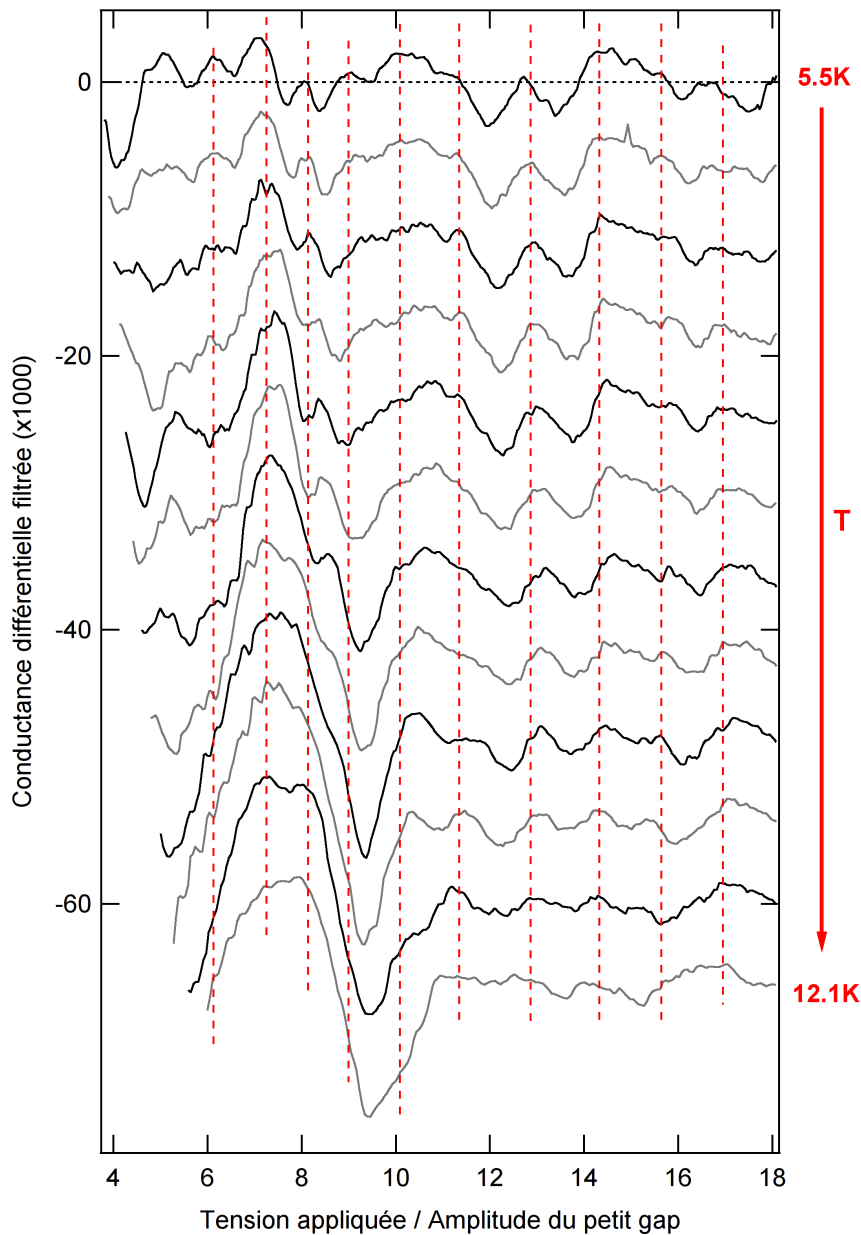


FIGURE 4.4 – Evolution en température des oscillations étudiées, sur une échelle renormalisée par l'amplitude d'un des gaps supraconducteurs de l'échantillon. Les traits pointillés rouges sont des guides à l'oeil représentant l'évolution attendue des maxima locaux si leur position en tension était proportionnelle au gap supraconducteur. L'hypothèse semble qualitativement vérifiée par la plupart des maxima locaux pointés.

#### 4.1.2 Effet de la résistance de contact

Pour caractériser le phénomène observé, un autre paramètre expérimental sur lequel on peut agir est la résistance de la jonction dans l'état normal  $R_N$ , qui est dominée par la résis-

tance de contact  $R_C$  de cette dernière. Etudier ce paramètre permet en effet de déterminer si l'effet observé est de nature purement spectroscopique, donc lié à l'injection de porteurs de charge d'une énergie  $E$  bien précise dans le matériau ; ou s'il est au moins partiellement hors-équilibre, donc influencé par l'intensité du courant injectée dans l'échantillon.

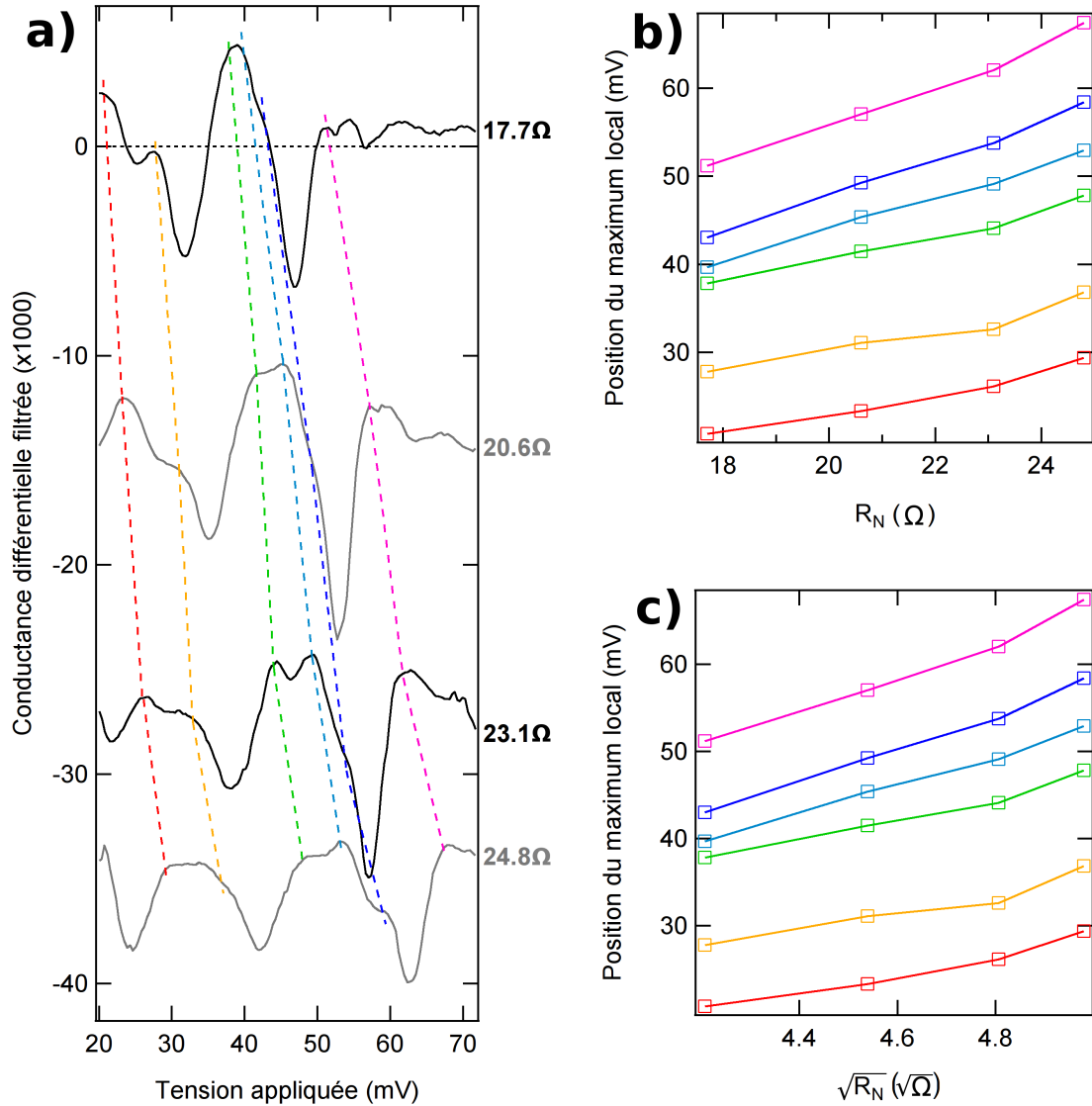


FIGURE 4.5 – Evolution des oscillations étudiées avec la résistance de contact : (a) Des traces supérieures aux traces inférieures, on a représenté le signal extrait pour des résistances variables. Les traits pointillés sont des guides à l'oeil suivant le déplacement des maxima locaux du signal. (b) et (c) représentent respectivement la position des maxima en fonction de la résistance de contact et de sa racine carrée

En effet, dans le cas d'un effet spectroscopique, si l'on change la résistance de contact de l'échantillon, on s'attend à ce que la position en tension des maxima et minima locaux de conductance différentielle ne soit pas modifiée. Comme dans le modèle BTK, la forme exacte du spectre observé peut changer considérablement lorsque les conditions de contact varient, mais la position des extrema est liée à des résonances énergétiques dans l'échantillon et ne dépendra donc pas des conditions d'injection d'électrons. A contrario, pour un effet

hors-équilibre, la position de ces maxima et minima est au moins partiellement liée au courant d'injection  $I \approx \frac{V}{R_N}$ , et est donc sujette à se modifier drastiquement.

Comme on le voit figure 4.5.a), l'influence d'une variation de résistance de contact, même faible (moins d'un facteur 2), est considérable. La position des maxima et minima de tension associés aux oscillations de conductance observées est ainsi énormément modifiée lorsque l'on ajuste ce paramètre expérimental. On peut en déduire que le phénomène étudié est au moins partiellement issu d'une physique hors-équilibre.

Partant de là, il est possible d'explorer des modèles phénoménologiques simples :

- La position en tension des maxima locaux pourrait être linéaire en  $R_N$ , donc indépendante de  $R_N$  sur une échelle en courant injecté dans le contact  $I \approx \frac{V}{R_N}$ .
- Elle pourrait aussi être linéaire en  $\sqrt{R_N}$ , donc indépendante de  $R_N$  sur une échelle en puissance dissipée par effet Joule  $P \approx \frac{V^2}{R_N}$ .

Malheureusement, comme on peut le voir figures 4.5.b) et 4.5.c) la plage de résistances de contact explorée dans le cadre de cette thèse s'est avérée trop faible pour pouvoir valider ou invalider ces différentes hypothèses.

## 4.2 Interprétation théorique du phénomène

### 4.2.1 Etat de l'art

L'étude de la littérature scientifique concernant l'observation de signaux oscillants en spectroscopie de pointe sur des supraconducteurs conduit principalement à des modèles de systèmes multicouches, comprenant des régions normales et supraconductrices dont au moins une est mince devant un paramètre physique du système (longueur de cohérence  $\xi$ , libre parcours moyen électronique). On peut ainsi mentionner les modèles fournis par Tomasch [70], Rowell et McMillan [59], ou de Gennes et Saint-James [14].

#### Modèle de Tomasch

Le modèle de Tomasch décrit des résonances de conductance différentielle dans des films supraconducteurs minces. Dans ce système, des cycles résonants de réflexion d'Andreev et de réflexion d'Andreev inverse causent des interférences constructives ou destructives de quasiparticules de Bogoliubov, selon l'énergie  $E$  des porteurs injectés dans le système.

En notant  $v_F$  la vitesse de Fermi du supraconducteur,  $\Delta$  son gap, et  $d$  l'épaisseur de la région supraconductrice, on s'attend alors à avoir une conductance différentielle maximale pour des électrons incidents d'énergie

$$E_\eta = \sqrt{\Delta^2 + \left(\frac{\pi\hbar v_F}{d}\eta\right)^2} \quad \text{avec } \eta \in \mathbb{Z}$$

Pour  $\eta$  faible, l'espacement entre énergies de résonance successives est irrégulier, mais dans la limite de  $\eta$  élevé, il tend vers une limite constante avec  $(E_{\eta+1} - E_\eta) \rightarrow \pi\hbar v_F/d$ . Pour que ce modèle corresponde à l'espacement en énergie de l'ordre de  $\Delta$  observé expérimentalement, il faudrait donc avoir  $\pi\hbar v_F/d \approx \Delta$ , soit  $d \approx \pi\hbar v_F/\Delta = \pi^2\xi$  avec  $\xi$  la longueur de cohérence de Pippard du supraconducteur.

Cette condition théorique semble incompatible avec l'épaisseur des monocristaux supraconducteurs massifs étudiés ( $\approx 100 \mu m$ ), et il est difficile d'envisager un mécanisme hors-équilibre pouvant créer localement une couche supraconductrice de faible épaisseur.

### Modèles de Rowell–McMillan et de Gennes–Saint-James

De leur côté, les modèles de Rowell et McMillan et de Gennes et Saint-James sont en fait deux descriptions alternatives du même système, un film métallique mince devant son libre parcours moyen  $l$  dont une des faces est en contact avec un matériau supraconducteur et dont l'autre extrémité est au moins partiellement réfléchissante.

Dans ce système, des cycles résonants de réflexion Andreev et de réflexion Andreev inverse sont aussi possibles à l'interface entre la région métallique et la région supraconductrice, causant des interférences d'électrons ou de trous dans la région métallique, avec pour conséquence une conductance différentielle présentant des oscillations. On prédit alors la période d'oscillation

$$\delta E = \frac{\pi \hbar v_F}{2d}$$

Pour avoir une période en énergie de l'ordre de  $\Delta$  dans ce modèle, il faudrait donc avoir une région métallique de largeur  $d \approx \pi \hbar v_F / (2\Delta)$ . Encore une fois, le dispositif expérimental ne semble pas présenter cette caractéristique à l'équilibre thermodynamique. En revanche, on peut ici aisément envisager la formation hors-équilibre d'une région métallique, par transition du supraconducteur vers l'état normal près du point d'injection de courant.

### Adéquation à la phénoménologie observée

En tant que tels, les modèles introduits précédemment sont insuffisants pour décrire la phénoménologie observée ici, puisqu'ils ne peuvent expliquer ni l'origine d'une couche mince métallique ou supraconductrice au sein du système étudié, ni l'effet de la résistance de contact décrit précédemment. Ils peuvent toutefois constituer une partie de l'explication, pour peu que l'on puisse prouver qu'il se forme, sous l'effet de phénomènes hors équilibre, une hétérostructure adéquate dans la jonction étudiée.

Dans ce cas, l'hypothèse la plus naturelle est celle de la formation spontanée d'une région métallique dans le supraconducteur, par transition vers l'état normal, les dimensions géométriques de cette structure dépendant du courant électrique injecté. C'est cette hypothèse qui a été explorée par Arthur Hahn et ses collaborateurs dans [24, 25, 26], suite à l'observation par ces derniers d'une phénoménologie similaire à celle étudiée ici dans des jonctions Ag/Ta.

Dans ce chapitre, nous allons discuter le modèle produit par ces chercheurs, avant de l'appliquer au système qui nous préoccupe. Suivant leur approche historique, nous allons séparer l'étude de ce système en deux parties : la phénoménologie de la jonction métal-métal-supraconducteur résultante d'une part, et la formation d'une région métallique dans un supraconducteur sous l'effet de l'injection d'un courant électrique d'autre part.

## 4.2.2 Modélisation d'une jonction métal-métal-supraconducteur

### Présentation du modèle

L'annexe B présente le calcul théorique complet de la conductance différentielle d'une jonction métal-métal-supraconducteur. Ce calcul se base, comme le modèle BTK historique, sur la résolution des équations de Bogoliubov–De Gennes dans une géométrie simplifiée à une dimension.



On en déduit la conductance différentielle normalisée  $G(V)$  d'une telle jonction :

$$\left\{ \begin{array}{l} G(V) = \frac{T(eV, L)}{\tau_N} + \frac{1}{e\tau_N} \times \frac{dL}{dV} \int_0^{eV} \frac{dT}{dL}(E, L) dE \\ T(E, L) = \tau_N \times \frac{1 + \tau_N x + (\tau_N - 1)x^2}{1 + 2(\tau_N - 1)x \cos [2(\alpha(L) - \phi)] + (\tau_N - 1)^2 x^2} \\ \tau_N = \frac{1}{Z_{\text{eff}}^2 + 1} \\ x = \begin{cases} \frac{|E - \sqrt{E^2 - \Delta^2}|}{E + \sqrt{E^2 - \Delta^2}} & \text{pour } E \geq \Delta \\ 1 & \text{pour } E < \Delta \end{cases} \\ \alpha(L) = \frac{2LE}{\hbar v_F^>} \text{ avec } v_F^> \text{ la vitesse de Fermi du supraconducteur} \\ \phi = \begin{cases} 0 & \text{pour } E \geq \Delta \\ \arccos(E/\Delta) & \text{pour } E < \Delta \end{cases} \end{array} \right.$$

Le calcul n'est pas complet sans une expression de la loi  $L(V)$  reliant la taille  $L$  de la région métallique de l'échantillon à la tension  $V$  appliquée aux bornes de la jonction. Toutefois, il est déjà possible d'explorer les prédictions de ce modèle en y injectant une loi  $L(V)$  simplifiée, ce que nous allons faire dans la section suivante.

Au préalable, remarquons que la conductance différentielle  $G(V)$  de la jonction est une somme de deux termes. Le premier terme est proportionnel à la transmission  $T(E)$  de la jonction pour des électrons incidents d'énergie  $eV$ , et peut donc être comparé dans une certaine mesure à la conductance différentielle prédite par le modèle BTK. En revanche, le second terme représente l'effet de la variation de  $L$  lorsque  $V$  varie, et est donc purement issu de la phénoménologie hors-équilibre du système.

Ces deux termes ayant un comportement qualitativement distinct dans certaines circonstances que nous allons détailler, il sera parfois utile de les étudier séparément. Nous noterons dans ce cas le premier terme  $G_1(V)$  et le second terme  $G_2(V)$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} G_1(V) = \frac{T(eV, L)}{\tau_N} \\ G_2(V) = \frac{1}{e\tau_N} \times \frac{dL}{dV} \int_0^{eV} \frac{dT}{dL}(E, L) dE = \frac{1}{e} \times \frac{dL}{dV} \times \frac{\partial}{\partial L} \left( \int_0^{eV} \frac{T(E, L)}{\tau_N} dE \right) \Big|_V \end{array} \right.$$

### Prédictions dans un modèle simplifié de $L(V)$

Pour tester le modèle ci-dessus dans un cadre théorique simplifié, supposons que l'ensemble des lois physiques gouvernant la croissance de la région métallique de l'échantillon soient linéaires :

$$\left\{ \begin{array}{l} I \propto V \\ L \propto I \end{array} \right.$$

La première approximation revient à linéariser la caractéristique courant-tension de l'échantillon étudié, et donc à négliger la contribution de la réflexion d'Andreev et des variations de densité d'états monoélectroniques liées au gap supraconducteur. Pour des jonctions métal-supraconducteur de barrière BTK  $Z$  relativement faible, ou pour des tensions  $V \gg \Delta/e$  cela introduit au plus une erreur d'un facteur 2 sur le courant circulant dans la jonction, qui tend à diminuer quand  $V$  croît. Une telle approximation est donc raisonnable pour analyser les prédictions qualitatives du modèle étudié.

La seconde approximation revient, dans la géométrie unidimensionnelle de notre modèle, à supposer que la supraconductivité de l'échantillon est détruite sur un volume proportionnel au courant  $I$  injecté dans la jonction. En combinant cette approximation avec la précédente, on a  $L \propto V$ .

Le modèle ci-dessus n'étant pas renormalisable pour éliminer sa dépendance vis-à-vis des paramètres du système physique considéré, il est nécessaire d'y injecter ces derniers. Pour cette application numérique, nous allons utiliser les paramètres du petit gap supraconducteur de  $Ba(Fe_{0.94}Ni_{0.06})_2As_2$ , puis nous verrons plus tard comment étendre ce modèle pour prendre en compte les deux gaps du composé. Ces paramètres sont :

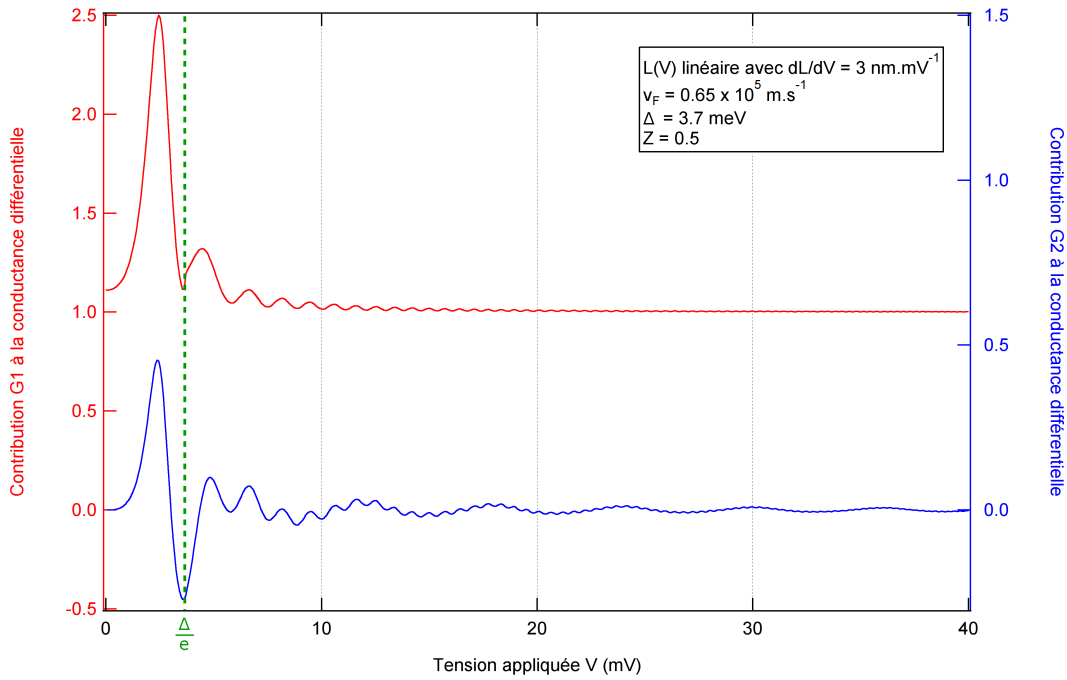
$$\begin{cases} \Delta = 3.7 \text{ meV} \\ v_F = 0.65 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1} \end{cases}$$

La valeur proposée pour  $\Delta$  a été déterminée dans la section 3.5 par ajustement d'un modèle BTK à deux gaps isotropes à un spectre de conductance différentielle typique, tandis que la valeur de  $v_F$  utilisée a été mesurée par ARPES sur  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$  [9]. Les deux composés ne différant que par le type de dopant, il est raisonnable de penser que leurs surfaces de Fermi, et à fortiori leurs vitesses de Fermi, seront similaires.

Un autre paramètre que nous devons fixer pour pouvoir calculer les résultats du modèle est la pente  $\frac{dL}{dV}$  de la loi linéaire  $L(V)$  utilisée. Nous avons vu dans les conclusions de l'annexe B que l'échelle d'énergie caractéristique pour ce modèle à  $L$  constant est de l'ordre de  $\Delta$ , et que l'échelle de longueur caractéristique pour  $L$  à  $E$  constant est de l'ordre de  $\pi^2\xi/2$  avec  $\xi = \frac{\hbar v_F}{\pi\Delta} \approx 2 \text{ nm}$  la longueur de cohérence de Pippard associée au gap étudié. Par conséquent, un bon point de départ semble être  $\frac{dL}{dV} = e\frac{\pi^2\xi}{2\Delta} \approx 3 \text{ nm.mV}^{-1}$ , même si nous étudierons bien sûr ensuite l'effet d'une variation de ce paramètre.

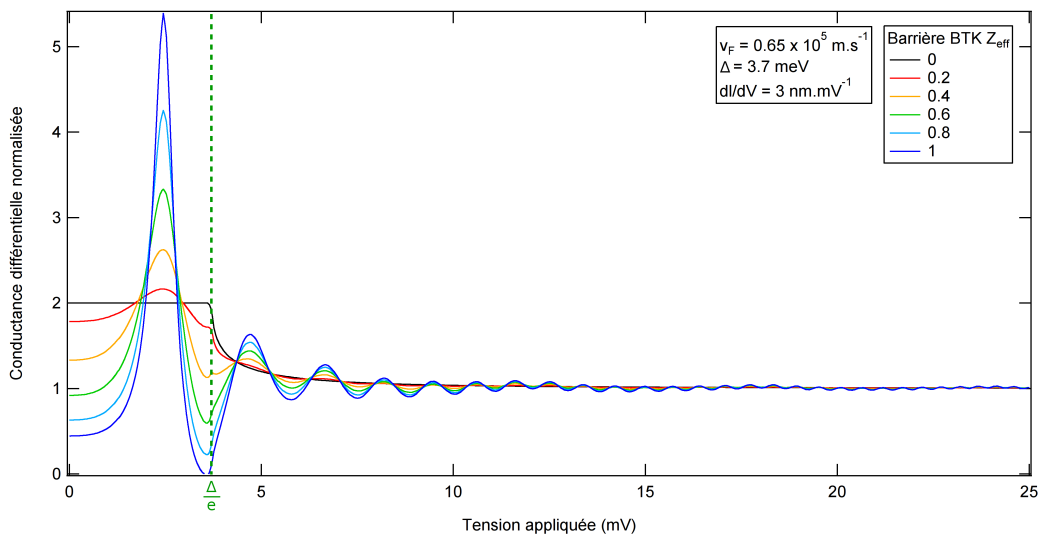
Pour une barrière BTK intermédiaire de  $Z = 0.5$ , on en déduit les  $G_1(V)$  et  $G_2(V)$  représentés figure 4.6. On peut voir que les contributions  $G_1$  et  $G_2$  à la conductance différentielle de la jonction présentent, comme annoncé précédemment, des différences qualitatives :

- $G_1$  possède une composante continue de 1, qui correspond à la conductance différentielle de la jonction dans l'état normal.
- $G_1$  et  $G_2$  possèdent des résonances rapides qui s'atténuent rapidement quand  $V$  croît, sur une échelle de tension caractéristique de  $\Delta/e$  (cf annexe B). On peut les associer aux résonances spectroscopiques d'une jonction métal-métal-supraconducteur dont la région métallique centrale est de taille  $L(V)$  fixée.
- $G_2$  possède un terme résonant variant plus lentement, mais dont l'atténuation avec  $V$  est aussi nettement moins prononcée. Il est possible de relier ce terme à l'entrée de sous-bandes électroniques de la région normale de l'échantillon au sein de son gap supraconducteur ( $|E| < \Delta$ ), qui se produit pour  $L$  multiple de  $\pi^2\xi/2$  [24, 26].

FIGURE 4.6 –  $G_1(V)$  et  $G_2(V)$  calculés pour les paramètres initiaux

Procédons maintenant à l'étude de l'influence des différents paramètres du modèle. Le paramètre dont l'influence est la plus simple à comprendre est la barrière BTK  $Z$ , puisque ce paramètre contrôle directement l'amplitude des oscillations étudiées. En effet, plus  $Z$  est faible, plus la transmission électronique  $\tau_N$  de la jonction dans l'état normal est proche de 1, plus le terme en  $\cos[2(\alpha(L) - \phi)]$  de la transmission électronique  $T(E)$  de la jonction devient négligeable, et donc plus la conductance différentielle du système se rapproche du modèle BTK historique.

Cet effet est illustré figure 4.7 et peut être interprété en remarquant que des réflexions résonantes de quasiparticules ne peuvent se produire dans la région normale de l'échantillon que si des quasiparticules sont piégées au sein de cette région par une barrière d'interface.

FIGURE 4.7 – Evolution en  $Z$  de la conductance différentielle prédite

Par ailleurs, pour une jonction métal-supraconducteur, on s'attendrait dans le cadre du modèle BTK à observer un pic de conductance différentielle localisé en  $V = \frac{\Delta}{e}$  (cf p. 48). Or, nous observons ici un pic de conductance différentielle à une tension plus faible, suivie d'une chute de la conductance différentielle.

Le décalage vers les faibles  $V$  du pic de conductance différentielle s'explique par l'existence de sous-bandes électroniques d'énergie  $E < \Delta$  dans la région métallique de l'échantillon. Or, des chutes de conductance différentielle similaires en  $V \leq \frac{\Delta}{e}$  sont souvent observées expérimentalement en spectroscopie de pointe. Ces chutes de tension pourraient être le signe de la formation spontanée d'une jonction métal-métal-supraconducteur, auquel cas traiter les spectres obtenus par le modèle BTK amènerait à sous-estimer  $\Delta$ .

L'influence du gap supraconducteur sur ce modèle est plus complexe, car ce paramètre intervient de plusieurs façons :

- Il fixe l'échelle d'énergie caractéristique pour l'atténuation de la composante oscillante du dénominateur de  $T(E)$ , puisque cette dernière est proportionnelle à  $x$ , et  $x$  est équivalent à  $\Delta^2/(4E^2)$  quand  $E \gg \Delta$ .
- Il détermine la plage d'énergie sur laquelle la supraconductivité modifie significativement le comportement de l'interface métal-supraconducteur de la jonction.
- Il modifie également l'échelle de  $L$  caractéristique  $\pi^2\xi/2 = \pi\hbar v_F/(2\Delta)$  associée au comportement du système à énergie constante, et à l'entrée de sous-bandes électroniques au sein du gap supraconducteur.

Pour cette raison, il est préférable de séparer ici l'effet de  $\Delta$  sur  $G_1(V)$  et  $G_2(V)$ . La figure 4.8 représente l'effet d'une variation de  $\Delta$  de 1 à 3 meV sur ces deux quantités, où on peut constater que l'on a bien un effet sur l'amplitude des oscillations de  $T(E)$  (visible directement dans  $G_1$  et indirectement dans  $G_2$ ), une variation de l'échelle de basse énergie sur laquelle le comportement du système change qualitativement, et une modification de la période des oscillations de  $G_2$ .

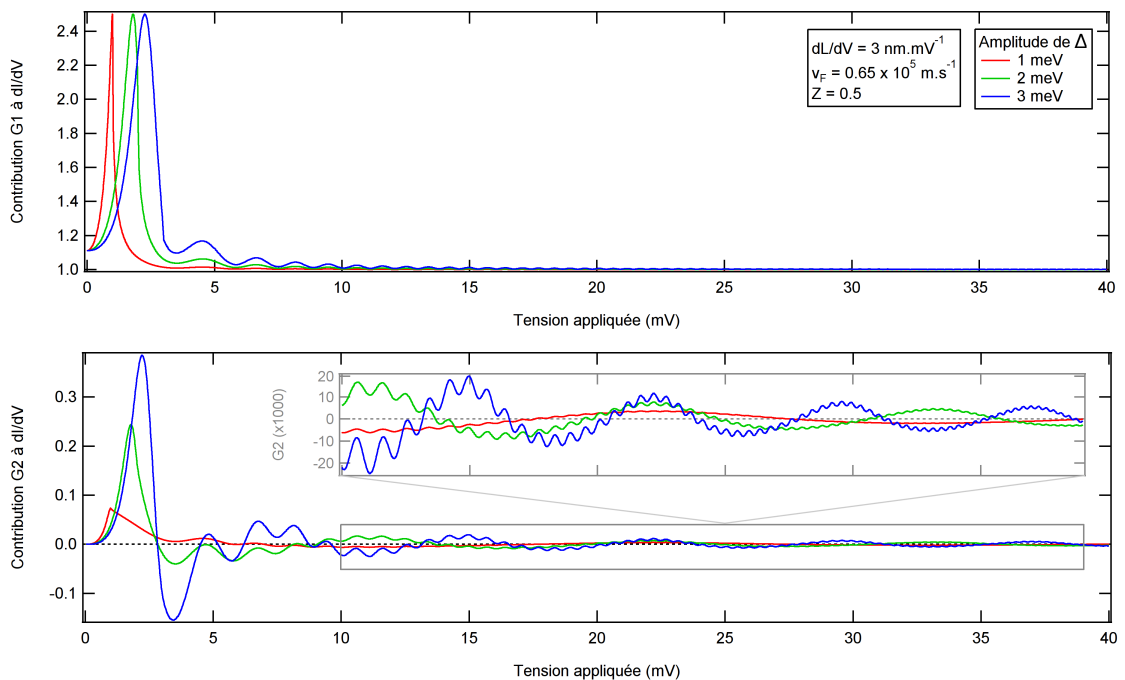


FIGURE 4.8 – Evolution de  $G_1$  et  $G_2$  pour  $\Delta$  variant de 1 à 3 meV

On peut aussi observer que quand  $\Delta$  augmente, la largeur du pic de conductance pour  $V < \frac{\Delta}{e}$  augmente également. Il est alors plus clair que ce pic est de forme plus diffuse que ceux prévus par BTK à température nulle (cf p. 48). Par conséquent, on peut ajouter aux considérations précédentes que **tenter d'ajuster les prédictions de ce modèle par un modèle BTK conduira à la prédiction d'un élargissement inélastique  $\Gamma$  plus élevé que l'élargissement réel**. Ceci pourrait expliquer les élargissements inélastiques très élevés (par exemple de l'ordre de l'ordre de plusieurs meV dans [55]) qui sont parfois nécessaire à la reproduction théorique des spectres de conductance mesurés.

Pour des gaps supraconducteurs plus élevés (fig. 4.9), on peut aussi observer l'entrée de sous-bandes d'états monoélectroniques au sein du gap supraconducteur.

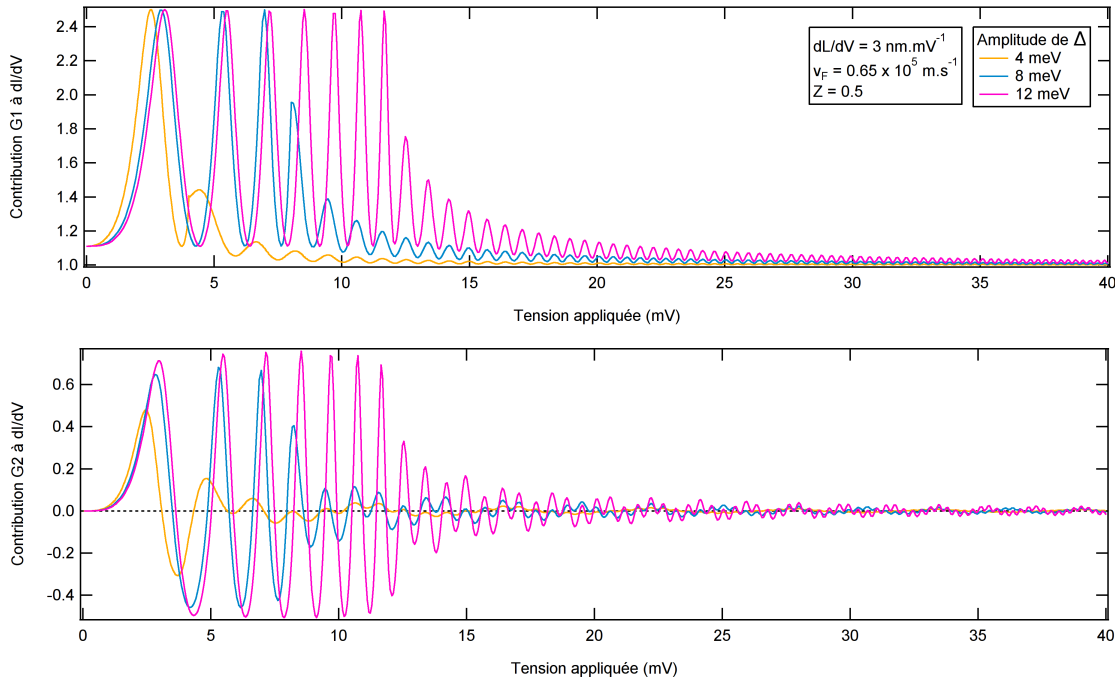


FIGURE 4.9 – Evolution de  $G1$  et  $G2$  pour  $\Delta$  variant de 4 à 12 meV

Dans le contexte de nos observations expérimentales, il est intéressant d'étudier l'effet de  $\Delta$  sur la quasi-période des oscillations de conductance prédites à  $V > \Delta$ . On peut aisément voir sur les figures 4.8 et 4.9 que la quasi-période  $T_1$  de l'oscillation haute fréquence commune à  $G_1(V)$  et  $G_2(V)$  ne dépend pas de  $\Delta$ . En revanche, la quasi-période  $T_2$  des oscillations basse fréquence de  $G_2(V)$  en dépend, avec une loi qu'on peut ajuster par un modèle en  $T_2 \propto \Delta^{-1}$  avec une excellente précision (fig. 4.10).

Dans notre modèle simplifié de  $L(V)$ , où on a  $L \propto V$  avec un coefficient de proportionnalité indépendant de  $\Delta$ , cette observation confirme l'existence d'un lien entre l'oscillation basse fréquence de  $G_2(V)$  et l'entrée de sous-bandes au sein du gap supraconducteur pour  $L$  multiple de  $\frac{\pi^2 \xi}{2} \propto \Delta^{-1}$ . **Mais elle n'est pas compatible avec l'observation expérimentale d'une quasi-période presque proportionnelle à  $\Delta$ , qui ne peut émerger que de la dépendance en  $\Delta$  de la loi  $L(V)$  réelle.**

Nous pouvons calculer explicitement quelle condition une loi  $L(V)$  linéaire devrait vérifier pour obtenir une loi  $T_2(\Delta)$  compatible avec l'expérience. Pour ce faire, notons  $\beta$  le coefficient directeur de la loi  $L(V)$ , avec  $L = \beta V$ . Si l'on a un maximum local de l'oscillation

lente de  $G_2(V)$  pour  $L$  multiple de  $\frac{\pi^2\xi}{2}$ , alors on a un tel maximum pour  $V$  multiple de  $\frac{\pi^2\xi}{2\beta}$ . Par conséquent,

$$T_2 = \frac{\pi^2\xi}{2\beta} = \frac{\pi\hbar v_F}{2\Delta\beta}$$

Dans cette relation, une dépendance de  $T_2$  en  $\Delta$  ne peut émerger que de la présence explicite de ce paramètre au dénominateur de  $T_2$ , ou d'une dépendance implicite de  $\beta$  en  $\Delta$ . On a par conséquent, dans un modèle linéaire :

$$T_2 \propto \Delta \iff \beta \propto \frac{1}{\Delta^2}$$

Ce raisonnement peut être adapté à tout type de loi  $L(V)$ , y compris à des lois non-linéaires, du moment qu'il est possible de relier mathématiquement la périodicité de la conductance en  $V$  à sa périodicité en  $L$ . Dans la section suivante, nous l'appliquerons à l'un de nos modèles pour  $L(V)$ , qui prédit une relation presque linéaire entre ces quantités dans une certaine gamme de paramètres physiques.

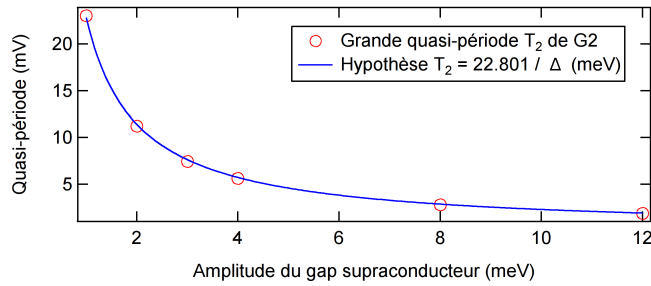


FIGURE 4.10 – Evolution de la grande quasi-période de  $G_2$  quand  $\Delta$  varie

Enfin, les deux paramètres du modèle dont nous n'avons pas encore étudié l'effet sont la loi  $L(V)$  utilisée et la vitesse de Fermi  $v_F$  du matériau. En pratique, ces deux paramètres n'interviennent dans le modèle que par le biais du quotient  $L/v_F$  présent dans  $\alpha(L)$ , donc pour une loi  $L(V)$  linéaire, il suffit d'étudier l'influence de la pente de  $L(V)$  pour comprendre l'influence de  $v_F$  et vice versa. Ici, nous étudierons l'effet de  $dL/dV$ .

Un changement de  $dL/dV$ , donc de la vitesse à laquelle le supraconducteur transite vers l'état normal, a plusieurs effets distincts sur le système :

- Si, partant de  $dL/dV = 0$  (cas du modèle BTK), on augmente  $dL/dV$ , on s'attend à observer une apparition graduelle des oscillations de conductance. C'est effectivement ce qui est observé figure 4.11.
- $dL/dV$  étant en préfacteur de  $G_2(V)$ , on s'attend à observer une augmentation de  $G_2$  relativement à  $G_1$  quand ce paramètre croît. Mais en pratique, cela n'est vrai qu'à faible  $V$  (cf fig. 4.12), ce qui suggère qu'un terme en  $dV/dL$  émerge au sein de la portion non analytique de  $G_2$  pour  $V \gg \Delta$ .
- Si  $L$  augmente plus rapidement avec  $V$ , on s'attend à ce que la période des oscillations rapides de  $G_1$  et  $G_2$ , qui est directement reliée à celle de l'oscillation du dénominateur de  $T(E)$ , diminue en proportion. Cet effet est observable figure 4.12.
- De plus, si  $dL/dV$  augmente, on s'attend aussi à ce que des sous-bandes pénètrent plus rapidement dans le gap supraconducteur, avec pour résultat un plus grand

nombre de sous-bandes visibles dans  $G_1(V)$  à faible énergie d'une part, et une diminution de la période de l'oscillation lente de  $G_2(V)$  en proportion d'autre part. C'est ce qui est observé figure 4.12.

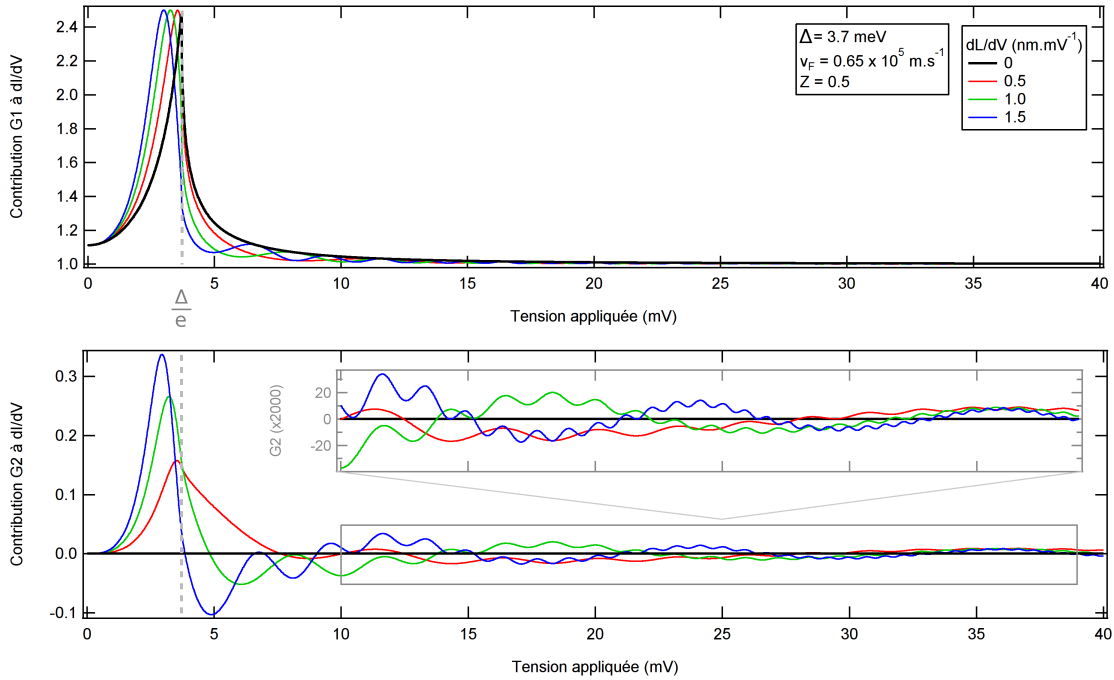


FIGURE 4.11 – Evolution de  $G_1$  et  $G_2$  pour  $dL/dV$  variant de 0 à  $1.5 \text{ nm.mV}^{-1}$

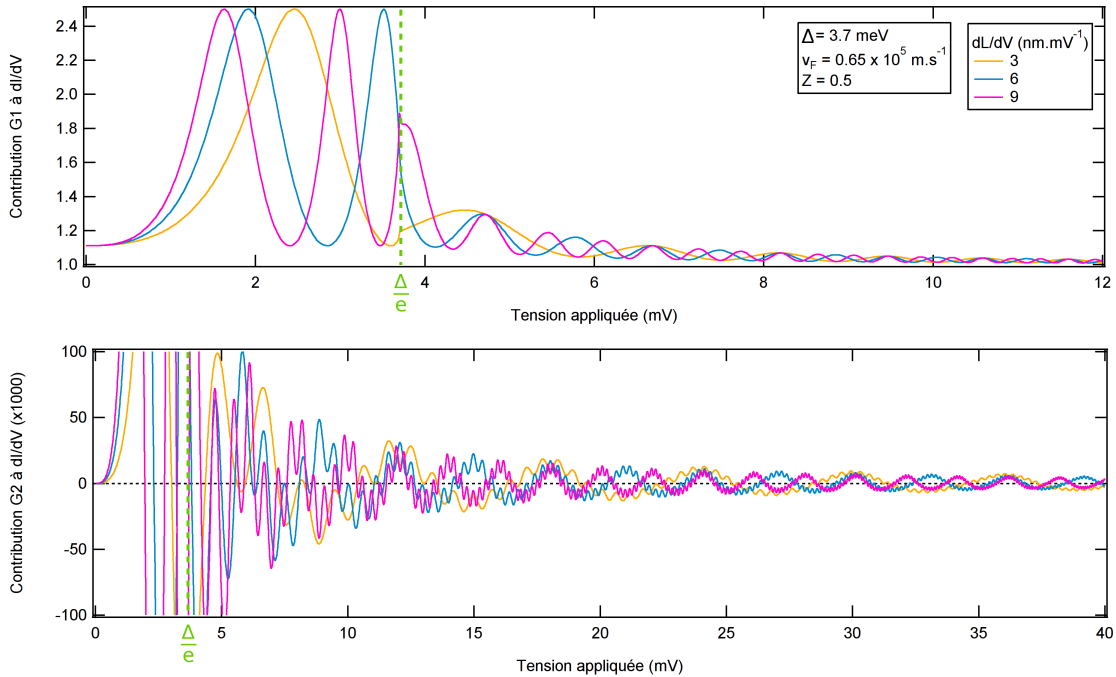


FIGURE 4.12 – Evolution de  $G_1$  et  $G_2$  pour  $dL/dV$  variant de 3 à  $9 \text{ nm.mV}^{-1}$

### Extensions possibles au modèle

Pour conclure cette partie, nous pouvons revenir à la question, introduite précédemment, de la généralisation de ce calcul à des conditions moins restrictives sur le gap supraconducteur et la géométrie de la jonction étudiée.

Au contraire du modèle BTK, l'adaptation de ce calcul à des géométries de jonction plus réalistes est complexe, car la fonction d'onde  $\psi(\vec{r})$  calculée doit vérifier la symétrie des états propres de la jonction. Par exemple, si l'on supposait la frontière de la région normale dans l'échantillon soit hémisphérique, ce qui serait l'hypothèse la plus naturelle pour une injection de courant ponctuelle, on devrait écrire  $\psi(\vec{r})$  dans le supraconducteur sous la forme d'une combinaison linéaire de fonctions sphériques de Hankel, également connues dans certains textes sous le nom de fonctions de Bessel de troisième espèce.

Ces fonctions n'ayant pas de forme analytique aisément manipulable, le raisonnement précédent devrait donc être repris sous la forme d'un calcul numérique adapté aux paramètres précis du problème étudié. On s'attend toutefois à ce que les résultats qualitatifs du calculs soient identiques, en particulier en ce qui concerne le rôle de  $\xi$  comme longueur caractéristique pour  $L$  associée aux résonances quantiques observés [24], et celui de  $\Delta$  comme énergie caractéristique d'atténuation du signal oscillant. La conductance différentielle finalement obtenue ne différerait des prédictions précédentes que sur des points plus mineurs, tels que l'allure quantitative des oscillations observées.

Un tel calcul numérique permettrait également de prendre en compte l'anisotropie du gap supraconducteur dans l'espace réciproque, qui n'aurait qu'à être injectée dans les équations de Bogoliubov–de Gennes sous une forme adaptée au système de coordonnées des fonctions d'onde choisies.

En revanche, la prise en compte de gaps supraconducteurs multiples est simple, et peut être réalisée avec le formalisme analytique existant. Comme dans le cas du modèle BTK, il suffit d'utiliser la linéarité des équations de Bogoliubov–de Gennes, et de constater que l'existence de plusieurs gaps supraconducteurs ne fait qu'ouvrir des canaux de conduction supplémentaires pour les quasiparticules dans la jonction.

En négligeant les interactions entre gaps, il existe donc un jeu de poids  $\omega_i$  tel que la conductance différentielle normalisée totale s'exprime en fonction des conductances  $G_i(E)$  prévues pour chaque gap supraconducteur pris isolément, sous la forme

$$G_{\text{tot}}(E) = \sum_i \omega_i G_i(E) \text{ avec } \sum_i \omega_i = 1 \quad (4.1)$$

Les remarques formulées précédemment dans le cadre de la discussion du modèle BTK à plusieurs gaps s'appliquent également toujours : chaque  $G_i(E)$  est sujet à présenter un jeu de paramètres physiques a priori indépendant, ce qui peut causer des ambiguïtés d'interprétation. Et si la détermination théorique des  $\omega_i$  est possible, elle est très fastidieuse et n'apporte pas d'information physique utile par rapport à un ajustement manuel de ces poids vis-à-vis du signal de conductance différentielle expérimental.



## 4.3 Etude de la transition vers l'état métallique

### Introduction

A ce stade, nous avons décrit comment une jonction métal-métal-supraconducteur, qui se formerait spontanément sous l'influence d'effets hors-équilibre, devrait se comporter en régime balistique. Nous avons montré qu'elle a bel et bien une conductance différentielle oscillante, dans un cadre théorique simplifié où la loi  $L(V)$  reliant l'épaisseur  $L$  de la région normale de l'échantillon à la tension  $V$  appliquée aux bornes de la jonction est linéaire.

Pour que la modélisation d'une telle jonction soit complète, il nous faut maintenant modéliser le ou les phénomènes hors-équilibre qui pourraient causer une telle transition, afin d'obtenir une loi  $L(V)$  réaliste et de pouvoir la comparer directement aux résultats expérimentaux.

Nous savons, d'après les observations expérimentales et l'étude théorique effectuées précédemment, qu'une bonne modélisation de ce phénomène doit vérifier les propriétés suivantes :

- Création dans le supraconducteur d'une région normale dont la taille est de l'ordre de  $\pi^2\xi/2$  avec  $\xi$  la longueur de cohérence de Pippard, pour des tensions aux bornes de la jonction de l'ordre de quelques millivolts à quelques dizaines de millivolts ;
- Forte sensibilité vis-à-vis de la résistance de contact  $R_N$  de la jonction ;
- Sensibilité à la température de l'échantillon conduisant à une dépendance en température de la position en tension des maxima de l'oscillation observée qui soit similaire à la loi  $\Delta(T)$  suivie par l'amplitude du gap supraconducteur.

Cherchant à reproduire cette phénoménologie expérimentale de façon théorique, nous allons maintenant étudier trois phénomènes pouvant déstabiliser l'état supraconducteur du composé étudié :

- Un dépassement local de la densité de courant critique  $J_d$  ;
- Un dépassement local de la température critique  $T_c$  ;
- Une modification locale de la distribution en énergie  $f(E)$  des électrons, due à des effets hors équilibre, rendant l'état supraconducteur défavorable [25].

Pour chacun de ces modèles, nous injecterons la loi  $L(V)$  résultante dans le modèle de jonction métal-métal-supraconducteur à deux gaps dont la dérivation a été présentée section 4.2.2, et nous comparerons les résultats aux oscillations filtrées que nous avons isolées dans la partie 4.1.

### 4.3.1 Dépassement de la densité de courant critique

La spectroscopie de pointe est basée sur des contacts électriques de très petites dimensions, qui soumettent localement le matériau étudié à des densités de courant importantes même lorsque le courant total appliqué est relativement faible.

Si les densités de courant locales dépassaient la densité de courant critique  $J_d$  de l'échantillon pour la brisure de paires de Cooper (dit "courant de depairing") dans une région dont la taille est au moins de l'ordre de  $\xi$ , il serait énergétiquement favorable pour l'échantillon de transiter vers l'état métallique dans cette région.

Pour évaluer l'ampleur de ce phénomène, nous allons poser les hypothèses simplificatrices suivantes :

- Le courant traversant la jonction est approximativement celui qui circulerait dans l'état normal,  $I \approx V/R_N$ , avec  $R_N$  la résistance de contact. Comme discuté précé-

demment, à faible barrière BTK  $Z$ , l'erreur introduite par cette approximation sera au plus un facteur 2 sur la valeur de  $I$ , lié à la réflexion d'Andreev, et l'approximation tendra à devenir exacte pour  $V \gg \Delta/e$ .

- La région ayant transité vers l'état normal est un hémisphère de rayon  $L$ , le courant injecté se distribuant de façon homogène à sa surface.

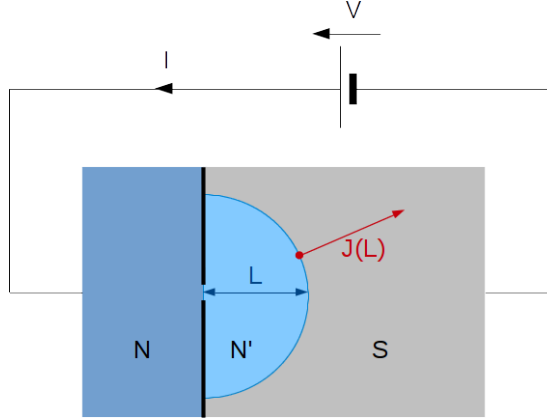


FIGURE 4.13 – Schéma de la jonction dans l'hypothèse d'un dépassement local de  $J_d$

Avec les hypothèses formulées précédemment, la frontière de l'hémisphère normale correspondra à la région où la densité de courant aura décré jusqu'à  $J_d$ , et par conservation du courant total circulant dans la jonction on aura :

$$J_d = \frac{I}{\frac{1}{2}4\pi L^2} = \frac{V}{2\pi R_N L^2}$$

En conséquence, le rayon de la région normale formée dans la jonction lorsqu'une tension  $V$  est appliquée à ses bornes sera :

$$L = \sqrt{\frac{V}{2\pi R_N J_d}}$$

Pour un contact typique de résistance  $R_N = 20 \Omega$ , en prenant les paramètres d'échantillon  $J_d = 1.05 \cdot 10^{12} \text{ A.m}^{-2}$  (ordre de grandeur issu de [16] et affiné de façon à optimiser l'accord à l'expérience) et  $\xi = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta} \approx 3 \text{ nm}$  (3.7 nm pour le petit gap et 2.3 nm pour le grand gap), ce modèle prédit une région normale de rayon  $\pi^2 \xi / 2 = 15 \text{ nm}$  pour  $V \approx 300 \mu\text{V}$ , dont la taille croît ensuite comme  $\sqrt{V}$ .

La conductance différentielle que l'on prédit dans le cadre de ce modèle est représentée figure 4.14. On peut constater qu'il y a très bon accord entre la position des maxima de conductance prédits par ce modèle et ceux des oscillations expérimentales à 5.5 K à faible  $V$  (jusqu'à 40 mV). A fort  $V$ , l'accord est moins manifeste, notamment du fait de la présence de chutes de conductance non prédites par ce modèle, indiquées par des flèches.

Ces minima pourraient être issus d'une physique autre que celle étudiée ici. Ils pourraient par exemple être la signature de deux modes bosoniques, dédoublés par une observation de chaque mode d'énergie  $\hbar\omega$  donnée aux deux énergies  $\hbar\omega + \Delta_i$  [71], avec  $\Delta_i$  les deux gaps supraconducteurs de l'échantillon. On s'attend dans ce cas à une chute de conductance, puisque les électrons interagissant de manière résonante avec un mode bosonique seront davantage diffusés et contribueront donc moins à la conduction électrique.

L'ordre de grandeur des énergies auxquelles ces minima sont observés serait compatible avec les modes de phonons optiques détectés par Wu et al.[75] dans des mesures de conductivité optique, en revanche il n'a été observé dans cette publication qu'un seul mode bosonique très élargi à ces énergies, et non deux modes bosoniques fins.

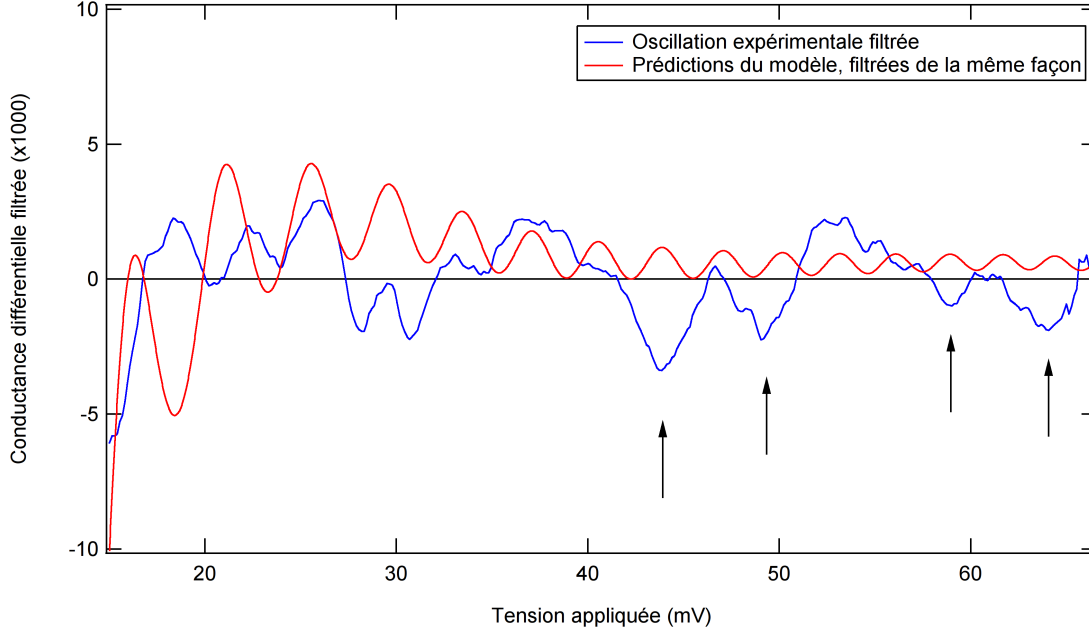


FIGURE 4.14 – Oscillations de conductance différentielle prévues et réelles (à 5.5 K). Les flèches noires indiquent des minima de conductance non prédits par notre modèle.

On peut aussi observer un écart important entre la forme et l'amplitude des oscillations prédites et celles des oscillations observées expérimentalement, particulièrement à fort  $V$ . Cet écart pourrait provenir de la nature unidimensionnelle du modèle utilisé, auquel cas un véritable modèle tridimensionnel (tel que discuté dans la section 4.2.2) obtiendrait un meilleur accord avec la conductance différentielle expérimentale.

Sur le plan théorique, notons que nous n'observons ici qu'une seule série d'oscillation, qui correspond à la quasi-période  $T_1$  dans les notations introduites p.72. Il existe aussi dans la conductance prédite une modulation lente correspondant à la quasi-période  $T_2$ , mais sa période (plusieurs dizaines de mV) ne correspond pas aux oscillations expérimentales.

En posant  $H_c$  le champ critique de depairing,  $\lambda$  la longueur de pénétration magnétique de l'échantillon, et  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide, l'évolution du courant de depairing avec la température peut être extraite des équations [4]

$$\begin{cases} J_d = \frac{cH_c}{3\sqrt{6}\pi\lambda} \\ c = \frac{4\pi}{\mu_0} \end{cases}$$

On voit que la dépendance de  $J_d$  en température est intégralement gouvernée par celle de la fraction  $H_c/\lambda$ , car seuls ces termes dépendent de la température. Leurs variations en température respectives ont été extraites de données préalablement mesurées sur le même composé (publiées dans [57]), ce qui nous a en retour permis de déterminer la loi de variation

en température  $J_d(T)/J_d(0\text{ K})$ . En utilisant cette loi, nous avons été capable de déterminer la loi  $L(V)$  prédite par ce modèle à toute température.

Nous avons utilisé cette dépendance en température pour prédire la conductance différentielle sur l'intervalle de température allant de  $0\text{ K}$  à  $T_c$ , suivre la position des maxima locaux de conductance différentielle en température, et la comparer à un suivi similaire des maxima locaux de conductance observés expérimentalement à basse température.

Le suivi des maxima expérimentaux n'est pas trivial pour plusieurs raisons :

- Notre procédure de traitement de données actuelle ne nous permet pas de suivre les maxima de conductance à moins de  $14\text{ mV}$ .
- La conductance différentielle présente des signaux qui ne sont pas prédits par notre modèle, mais se superposent aux maxima que nous essayons de suivre.
- Quand le niveau de signal est faible, il est difficile de différencier deux maxima de conductance adjacents.
- Si deux maxima locaux de conductance sont trop proches, il est impossible de les résoudre et un seul maximum est observé.
- A l'inverse, ce qui semblait être un maxima unique à basse température peut se diviser en deux maxima locaux à haute température.
- A haute température, le bruit augmente et l'intensité des oscillations diminue.

Néanmoins, en procédant pas à pas avec des données très rapprochées en température ( $0.2\text{ K}$  entre deux spectres successifs) afin de faciliter l'identification d'un pic expérimental d'un jeu de données à l'autre, il est possible d'en tirer la figure 4.15.

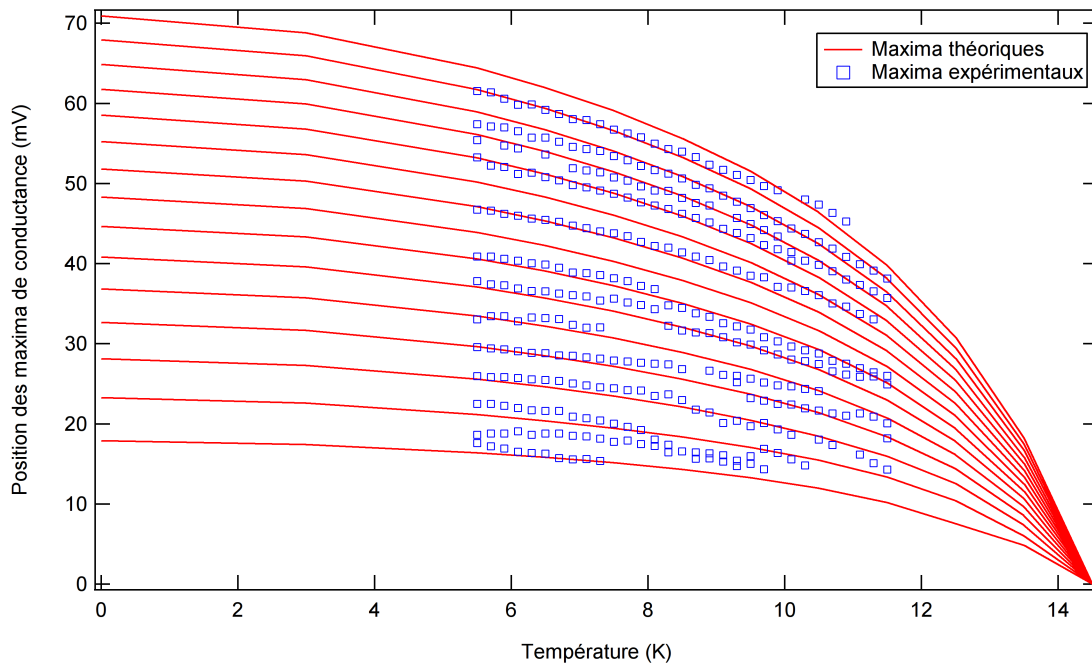


FIGURE 4.15 – Suivi de la position des maxima de conductance prédits par le modèle et comparaison à un suivi de ceux observés expérimentalement à  $5.5\text{ K}$

On peut observer que les maxima expérimentaux suivent qualitativement l'évolution en température prédite théoriquement. L'accord quantitatif entre théorie et expérience semble aussi satisfaisant, particulièrement si l'on considère que l'évolution en température est entièrement déduite des observations de [57], et que seule la position des maxima locaux à  $5.5\text{ K}$  est ajustable par modification du  $J_d(5.5\text{ K})$  utilisé.

### 4.3.2 Dépassement de la température critique

Les densités de courant élevées présentes dans le contact pointe-échantillon vont aussi causer un échauffement local de ce dernier, pouvant potentiellement provoquer une transition du supraconducteur vers l'état métallique. Déterminer la longueur caractéristique sur laquelle cela se produit nécessite un modèle approprié pour décrire l'effet Joule et le refroidissement dans un contact ponctuel. Il est possible d'employer dans ce but le modèle des cônes intersectés de Tinkham et al [68], en l'adaptant pour correspondre au cas étudié ici d'un contact ponctuel entre un métal normal et un supraconducteur.

Soient les constantes physiques et paramètres suivants :

- $k_B$  la constante de Boltzmann
- $e$  la charge de l'électron
- $R_N$  la résistance de la jonction lorsque l'échantillon est dans l'état métallique
- $T_c$  la température critique de l'échantillon
- $T_b$  la température de l'échantillon loin du point de contact
- $\rho_{0,S}$  la résistivité de l'échantillon dans l'état normal
- $l_{D,S}$  le libre parcours moyen prédit par le modèle de Drude dans l'échantillon
- $a$  le rayon du contact ponctuel étudié

On a montré dans l'annexe C que si l'échauffement local du contact est le facteur dominant la transition de l'échantillon vers l'état métallique, le rayon  $L$  de la région métallique de l'échantillon et la tension  $V$  aux bornes de la jonction seront reliés par les relations

$$\begin{cases} V = R_N \sqrt{\frac{4\pi^4 k_B^2 L (T_c^2 - T_b^2)}{3e^2 \rho_{0,S}^2 \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4L}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4L^2} + \frac{1}{L}\right)\right]}} \\ r_1 = \frac{2a}{\pi} \end{cases}$$

Il ne serait pas simple d'inverser cette relation pour déterminer, comme dans le cas précédent, la taille  $L$  de la région métallique de l'échantillon à une tension  $V$  donnée. Cela n'est cependant pas un problème majeur, puisqu'il est possible d'explorer numériquement l'espace des  $L$  jusqu'à avoir couvert la plage de tensions  $V$  recherchée.

De plus, analytiquement, on peut aussi étudier le comportement asymptotique du système à grand  $V$  en remarquant que pour  $L \gg r_1, l_{D,S}$ , les termes en  $1/L$  du dénominateur deviennent négligeables, et on a alors

$$\begin{aligned} V &\approx \sqrt{\frac{2\pi^4 k_B^2 R_N^2 L (T_c^2 - T_b^2)}{3e^2 \rho_{0,S}^2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right)}} \\ L &\approx \frac{3e^2 \rho_{0,S}^2 V^2}{2\pi^4 k_B^2 R_N^2 (T_c^2 - T_b^2)} \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) \end{aligned}$$

On voit que dans ce modèle,  $L$  croît asymptotiquement comme  $V^2$ , ce qui est très différent du résultat précédent, et reflète le fait que la puissance thermique dissipée dans la jonction ne croît pas de la même façon que la densité de courant en son sein lorsque  $V$  augmente. Il est probable que différentes phénoménologies dominent à différents  $V$ .

En introduisant les paramètres de l'échantillon et conditions expérimentales  $R_N = 20 \Omega$ ,  $T_c = 14.5 K$ ,  $T_b = 5.5 K$ ,  $\rho_{0,S} = 10^{-6} \Omega.m$  [52],  $l_{D,S} = 2 nm$  et  $r_1 = 2a/\pi \approx 5 nm$  (cf

chapitre 2), on trouve que, pour  $L = \pi^2\xi/2 = 15 \text{ nm}$ ,  $V = 1.7 \text{ mV}$ . Et en essayant de prédire le comportement complet du système pour  $V$  variable, on obtient les prédictions représentées figure 4.16.

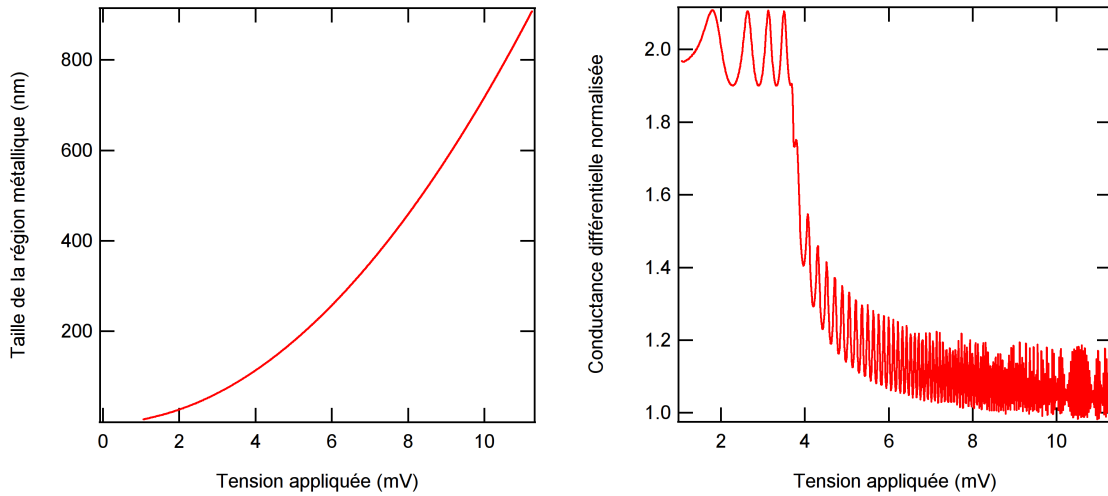


FIGURE 4.16 – Relation  $L(V)$  et conductance différentielle prévues lors d'un dépassement local de  $T_c$

La conclusion la plus claire qui ressort de ce calcul est que les prédictions de ce modèle semblent très irréalistes. En effet, s'il s'appliquait bien à notre système, on observerait une transition du supraconducteur vers l'état normal sur un rayon de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$  autour du point d'injection pour une tension aux bornes de la jonction de l'ordre de  $10 \text{ mV}$ .

Or, si la supraconductivité était détruite sur une distance aussi grande au regard du libre parcours moyen électronique, les électrons de conduction injectés dans l'échantillon auraient perdu l'intégralité de leur excédent d'énergie par collision inélastique bien avant d'atteindre l'interface métal-supraconducteur, et il n'y aurait donc plus aucune signature spectroscopique des gaps supraconducteurs dans le signal observé expérimentalement. Il serait donc impossible d'observer des gaps supraconducteurs dans nos mesures de spectroscopie de pointe, ce qui n'est pas compatible avec l'expérience.

L'origine de cet écart entre théorie et expérience n'est pas encore connue. Mais on peut chercher un début d'explication dans le fait que ce modèle néglige la contribution de la pointe métallique à la thermalisation de l'échantillon supraconducteur. Cette approximation historiquement introduite par Tinkham et al. pourrait être inappropriée dans les jonctions métal-supraconducteur que nous étudions, puisque l'électrode métallique est a priori un bien meilleur conducteur thermique que l'échantillon supraconducteur.

En l'état, il est manifeste que ce modèle ne prédit pas correctement la manière dont le supraconducteur passe dans l'état métallique sous l'effet d'un échauffement local introduit par l'injection de courant. Il ne peut donc pas être utilisé pour prédire la manière dont cet effet spécifique va contribuer à la loi  $L(V)$ .

### 4.3.3 Mécanisme diffusif de transition vers l'état métallique

#### Présentation qualitative

Dans les deux modèles précédents, nous avons considéré la manière dont l'échantillon pouvait transiter vers l'état métallique par dépassement local d'une des limites thermodynamiques de l'état supraconducteur, le courant critique de depairing  $J_d$  ou la température critique  $T_c$ . Cependant, dans le cadre hors-équilibre où nous travaillons, d'autres mécanismes peuvent provoquer une transition du supraconducteur vers l'état métallique.

En particulier, une possibilité particulièrement intéressante, historiquement introduite dans le cadre de l'étude de jonctions Ag/Ta [25] où elle était en bon accord avec l'expérience, serait celle d'une modification locale de la distribution en énergie des électrons  $f(E)$  qui rendrait l'état supraconducteur localement défavorable.

Pour introduire le fondement théorique de ce modèle, rappelons l'observation faite dans la section 4.2.2 qu'une région métallique suffisamment grande au sein de l'échantillon présentera des sous-bandes d'états mono-électroniques d'énergie  $|E - E_F| < \Delta$ . Cette observation est en fait très générale, puisqu'il a été montré dans [24] qu'elle demeure valable même dans le cas d'une région métallique hémisphérique, où l'on peut de plus montrer qu'une nouvelle sous-bande pénètre dans le gap supraconducteur chaque fois que le rayon  $L$  de la région métallique est multiple de la longueur caractéristique  $\xi' = \pi^2 \xi / 2$  (où  $\xi$  est la longueur de cohérence de Pippard de l'échantillon).

Par la suite, afin de clarifier la discussion, nous poserons  $E_F = 0$  et ne considérerons que le cas d'une injection d'électrons au sein de l'échantillon à des énergies électroniques  $E > E_F$ . La discussion peut cependant être aisément adaptée pour couvrir également le cas d'une injection de trous à des énergies  $E < E_F$ .

Dans ce cadre théorique, si un phénomène hors-équilibre venait à piéger des électrons au sein des états d'énergie  $E < \Delta$  de la région métallique, cela modifierait la distribution en énergie  $f(E)$  des électrons au sein de la région métallique de l'échantillon, autour du niveau de Fermi. Cette modification pourrait, en retour, stabiliser localement l'état métallique par rapport à l'état supraconducteur, pour peu que la distribution électronique finalement obtenue ne soit plus favorable à l'apparition de la supraconductivité.

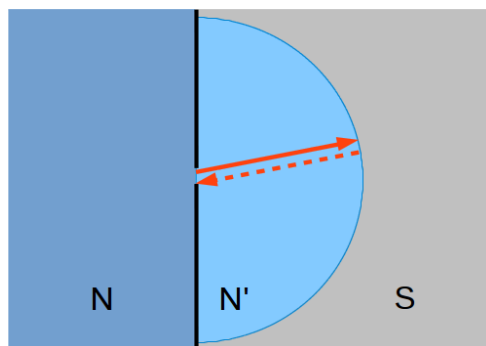


FIGURE 4.17 – Illustration du fait que la réflexion d'Andreev empêche le piégeage des électrons dans les sous-bandes de la région métallique

Toutefois, cela ne peut pas se produire dans un régime de conduction électrique parfaitement balistique. En effet, dans ce cas, les seuls électrons injectés au sein de l'échantillon qui pourraient avoir une influence sur le remplissage des sous-bandes sont ceux injectés

à énergie  $E < \Delta$ . Mais ces électrons sont sujets, lorsqu'ils atteindront l'interface métal-supraconducteur, à être renvoyés vers le point d'injection de courant sous forme de trou d'énergie  $-E$  par le processus de réflexion d'Andreev, avec un temps de vie associé très court pour les porteurs de charge (fig. 4.17). Une injection électronique balistique n'entraînerait donc qu'un remplissage négligeable des sous-bandes de la région métallique.

En revanche, s'il existe des diffusions électroniques, même élastiques, au sein de la région normale, ces dernières peuvent piéger un électron semi-classique au sein de la région normale en modifiant son vecteur d'onde. En effet, pour peu qu'un électron ne soit plus directement issu de la pointe métallique, la réflexion Andreev ne le renverra pas dans la direction de l'orifice d'injection, et il aura une forte probabilité d'être piégé dans des cycles de réflexion Andreev résonants jusqu'à ce qu'une autre collision élastique lui permette, avec une probabilité faible, de revenir à la pointe métallique.

Ce processus, que l'on peut approximer par le piégeage net d'un demi-électron d'énergie  $E$  et d'un demi-trou d'énergie  $-E$  dans la région métallique pour chaque électron incident, est illustré figure 4.18.

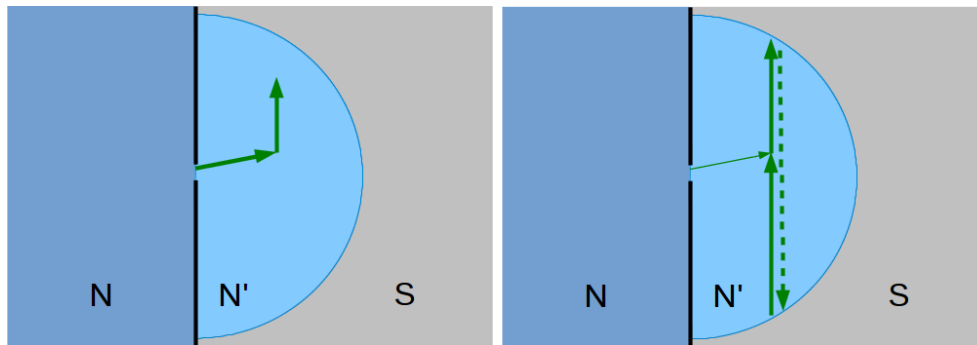


FIGURE 4.18 – Changement de vecteur d'onde d'un électron injecté par collision élastique (gauche) et piégeage consécutif d'un demi-électron et d'un demi-trou (droite)

Outre ces phénomènes élastiques, des phénomènes inélastiques peuvent aussi, de façon analogue, piéger des électrons injectés à une énergie  $E > \Delta$  dans les sous-bandes de la portion métallique de l'échantillon. Ce mécanisme de remplissage des sous-bandes dominera probablement lorsque des tensions  $V \gg \Delta$  sont appliquées à la jonction étudiée, puisqu'il y aura alors beaucoup plus d'électrons injectés à énergie  $E > \Delta$  qu'à énergie  $E < \Delta$ . Mais dans tous les cas, on voit que l'existence de diffusions électroniques, élastiques ou inélastiques, permet le remplissage des sous-bandes électroniques de la région métallique.

Enfin, un dernier élément théorique en faveur de ce mécanisme est le calcul fait par Gunsenheimer et al. [24] qui montre qu'une sous-bande électronique remplie d'électrons a une contribution à l'énergie libre de la région métallique du même ordre de grandeur que l'énergie de condensation de l'état supraconducteur. Le remplissage des sous-bandes électronique a donc potentiellement une influence énergétique assez grande pour perturber la supraconductivité de l'échantillon.

### Dérivation du modèle

Pour déterminer quantitativement la taille de la région métallique qui se formerait sous l'effet de ce phénomène, nous allons utiliser le formalisme introduit par Hahn et al. dans [25]. Les principes de base de ce modèle sont les suivants :



- L’injection d’électrons à des énergies  $E < \Delta$  est négligée, et le principal mécanisme de remplissage des sous-bandes électroniques est supposé être une collision inélastique d’électrons injectés à une énergie  $E > \Delta$  avec des bosons. La probabilité de cette interaction est caractérisée par la fonction d’Eliashberg  $\alpha^2 F(\omega)$ .
- La densité d’états monoélectroniques de la région métallique est supposée constante, et égale à sa valeur  $N_0$  dans le matériau massif pris dans l’état normal. Cette approximation n’est rigoureusement valable que pour  $L \gg \xi'$ , mais devrait fournir une première approximation correcte même pour  $L \approx \xi'$ .
- Le remplissage des états électroniques de la région normale est caractérisé par la fonction d’occupation moyennée dans l’espace réel  $f(E)$ . L’excitation des modes bosoniques est caractérisée par leur fonction d’occupation moyennée  $n(\omega)$ .
- L’occupation des états électroniques de la pointe métallique est prise égale à celle à température nulle, ce qui revient à considérer que la tension  $V$  appliquée à la jonction vérifie  $eV - E_F \gg k_B T$ .

Dans ce cadre théorique, les évolutions temporelles de  $f(E)$  et  $n(\omega)$  sont données par les équations de Boltzmann

$$\begin{cases} \frac{df(E)}{dt} = \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inj}} + \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{esc}} + \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{scatt}} \\ \frac{dn(\omega)}{dt} = \left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_{\text{esc}} + \left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_{\text{scatt}} \end{cases}$$

Dans ces équations, les termes d’indice “inj” représentent l’effet de l’injection d’électrons par la pointe métallique, ceux d’indice “esc” l’effet de quasiparticules quittant spontanément la région normale, et ceux d’indice “scatt” l’effet de l’interaction électron-boson et de la réflexion Andreev dans la région métallique.

De plus, on cherche à étudier l’état stationnaire du système, ce qui correspond à la condition

$$\begin{cases} \frac{df(E)}{dt} = 0 \\ \frac{dn(\omega)}{dt} = 0 \end{cases}$$

Pour décrire l’injection d’électrons dans le système, nous allons considérer le cas où  $V$  est telle que des électrons soient injectés de la pointe métallique vers le supraconducteur. Nous poserons également l’orientation des tensions de telle sorte que cela corresponde à  $V > 0$ . Comme précédemment, les conclusions obtenues seront généralisables pour  $V < 0$  en supposant que le système étudié possède une symétrie électron-trou autour de  $E = E_F$ . Nous choisissons aussi, comme précédemment, l’origine des énergies dans le système telle que  $E_F = 0$ .

Dans cette situation, les états électroniques du matériau seront fortement remplis pour  $E < -\Delta$ , que le matériau soit dans l’état métallique ou supraconducteur. On peut donc, en bonne approximation, négliger l’injection d’électrons à ces énergies.

Pour  $-\Delta \leq E \leq \Delta$ , la réflexion d’Andreev empêche une injection efficace de porteurs comme nous l’avons discuté précédemment, et l’effet des collisions électroniques élastiques est négligé dans ce modèle. On peut donc aussi négliger l’injection à ces énergies.

Pour  $\Delta < E \leq V$ , en revanche, on s'attend à ce que les états électroniques du matériau soient faiblement remplis qu'il soit dans l'état métallique ou supraconducteur, car les électrons injectés sont évacués efficacement par la contre-électrode de l'échantillon. On peut donc ignorer l'effet de la population électronique  $f(E)$  existante sur l'injection en posant  $1 - f(E) \approx 1$  à ces énergies.

En faisant cette approximation pour une tranche d'énergie  $dE$  infinitésimale autour de l'énergie  $E$  considérée, le nombre d'électrons injectés à ces énergies dans la région normale par unité de temps, que l'on appellera  $\delta_{\text{elec}}$ , vérifie :

$$\begin{cases} \delta_{\text{elec}} = \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inj}} \times 2N_0 v_{\text{bulle}} \times dE \\ v_{\text{bulle}} = \frac{2}{3}\pi L^3 \end{cases}$$

Dans cette expression,  $v_{\text{bulle}}$  est le volume de la région normale, supposée hémisphérique, et le facteur 2 permet de prendre en compte l'existence de deux composantes de spin électroniques dégénérées.

On peut aussi exprimer  $\delta_{\text{elec}}$  en termes de la contribution  $dI$  au courant électrique issue des électrons d'énergie  $E$  à  $E + dE$ , en linéarisant la loi  $I(V)$  de l'échantillon comme précédemment. On a alors :

$$\delta_{\text{elec}} = \frac{dI}{e} = \frac{dV}{eR_N} = \frac{dE}{e^2 R_N}$$

En égalisant ces deux expressions pour  $\delta_{\text{elec}}$ , on obtient la contribution à  $f(E)$  issue de l'injection électronique :

$$\left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inj}} = \begin{cases} \frac{dE}{e^2 R_N} \times \frac{1}{2N_0 v_{\text{bulle}} dE} = \frac{3}{4\pi N_0 L^3 e^2 R_N} & \text{pour } \Delta < E \leq V \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

En ce qui concerne la contribution à  $f(E)$  issue de porteurs quittant la région normale, elle sera modélisée en supposant

- Que les porteurs injectés dans la région normale la quittent au bout d'un temps moyen  $L/v_F$ , où  $v_F$  est la vitesse de Fermi du matériau, si des états monoélectroniques sont disponibles pour les accueillir dans la région supraconductrice.
- Que la région supraconductrice se comporte comme un réservoir parfait d'électrons pour  $E < -\Delta$ , comme un réservoir de trous pour  $E > \Delta$ , et n'offre aucun état monoélectronique pour la sortie des électrons ou des trous quand  $|E| \leq \Delta$ .

La mise en équation de ce modèle donne directement :

$$\left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{esc}} = \begin{cases} -\frac{v_F}{L} f(E) & \text{pour } E > \Delta \\ 0 & \text{pour } -\Delta \leq E \leq \Delta \\ \frac{v_F}{L} [1 - f(E)] & \text{pour } E < -\Delta \end{cases}$$

L'effet des collisions inélastiques peut quand à lui être décomposé en quatre processus élémentaires :

- Un électron d'énergie  $E + \omega$  transite vers  $E$  en émettant un boson d'énergie  $\omega$ .
- Un électron d'énergie  $E$  transite vers  $E - \omega$  en émettant un boson d'énergie  $\omega$ .

- Un électron d'énergie  $E - \omega$  transite vers  $E$  en absorbant un boson d'énergie  $\omega$ .
- Un électron d'énergie  $E$  transite vers  $E + \omega$  en absorbant un boson d'énergie  $\omega$ .

En notant les processus impliquant l'émission d'un boson "e", ceux impliquant l'absorption d'un boson "a", ceux augmentant le nombre d'électrons d'énergie  $E$  "+", et ceux diminuant ce nombre "-", on a pour les collisions inélastiques la contribution :

$$\left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inel}} = \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{e+} + \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{e-} + \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{a+} + \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{a-}$$

Et en prenant en compte les processus d'absorption, d'émission spontanée, et d'émission stimulée de bosons, gouvernés par la fonction d'Eliashberg  $\alpha^2 F(\omega)$ , on peut calculer l'expression explicite de chacun de ces termes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{e+} = \frac{2\pi}{\hbar} [1 - f(E)] \int_0^\infty \alpha^2 F(\omega) f(E + \omega) [n(\omega) + 1] d\omega \\ \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{e-} = \frac{2\pi}{\hbar} f(E) \int_0^\infty \alpha^2 F(\omega) [1 - f(E - \omega)] [n(\omega) + 1] d\omega \\ \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{a+} = \frac{2\pi}{\hbar} [1 - f(E)] \int_0^\infty \alpha^2 F(\omega) f(E - \omega) n(\omega) d\omega \\ \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{a-} = \frac{2\pi}{\hbar} f(E) \int_0^\infty \alpha^2 F(\omega) [1 - f(E + \omega)] n(\omega) d\omega \end{array} \right.$$

Quid de la réflexion d'Andreev ? Comme on l'a vu précédemment, la création d'un électron dont l'énergie est située à l'intérieur du gap supraconducteur ( $|E| \leq \Delta$ ) conduit à des cycles de réflexion Andreev et de réflexion Andreev inverse à l'intérieur du supraconducteur. En raisonnant en termes probabilistes, on peut donc dire que tout processus qui, hors du gap supraconducteur, créerait un électron d'énergie  $E$ , crée au sein du gap supraconducteur un demi-électron d'énergie  $E$  et un demi-trou d'énergie  $-E$ .

En considérant uniquement ce qui se passe à une énergie  $E$  donnée, le processus ci-dessus se traduit par le fait que tout processus qui créerait normalement un électron d'énergie  $E$  crée un demi-électron d'énergie  $E$  au sein du gap supraconducteur, tandis tout processus qui créerait un électron d'énergie  $-E$  crée un demi-trou d'énergie  $E$ , et donc supprime un demi-électron d'énergie  $E$ .

Les termes de collision inélastiques sont les seuls concernés par cette correction dans ce modèle, puisque ce sont les seuls pouvant générer des quasi-particules d'énergie  $|E| \leq \Delta$ . En leur appliquant la transformation ci-dessus, on obtient finalement le terme de collision corrigé suivant :

$$\left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{scatt}} = \begin{cases} \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inel}} & \text{pour } |E| > \Delta \\ \frac{1}{2} \left( \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{\text{inel}} - \left. \frac{df(-E)}{dt} \right|_{\text{inel}} \right) & \text{pour } |E| \leq \Delta \end{cases}$$

La fonction d'occupation électronique  $f(E)$  étant ainsi pleinement caractérisée, nous allons maintenant nous concentrer sur la fonction d'occupation bosonique  $n(\omega)$ . Tout d'abord, un terme de sortie est construit, de façon analogue au cas électronique, en supposant qu'à

toute énergie  $\omega$  les bosons se déplacent à une certaine vitesse de groupe  $v_{\text{bos}}$ , et qu'ils sortent en moyenne de la région normale au bout d'un temps  $L/v_{\text{bos}}$ . Cela conduit au modèle :

$$\left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_{\text{esc}} = -\frac{v_{\text{bos}}}{L}n(\omega)$$

La variation de  $n(\omega)$  liée aux processus inélastiques peut ensuite être calculée en décomposant les contributions liées aux processus d'émission de bosons et ceux liés aux processus d'absorption de bosons

$$\left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_{\text{scatt}} = \left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_e + \left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_a$$

Pour l'émission de bosons, on se rappellera que le nombre d'électrons d'énergie comprise entre  $E$  et  $E + dE$  qui sont impliqués dans l'émission d'un boson par unité de temps est

$$2N_0v_{\text{bulle}}dE \left. \frac{df(E)}{dt} \right|_{e-} = \frac{4\pi N_0}{\hbar} f(E)v_{\text{bulle}}dE \int_0^\infty \alpha^2 F(\omega)[1 - f(E - \omega)][n(\omega) + 1]d\omega$$

En isolant dans l'intégrale les collisions impliquant des bosons d'énergie comprise entre  $\omega$  et  $\omega + d\omega$ , et en intégrant sur  $E$  pour prendre en compte la contribution de tous les électrons, on trouve le taux de génération de bosons d'énergie  $\omega$  à  $\omega + d\omega$  :

$$\delta_{\text{boson, e}} = \frac{4\pi N_0}{\hbar} v_{\text{bulle}} \alpha^2 F(\omega)[n(\omega) + 1]d\omega \int_{-\infty}^\infty f(E)[1 - f(E - \omega)]dE$$

Mais par ailleurs, ce taux est aussi relié à la variation de  $n(\omega)$ . En posant  $F(\omega)$  la densité d'états bosoniques, on a

$$\delta_{\text{boson, e}} = F(\omega)v_{\text{bulle}}d\omega \left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_e$$

En combinant les deux équations précédentes, on obtient

$$\left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_e = \frac{4\pi N_0}{\hbar} \alpha^2(\omega)[n(\omega) + 1] \int_{-\infty}^\infty f(E)[1 - f(E - \omega)]dE$$

Et en effectuant le même raisonnement pour les processus impliquant l'absorption d'un boson d'énergie  $\omega$  par des électrons d'énergie  $E$  ("a-"), on trouve

$$\left. \frac{dn(\omega)}{dt} \right|_a = -\frac{4\pi N_0}{\hbar} \alpha^2(\omega)[n(\omega) + 1] \int_{-\infty}^\infty f(E)[1 - f(E + \omega)]dE$$

Le système d'équations de Boltzmann non-linéaires résultant pour  $n(\omega)$  et  $f(E)$  peut ensuite être résolu numériquement selon la procédure itérative suivante :

- Supposer une distribution électronique  $f_0(E)$  initiale, par exemple une distribution de Fermi-Dirac à la température de l'échantillon.
- En déduire une distribution bosonique  $n_0(\omega)$  initiale.
- En partant d'une distribution électronique  $f_i(E)$  et une distribution bosonique  $n_i(\omega)$  données, calculer une distribution électronique raffinée  $f_{i+1}(E)$ .
- En déduire une distribution bosonique  $n_{i+1}(\omega)$  raffinée.
- Itérer l'algorithme jusqu'à valider un critère de convergence sur  $f(E)$  et/ou  $n(\omega)$ .

Le critère de convergence choisi devra, bien sûr, dépendre de la nature de l'information que l'on cherche à extraire de  $f(E)$  et  $n(\omega)$ . En l'occurrence, on souhaite connaître la relation  $L(V)$  ou  $V(L)$  entre le rayon de la région normale de l'échantillon et la tension appliquée à la jonction, en supposant que la transition de l'échantillon soit gouvernée par les effets hors-équilibre décrits ici.

Pour trouver la tension  $V$  correspondant à une région normale de rayon  $L$ , on peut utiliser l'algorithme itératif suivante :

- Supposer une tension  $V_0$  initiale.
- Calculer la distribution électronique  $f(E, L, V_0)$ .
- Utiliser l'équation de gap BCS pour déterminer le gap supraconducteur qui serait prévu dans la région normale pour cette distribution électronique.
- Si un gap positif est prédit, la tension  $V_0$  n'est pas suffisante pour détruire la supraconductivité sur une distance  $L$  : essayer itérativement des tensions  $V_i$  plus élevées jusqu'à trouver un gap supraconducteur nul.
- Lorsque l'on a trouvé une plage de tensions  $[V^+, V^-]$  sur laquelle on sait que le gap supraconducteur s'annule, resserrer cet intervalle par une méthode itérative (dichotomie, sécante, *regula falsi*...).

Dans le cadre de ce calcul, le critère de convergence choisi pour  $f(E)$  sera donc la convergence du résultat de l'équation de gap BCS.

### Effet des paramètres et lois $L(V)$ calculées

La discussion qui précède a permis d'introduire les concepts de base et principales approximations permettant le calcul de la loi  $V(L)$  dans ce modèle. Les détails du calcul, y compris certaines approximations qui peuvent être effectués pour l'équation de gap BCS lorsqu'on recherche un gap supraconducteur presque nul, et la preuve qu'il est possible de négliger le terme de sortie en  $v_{bos}$  pour les bosons, peuvent être trouvés dans [25].

Dans le cadre de la présente thèse, l'algorithme ci-dessus a été implémenté en Fortran 95 et parallélisé avec OpenMP afin de permettre la recherche des tensions  $V$  correspondant aux rayons de région normale multiples de la longueur caractéristique  $\xi' = \pi^2 \xi / 2$ , la loi  $V(L)$  étant ensuite linéarisée entre ces points particuliers.

Les paramètres de la simulation numérique résultante sont :

- La résistance de contact de la jonction  $R_N$
- La vitesse de Fermi du supraconducteur  $v_F$
- Le gap supraconducteur du supraconducteur massif  $\Delta(T)$
- La fonction d'Eliashberg  $\alpha^2 F(\omega)$

Dans ce qui suit, nous utiliserons principalement pour  $v_F$  et  $\Delta$  les paramètres associés au petit gap supraconducteur de  $Ba(Fe, Ni)_2As_2$ . En effet, la principale contribution du gap supraconducteur à ce modèle est de définir une plage d'énergie pour laquelle les électrons injectés dans l'échantillon ne peuvent pas s'échapper de la région normale de ce dernier. Or, des électrons dont l'énergie dépasse le petit gap supraconducteur peuvent pénétrer dans l'échantillon même si leur énergie est inférieure à celle du grand gap. Le petit gap supraconducteur paraît donc être l'énergie caractéristique pertinente pour la phénoménologie hors-équilibre étudiée ici.

Nous présenterons toutefois également certains résultats calculés avec les paramètres du grand gap supraconducteur, lorsque le comportement prédit pour les deux gaps est qualitativement distinct.

Si  $R_N$ ,  $v_F$  et  $\Delta(T)$  peuvent être aisément mesurés expérimentalement ou trouvés dans la littérature scientifique sur le composé étudié,  $\alpha^2 F(\omega)$  est plus problématique. En effet, le modèle n'est sensible qu'aux composantes de basse énergie de la fonction d'Eliashberg, avec  $\hbar\omega$  de l'ordre de  $\Delta$ , alors que la mesure de cette quantité par spectroscopie tunnel n'offre généralement qu'une sensibilité médiocre à ces énergies [25].

Il est aussi possible d'accéder à la fonction d'Eliashberg du composé par des mesures de conductivité optique (fig. 4.19). Et nous pouvons retenir de ces mesures que le pic de basse énergie de  $\alpha^2 F(\omega)$  se décale vers des énergies élevées quand  $T$  augmente. Cela correspond à une diminution du couplage électron-boson à basse énergie, il est donc plus juste de parler de  $\alpha^2 F(\omega, T)$ .

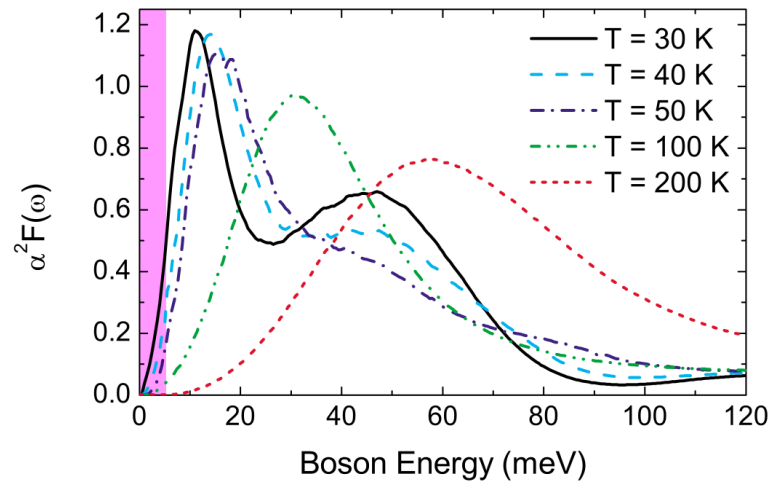


FIGURE 4.19 – Evolution en température de la fonction d'Eliashberg extraite de mesures de conductivité optique [75]. La région en rose représente la plage d'énergies bosoniques estimée comme étant physiquement pertinente pour ce modèle.

Toutefois, la mesure de  $\alpha^2 F(\omega, T)$  par conductivité optique est aussi très indirecte et nécessite un processus de déconvolution complexe, qui peut être effectué de différentes manières. Selon la méthode utilisée, la position calculée pour le pic principal de la fonction d'Eliashberg peut être modifiée de près de 20 %. De plus, l'existence de règles de sélection optique peut aussi biaiser la mesure de  $\alpha^2 F(\omega, T)$  en nous amenant à sous- ou sur-évaluer certaines de ses contributions. Dans l'ensemble, cette méthode de mesure de  $\alpha^2 F(\omega, T)$  ne semble donc pas suffisamment fiable pour fournir des données quantitatives sur la plage d'énergie qui nous intéresse ici.

A défaut de trouver dans la littérature scientifique des données de basse énergie quantitatives fiables pour  $\alpha^2 F(\omega, T)$ , nous avons choisi d'ajuster empiriquement cette donnée du problème en utilisant le modèle de Debye suivant :

$$\alpha^2 F(\omega, T) = \begin{cases} \lambda(T) \omega^2 & \text{pour } \omega < \omega_D \\ 0 & \text{pour } \omega \geq \omega_D \end{cases}$$

L'expérimentation numérique suggère que la loi  $V(L)$  n'est que faiblement sensible au seuil  $\omega_D$  intervenant dans ce modèle, aux énergies typiques de quelques dizaines de  $meV$  auxquelles on s'attendrait à trouver ce paramètre.

En effet, pour des jeux de paramètres typiques, l'occupation bosonique  $n(\omega)$  calculée diminue en  $\exp(-\omega/\omega_0)$  à partir de  $\hbar\omega = 1 \text{ meV}$ , chutant d'un facteur 100 entre  $\hbar\omega = 1 \text{ meV}$  et  $\hbar\omega = 5 \text{ meV}$ , tandis que le couplage électron-boson réel augmente au plus en  $\omega^2$  sur cet intervalle. Cela suggère que le couplage électron-boson à plusieurs dizaines de meV a une influence négligeable sur les résultats. Et en pratique, les prédictions sur  $V$  varient effectivement de moins de 1% si l'on fait varier  $\omega_D$  de 20 meV à 40 meV dans le modèle précédent. On peut conclure que la valeur exacte de  $\omega_D$  ne joue pas un rôle critique pour l'interprétation des résultats expérimentaux.

En revanche, les prédictions du modèle dépendent de l'amplitude du couplage  $\lambda(T)$ , de la façon représentée figure 4.20. Sur cette figure, nous avons exploré la gamme de  $\lambda$  numériquement accessible, des problèmes de convergence de  $f(E)$  apparaissant pour des valeurs plus faibles et plus élevées. Notons que la dépendance des résultats vis à vis de ce paramètre est relativement faible, ce qui explique que ce graphique est le seul où le paramètre a été varié sur une échelle exponentielle. Sur cette figure comme sur les suivantes, les rayons de région métallique sont données sur l'échelle normalisée  $L_{\text{nor}} = L/\xi'$ .

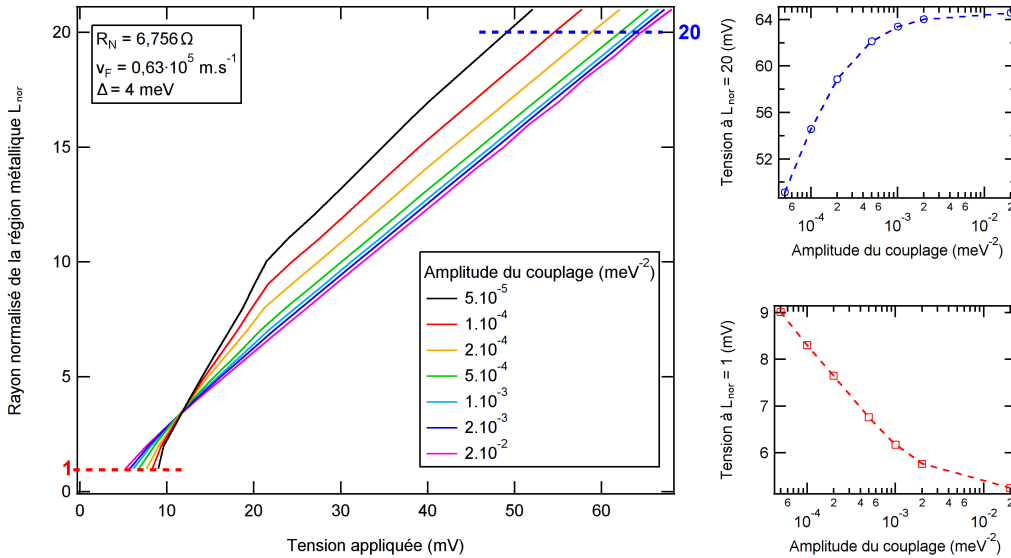


FIGURE 4.20 – Influence de l'amplitude du couplage  $\lambda$  sur la caractéristique  $L(V)$  prédite, et étude de  $V(\lambda)$  pour  $L = \xi'$  et  $L = 20\xi'$

Même si la limite  $L \rightarrow 0$  n'est pas numériquement accessible, il est manifeste que l'on a affaire à une loi  $L(V)$  à seuil, donc que pour  $V$  faible on n'observe pas de transition de l'échantillon vers l'état métallique. Le seuil de la loi diminue avec le couplage, ce qui est un comportement assez intuitif : plus le couplage électron-boson est fort, plus le remplissage des sous-bandes devrait être efficace, et donc moins il faudra injecter d'électrons pour commencer à détruire la supraconductivité.

Cependant, dans cette interprétation théorique, le comportement observé à  $V$  élevé est surprenant. A ces tensions élevées, en effet, la tendance précitée s'inverse, et la destruction de la supraconductivité devient plus efficace à couplage électron-boson faible. Cela suggère que la phénoménologie du système est moins simple que l'analyse précédente ne le laisse supposer. Malheureusement, l'effet du couplage électron-boson est difficile à interpréter analytiquement dans ce système, donc il est difficile de tirer des conclusions. Nous y reviendrons toutefois lorsque nous discuterons les paramètres du grand gap.

On peut aussi remarquer qu'à couplage fort, le comportement du système converge vers une loi  $L(V)$  limite presque linéaire, à une légère non-linéarité au voisinage de  $V = 0$  près. Cette dernière non-linéarité est sans doute une conséquence du phénomène de réflexion d'Andreev, qui empêche l'injection d'électrons aux énergies  $E < \Delta$ .

Le caractère presque linéaire des lois  $L(V)$  calculées fait que les conclusions de la section 4.2.2, qui supposaient elles aussi une loi  $L(V)$  linéaire, peuvent être appliquées dans une certaine mesure au cas des lois  $L(V)$  que nous calculons ici.

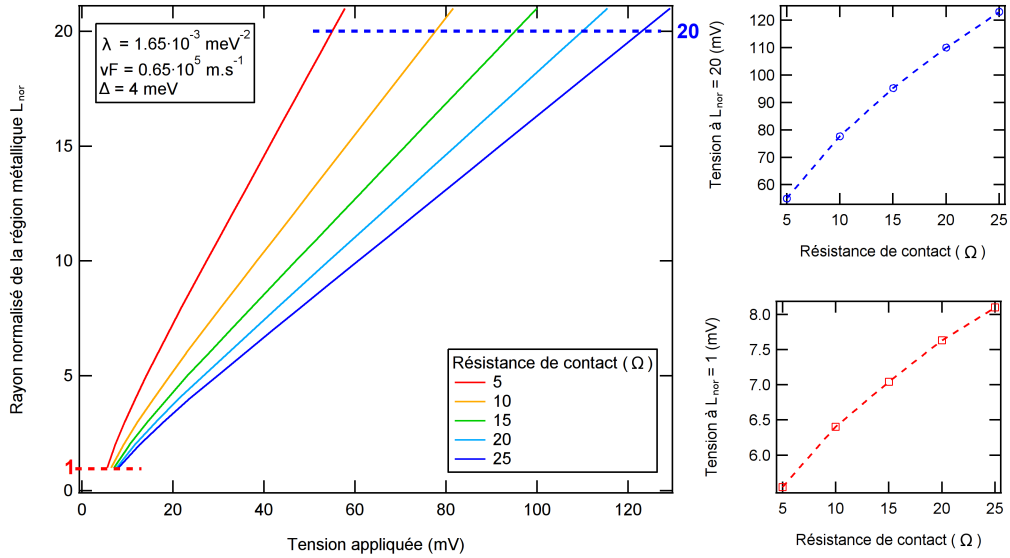


FIGURE 4.21 – Influence de la résistance de contact  $R_N$  sur la caractéristique  $L(V)$  prédite, et étude de  $V(R_N)$  pour  $L = \xi'$  et  $L = 20\xi'$

Contrairement au cas du couplage électron-boson, l'influence de la résistance de contact  $R_N$  peut être prédite analytiquement : cette dernière n'intervient que dans le terme d'injection électronique, lequel est inversement proportionnel à  $R_N$ . Par conséquent, plus  $R_N$  sera élevée, plus il faudra appliquer une tension  $V$  importante pour générer une région normale de rayon  $L$  donné. La pente de la loi  $L(V)$  doit donc diminuer avec  $R_N$ , et c'est effectivement ce qui est observé en pratique (fig. 4.21).

On peut aussi remarquer que dans la limite des grands  $V$  et  $L$ , la valeur de  $V$  associée à  $L = 20\xi'$  varie d'environ 20% sur l'intervalle de résistance  $18 \Omega < R_N < 25 \Omega$ . Cette observation serait cohérente avec les observations de la section 4.1.2 dans le cas où nous observerions des maxima de conductance associés à l'entrée de sous-bandes dans le gap supraconducteur pour  $L$  multiple de  $\xi'$  (contribution  $G_2(V)$  à la conductance différentielle dans les notations de la section 4.2.2). Or, il semblerait que ce soit le cas, comme nous allons le discuter par la suite.

L'influence de la vitesse de Fermi  $v_F$  sur ce modèle doit être interprétée avec précaution, car ce paramètre agit simultanément sur deux aspects de la physique étudiée ici :

- Le temps de vie des porteurs d'énergie  $E > \Delta$  dans la région normale est inversement proportionnel à  $v_F$ .
- La longueur caractéristique  $\xi' = \pi^2\xi/2$  pour les oscillations est proportionnelle à  $v_F$ .

De ce fait, l'effet de  $v_F$  sur la loi  $L(V)$  sera différent selon que l'on considère cette loi sur l'échelle de longueur normalisée  $L_{\text{nor}}$  définie précédemment, ou sur une échelle de longueur indépendante de  $v_F$  telle que la valeur brute de  $L$  en nanomètres. Pour ce qui



concerne l'étude des oscillations de conductance différentielle, la première représentation semble plus pertinente, c'est donc celle qui a été tracée figure 4.22.

On peut constater que sur l'échelle de longueur  $L_{\text{nor}}$ , l'effet de  $v_F$  est plus important que celui de  $R_N$ . C'est particulièrement visible en comparant l'effet de  $R_N$  et  $v_F$  à  $L = 20\xi'$ , mais cela demeure le cas même pour des valeurs de  $L$  et  $V$  faibles.

On peut aussi remarquer une étonnante irrégularité des résultats autour du point  $V(L = \xi', v_F = 20 \text{ km.s}^{-1})$ . Cette irrégularité est cependant peut-être due au fait qu'à des vitesses de Fermi si faibles, il y a une forte accumulation d'électrons dans la région métallique du supraconducteur, ce qui peut perturber la convergence du calcul ou rendre certaines des approximations sur lesquelles le modèle se base non valables. Mais une étude plus poussée du phénomène serait nécessaire pour confirmer ou infirmer cette hypothèse.

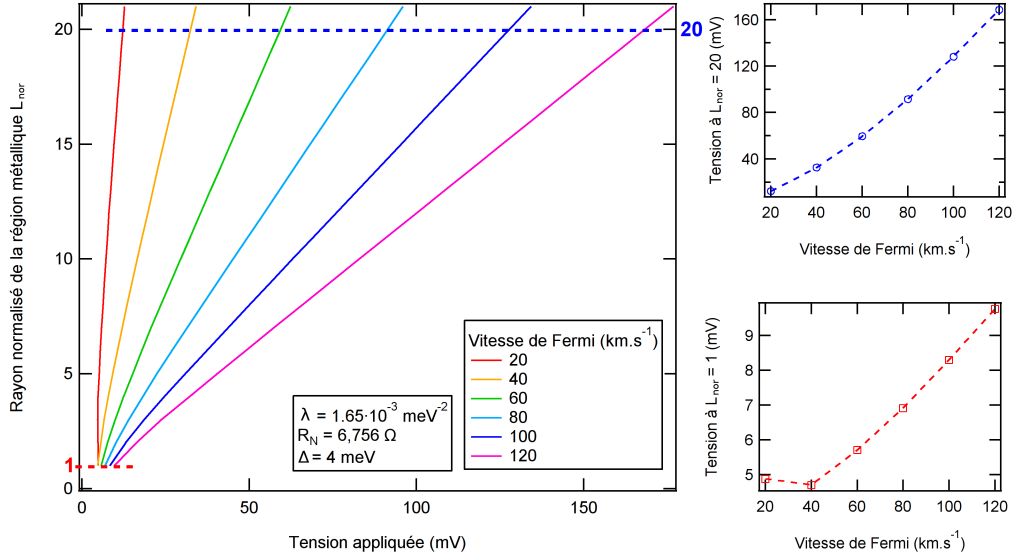


FIGURE 4.22 – Influence de la vitesse de Fermi  $v_F$  sur la caractéristique  $L(V)$  prédite, et étude de  $V(v_F)$  pour  $L = \xi'$  et  $L = 20\xi'$

Enfin, l'effet du gap supraconducteur  $\Delta$  doit lui aussi être interprété avec précaution, puisqu'il influence simultanément de nombreux aspects du modèle :

- La gamme d'énergie sur laquelle des porteurs de charge peuvent être injectés dans la région normale et quitter cette dernière décroît quand  $\Delta$  augmente.
- Le critère BCS utilisé pour déterminer la loi  $L(V)$  s'applique aux valeurs de  $f(E)$  sur  $[0, \Delta]$ , et sera donc modifié quand  $\Delta$  varie.
- La longueur caractéristique  $\xi' = \frac{\pi^2 \xi}{2} = \frac{\pi \hbar v_F}{2\Delta}$  associée aux oscillations étudiées, qui définit également  $L_{\text{nor}}$ , est inversement proportionnelle à  $\Delta$ .

En pratique, pour les paramètres physiques du petit gap supraconducteur et sur la gamme de  $\Delta$  considérée ici (de 0.25 à 1.25 fois le gap supraconducteur de l'échantillon à 5.5 K), l'influence de ce paramètre sur  $L_{\text{nor}}(V)$  est assez faible (fig. 4.23).

A faible  $L$ , une modification de  $\Delta$  correspond à une variation du seuil de  $L(V)$  accompagnée d'une modification correspondante de la non-linéarité de cette loi. Ce résultat est assez intuitif, l'injection électronique ne se produisant qu'à partir de  $V = \Delta/e$  et croissant ensuite de façon affine avec  $V$ .

A grand  $L$ , l'effet de  $\Delta$  est beaucoup moins prononcé en proportion, particulièrement si on le compare à celui des autres paramètres. On observe une légère variation de la pente

de  $L_{\text{nor}}(V)$  à faible  $\Delta$ , suivie d'une saturation des tensions prédites à grand  $\Delta$ .

Comme dans le cas de  $v_F$ , il faut faire attention ici au fait que l'on travaille en termes de  $L_{\text{nor}} = L/\xi'$ . Une faible dépendance de  $L_{\text{nor}}$  en  $\Delta$  signifie que quel que soit  $\Delta$ , on a  $L$  multiple de  $\xi'$  (autrement dit  $L_{\text{nor}}$  entier) aux mêmes tensions  $V$ . Cela signifie en retour que si les oscillations de conductance que l'on observe sont liées à l'entrée de sous-bandes dans le gap supraconducteur, qui se produit pour  $L$  multiple de  $\xi'$  (hypothèse que nous allons discuter ci-après), leur position en tension ne devrait pas varier quand  $\Delta$  change.

**Dans ce modèle, la dépendance attendue de la position des oscillations vis à vis de  $\Delta$  ne peut donc émerger que de la variation du couplage électron-boson quand  $T$  varie. Et comme la loi  $L(V)$  dépend peu de  $\lambda(T)$ , il faut aussi que ce paramètre varie beaucoup pour reproduire l'observation expérimentale.**

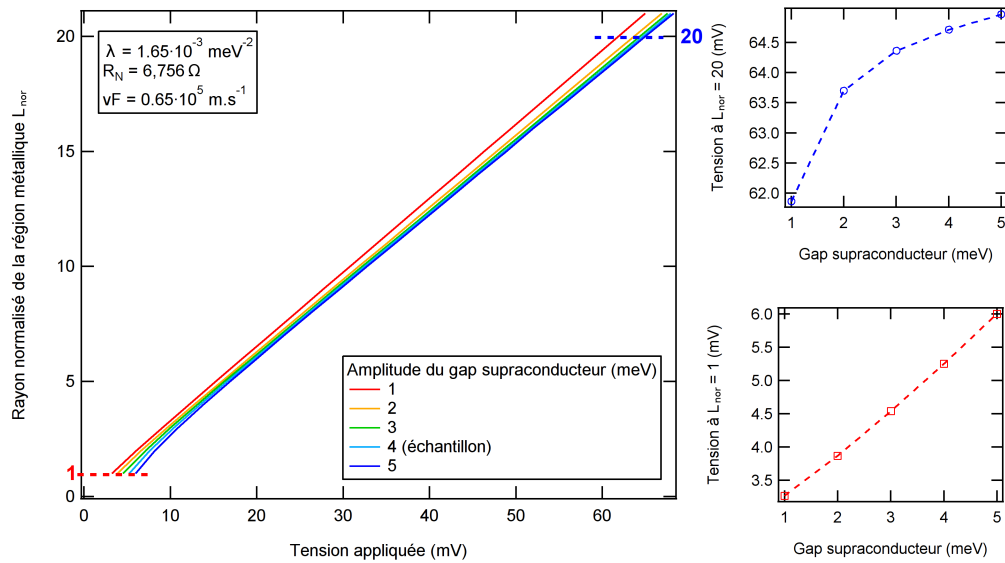


FIGURE 4.23 – Influence du gap supraconducteur  $\Delta$  sur la caractéristique  $L(V)$  prédite, et étude de  $V(\Delta)$  pour  $L = \xi'$  et  $L = 20\xi'$

Lorsque l'on applique au modèle les paramètres du grand gap supraconducteur plutôt que ceux du petit gap, cela a principalement deux effets. Tout d'abord, dans l'ensemble,  $L$  croît beaucoup plus lentement avec  $V$  : avec les paramètres du petit gap, pour  $L = 20\xi'$ , on a typiquement  $V$  de l'ordre de 50 à 80 mV, alors qu'avec les paramètres du grand gap, on a ces tensions pour  $L \approx 8\xi'$ .

De plus, l'effet du couplage électron-boson semble qualitativement modifié (fig. 4.24). Cependant, il s'agit peut-être simplement d'un artefact de la plage de tension limitée explorée dans chaque simulation. En effet, il semble que le comportement observé pour le petit gap quand  $L \in [\xi', 21\xi']$  se produise ici pour  $L \in [\xi', 4\xi']$ , tandis que la physique observée pour le grand gap quand  $L > 4\xi'$  ne serait observée pour le petit gap que pour des valeurs de  $L$  et  $V$  supérieures. Des simulations sur une plage de  $L$  et  $V$  étendue seraient cependant nécessaires pour confirmer cette supposition.

Dans tous les cas, on a ici un comportement similaire à celui obtenu pour les paramètres du petit gap à faible  $L$ , mais pour  $L$  élevé, on a observé cette fois-ci une diminution de  $V$  avec  $\lambda$ , plus compatible avec l'intuition. Seul le régime de  $L$  intermédiaire demeure donc inexplicé ici.

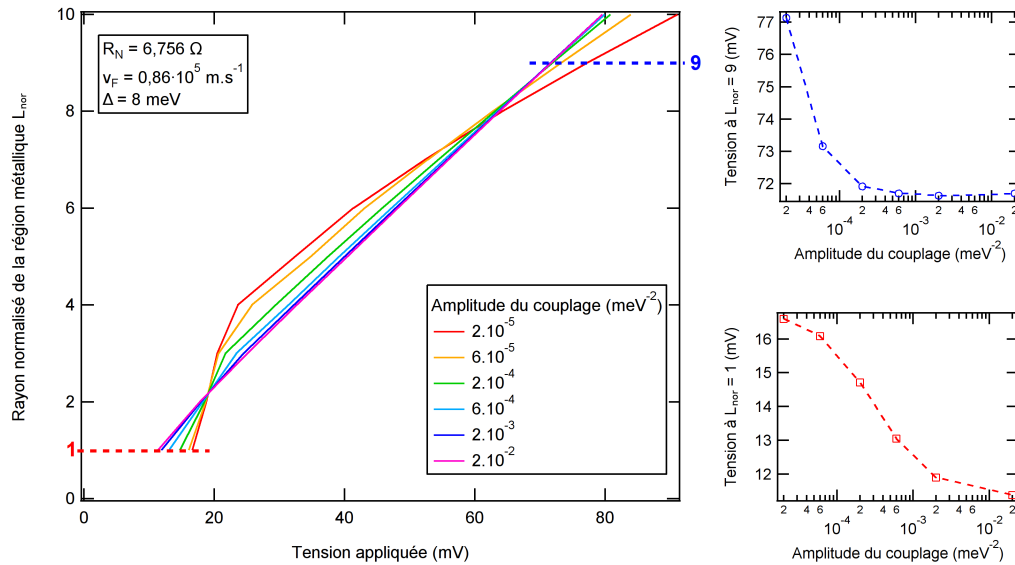


FIGURE 4.24 – Influence de l’amplitude du couplage  $\lambda$  pour le grand gap sur la caractéristique  $L(V)$  prédite, et étude de  $V(\lambda)$  pour  $L = \xi'$  et  $L = 20\xi'$

### Calcul de la conductance différentielle

Pour conclure sur ce modèle, nous pouvons injecter les lois  $L(V)$  prédites dans notre modèle pour la conductance différentielle de la jonction, afin d’évaluer leur adéquation à l’expérience. La figure 4.25 représente le résultat typique d’une telle injection.

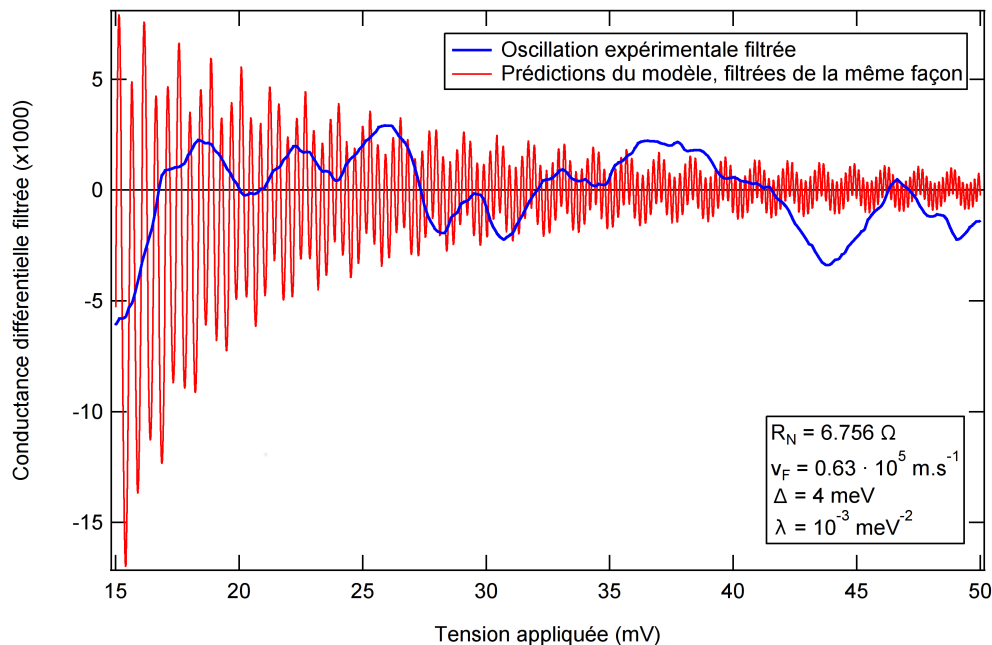


FIGURE 4.25 – Oscillations de conductance différentielle prévues et réelles (à 5.5 K)

On voit que dans ce modèle, les oscillations basse fréquence de la conductance différentielle peuvent potentiellement correspondre à la réalité après ajustement de  $\lambda$ , mais les oscillations haute fréquence oscillent beaucoup trop rapidement pour correspondre à aucun

phénomène observé. Nous n'avons trouvé aucun jeu de paramètres physiquement raisonnable donnant à ces oscillations une période conforme à celle des oscillations expérimentales, et nous pensons donc que ce résultat est général.

Toutefois, il est aussi possible que des oscillations haute fréquence existent bien dans le signal sans que nous les observions. En effet, à ce stade, nous n'avons intégré à notre modèle ni l'élargissement des spectres introduit par une température non nulle, ni celui introduit par des effets inélastiques à l'interface (paramètre  $\Gamma$  du modèle BTK). Ces deux effets devraient tendre à éliminer du signal expérimental toute oscillation très rapide en  $V$  telle que celles que nous prédisons ici.

Par exemple, pour le jeu de paramètres de la figure 4.25, l'oscillation rapide prédite possède une période d'environ 0.2 mV, alors que l'élargissement des spectres de conductance différentielle causé par une température électronique non nulle est de l'ordre de  $k_B T \approx 0.5 \text{ meV}$  à 5.5 K. On s'attend donc à ce que l'élargissement thermique des spectres de conductance différentielle atténue très fortement cette oscillation, potentiellement jusqu'à ce qu'elle devienne invisible expérimentalement.

Dans ce cas, nous nous attendons à observer uniquement les oscillations de conductance lentes, liées à l'entrée de sous-bandes sous le gap pour  $L$  multiple de  $\xi'$  (cf partie 4.2.2).

### Suivi des oscillations en température

Le calcul explicite de la conductance différentielle s'avérant problématique, nous avons utilisé une autre approche pour tester la capacité de ce modèle à suivre les maxima de conductance expérimentaux en température : vérifier si pour une certaine loi  $\lambda(T)$ , il est possible d'aligner les tensions correspondant à  $L$  multiple de  $\xi'$  avec des maxima de conductance différentielle expérimentaux et de suivre ces derniers en température.

La figure 4.26 montre le résultat obtenu à 5.5 K pour  $\lambda = 1.65 \cdot 10^{-3} \text{ meV}^{-2}$ . On peut voir que l'accord est variable : il semble bon pour  $L_{\text{nor}} = 6, 7, 8, 12, 13, 15, 17, 18, 19$ , mais moins bon pour d'autres valeurs de  $L_{\text{nor}}$  où le modèle est parfois plus proche d'un minimum que d'un maximum. Ce résultat semble plutôt décevant pour un modèle dont un paramètre doit être ajusté.

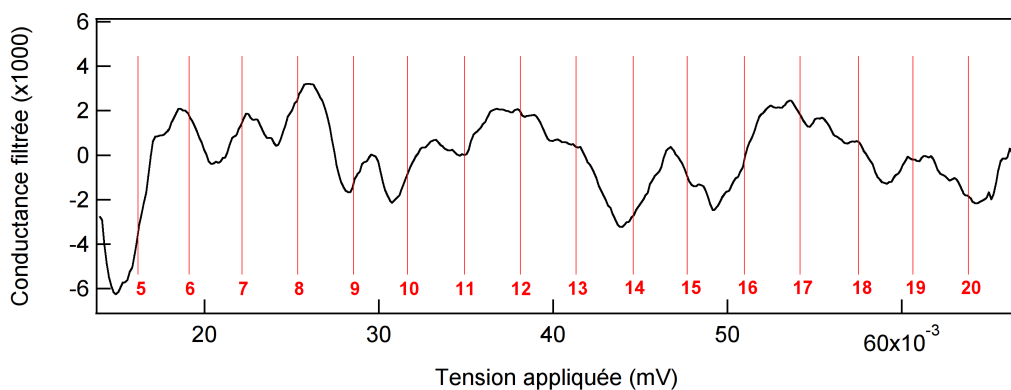


FIGURE 4.26 – Modélisation de la position des maxima locaux du signal à 5.5 K. Les traits verticaux rouges correspondent aux tensions  $V$  où  $L$  est multiple de  $\xi'$ , et les numéros indiquent la valeur de  $L_{\text{nor}}$ .

A des températures plus élevées, un meilleur accord avec les maxima expérimentaux peut être obtenu. L'évolution des position de maxima optimales en température est repré-

sentée figure 4.27, ainsi que l'évolution en température du couplage électron-boson correspondante. On peut constater que l'accord sur la position des maxima est bon à grand  $L_{\text{nor}}$  (ce qui est normal vu que c'est sur le pic correspondant à  $L_{\text{nor}} = 19$  que l'ajustement a été effectué), mais qu'il se dégrade à  $L_{\text{nor}}$  plus faible.

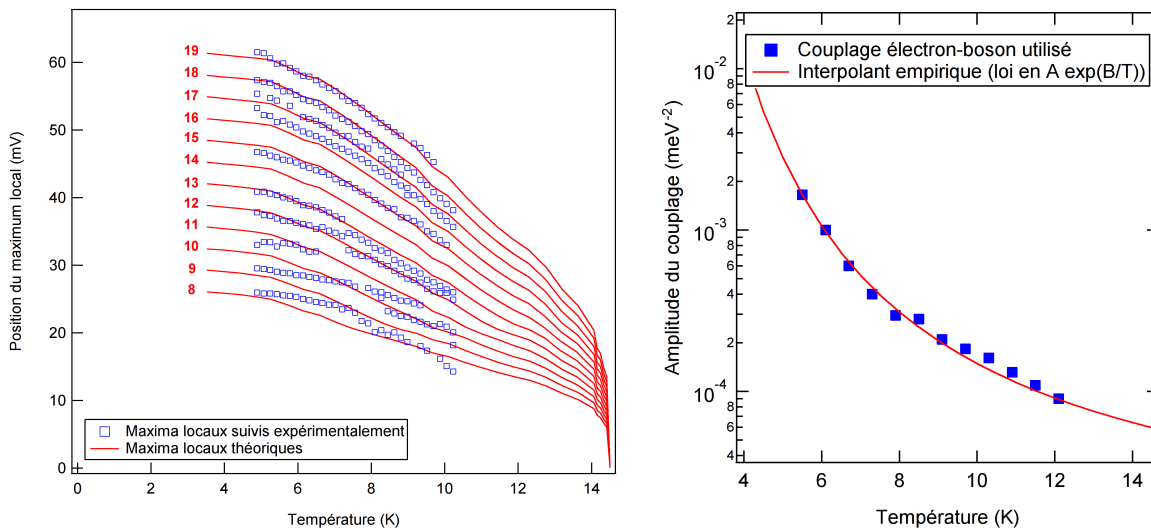


FIGURE 4.27 – Evolution en  $T$  des maxima expérimentaux et prévus (gauche) et loi  $\lambda(T)$  ajustée correspondante (droite)

En conclusion, l'accord de ce modèle avec les maxima expérimentaux pourrait être assez satisfaisant pour considérer l'interprétation qu'il propose à la loi  $L(V)$  comme plausible. Mais cette conclusion doit être nuancée par le fait que ce modèle nécessite l'ajustement d'un paramètre théorique difficilement accessible expérimentalement et l'utilisation d'une méthode indirecte pour estimer la position des maxima de conductance, et que malgré tout cela il n'offre à terme qu'un accord modéré avec l'expérience.

## 4.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié un phénomène d'oscillations de conductance différentielle hors équilibre présent dans des contacts ponctuels entre un métal et le pnicture  $Ba(Fe, Ni)_2As_2$ . Nous avons d'abord présenté une procédure de traitement de données permettant d'isoler l'oscillation en question, puis nous avons cherché une interprétation théorique à cette dernière.

Si des oscillations de conductance différentielle en spectroscopie de pointe sont habituellement interprétées en termes de résonances géométriques, nous avons montré que la nature hors-équilibre de l'oscillation observée restreindrait une telle interprétation à l'hypothèse d'une transition locale de l'échantillon supraconducteur vers l'état métallique, autour du point d'injection de courant. Nous avons alors prédit la conductance différentielle attendue dans ce cas, en laissant à ce stade en suspens la question du mécanisme exact pour la transition locale de l'échantillon vers l'état métallique.

Nous avons ensuite considéré trois mécanismes possibles pour la transition de l'échantillon vers l'état métallique : un dépassement local du courant critique de depairing  $J_d$ , un dépassement local de la température critique  $T_c$  de l'échantillon, et une modification

locale de la distribution en énergie des électrons de l'échantillon sous l'effet de l'injection de courant.

Au terme de cette étude, la première interprétation théorique nous semble la meilleure. Elle donne en effet des résultats compatibles avec l'expérience, et ce avec un formalisme théorique très simple et une remarquable économie d'hypothèses. Ce n'est pas le cas des autres modèles considérés. Le troisième modèle pourrait cependant également potentiellement convenir, si de nouveaux éléments expérimentaux venaient à justifier son utilisation.

Nous pouvons retenir de cette étude qu'il faut être prudent lors de l'étude de contacts ponctuels métal-supraconducteur de faible résistance électrique avec la technique "needle-anvil". En effet, la forte injection de courant présente en leur sein peut détruire la supraconductivité localement avec pour conséquence des signatures dans le spectre de conductance différentielle de la jonction qu'il ne serait que trop aisé de mal interpréter : gap supraconducteur ajusté trop faible, élargissement inélastique  $\Gamma$  ajusté trop important, et maxima locaux de conductance que l'on pourrait interpréter par erreur comme la signature directe de la fonction d'Eliashberg de modes bosoniques.

Une méthode expérimentale pour éviter ce problème est d'utiliser des contacts ponctuels aussi résistifs que possible, exploitant pour cela la possibilité offerte dans la technique needle-anvil de moduler finement la résistance des contacts obtenus. On saura que la résistance de contact est assez élevée lorsque plus aucun effet hors-équilibre ne sera visible dans les spectres de conductance différentielle observés.



# Chapitre 5

## Conclusion

Plus de cent ans après la découverte de la supraconductivité en 1911 par Heike Kamerlingh Onnes, cette manifestation macroscopique de la nature quantique de la matière est encore loin d'avoir livré tous ses secrets. C'est en particulier le cas de la supraconductivité non conventionnelle des cuprates, dont la haute température critique fascine mais dont l'origine microscopique reste encore à trouver.

Découverts en 2006, les supraconducteurs au fer ont un diagramme de phase similaire aux cuprates, mais se sont révélés relativement plus simples à étudier sur le plan théorique et expérimental. Cela a suscité l'espoir de trouver, dans l'étude de leur supraconductivité elle aussi non conventionnelle, des éléments pouvant conduire à une compréhension plus approfondie de la supraconductivité en général. Cependant, en pratique, l'étude de la supraconductivité des pnictures s'est révélée elle aussi particulièrement complexe, avec notamment des résultats expérimentaux contradictoires concernant leurs gaps supraconducteurs et leur symétrie.

C'est dans ce contexte que j'ai mis au point un dispositif de spectroscopie de pointe, technique permettant d'étudier les gaps supraconducteurs d'un matériau mais aussi de mesurer des signatures de son couplage électron-boson. Ce dernier élément, assez difficile à mesurer par d'autres techniques, constitue un élément clé pour la prédiction théorique des propriétés d'un supraconducteur, puisqu'il contient des informations sur l'interaction retardée entre électrons à l'origine de la supraconductivité.

C'est en recherchant ce signal que j'ai découvert un autre signal oscillant hors équilibre, dont la période variait comme un gap supraconducteur. J'ai donc entrepris d'étudier théoriquement et de modéliser ce signal, afin de mieux comprendre son origine, et de pouvoir le discriminer d'autres effets prévus en spectroscopie de pointe.

A terme, ces oscillations semblent être issues d'un dépassement local du courant de depairing  $J_d$  de l'échantillon, causant une transition locale de ce dernier vers l'état normal, ou éventuellement d'une modification locale de la distribution électronique  $f(E)$  de l'échantillon. Des mesures complémentaires pourraient permettre de discriminer de façon plus certaine entre ces deux hypothèses, et d'évaluer la possibilité expérimentale d'utiliser cet effet pour déterminer le courant de depairing d'un échantillon ou l'évolution à basse température de sa fonction d'Eliashberg  $\alpha^2F(\omega)$ .

Il serait également intéressant d'appliquer la technique de spectroscopie de pointe à d'autres supraconducteurs au fer, tel que  $FeSe$ , ou plus généralement d'autres supraconducteurs de basse dimensionnalité tels que  $Cu_xTiSe_2$ , en prenant soin d'éliminer des signaux mesurés les effets hors-équilibre précités par l'étude de contacts ponctuels plus résistifs.



Enfin, le dispositif que j'ai mis au point permet aussi d'effectuer des mesures de microscopie à sonde de Hall, qui permettent d'étudier de façon complémentaire les propriétés magnétiques d'un échantillon et leur homogénéité (annexe D). Cette portion du dispositif expérimental est toujours en développement actif afin d'introduire un asservissement en hauteur de la sonde de Hall qui permettra de garantir un contact constant entre cette dernière et l'échantillon. Cela permettra, à terme, d'obtenir une meilleure résolution spatiale et d'éviter des biais expérimentaux liés à la rugosité de surface des échantillons. Ceci permettra en retour d'appliquer cette technique à une plus large gamme de matériaux.

# Annexe A

## Extraction du signal oscillant

Comme on peut le voir figure A.1, l'intensité du signal oscillant que nous cherchons à étudier dans le cadre du chapitre 4 est particulièrement faible (environ 1% du signal de conductance différentielle). Il est donc nécessaire d'extraire ce dernier par un traitement mathématique.

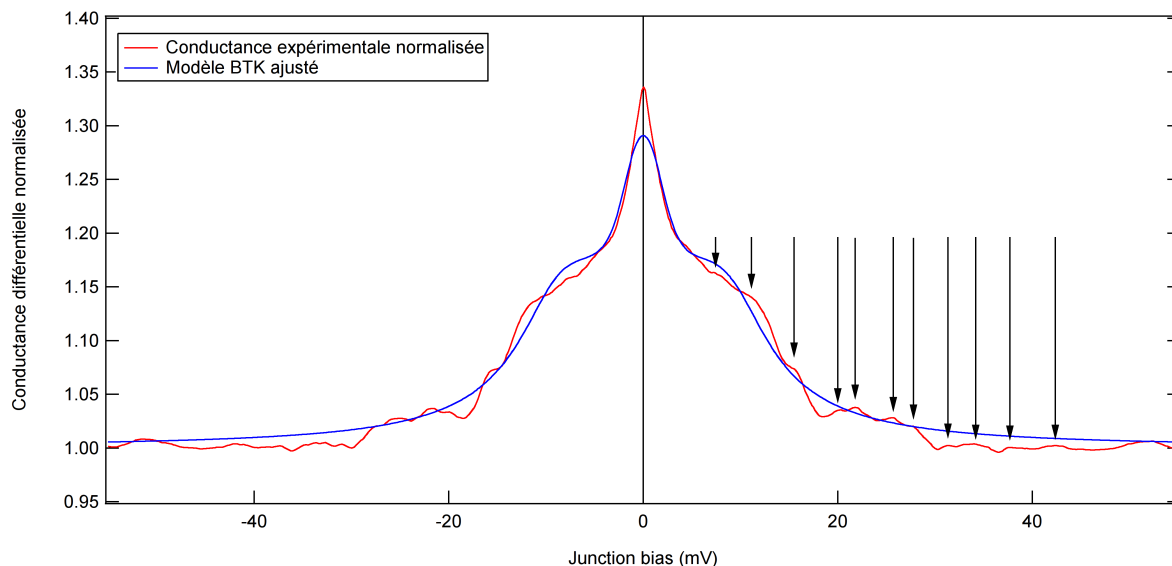


FIGURE A.1 – Conductance différentielle d'une jonction à faible barrière (rouge) et modèle BTK à deux gaps (bleu). Les flèches noires indiquent des maxima locaux, dont certains sont associés au signal oscillant que nous cherchons à étudier.

Nous souhaitons ici mettre au point un traitement général, qui ne suppose pas la disponibilité d'un modèle BTK ajusté en bon accord avec les données expérimentales. Nous pouvons baser une telle analyse sur la forme des spectres *typiquement* prévus par le modèle BTK, ainsi que celle de la perturbation qui s'y superpose.

Du fait de l'allure quasi-périodique de l'oscillation étudiée, en comparaison avec le signal BTK apériodique dominant, il est intéressant d'utiliser l'analyse de Fourier. En effet, la transformée de Fourier concentre l'énergie des signaux périodiques ou quasi-périodiques et disperse celle des signaux apériodiques. Les résultats du calcul direct d'une transformée de Fourier du spectre et du modèle BTK ci-dessus sont représentés figure A.2.

Cette première analyse est encourageante, car on observe déjà une différence significative

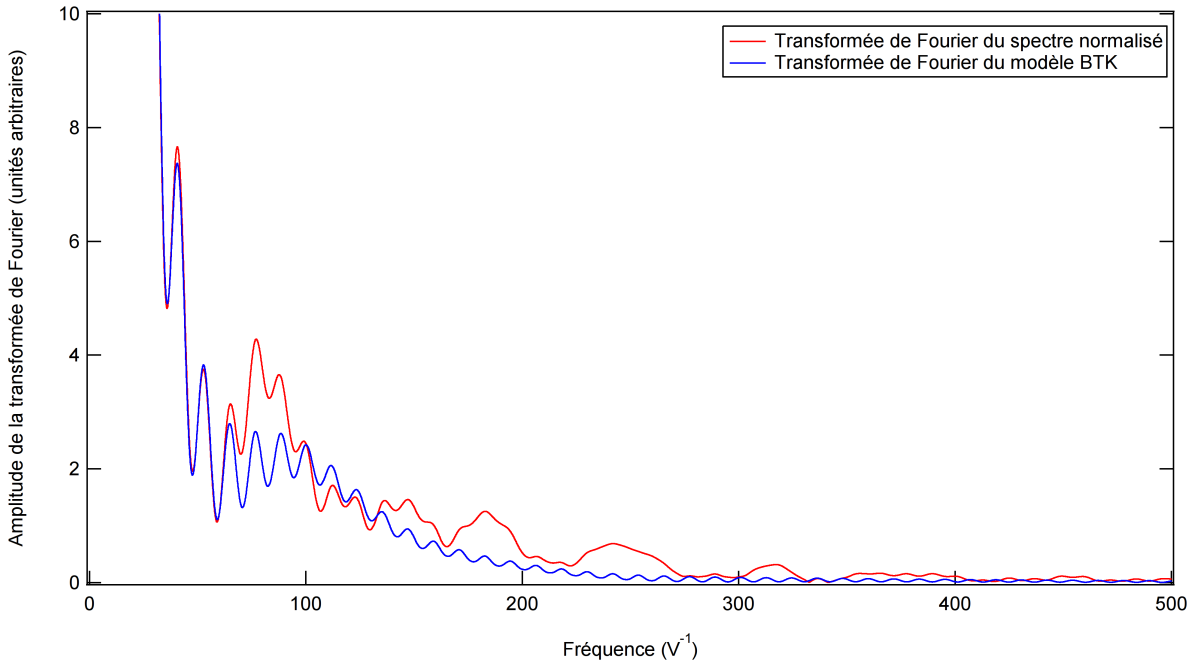


FIGURE A.2 – Amplitude de la transformée de Fourier du signal expérimental (rouge) et du signal prévu dans le cadre du modèle BTK (bleu). Les composantes de fréquence inférieure à  $50 V^{-1}$ , non montrées du fait de leur très forte intensité, coïncident presque parfaitement.

entre les transformées de Fourier du signal expérimental et du modèle BTK. A partir d'une fréquence de l'ordre de  $50 V^{-1}$ , la transformée de Fourier du signal expérimental présente en effet des maxima locaux absents de celle du modèle BTK, qu'on pourrait soupçonner de correspondre aux modes fondamentaux ou harmoniques d'une oscillation quasi-périodique. Cependant, afin d'optimiser l'extraction du signal, il est important d'appliquer certaines corrections à la méthodologie d'analyse fréquentielle naïve ci-dessus.

Tout d'abord, remarquons que les signaux expérimentaux et prévus dans le cadre du modèle BTK présentent une composante continue dont l'amplitude est de l'ordre de 1 sur l'échelle de conductance différentielle normalisée que nous utilisons. Cette composante perturbe la transformée de Fourier du signal, car nous observons un signal  $S(V)$  dont l'étendue en tension  $\Delta V$  est finie, ce qui correspond en termes fréquentiels à un élargissement de ses composantes de Fourier sur une largeur  $\Delta f \propto (\Delta V)^{-1}$ . C'est cet élargissement de la composante de Fourier associé à la composante continue du signal qui conduit aux modulations rapides des transformées de Fourier présentées figure A.2.

En soustrayant la composante continue des signaux avant de calculer leur transformée de Fourier (fig. A.3), cet effet indésirable peut aisément être évité, avec pour résultat une transformée de Fourier beaucoup plus lisse et dont il est plus aisé de séparer les différents modes oscillants.

L'analyse préliminaire ci-dessus présente aussi une autre faille, d'ordre plus conceptuel, liée au fait que nous calculons la transformée de Fourier d'un signal symétrique. Du fait de la linéarité de la transformée de Fourier, cela revient à observer la somme de la transformée de Fourier du signal mesuré pour  $V > 0$  (qui contient à lui seul toute l'information physique des spectres mesurés), et de la transformée de Fourier du même signal auquel on a appliqué l'opérateur de renversement de  $V$  ( $R : V \rightarrow -V$ ).

Or, il est bien connu que la transformée de Fourier du signal inversé en  $V$  n'est autre

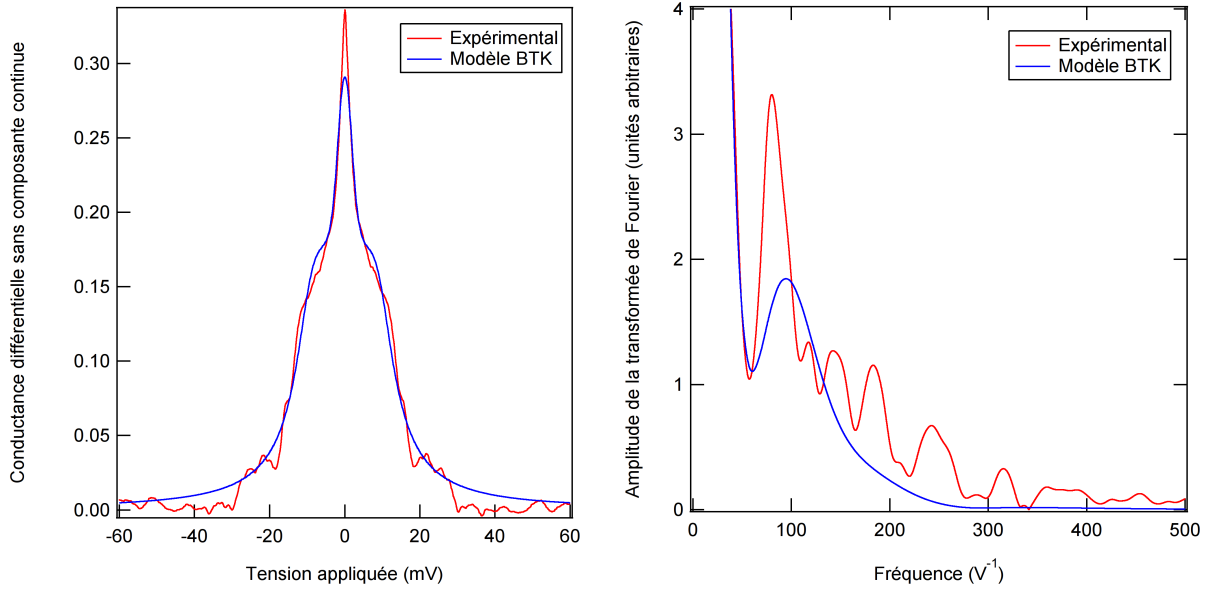


FIGURE A.3 – A gauche, signal expérimental (rouge) et signal prévu dans le cadre du modèle BTK (bleu), après soustraction de leurs composantes continues. A droite, amplitudes de leurs transformées de Fourier respectives.

que celle du signal pour  $V > 0$  avec une phase inversée ( $\phi \rightarrow -\phi$ ). Combiner ces deux signaux conduit donc au calcul de la partie réelle de la transformée de Fourier du signal pour  $V > 0$ , et non à celui de la transformée de Fourier véritable de ce signal.

Pour éliminer cet artefact d'analyse, il suffit de symétriser le signal avant d'en calculer sa transformée de Fourier, et de ne garder que la portion du signal symétrisé correspondant à  $V > 0$ . On observe ainsi une bien meilleure approximation du module de la transformée de Fourier du signal à  $V > 0$  (fig. A.4).

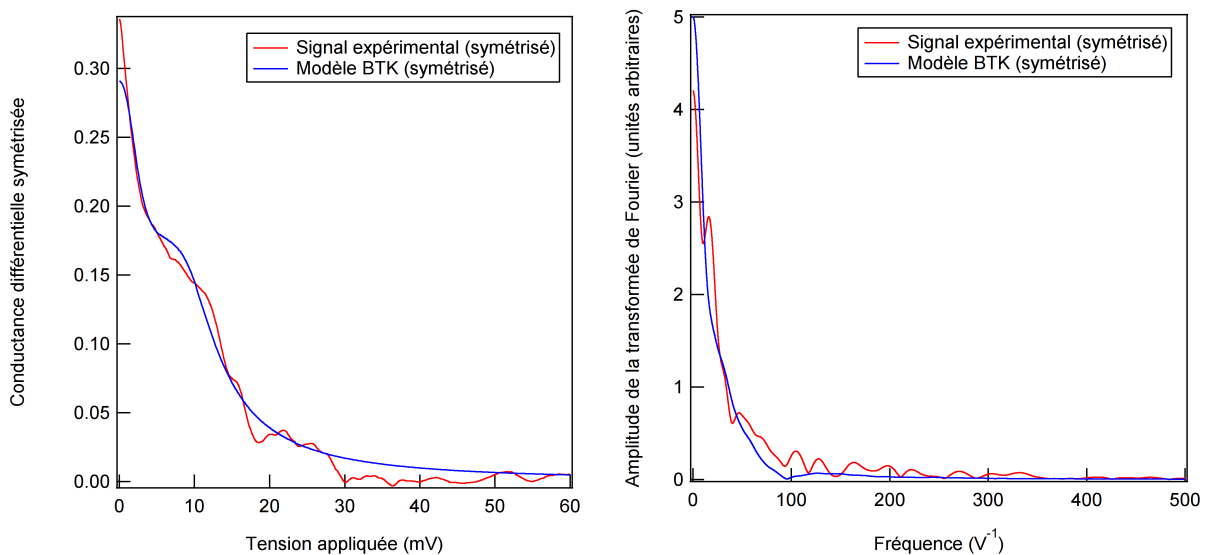


FIGURE A.4 – A gauche, signal expérimental (rouge) et prévisions du modèle BTK (bleu), après symétrisation. A droite, amplitudes de leurs transformées de Fourier respectives.

Nous pouvons faire deux remarques sur ce dernier traitement :

- La transformée de Fourier de la modulation observée n'est pas aussi simple qu'elle le semblait lorsque nous en observions involontairement la partie réelle.
- En prenant correctement en compte la partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal, l'amplitude du signal prévu par le modèle BTK devient plus faible par rapport à celle du signal expérimental, à haute fréquence.

En remarquant que l'essentiel du signal associé au modèle BTK est concentré autour de  $V = 0$ , et que l'essentiel des maxima locaux observés se situent hors du gap supraconducteur, il est possible d'optimiser encore un peu la séparation du signal BTK et de la modulation étudiée en éliminant du calcul de la transformée de Fourier les points à basse tension, correspondant à la portion la plus intense du pic BTK (fig. A.5).

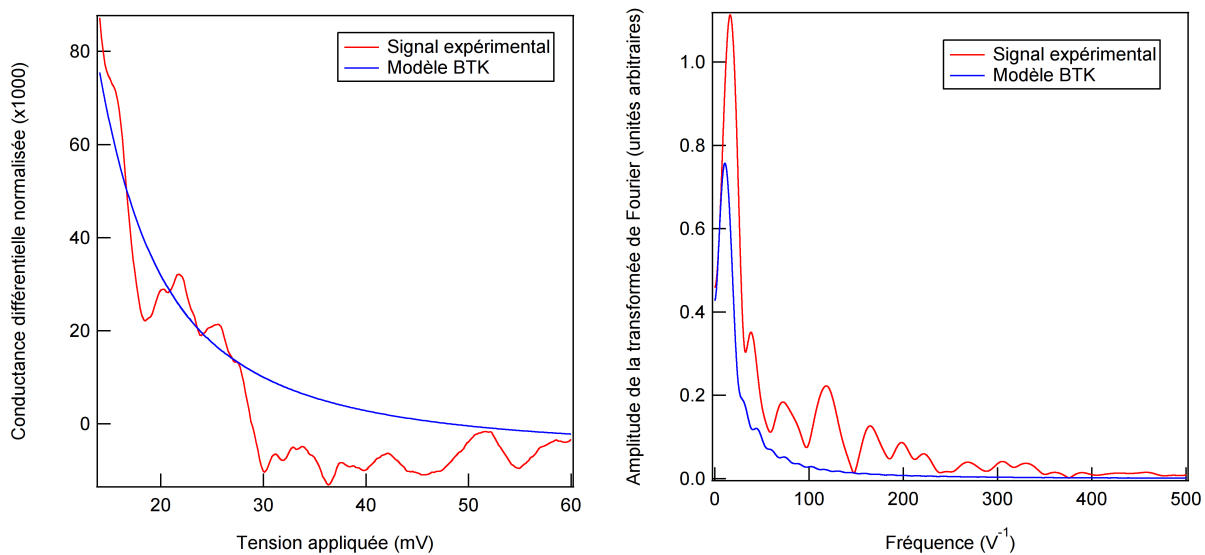


FIGURE A.5 – À gauche, signal expérimental (rouge) et prévisions du modèle BTK (bleu), sur une plage de  $V$  restreinte. À droite, amplitudes de leurs transformées de Fourier.

Cette méthode d'extraction optimisée du signal s'opère toutefois au prix d'une perte de résolution en fréquence, puisque nous considérons une plage de  $V$  plus faible, et doit donc être appliquée avec prudence et modération.

À ce stade, il est manifeste que la contribution au signal observé prévue par le modèle BTK a uniquement une influence sur les basses fréquences du signal observé. Il est donc possible d'extraire l'essentiel de la modulation étudiée en appliquant un filtre passe-haut fortement sélectif en fréquence, dont la fréquence de coupure est choisie de telle sorte à correspondre à la fréquence à laquelle la contribution BTK au signal observé devient négligeable (environ  $30 \text{ V}^{-1}$ ). On obtient ainsi un signal filtré contenant l'essentiel de l'information physique issue de l'oscillation observée, mais où cette dernière est beaucoup plus facile à analyser que dans un spectre de conductance différentielle brut.

Ce faisant, afin d'éviter de déformer ou translater horizontalement les maxima locaux de l'oscillation observés (ce qui serait extrêmement problématique du point de vue de l'analyse ultérieure), il est nécessaire d'utiliser un filtre à phase nulle. Un tel filtre ne fait que modifier l'amplitude des composantes de Fourier du signal, sans altérer leur phase. Cette contrainte peut être facilement satisfaite en utilisant un filtre de réponse impulsionnelle finie dont la réponse est symétrique en  $V$ .

Le résultat est présenté fig. A.6. On peut constater que la procédure présentée ici permet

d'isoler efficacement le signal oscillant que nous souhaitons étudier ici, par rapport au fond intense prédit par le modèle BTK, sans le déformer exagérément ni dans l'espace réel, ni dans l'espace de Fourier. Cela simplifie grandement l'étude de ladite oscillation.

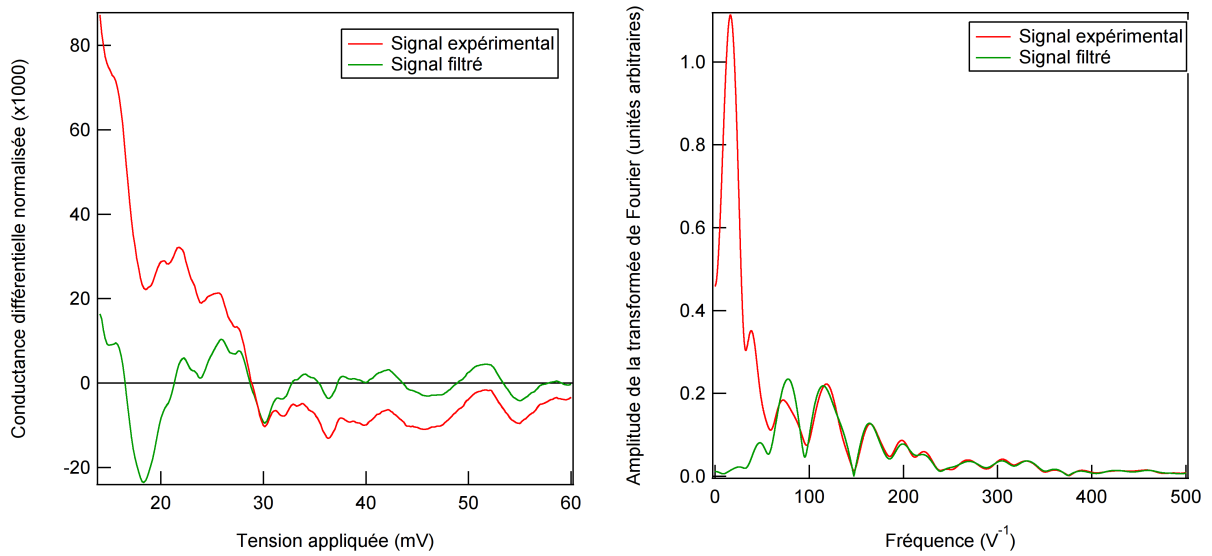


FIGURE A.6 – A gauche, signal expérimental (rouge) et filtré (vert). A droite, amplitudes de leurs transformées de Fourier respectives.



# Annexe B

## Jonctions métal-métal-supraconducteur

### Introduction

Si, dans un contact ponctuel entre métal et supraconducteur, le supraconducteur transite localement vers l'état normal, on observe de façon effective la formation d'une jonction métal-métal-supraconducteur, où la première région métallique correspond à l'électrode métallique, la seconde à la portion du supraconducteur qui a transité vers l'état normal, et la troisième à la portion du supraconducteur qui demeure supraconductrice. Nous allons donc maintenant dériver la conductance d'une telle jonction dans une géométrie simplifiée, en suivant l'approche de [26].

Par rapport à cette dérivation historique, le calcul présenté ici offre en complément un raisonnement plus détaillé, et des notations plus compatibles avec celles utilisées dans le chapitre 3 pour la dérivation du modèle BTK. En particulier, la barrière énergétique présente à l'interface pointe-échantillon est exprimée en termes d'une barrière BTK effective  $Z_{\text{eff}}$ , ce qui permet la réutilisation des paramètres de jonctions trouvés par l'ajustement d'un modèle BTK aux données expérimentales.

De plus, la similarité théorique accrue entre les calculs permet une discussion plus riche des points communs et différences entre le modèle BTK pour des jonctions métal-supraconducteur d'une part, et le modèle présenté ici pour les jonctions métal-métal-supraconducteur d'autre part.

### B.1 Modélisation du système

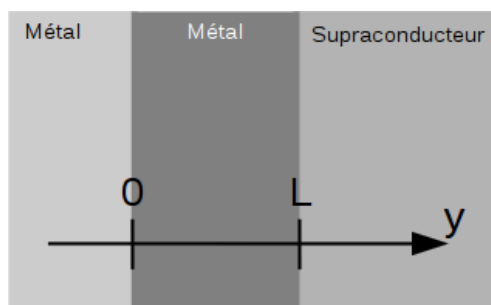


FIGURE B.1 – Schéma de la jonction métal-métal-supraconducteur étudiée



Considérons donc une telle jonction dans une géométrie simplifiée à une dimension, où l'origine de l'axe des abscisses  $y$  est pris à l'interface métal-métal, et l'épaisseur de la seconde région métallique est notée  $L$  (fig. B.1).

Un tel système peut être analysé avec un formalisme analogue à celui utilisé pour la dérivation du modèle BTK, basé sur la résolution des équations de Bogoliubov–de Gennes. Toutefois, une jonction présentant deux interfaces successives ne peut pas être complètement analysée en termes d'événements à une ou deux particules ayant une certaine probabilité de se produire. Un calcul explicite des fonctions d'ondes solution est donc nécessaire à la dérivation du présent modèle.

Les équations de Bogoliubov–de Gennes s'écrivent en termes de fonctions d'ondes à deux particules  $\psi(y)$ , que l'on peut interpréter comme la fonction d'onde d'une paire électron-trou singulet en cohérence de phase. Elles permettent de décrire le transport électrique balistique dans un métal normal comme dans un supraconducteur, et sont donc un outil théorique particulièrement utile pour le traitement de la jonction étudiée ici.

En écrivant  $\psi(y) = \begin{pmatrix} u(y) \\ v(y) \end{pmatrix}$ , ces équations s'écrivent

$$\begin{cases} \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dy^2} + V(y) - E_F \right] u(y) + \Delta(y)v(y) = Eu(y) \\ - \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dy^2} + V(y) - E_F \right] v(y) + \Delta(y)u(y) = Ev(y) \end{cases}$$

Dans ces relations,  $u(y)$  et  $v(y)$  peuvent être interprétés respectivement comme les fonctions d'ondes de l'électron et du trou considérés,  $V(y)$  est l'énergie potentielle d'un électron normal,  $\Delta(y)$  est l'amplitude du gap supraconducteur, ici supposé unique et isotrope (nous discuterons plus loin des manières de lever cette limitation théorique), et  $E$  est l'énergie des électrons incidents.

Afin de simplifier les calculs, nous poserons dans ce qui suit l'origine des énergies électroniques à l'énergie de Fermi ( $E_F = 0$ ), et nous considérerons ici uniquement l'injection d'électrons d'énergie  $E \geq E_F$  dans le supraconducteur. L'injection de trous d'énergie  $-E$  aura, en effet, un effet exactement identique dans le cas d'un système présentant une symétrie électron-trou, ce que nous supposons être le cas des matériaux utilisés ici (pointe métallique et supraconducteur).

Résoudre ces équations suppose d'avoir un modèle pour  $V(y)$  et  $\Delta(y)$ . Suivant en cela le modèle BTK historique, le présent modèle adopte pour le potentiel à une particule  $V$  le modèle  $V(y) = V_1 + H\delta(y) + (V_2 - V_1)h(y)$ , dans lequel

- $H\delta(y)$  est une impulsion de Dirac d'amplitude  $H$  en  $y = 0$ , représentant la barrière opposée par le contact au passage des électrons.
- $h(y)$  est la fonction échelon de Heaviside, nulle pour  $y \leq 0$  et valant 1 pour  $y > 0$ .
- $V_1$  et  $V_2$  sont des valeurs distinctes du potentiel  $V$  dans la pointe métallique et l'échantillon, reflétant le fait qu'ils ont des propriétés de conduction électrique différentes dans l'état normal.

En ce qui concerne la variation spatiale du gap supraconducteur  $\Delta(y)$ , ce dernier est assimilé à une fonction échelon localisée en  $y = L$ , représentant une destruction de la supraconductivité pour  $y \in [0, L]$  par un effet hors-équilibre non spécifié, suivie d'un rétablissement brutal de celle-ci. On a donc  $\Delta(y) = \Delta_0 h(y - L)$  avec  $\Delta_0$  l'amplitude du gap supraconducteur de la région supraconductrice à l'équilibre.

## B.2 Forme de la fonction d'onde

Considérons maintenant la réponse du système à l'injection d'un électron par la pointe métallique, localisée en  $y < 0$  :

- A l'interface métal-métal, l'électron peut être réfléchi normalement ou transmis.
- S'il est transmis, en arrivant à l'interface métal-supraconducteur, il peut être réfléchi normalement, transmis normalement, transmis avec inversion de  $\vec{k}$ , ou subir une réflexion d'Andreev, comme dans le modèle BTK.
- Les électrons et trous réfléchis à l'interface normal-supraconducteur repartent vers l'interface métal-métal, où ils peuvent être transmis vers  $y < 0$ , ou bien réfléchis avec répétition du processus précédent.
- Pour les trous incidents au supraconducteur, il existe aussi un processus possible de réflexion Andreev inverse, par lequel un trou est absorbé par le supraconducteur avec réflexion d'un électron (et destruction d'une paire de Cooper).

En conséquence, lorsque le système est dans l'état stationnaire, on a

- En  $y < 0$ , des électrons incidents et réfléchis et des trous réfléchis ;
- En  $0 < y < L$ , des électrons incidents et réfléchis et des trous incidents et réfléchis ;
- En  $y > L$ , des excitations du condensat supraconducteur correspondant à des réflexions d'Andreev (pour les électrons absorbés) et à des réflexions d'Andreev inverses (pour les trous absorbés).

Dans le formalisme de Bogoliubov–de Gennes, et en réutilisant autant que possible les notations du modèle BTK, ces différentes possibilités conduisent à prédire une fonction d'onde de la forme suivante :

$$\psi(y) = \begin{cases} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{iq^+y} + \hat{b} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{-iq^+y} + \hat{a} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{iq^-y} & \text{pour } y < 0 \\ \hat{e} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{ik^+y} + \hat{f} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} e^{-ik^+y} + \hat{h} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{ik^-y} + \hat{g} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} e^{-ik^-y} & \text{pour } 0 < y < L \\ \hat{c} \begin{pmatrix} u_0 \\ v_0 \end{pmatrix} e^{i\kappa^+y} + \hat{d} \begin{pmatrix} v_0 \\ u_0 \end{pmatrix} e^{-i\kappa^-y} & \text{pour } y > L \end{cases}$$

Dans cette expression, on a

- $\hat{a}$ ,  $\hat{b}$ ,  $\hat{c}$ ,  $\hat{d}$ ,  $\hat{e}$ ,  $\hat{f}$ ,  $\hat{g}$ ,  $\hat{h}$  des amplitudes complexes que l'on doit déterminer
- $q^\pm = k_F^\pm \pm E/(\hbar v_F^\pm)$  les vecteurs d'ondes des électrons (+) et trous (−) dans la pointe métallique, avec  $k_F^\pm$  le vecteur d'onde de Fermi de celle-ci et  $v_F^\pm$  sa vitesse de Fermi
- $k^\pm = k_F^\pm \pm E/(\hbar v_F^\pm)$  les vecteurs d'ondes des porteurs dans la partie métallique du supraconducteur, avec  $k_F^\pm$  son vecteur d'onde de Fermi et  $v_F^\pm$  sa vitesse de Fermi
- $\kappa^\pm = \sqrt{2m/\hbar} \sqrt{E_F \pm (E^2 - \Delta^2)^{1/2}}$  les vecteurs d'ondes des quasiparticules de Bogoliubov créées par réflexion d'Andreev (+) ou réflexion d'Andreev inverse (−) dans le supraconducteur
- $u_0^2 = 1 - v_0^2 = \frac{1}{2} [1 + E^{-1} \sqrt{E^2 - \Delta^2}]$  les facteurs de cohérence BCS, sous leur forme étendue par le modèle BTK pour  $E < \Delta$  (où ils sont complexes conjugués)

De plus, on sait que la fonction d'onde  $\psi(y)$  doit être continue en  $y = 0$  et  $y = L$ , et que sa dérivée spatiale  $\psi'(y) = d\psi/dy$  doit être continue en  $y = L$ . Et du fait de l'existence d'une barrière de potentiel ponctuelle en  $y = 0$ , on a la condition aux limites

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} [\psi'(\epsilon) - \psi'(-\epsilon)] = \frac{2m}{\hbar^2} H\psi(0)$$

En injectant  $\psi(y)$  dans les équations de Bogoliubov–de Gennes, et en y ajoutant les conditions aux limites ci-dessus, on obtient le système d'équations

$$\begin{pmatrix} -1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ r^+ & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & -r^- & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{ik^+L} & 0 & e^{-ik^+L} & 0 & -u_0 & -v_0 \\ 0 & 0 & e^{ik^+L} & 0 & -e^{-ik^+L} & 0 & -u_0 & v_0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{ik^-L} & 0 & e^{-ik^-L} & -v_0 & -u_0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{ik^-L} & 0 & -e^{-ik^-L} & -v_0 & u_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{b} \\ \hat{a} \\ \hat{e} \\ \hat{h} \\ \hat{f} \\ \hat{g} \\ \hat{c}e^{i\kappa^+L} \\ \hat{d}e^{-i\kappa^-L} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ r^- \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

Les quantités  $r^\pm$  introduites ci-dessus décrivent les différentes barrières au transport électrique existant dans le système, et sont définies par le système d'équations

$$\begin{cases} r^\pm = r \pm 2iZ_0 \\ r = \frac{k_F^<}{k_F^>} = \frac{v_F^<}{v_F^>} \\ Z_0 = \frac{mH}{\hbar^2 k_F^>} \end{cases}$$

Par continuité du courant électrique circulant dans la jonction, il suffit de déterminer la valeur de  $\psi(y)$  en un point de la jonction pour la déterminer en tout point de la jonction. Suivant en cela les démonstrations de [26] et du modèle BTK, on calcule donc la fonction d'onde des électrons et des trous dans la pointe métallique ( $y < 0$ ), autrement dit les coefficients  $\hat{a}$  et  $\hat{b}$  ci-dessus.

En résolvant le système précédent pour ces coefficients, on trouve

$$\begin{cases} \hat{b} = \frac{1}{4rD} (r^- + 1)(r^- - 1) (v_0^2 e^{i\alpha} - u_0^2 e^{-i\alpha}) \\ \hat{a} = \frac{1}{4rD} (-4ru_0v_0) \end{cases}$$

où on a introduit les quantités

$$\begin{cases} D = \frac{1}{4r} [(r^+ - 1)(r^- - 1)v_0^2 e^{i\alpha} - (r^+ + 1)(r^- + 1)u_0^2 e^{-i\alpha}] \\ \alpha = \frac{2LE}{\hbar v_F^>} \end{cases}$$

### B.3 Transmission électronique de la jonction

Une fois que l'on connaît  $\hat{a}$  et  $\hat{b}$  dans l'expression de  $\psi(y)$ , il est important de prendre en compte les considérations suivantes :

— Le terme unité de  $\psi$  correspond à la propagation libre d'un électron.

- Le terme d'amplitude  $\hat{a}$  (réflexion d'un trou avec une probabilité  $|\hat{a}|^2$ ) est issu d'une réflexion Andreev à l'interface normal-supraconducteur suivie d'un nombre pair de réflexions normales aux interfaces, il doit donc être en phase avec le terme précédent et contribuer positivement au courant.
- Le terme d'amplitude  $\hat{b}$  (réflexion d'un électron avec une probabilité  $|\hat{b}|^2$ ) est issu d'un nombre impair de réflexions normales aux interfaces, il doit donc être en opposition de phase avec le terme de propagation libre et contribuer négativement au courant.

Par conséquent, la jonction métal-métal-supraconducteur étudiée présente une transmission nette pour les électrons incidents d'énergie  $E$  de valeur  $T(E) = 1 + |\hat{a}|^2 - |\hat{b}|^2$ . Pour calculer cette dernière, il va donc être nécessaire de calculer  $|\hat{a}|^2$  et  $|\hat{b}|^2$ .

Pour commencer, nous allons simplifier un peu les expressions de  $\hat{a}$ ,  $\hat{b}$  et  $D$  :

$$\begin{cases} \hat{b} = \frac{1}{D} \left[ \frac{(r^- + 1)(r^- - 1)}{4r} (v_0^2 e^{i\alpha} - u_0^2 e^{-i\alpha}) \right] \\ \hat{a} = -\frac{1}{D} u_0 v_0 \\ D = \frac{1}{4r} [(r^+ r^- - r^+ - r^- + 1) v_0^2 e^{i\alpha} - (r^+ r^- + r^+ + r^- + 1) u_0^2 e^{-i\alpha}] \end{cases}$$

$r^+$  et  $r^-$  étant complexes conjugués, on peut écrire entièrement  $D$  en fonction de  $r^-$  :

$$D = \frac{1}{4r} [(|r^-|^2 - 2\text{Re}(r^-) + 1) v_0^2 e^{i\alpha} - (|r^-|^2 + 2\text{Re}(r^-) + 1) u_0^2 e^{-i\alpha}]$$

En injectant la définition de  $r^-$ , on a  $\text{Re}(r^-) = r$  et  $|r^-|^2 = r^2 + 4(Z_0)^2$ , d'où

$$\begin{aligned} D &= \frac{1}{4r} [(r^2 - 2r + 1 + 4(Z_0)^2) v_0^2 e^{i\alpha} - (r^2 + 2r + 1 + 4(Z_0)^2) u_0^2 e^{-i\alpha}] \\ &= \frac{1}{4r} [((r-1)^2 + 4(Z_0)^2) v_0^2 e^{i\alpha} - ((r+1)^2 + 4(Z_0)^2) u_0^2 e^{-i\alpha}] \\ D &= \left[ \frac{(r-1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] v_0^2 e^{i\alpha} - \left[ \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] u_0^2 e^{-i\alpha} \end{aligned}$$

Pour calculer le module du dénominateur  $|D|^2$ , il est nécessaire d'écrire les facteurs de cohérence  $u_0$  et  $v_0$  sous forme polaire. Comme ils sont de phase opposée, on utilisera pour cela les notations

$$\begin{cases} u_0^2 = |u_0|^2 e^{i\phi} \\ v_0^2 = |v_0|^2 e^{-i\phi} \end{cases}$$

Avec cette forme pour  $u_0^2$  et  $v_0^2$ , on a

$$\begin{aligned} |D|^2 &= D\bar{D} \\ |D|^2 &= \left[ \frac{(r-1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right]^2 |v_0|^4 + \left[ \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right]^2 |u_0|^4 \\ &\quad - 2 \left[ \frac{(r-1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] \left[ \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] |u_0|^2 |v_0|^2 \cos[2(\alpha - \phi)] \end{aligned}$$

et le calcul de la probabilité  $|\hat{a}|^2$  de réflexion d'un trou par la jonction est trivial :

$$|\hat{a}|^2 = |D|^{-2} |u_0|^2 |v_0|^2$$

Il ne reste donc plus qu'à calculer la probabilité  $|\hat{b}|^2$  de réflexion d'un électron par la jonction, par une méthodologie analogue à la précédente

$$\begin{aligned} |\hat{b}|^2 &= \hat{b} \times \bar{\hat{b}} \\ &= \frac{1}{|4rD|^2} (r^- + 1)(r^- - 1)(r^+ + 1)(r^+ - 1) (v_0^2 e^{i\alpha} - u_0^2 e^{-i\alpha}) (\bar{v}_0^2 e^{-i\alpha} - \bar{u}_0^2 e^{i\alpha}) \\ &= \frac{1}{|D|^2} \left[ \frac{(r^+ - 1)(r^- - 1)}{4r} \right] \left[ \frac{(r^+ + 1)(r^- + 1)}{4r} \right] \\ &\quad \times \{ |v_0|^4 + |u_0|^4 - 2|u_0|^2 |v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)] \} \end{aligned}$$

On reconnaît, dans les termes en  $r^\pm$ , des expressions déjà calculées lors du calcul de  $|D|^2$ , et on a donc directement

$$\begin{aligned} |\hat{b}|^2 &= \frac{1}{|D|^2} \left[ \frac{(r-1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] \left[ \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] \\ &\quad \times \{ |v_0|^4 + |u_0|^4 - 2|u_0|^2 |v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)] \} \end{aligned}$$

Si les expressions de  $|D|^2$ ,  $|\hat{b}|^2$ , et  $|\hat{a}|^2$  caractérisent pleinement la transmission de la jonction, on peut reprocher aux deux premières une certaine lourdeur mathématique qui rend leur exploitation difficile. Heureusement, comme dans le modèle BTK, ces équations présentent des termes redondants. Remarquons d'abord que l'on a

$$\begin{aligned} \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} &= \frac{r^2 + 2r + 1}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \\ &= \frac{r^2 - 2r + 1 + 4r}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \\ \frac{(r+1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} &= \left[ \frac{(r-1)^2}{4r} + \frac{(Z_0)^2}{r} \right] + 1 \end{aligned}$$

et introduisons la barrière BTK associée au potentiel répulsif  $H$  à l'interface pointe métallique-échantillon,

$$Z = \frac{Z_0}{\sqrt{r}} = \frac{mH}{\hbar^2 \sqrt{k_F^> k_F^<}} = \frac{H}{\hbar^2 \sqrt{v_F^> v_F^<}}$$

On peut constater que comme dans le modèle BTK, le système se comporte comme si il présentait une barrière BTK effective  $Z_{\text{eff}}$  ou un quotient de vecteurs d'ondes effectif  $r_{\text{eff}}$ , l'autre forme de barrière d'interface s'annulant totalement, avec la relation

$$Z_{\text{eff}}^2 = Z^2 + \frac{(r-1)^2}{4r} = \frac{(r_{\text{eff}} - 1)^2}{4r_{\text{eff}}}$$

Exprimées en termes de  $Z_{\text{eff}}$ , les expressions de  $|\hat{a}|^2$ ,  $|\hat{b}|^2$  et  $|D|^2$  deviennent

$$\begin{cases} |\hat{a}|^2 = |D|^{-2} |u_0|^2 |v_0|^2 \\ |\hat{b}|^2 = |D|^{-2} Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1) \{ |v_0|^4 + |u_0|^4 - 2|u_0|^2 |v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)] \} \\ |D|^2 = Z_{\text{eff}}^4 |v_0|^4 + (Z_{\text{eff}}^2 + 1)^2 |u_0|^4 - 2Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1) |u_0|^2 |v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)] \end{cases}$$

et le coefficient de transmission de la jonction  $T(E) = 1 + |\hat{a}|^2 - |\hat{b}|^2$  vaut donc

$$T(E) = 1 + \frac{|u_0|^2|v_0|^2 - Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1) \{|v_0|^4 + |u_0|^4 - 2|u_0|^2|v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)]\}}{Z_{\text{eff}}^4|v_0|^4 + (Z_{\text{eff}}^2 + 1)^2|u_0|^4 - 2Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1)|u_0|^2|v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)]}$$

Après simplification par mise à un dénominateur commun suivie d'une factorisation des termes en  $|u_0|^4$ ,  $|v_0|^4$  et  $|u_0|^2|v_0|^2$ , l'expression précédente se réduit à la forme suivante :

$$T(E) = \frac{-Z_{\text{eff}}^2|v_0|^4 + (Z_{\text{eff}}^2 + 1)|u_0|^4 + |u_0|^2|v_0|^2}{Z_{\text{eff}}^4|v_0|^4 + (Z_{\text{eff}}^2 + 1)^2|u_0|^4 - 2Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1)|u_0|^2|v_0|^2 \cos [2(\alpha - \phi)]}$$

Notons que par construction,  $|u_0|^2$  ne peut pas être nul sur l'intervalle d'énergies  $E \geq 0$  considéré. En effet, pour tout  $E > 0$ , on a

$$u_0^2 = \frac{1}{2} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{\Delta^2}{E^2}} \right]$$

La racine carrée dans cette expression est réelle positive pour  $E \geq \Delta$  et complexe pour  $E < \Delta$ , donc cette quantité ne peut pas s'annuler et son module non plus, y compris dans la limite  $E \rightarrow 0$  où sa partie imaginaire diverge.

Sachant cela, il est possible de diviser le numérateur et le dénominateur de  $T(E)$  par  $|u_0|^4$ , pour obtenir

$$\left\{ \begin{array}{l} T(E) = \frac{(Z_{\text{eff}}^2 + 1) + x - Z_{\text{eff}}^2 x^2}{(Z_{\text{eff}}^2 + 1)^2 - 2Z_{\text{eff}}^2 (Z_{\text{eff}}^2 + 1) x \cos [2(\alpha - \phi)] + Z_{\text{eff}}^4 x^2} \\ x = \frac{|v_0|^2}{|u_0|^2} \end{array} \right.$$

La quantité  $x$  que nous venons d'introduire s'exprime assez simplement en termes des énergies caractéristiques du système. En effet, pour  $E \geq \Delta$ , les facteurs de cohérence  $u_0^2$  et  $v_0^2$  sont réels, donc leur module est égal à leur valeur absolue, et pour  $E < \Delta$  ces quantités sont complexes conjuguées donc leurs modules sont égaux. On a donc

$$x = \begin{cases} 1 & \text{pour } E < \Delta \\ \frac{|E - \sqrt{E^2 - \Delta^2}|}{E + \sqrt{E^2 - \Delta^2}} & \text{pour } E \geq \Delta \end{cases}$$

La transmission de la jonction dans l'état normal  $\tau_N$  est ensuite obtenue en calculant la limite de  $T(E)$  pour  $\Delta \rightarrow 0$ , qui correspond au cas  $x \rightarrow 0$ . Comme dans le cas du modèle BTK, on a dans ce cas une transmission

$$\tau_N = \frac{1}{Z_{\text{eff}}^2 + 1}$$

De plus, on peut remarquer que

$$\left\{ \begin{array}{l} Z_{\text{eff}}^2 + 1 = \frac{1}{\tau_N} \\ Z_{\text{eff}}^2 = \frac{1 - \tau_N}{\tau_N} \end{array} \right.$$

Il est donc possible d'exprimer complètement  $T(E)$  en fonction de  $\tau_N$ , comme dans le cas du modèle BTK, et on a

$$\begin{aligned} T(E) &= \frac{\tau_N^{-1} + x - (1 - \tau_N)\tau_N^{-1}x^2}{\tau_N^{-2} - 2(1 - \tau_N)\tau_N^{-2}x \cos[2(\alpha - \phi)] + (1 - \tau_N)^2\tau_N^{-2}x^2} \\ &= \frac{\tau_N + \tau_N^2x + (\tau_N - 1)\tau_Nx^2}{1 + 2(\tau_N - 1)x \cos[2(\alpha - \phi)] + (\tau_N - 1)^2x^2} \\ &= \tau_N \frac{1 + \tau_Nx + (\tau_N - 1)x^2}{1 + 2(\tau_N - 1)x \cos[2(\alpha - \phi)] + (\tau_N - 1)^2x^2} \end{aligned}$$

A ce stade, on connaît les valeurs de  $\tau_N$ ,  $x$  et  $\alpha$  en fonction des données du problème et de la barrière BTK effective  $Z_{\text{eff}}$ . Pour trouver  $\phi$  l'argument de  $u_0^2$ , rappelons-nous de l'expression de  $u_0^2$  donnée au début du calcul :

$$u_0^2 = \frac{1}{2} \left[ 1 + E^{-1} \sqrt{E^2 - \Delta^2} \right]$$

Pour  $E \geq \Delta$ , l'argument de la racine est positif, donc  $u_0^2$  est réel et  $\phi = 0$ . Pour  $E < \Delta$ , la partie réelle de  $u_0^2$  est  $\frac{1}{2}$ , et on a

$$\begin{aligned} \cos(\phi) &= \frac{\frac{1}{2}}{\frac{1}{2} \sqrt{1 + E^{-2}(\Delta^2 - E^2)}} \\ &= \frac{E}{\sqrt{E^2 + (\Delta^2 - E^2)}} \\ &= \frac{E}{\Delta} \end{aligned}$$

La partie imaginaire de  $u_0^2$  vaut  $\frac{1}{2}E^{-1}\sqrt{\Delta^2 - E^2}$ , donc elle est toujours positive sur l'intervalle d'énergie  $0 < E < \Delta$  considéré. On a donc  $\phi \in [0, \pi]$  et  $\arccos(\cos(\phi)) = \phi$ , ce qui amène à une détermination complète de  $\phi$  sur l'intervalle d'énergies considéré :

$$\phi = \begin{cases} 0 & \text{pour } E \geq \Delta \\ \arccos(E/\Delta) & \text{pour } E < \Delta \end{cases}$$

Cependant, contrairement au cas du modèle BTK où  $\alpha = 0$ , il n'est pas possible d'utiliser cette expression pour simplifier le terme en  $\cos[2(\alpha - \phi)]$  au dénominateur de  $T(E)$ . C'est de ce terme qu'émergeront plus tard des oscillations de conductance différentielle.

## B.4 Calcul de la conductance différentielle normalisée

Une autre différence importante existe entre ce modèle et les modèles de jonctions à l'équilibre comme BTK : en régime hors équilibre, il n'y a plus une relation de proportionnalité simple entre  $T(E)$  et la conductance différentielle normalisée de la jonction dans l'état normal, que nous appellerons  $G(V)$ .

En effet, lorsque l'on change la tension  $V$  aux bornes de la jonction, deux paramètres physiques du système sont modifiés simultanément : l'énergie  $E$  que l'on sonde, et la taille  $L$  de la portion métallique de l'échantillon. En notant  $I_{NS}(V)$  le courant qui circule dans

la jonction lorsqu'on y applique une tension  $V$ , la conductance différentielle de la jonction doit donc être calculée par la dérivée totale

$$\frac{dI_{NS}}{dV} = \left. \frac{\partial I_{NS}}{\partial V} \right|_L + \frac{dL}{dV} \left. \frac{\partial I_{NS}}{\partial L} \right|_V$$

A ce stade, nous avons besoin de calculer  $I_{NS}$ . Comme on l'a vu dans 2.5.1, en négligeant le lissage des distributions électroniques de la pointe et de l'échantillon provoqué par la température, et en supposant la dispersion des bandes électroniques parabolique au voisinage de  $E_F$ , le courant traversant la jonction est donné par

$$I_{NS}(V) = -2ev_F \int_{E_F}^{E_F+eV} T(E, L)N(E)dE$$

Tandis que si le supraconducteur était dans l'état normal, on aurait pour courant

$$I_{NN}(V) = -2ev_F \int_{E_F}^{E_F+eV} \tau_N N(E)dE$$

En supposant la densité d'états du système approximativement constante sur l'intervalle de  $E$  considéré, et en notant sa valeur  $N_0$ , on a donc avec la convention  $E_F = 0$

$$\begin{cases} I_{NS}(V) = -2ev_F \int_0^{eV} T(E, L)N_0 dE = -2ev_F \tau_N N_0 \int_0^{eV} \frac{T(E, L)}{\tau_N} dE \\ I_{NN}(V) = -2ev_F \int_0^{eV} \tau_N N_0 dE = -2ev_F \tau_N N_0 \int_0^{eV} dE = -2e^2 v_F \tau_N N_0 V \end{cases}$$

Et en notant la résistance de la jonction dans l'état normal  $R_N = 2e^2 v_F \tau_N N_0$ , il vient

$$\begin{cases} I_{NS}(V) = -\frac{R_N}{e} \int_0^{eV} \frac{T(E, L)}{\tau_N} dE \\ I_{NN}(V) = -R_N V \end{cases}$$

Le calcul de la dérivée partielle de  $I_{NS}$  par rapport à  $V$  est trivial :

$$\left. \frac{\partial I_{NS}}{\partial V} \right|_L = -\frac{R_N}{e} \times \left. \frac{\partial}{\partial V} \left( \int_0^{eV} \frac{T(E, L)}{\tau_N} dE \right) \right|_L = -R_N \frac{T(eV, L)}{\tau_N}$$

et pour ce qui concerne l'effet de la variation de  $L$ , on a :

$$\left. \frac{\partial I_{NS}}{\partial L} \right|_V = -\frac{R_N}{e} \times \left. \frac{\partial}{\partial L} \left( \int_0^{eV} \frac{T(E, L)}{\tau_N} dE \right) \right|_V = -\frac{R_N}{e} \int_0^{eV} \frac{1}{\tau_N} \times \frac{dT}{dL}(E, L) dE$$

où l'on a remplacé la dérivée partielle par une dérivée totale sous l'intégrale, car  $T(E, L)$  ne dépend pas directement de  $V$ . Malheureusement, cette quantité n'est pas aisément calculable analytiquement, on la déterminera donc par dérivation numérique selon  $L$  de l'intégrale numérique de  $T(E, L)$ .

En conclusion, la conductance différentielle normalisée de la jonction est donc



$$\begin{aligned}
G(V) &= \frac{dI_{NS}}{dV} \times \left( \frac{dI_{NN}}{dV} \right)^{-1} \\
&= \frac{1}{R_N} \times \left[ R_N \frac{T(eV, L)}{\tau_N} + \frac{dL}{dV} \times \frac{R_N}{e\tau_N} \times \int_0^{eV} \frac{dT}{dL}(E, L) dE \right] \\
&= \frac{T(eV, L)}{\tau_N} + \frac{1}{e\tau_N} \times \frac{dL}{dV} \int_0^{eV} \frac{dT}{dL}(E, L) dE
\end{aligned}$$

## Conclusion

A ce stade, nous avons presque complètement caractérisé la conductance différentielle normalisée  $G(V)$  de la jonction métal-métal-supraconducteur étudiée. Le seul élément manquant est une connaissance théorique de la loi  $L(V)$  reliant la taille de la portion métallique de l'échantillon à la tension  $V$  appliquée à ses bornes, un point qui sera discuté davantage dans le reste de cette thèse. Pour résumer les conclusions de ce modèle :

$$\left\{ \begin{array}{l}
G(V) = \frac{T(eV, L)}{\tau_N} + \frac{1}{e\tau_N} \times \frac{dL}{dV} \int_0^{eV} \frac{dT}{dL}(E, L) dE \\
T(E, L) = \tau_N \times \frac{1 + \tau_N x + (\tau_N - 1)x^2}{1 + 2(\tau_N - 1)x \cos [2(\alpha(L) - \phi)] + (\tau_N - 1)^2 x^2} \\
\tau_N = \frac{1}{Z_{\text{eff}}^2 + 1} \\
x = \begin{cases} \frac{|E - \sqrt{E^2 - \Delta^2}|}{E + \sqrt{E^2 - \Delta^2}} & \text{pour } E \geq \Delta \\ 1 & \text{pour } E < \Delta \end{cases} \\
\alpha(L) = \frac{2LE}{\hbar v_F} \\
\phi = \begin{cases} 0 & \text{pour } E \geq \Delta \\ \arccos(E/\Delta) & \text{pour } E < \Delta \end{cases}
\end{array} \right.$$

Il est intéressant de faire quelques remarques sur ces résultats analytiques avant de procéder au calcul numérique de  $G(V)$  :

- Pour  $L = 0$ , le modèle doit mener aux mêmes conclusions que le modèle BTK, et pour  $L$  constant (où le second membre de  $G(V)$  est nul), il doit mener aux mêmes conclusions que le modèle de Rowell et McMillan [59].
- Pour  $L$  non nul, le dénominateur de  $T(E, L)$  oscille avec  $E$  et  $L$  du fait d'interférences quantiques de quasiparticules dans la région  $0 < y < L$ .
- Le terme oscillant s'annule pour  $Z_{\text{eff}} \rightarrow 0$  ( $\tau_N \rightarrow 1$ ) et pour  $E \gg \Delta$  ( $x \rightarrow 0$ ).
- Contrairement au modèle BTK, on ne peut pas éliminer totalement la dépendance de ce modèle en  $\Delta$  en le renormalisant en termes d'énergies réduites  $\eta = E/\Delta$ , car la phase  $\alpha(L)$  de l'oscillation du dénominateur n'est pas renormalisable.
- Toutefois, à énergie réduite  $\eta$  constante, l'échelle de  $L$  caractéristique pour l'oscillation du dénominateur est  $\xi' = \pi^2 \xi / 2$  avec  $\xi = \hbar v_F / (\pi \Delta)$  la longueur de cohérence de Pippard du supraconducteur étudié.

# Annexe C

## Transition thermique vers l'état métallique

### Introduction

Nous nous proposons ici de calculer la loi  $L(V)$  décrite par le rayon de la région métallique de l'échantillon lorsque la tension  $V$  aux bornes de la jonction étudiée varie, dans un modèle où la transition est gouvernée par un échauffement local de l'échantillon au-dessus de sa température critique  $T_C$ .

Cela nécessite de disposer d'un modèle approprié pour décrire l'échauffement par effet Joule du contact ponctuel utilisé et son refroidissement par conduction thermique. Nous allons nous baser pour cela sur le modèle de cônes intersectés de Tinkham et al. [68] en adaptant ce dernier aux caractéristiques spécifiques de notre dispositif expérimental.

En particulier, le modèle historique suppose que le contact soit chimiquement homogène, ce qui n'est pas le cas ici puisque nous étudions un contact entre une pointe métallique et un échantillon supraconducteur. Le présent modèle ne fera donc pas cette supposition.

### C.1 Géométrie du problème

Le modèle de cônes intersectés se base sur le constat qu'il est possible de décrire une vaste gamme de contacts ponctuels par des hyperboloïdes de révolution, comme celle représentée figure C.1-a, où le rayon de col  $a$  est le rayon du contact utilisé, et l'angle d'ouverture  $\theta$  est un paramètre géométrique du problème. Dans cette géométrie, le refroidissement de la jonction et le transport électrique s'effectuent sur un angle solide  $\Omega = 2\pi(1 - \cos\theta)$ .

Si l'hyperboloïde de révolution est une géométrie d'une grande élégance mathématique, elle n'est cependant pas des plus simples à utiliser dans les calculs, particulièrement lorsque l'on considère un contact inhomogène. On lui préférera donc une approximation géométrique composée de deux cônes tronqués colinéaires (fig. C.1-b), d'ouverture équivalente à celle de l'hyperboloïde d'origine, et dont le rayon de troncature  $r_1$  est choisi de façon à avoir une résistance électrique identique à celle de l'hyperboloïde originale.

Il a été montré dans [68] que cela revient à poser la relation

$$r_1 = \frac{2a}{\pi \sin \theta}$$

On peut remarquer que cela revient à ignorer une petite région de la jonction, qui n'est pas hachurée figure C.1-b. Il s'agit là d'un artefact de l'approximation géométrique utilisée, qui devrait être sans conséquence pour les résultats du calcul tant que l'on travaillera à des rayons relativement éloignés de la région de contact.

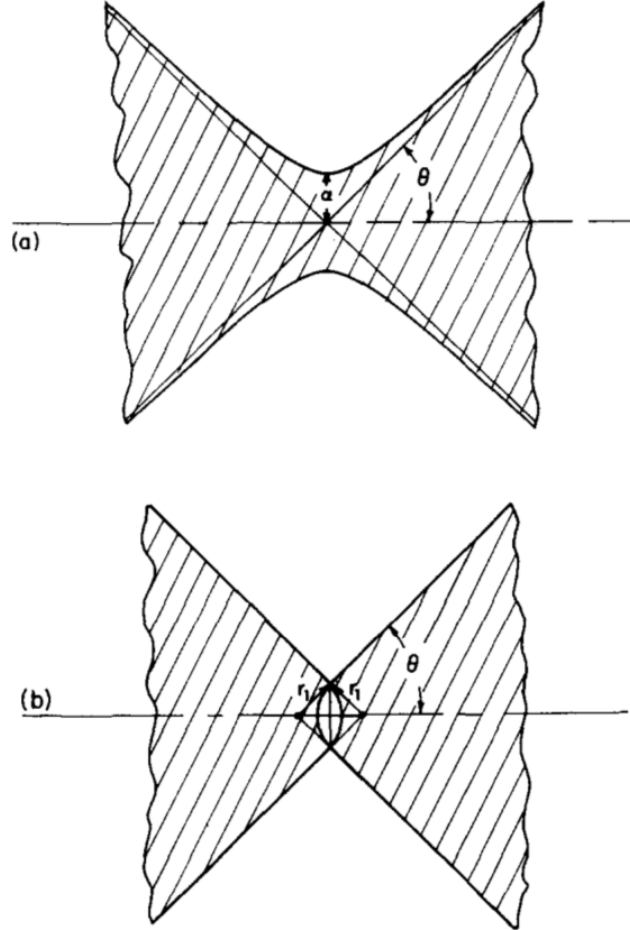


FIGURE C.1 – Modèle hyperboloïdal de contact ponctuel (a) et approximation à deux cônes tronqués (b), d'après [68].

Ici, nous étudions des contacts ponctuels de très petites taille au regard des dimensions des électrodes sous-jacentes. Il est donc raisonnable de supposer la jonction plane en première approximation, ce qui revient à poser  $\theta = \pi/2$ . On a donc :

$$\begin{cases} \Omega = 2\pi \\ r_1 = \frac{2a}{\pi} \end{cases}$$

## C.2 Propriétés électriques de la jonction

Afin d'introduire l'inhomogénéité de nos jonctions métal-supraconducteur dans la géométrie précédente, nous allons dorénavant considérer que l'un des deux cônes tronqués composant la jonction est entièrement composé du même matériau de la pointe métallique,

tandis que l'autre est composé du même matériau que l'échantillon supraconducteur. Cela revient à poser des jeux de paramètres physiques différents pour les deux côtés de la jonction, et lorsqu'il sera nécessaire de faire la distinction entre eux, nous utiliserons à cette fin l'indice  $i$ .

Pour déterminer les pertes de chaleur par effet Joule de chaque côté de la jonction, nous devons disposer d'un modèle pour la résistivité effective  $\rho_{\text{eff},i}(r)$  de chaque matériau  $i$  à distance  $r$  du sommet de chaque cône. Ledit modèle devra prendre en compte la nature balistique de la jonction au voisinage du point de contact entre les matériaux.

Une manière d'introduire ces effets est d'utiliser un libre parcours moyen effectif  $l_{\text{eff},i}(r)$  tenant compte de la possibilité d'une collision des porteurs avec les frontières du cône. En posant  $l_{D,i}$  le libre parcours moyen du matériau  $i$  dans le modèle de Drude, on a :

$$\frac{1}{l_{\text{eff},i}(r)} = \frac{1}{l_{D,i}} + \frac{1}{2r \sin \theta} = \frac{1}{l_{D,i}} + \frac{1}{2r}$$

Il ne reste alors plus qu'à renormaliser la résistivité  $\rho_{0,i}$  de chaque matériau  $i$  en contact par le quotient entre le libre parcours moyen du modèle de Drude et ce libre parcours moyen effectif pour obtenir une bonne approximation de la résistivité de la jonction étudiée à distance  $r$  du sommet de chaque cône :

$$\rho_{\text{eff},i}(r) = \rho_{0,i} \frac{l_{D,i}}{l_{\text{eff},i}(r)} = \rho_{0,i} \left( 1 + \frac{l_{D,i}}{2r} \right)$$

A partir de cette résistivité effective, il est possible de calculer la résistance totale  $R_N$  de la jonction étudiée dans ce modèle, dans l'état normal par exemple pour calculer la puissance thermique totale dissipée par la jonction  $R_N I^2$ . Pour ce faire, il suffit d'intégrer la résistivité effective des deux matériaux sur leurs demi-cônes tronqués respectifs, à une distance variant de  $r_1$  à  $+\infty$  du sommet des cônes.

Ainsi, en utilisant l'indice  $M$  pour faire référence aux propriétés de la pointe métallique, et  $S$  pour faire référence aux propriétés de l'échantillon supraconducteur, on a

$$\begin{aligned} R_N &= \frac{1}{\Omega} \left[ \int_{r_1}^{+\infty} \rho_{\text{eff},M}(r) \frac{dr}{r^2} + \int_{r_1}^{+\infty} \rho_{\text{eff},S}(r) \frac{dr}{r^2} \right] \\ &= \frac{1}{2\pi} \left[ \rho_{0,M} \int_{r_1}^{+\infty} \left( 1 + \frac{l_{D,M}}{2r} \right) \frac{dr}{r^2} + \rho_{0,S} \int_{r_1}^{+\infty} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{2r} \right) \frac{dr}{r^2} \right] \\ &= \frac{1}{2\pi} \left[ \rho_{0,M} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,M}}{4r_1^2} \right) + \rho_{0,S} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,S}}{4r_1^2} \right) \right] \\ R_N &= \frac{1}{2\pi r_1} \left[ \rho_{0,M} \left( 1 + \frac{l_{D,M}}{4r_1} \right) + \rho_{0,S} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) \right] \end{aligned}$$

Ici, les propriétés électriques de l'échantillon sont prises dans l'état métallique, une approximation que l'on peut supposer vraie près de  $r_1$  puisqu'il est à peu près certain que le supraconducteur transite vers l'état normal à proximité du contact lors de l'injection de courant. Cette approximation cesse toutefois d'être valable pour  $r$  grand, où l'échantillon est dans l'état supraconducteur.

Cependant, la portion de l'échantillon qui serait supraconductrice contribue très peu à la résistance totale de la jonction, du fait du poids en  $\frac{1}{r^2}$  donné aux contributions de  $\rho_{\text{eff},S}(r)$  à  $R_N$ . Il est donc raisonnable de penser que l'erreur d'approximation sera faible.

Le même raisonnement permet aussi de calculer la résistance d'une portion de la jonction, y compris celle d'une tranche arbitraire d'un des matériaux. Pour étudier l'échauffement de l'échantillon, et sa transition locale vers l'état métallique dans ce modèle, nous allons donc nous intéresser à la portion du cône associé à ce dernier résidant entre  $r_1$  et une distance arbitraire  $r$  du sommet du cône. Sa résistance vaut

$$\begin{aligned} R(r) &= \frac{1}{\Omega} \int_{r_1}^r \rho_{\text{eff},S}(r) \frac{dr}{r^2} \\ &= \frac{\rho_{0,S}}{2\pi} \int_{r_1}^r \left(1 + \frac{l_{D,S}}{2r}\right) \frac{dr}{r^2} \\ R(r) &= \frac{\rho_{0,S}}{2\pi} \left[ \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r}\right) + \frac{l_{D,S}}{4} \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r^2}\right) \right] \end{aligned}$$

### C.3 Calcul de l'échauffement local

Lors du passage d'un courant  $I$  à travers la jonction, l'effet Joule génère, dans la région décrite précédemment, une puissance de chauffage

$$P(r) = R(r)I^2 = \frac{I^2 \rho_{0,S}}{2\pi} \left[ \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r}\right) + \frac{l_{D,S}}{4} \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r^2}\right) \right]$$

La température locale de l'échantillon augmente donc, et se stabilise lorsque le flux de chaleur aux frontières de la région étudiée, causé par les gradients de température générés dans l'échantillon, compense exactement cette puissance de chauffage interne. En appliquant la loi de Fourier à la surface définie par les points à distance  $r > r_1$  du sommet du cône supraconducteur, on doit donc avoir

$$\frac{dT}{dr}(r) = -\frac{P(r)}{\Omega K_{\text{eff}}(r)r^2} = -\frac{P(r)}{2\pi K_{\text{eff}}(r)r^2}$$

Dans cette expression, la conductivité thermique effective de l'échantillon  $K_{\text{eff}}(r)$  peut être obtenue à partir de sa conductivité électrique  $\rho_{\text{eff},S}(r)$  via la loi de Wiedemann–Franz. En notant  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $e$  la charge de l'électron, on a

$$K_{\text{eff}}(r) = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e}\right)^2 \frac{T(r)}{\rho_{\text{eff},S}(r)}$$

Par conséquent, la température  $T(r)$  de l'échantillon à distance  $r$  de la région de contact est solution de l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dT}{dr}(r) = -\frac{3P(r)e^2\rho_{\text{eff},S}(r)}{2\pi^3k_B^2r^2T(r)} \Leftrightarrow \frac{dT}{dr}T(r) = -\frac{3P(r)e^2\rho_{\text{eff},S}(r)}{2\pi^3k_B^2r^2}$$

Puisqu'à grand  $r$ ,  $T(r)$  tend vers la température d'équilibre de l'échantillon, que l'on notera  $T_b$ , on peut intégrer cette expression pour  $r$  variant de  $+\infty$  à un certain rayon  $x$  pour obtenir

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} [T^2(x) - T_b^2] &= \int_{+\infty}^x -\frac{3P(r)e^2\rho_{\text{eff},S}(r)}{2\pi^3k_B^2r^2} dr \\
T^2(x) - T_b^2 &= -\frac{3e^2}{\pi^3k_B^2} \int_{+\infty}^x \rho_{\text{eff},S}(r)P(r) \frac{dr}{r^2} \\
T^2(x) - T_b^2 &= -\frac{3e^2}{\pi^3k_B^2} \int_{+\infty}^x \rho_{0,S} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{2r}\right) \frac{I^2\rho_{0,S}}{2\pi} \left[ \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r}\right) + \frac{l_{D,S}}{4} \left(\frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r^2}\right) \right] \frac{dr}{r^2} \\
T^2(x) - T_b^2 &= -\frac{3e^2I^2\rho_{0,S}^2}{2\pi^4k_B^2} \int_{+\infty}^x \left(1 + \frac{l_{D,S}}{2r}\right) \left[ \frac{1}{r_1} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \frac{1}{r} - \frac{l_{D,S}}{4r^2} \right] \frac{dr}{r^2}
\end{aligned}$$

Pour clarifier l'intégration, on note ensuite l'intégrale  $A$ , puis on la décompose en une combinaison linéaire de deux termes  $A_1$  et  $A_2$  en développant la parenthèse de gauche :

$$\begin{cases}
A = A_1 + \frac{l_{D,S}}{2} A_2 \\
A_1 = \int_{+\infty}^x \left[ \frac{1}{r_1} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \frac{1}{r} - \frac{l_{D,S}}{4r^2} \right] \frac{dr}{r^2} \\
A_2 = \int_{+\infty}^x \left[ \frac{1}{r_1} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \frac{1}{r} - \frac{l_{D,S}}{4r^2} \right] \frac{dr}{r^3}
\end{cases}$$

On peut ensuite calculer  $A_1$ ...

$$\begin{aligned}
A_1 &= \int_{+\infty}^x \left[ \frac{1}{r_1 r^2} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \frac{1}{r^3} - \frac{l_{D,S}}{4r^4} \right] dr \\
&= \left[ -\frac{1}{r_1 r} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{1}{2r^2} + \frac{l_{D,S}}{12r^3} \right]_{+\infty}^x \\
&= -\frac{1}{r_1 x} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{1}{2x^2} + \frac{l_{D,S}}{12x^3} \\
A_1 &= \frac{1}{x^3} \left[ -\frac{x^2}{r_1} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{x}{2} + \frac{l_{D,S}}{12} \right]
\end{aligned}$$

...ainsi que  $A_2$ ...

$$\begin{aligned}
A_2 &= \int_{+\infty}^x \left[ \frac{1}{r_1 r^3} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \frac{1}{r^4} - \frac{l_{D,S}}{4r^5} \right] dr \\
&= \left[ -\frac{1}{2r_1 r^2} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{1}{3r^3} + \frac{l_{D,S}}{16r^4} \right]_{+\infty}^x \\
&= -\frac{1}{2r_1 x^2} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{1}{3x^3} + \frac{l_{D,S}}{16x^4} \\
A_2 &= \frac{1}{x^4} \left[ -\frac{x^2}{2r_1} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) + \frac{x}{3} + \frac{l_{D,S}}{16} \right]
\end{aligned}$$

...pour finalement trouver la valeur de  $A$  :

$$\begin{aligned}
A &= A_1 + \frac{l_{D,S}}{2} A_2 \\
&= \frac{1}{x^3} \left[ -\frac{x^2}{r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x}{2} + \frac{l_{D,S}}{12} \right] + \frac{l_{D,S}}{2x^4} \left[ -\frac{x^2}{2r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x}{3} + \frac{l_{D,S}}{16} \right] \\
&= \frac{2x}{2x^4} \left[ -\frac{x^2}{r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x}{2} + \frac{l_{D,S}}{12} \right] + \frac{l_{D,S}}{2x^4} \left[ -\frac{x^2}{2r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x}{3} + \frac{l_{D,S}}{16} \right] \\
&= \frac{1}{2x^4} \left[ -\frac{2x^3}{r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + x^2 + \frac{x l_{D,S}}{6} - \frac{x^2 l_{D,S}}{2r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x l_{D,S}}{3} + \frac{l_{D,S}^2}{16} \right] \\
&= \frac{1}{x^4} \left[ -\frac{x^3}{r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x^2}{2} + \frac{x l_{D,S}}{12} - \frac{x^2 l_{D,S}}{4r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) + \frac{x l_{D,S}}{6} + \frac{l_{D,S}^2}{32} \right] \\
&= \frac{1}{x^4} \left[ \frac{l_{D,S}^2}{32} + x \left\{ \frac{l_{D,S}}{12} + \frac{l_{D,S}}{6} \right\} + \frac{x^2}{2} \left\{ 1 - \frac{l_{D,S}}{2r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) \right\} - \frac{x^3}{r_1} \left( 1 + \frac{l_{D,S}}{4r_1} \right) \right] \\
A &= \frac{1}{x^4} \left[ \frac{l_{D,S}^2}{32} + x \frac{l_{D,S}}{4} + x^2 \left( \frac{1}{2} - \frac{l_{D,S}}{4r_1} - \frac{l_{D,S}^2}{16r_1^2} \right) - x^3 \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,S}}{4r_1^2} \right) \right]
\end{aligned}$$

Au vu de la redondance des différents termes du polynôme, il est manifeste que la solution obtenue pour  $A$  est factorisable, comme dans le cas d'un contact ponctuel homogène [68]. En particulier, au vu de la prépondérance des termes en  $l_{D,S}/4$  et de la présence d'un préfacteur en  $1/x^4$ , il est possible d'envisager une factorisation par  $1 + l_{D,S}/(4x)$  analogue à celle de la publication originale.

Introduisons la quantité  $X = l_{D,S}/(4x)$  via le changement de variable  $x = l_{D,S}/(4X)$  :

$$\begin{aligned}
A &= \frac{256X^4}{l_{D,S}^4} \left[ \frac{l_{D,S}^2}{32} + \frac{l_{D,S}^2}{16X} + \frac{l_{D,S}^2}{16X^2} \left( \frac{1}{2} - \frac{l_{D,S}}{4r_1} - \frac{l_{D,S}^2}{16r_1^2} \right) - \frac{l_{D,S}^3}{64X^3} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,S}}{4r_1^2} \right) \right] \\
&= \frac{8X^4}{l_{D,S}^2} + \frac{16X^3}{l_{D,S}^2} + \frac{16X^2}{l_{D,S}^2} \left( \frac{1}{2} - \frac{l_{D,S}}{4r_1} - \frac{l_{D,S}^2}{16r_1^2} \right) - \frac{4X}{l_{D,S}} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,S}}{4r_1^2} \right) \\
&= \frac{8X}{l_{D,S}^2} \left[ X^3 + 2X^2 + 2X \left( \frac{1}{2} - \frac{l_{D,S}}{4r_1} - \frac{l_{D,S}^2}{16r_1^2} \right) - \frac{l_{D,S}}{2} \left( \frac{1}{r_1} + \frac{l_{D,S}}{4r_1^2} \right) \right] \\
A &= \frac{8X}{l_{D,S}^2} \left[ X^3 + 2X^2 + X \left( 1 - \frac{l_{D,S}}{2r_1} - \frac{l_{D,S}^2}{8r_1^2} \right) - \left( \frac{l_{D,S}}{2r_1} + \frac{l_{D,S}^2}{8r_1^2} \right) \right]
\end{aligned}$$

$r$  et  $r_1$  jouant un rôle symétrique dans des quantités caractéristiques du système étudié telles que  $P(r)$ , il est naturel d'introduire ensuite  $Y = l_{D,S}/(4r_1)$  pour poursuivre la factorisation de  $A$  :

$$\begin{aligned}
A &= \frac{8X}{l_{D,S}^2} [X^3 + 2X^2 + X(1 - 2Y - 2Y^2) - (2Y + 2Y^2)] \\
A &= \frac{8X}{l_{D,S}^2} (X + 1) [X^2 + X - 2(Y^2 + Y)]
\end{aligned}$$

Dans le cas d'un contact ponctuel homogène, il existe une relation simple entre la résistance dans l'état normal  $R_N$  et la somme  $Y^2 + Y$  qui peut être utilisée pour simplifier

davantage cette expression. Pour un contact entre deux matériaux différents, cette simplification est malheureusement impossible, il ne reste donc plus qu'à injecter la valeur de  $A$  calculée dans l'expression de  $T(x)$  et à remplacer  $X$  et  $Y$  par leurs valeurs respectives :

$$\begin{aligned}
T^2(x) - T_b^2 &= -\frac{3e^2 I^2 \rho_{0,S}^2}{2\pi^4 k_B^2} \times \frac{8X}{l_{D,S}^2} (X+1) [X^2 + X - 2(Y^2 + Y)] \\
&= \frac{12e^2 I^2 \rho_{0,S}^2}{\pi^4 k_B^2 l_{D,S}^2} \times X(X+1) [2(Y^2 + Y) - (X^2 + X)] \\
&= \frac{12e^2 I^2 \rho_{0,S}^2}{\pi^4 k_B^2 l_{D,S}^2} \times \frac{l_{D,S}}{4x} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4x}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}^2}{16r_1^2} + \frac{l_{D,S}}{4r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}^2}{16x^2} + \frac{l_{D,S}}{4x}\right)\right] \\
T^2(x) - T_b^2 &= \frac{3e^2 I^2 \rho_{0,S}^2}{4\pi^4 k_B^2} \times \frac{1}{x} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4x}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4x^2} + \frac{1}{x}\right)\right]
\end{aligned}$$

Par conséquent, la température de l'échantillon à distance  $x$  du point de contact vaudra

$$T(x) = \sqrt{T_b^2 + \frac{3e^2 I^2 \rho_{0,S}^2}{4\pi^4 k_B^2} \times \frac{1}{x} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4x}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4x^2} + \frac{1}{x}\right)\right]}$$

Comme précédemment, nous avons besoin d'une connaissance au moins approximative du courant  $I$  circulant dans la jonction. Là encore, on supposera que l'échantillon se comporte comme s'il était dans l'état normal ( $I = V/R_N$ ), une approximation dont on sait qu'elle prédira au plus un courant deux fois trop faible. Dans cette approximation, on a finalement :

$$T(x) = \sqrt{T_b^2 + \frac{3e^2 V^2 \rho_{0,S}^2}{4\pi^4 k_B^2 R_N^2} \times \frac{1}{x} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4x}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4x^2} + \frac{1}{x}\right)\right]}$$

En supposant que l'échantillon transite dans l'état supraconducteur lorsque  $T = T_c$  la température critique de ce dernier, la taille de la région normale  $L$  dans ce modèle vérifie donc l'équation  $T(L) = T_c$ , autrement dit...

$$\begin{aligned}
T_c^2 - T_b^2 &= \frac{3e^2 V^2 \rho_{0,S}^2}{4\pi^4 k_B^2 R_N^2} \times \frac{1}{L} \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4L}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4L^2} + \frac{1}{L}\right)\right] \\
\frac{3e^2 V^2 \rho_{0,S}^2}{4\pi^4 k_B^2 R_N^2} &= \frac{L(T_c^2 - T_b^2)}{\left(1 + \frac{l_{D,S}}{4L}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4L^2} + \frac{1}{L}\right)\right]} \\
V^2 &= \frac{4\pi^4 k_B^2 R_N^2 L(T_c^2 - T_b^2)}{3e^2 \rho_{0,S}^2 \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4L}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4L^2} + \frac{1}{L}\right)\right]} \\
V &= R_N \sqrt{\frac{4\pi^4 k_B^2 L(T_c^2 - T_b^2)}{3e^2 \rho_{0,S}^2 \left(1 + \frac{l_{D,S}}{4L}\right) \left[2 \left(\frac{l_{D,S}}{4r_1^2} + \frac{1}{r_1}\right) - \left(\frac{l_{D,S}}{4L^2} + \frac{1}{L}\right)\right]}}
\end{aligned}$$





# Annexe D

## Piégeage des vortex dans Fe(Se,Te)

La majeure partie de cette thèse a été consacrée à la description des mesures de spectroscopie de pointe que j'ai effectuées et analysées dans le cadre de mon doctorat. Toutefois, une part importante de mon travail de recherche a aussi été consacrée à la mise au point d'un dispositif de microscopie magnétique.

Ce microscope utilise le principe de microscopie à sonde de Hall à balayage (Scanning Hall Probe Microscopy ou SHPM). Une sonde de Hall est amenée en contact avec l'échantillon étudié, puis déplacée à la surface de ce dernier avec des moteurs piézoélectriques pas à pas afin d'enregistrer une image bidimensionnelle du champ magnétique local.

Cette technique permet d'étudier la distribution spatiale et l'évolution temporelle du champ magnétique piégé par un supraconducteur, par exemple lorsque ce dernier est refroidi en-dessous de  $T_c$  en présence d'un champ magnétique externe  $H > H_{c1}$  le premier champ critique de l'échantillon, que l'on cesse ensuite d'appliquer.

La distribution spatiale du champ magnétique fournit des informations sur l'homogénéité du piégeage des vortex dans l'échantillon. Son évolution temporelle, qui peut être étudiée en maintenant la sonde en un point fixe au-dessus de l'échantillon ou en effectuant des balayages rapides de faible résolution spatiale, contient des informations sur le mécanisme par lequel les vortex piégés au coeur de l'échantillon quittent ce dernier.

Par rapport à d'autres techniques de microscopie magnétique, notre implémentation de la microscopie à sonde de Hall a une résolution spatiale moyenne ( $\approx 1 \mu m$ ), une résolution en champ magnétique suffisante pour détecter des vortex individuels ( $\approx 0.1 G$ ), et donne accès à une très large gamme de températures (de  $1 K$  à la température ambiante) et de champs magnétiques appliqués (jusqu'à  $2 T$ ).

Dans l'article [37], dont une version pré-publication est jointe ci-après, ce dispositif a été utilisé pour contribuer à une étude du piégeage et de la relaxation des vortex dans  $Fe(Se,Te)$ . Cela a permis de montrer que dans ce matériau, le fluage quantique des vortex joue un rôle important pour la relaxation du champ magnétique piégé à basse température.

# Vortex creep down to 0.3K in superconducting Fe(Te,Se) single crystals

T. Klein<sup>1</sup>, H. Grasland<sup>1</sup>, H. Cercellier<sup>1</sup>, P. Toulemonde<sup>1</sup> and C. Marcenat<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Univ. Grenoble Alpes, Inst NEEL, F-38042 Grenoble,

France & CNRS, Inst NEEL, F-38042 Grenoble, France and

<sup>2</sup> SPSMS, UMR-E9001, CEA-INAC/ UJF-Grenoble 1, 17 rue des martyrs, 38054 Grenoble, France

(Dated: September 17, 2015)

We report on a study of the vortex creep in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  single crystals ( $x = 0.5$  and  $0.4$ ) down to  $0.28$  K ( $\sim T_c/50$ ) and up to  $\mu_0 H_a = 2$  T. The relaxation of the current density ( $J(t)$ ) has been measured during 20 hours and the decay of  $J(t)$  can be well described by a  $J(t) \propto [\ln(t/t_0)]^{-1/\mu}$  law. We show that the relaxation exponent  $\mu$  tends towards 0 for  $T < 2$  K and  $\mu_0 H_a < 0.1$ T (i.e.  $J(t) \rightarrow (t_0/t)^\alpha$ ) and increases for increasing  $T$  and/or  $H_a$ . Our measurements strongly suggest that the logarithmic creep rate  $R = -d\ln(J)/d\ln(t)$  remains finite at zero temperature ( $R|_{T \rightarrow 0} \rightarrow 2\%$ ) and hence that quantum creep plays a dominant role in the relaxation process at low temperature. A maximum is observed in both the temperature and field dependence of  $R(t = 100\text{s}, T, H_a)$  which can be associated to a crossover from a single vortex (1D) to a bundle (3D) creep regime. As a consequence, a clear dip (resp. knee) is present in  $J(H_a)$  (resp.  $J(T)$ ).

PACS numbers: 74.60.Ec, 74.60.Ge

## I. INTRODUCTION

Iron selenium belongs to the family of iron based superconductors which has been discovered recently [1]. It has been reported to be superconducting at a critical temperature,  $T_c$  on the order of 8 K [2], rising up to up to  $\sim 14$  K in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  [3] (for  $x \sim 0.5$ ). This binary compound then shares the most salient characteristics of iron based pnictides (square-planar lattice of Fe with tetrahedral coordination) without having the structural complexity associated to the presence of a charge reservoir. Specific heat measurements have shown that the coherence length is very small [4] :  $\xi_c(0) = \epsilon \xi_{ab}(0) \sim 3.5 \text{\AA}$  ( $\epsilon$  being the anisotropy parameter  $\sim 1/4$ ), confirming the strong renormalisation of the Fermi velocity previously observed by ARPES measurements [5].

On the other hand, the penetration depth is large :  $\lambda_c(0) = \lambda_{ab}(0)/\epsilon \sim 1600$  nm [4], so that the condensation energy :  $\epsilon \epsilon_0 \xi_{ab} = (1/4)(\Phi_0/8\pi\lambda_{ab})^2 \xi_{ab}$  is small ( $\sim 30$ K) and the Ginzburg number  $Gi = (1/8)(T_c/\epsilon \epsilon_0 \xi_{ab})^2 \sim 3 \times 10^{-2}$  is on the order of that previously observed in high  $T_c$  cuprates. As a consequence, thermal fluctuations are large [6] and the pinning energy  $U_c \sim T_c/\sqrt{Gi} \cdot (J_c/J_0)^{1/2}$  is very small ( $\sim 10$ K,  $J_c$  and  $J_0$  being the critical and depairing currents, respectively with  $J_c(0) \sim 2 \cdot 10^5$  A/cm<sup>2</sup>  $\sim J_0(0)/100$ ). As expected, large flux creep has been observed in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  [7] [as well as in other iron based compounds [8]], compromising the study of the temperature and field dependence of the critical current. Indeed, despite its much lower  $T_c$  value, the logarithmic creep rate of the sustainable current density  $J$ ,  $R = -d\ln(J)/d\ln(t) \sim 2 - 6\%$  is again similar to the one previously observed in high temperature superconductors [9].

At low temperature thermally activated creep is expected to vanish linearly with decreasing temperature ( $R|_{T \rightarrow 0}^{\text{th}} \sim kT/U_c$ ) but it has been observed in several systems [10] [including high  $T_c$  oxides, Chevrel phases,

heavy fermions, or organic superconductors], that the relaxation rate does not extrapolate to zero for  $T \rightarrow 0$  suggesting a decay of the critical state by quantum tunneling [11]. A similar study in iron based superconductors was still lacking.

We report here on a detailed study of the vortex creep in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  single crystals ( $x = 0.5$  and  $0.4$ ) down to  $0.28$  K  $\sim T_c/50$  (and up to  $H = 2$  T). The relaxation has been recorded on a large time range (up to 20 hours  $\equiv 7 \times 10^4$ s) which enabled a clear determination of the relaxation exponent  $\mu$ . We show that  $\mu \rightarrow 0$  for  $T < 2$  K (and  $\mu_0 H_a < 0.1$ T) and increases for increasing  $T$  (and/or  $H_a$ ). Our measurements strongly suggest that  $R$  remains finite at zero temperature with  $R|_{T \rightarrow 0} \sim 2\%$  and hence that quantum creep plays a dominant role in the relaxation process at low temperature. We show that the sustainable current density ( $J(t)$ ) is substantially smaller than  $J_c$  and its temperature and/or magnetic field dependence is significantly different from that of  $J_c$ . All measurements suggest the existence of a crossover from a single vortex (1D) to a bundle (3D) creep regime.

## II. SAMPLE AND EXPERIMENTS

The measurements have been performed on  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  single crystals with  $x = 0.5$  (sample A) and  $x = 0.4$  (sample B). The samples were prepared from very pure iron and tellurium pieces and selenium shots in a  $1 : 1 - x : x$  ratio, loaded together in a quartz tube which has been sealed under vacuum. The elements were heated slowly ( $100^\circ \text{C/h}$ ) at  $500^\circ \text{C}$  for 10 h, then melted at  $1000^\circ \text{C}$  for 20h, cooled slowly down to  $350^\circ \text{C}$  at  $5^\circ \text{C/h}$ , and finally cooled faster by switching off the furnace. Single crystals of typical size  $500 \times 500 \times 50 \mu\text{m}^3$  have been mechanically extracted from the resulting ball. Two series of samples with  $T_c \sim 14$ K (sample A)

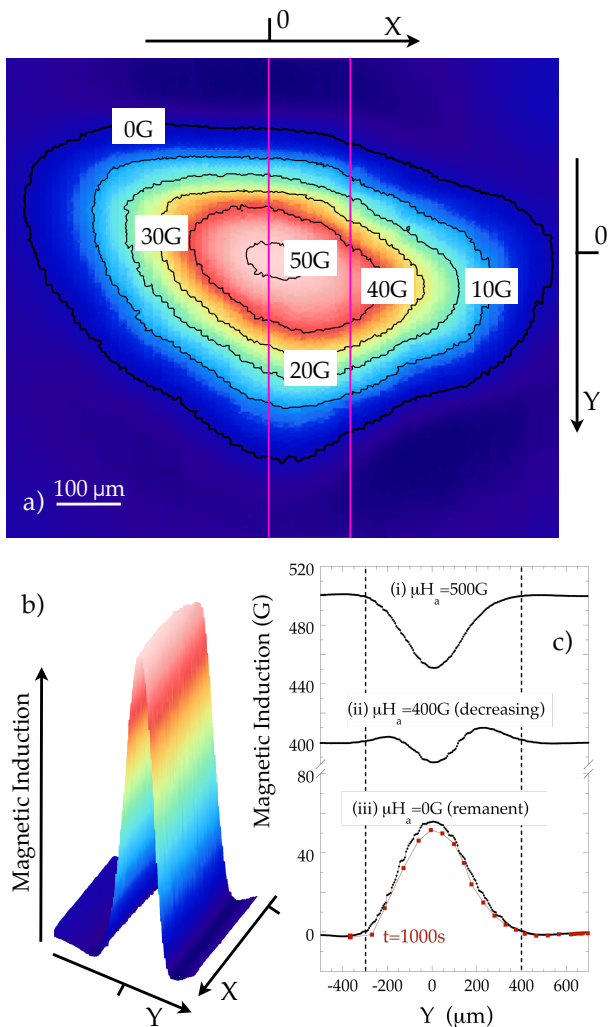


FIG. 1. (color online) (a) Contour plot of the magnetic induction perpendicular to the sample surface obtained after cycling the field up to 500 G ( $H_a \parallel c$ ) and back to zero (sample A). As shown in panel (b) the field profile in the purple rectangle clearly displays a "sand hill" shape characteristic of bulk pinning. Correspondingly a "V-shape" profile is obtained for increasing field (see curve (i) at 500 G in panel (c)) and the profile is progressively reversed as the field is decreased (see curve (ii) and (iii) for  $H_a = 400$  G and 0 G, respectively). The solid (red) symbols for  $H_a = 0$  have been recorded after a 1000 s waiting time, clearly showing the decay of the trapped "sand hill" with time (sample edges are indicated by vertical dotted lines).

and  $T_c \sim 10$  K (sample B) have been measured. Both series present well defined superconducting transitions in AC susceptibility measurements and the reduced  $T_c$  in sample B is most probably due to a slightly higher  $\delta$  value. Batch A has been previously studied into details using both specific heat and magnetic measurements [4].

The distribution of the magnetic induction perpendicular

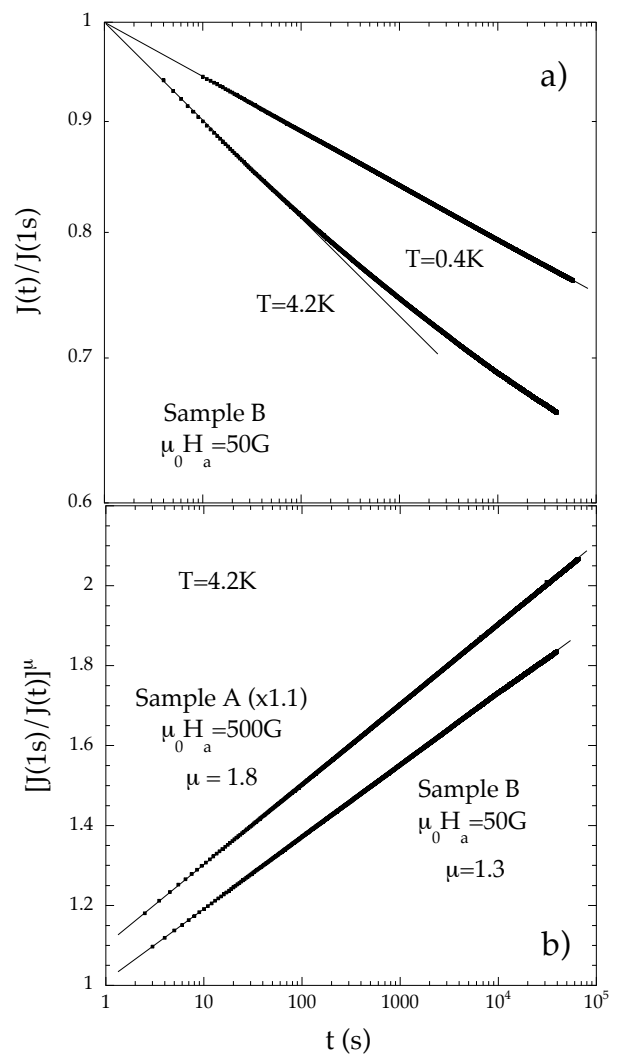


FIG. 2. (a) Time dependence of the normalized sustainable current density (in a log-log scale) up to 20 hours ( $7 \cdot 10^4$  s) at the indicated temperatures ( $\mu_0 H_a = 50$  G) in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$  single crystals. As shown, the time dependence is algebraic at low temperature (0.4 K) but a clear deviation from this algebraic dependence is visible at 4.2 K. (b) As expected from the elastic collective pinning model, this deviation can be well described by a  $1/J^\mu \propto \ln(t)$  law (see text for details).

ular to the sample surface (ab-plane) has been measured by scanning a miniature GaAs-based quantum well Hall sensor over the sample surface. A typical field contour plot obtained after cycling the field up to 500 G ( $H_a \parallel c$ ) and back to zero is displayed in Fig.1(a) (sample A,  $T = 5.5$  K), clearly showing the good homogeneity of the sample. The field distribution clearly displays a "sand hill" shapes (see Fig.1(b)) characteristic of bulk pinning and, correspondingly a "V-shape" profile is obtained for increasing field (see curve (i) at 500 G in Fig.1(c)). The

solid (red) symbols for  $H_a = 0$  were obtained after a 1000 s waiting time, clearly showing the decay of the trapped "sand hill" with time. The induction gradient obtained by placing an array of ten miniature GaAs-based quantum well Hall sensors right on the sample surface reached  $dB/dx \sim 5 \text{ G}/\mu\text{m}$  at 4.2K (i.e.  $\sim 10$  times larger than the one observed during the scans, see Fig.1(c)) and even  $\sim 30 \text{ G}/\mu\text{m}$  at 0.3K. For a given  $H_a$  value, the induction at the center of the sample ( $B^{up}$ ) has been recorded as a function of time after ramping the field up to  $H_a$  starting for a field value much smaller than  $H_a$ . Similarly, the decay of  $B^{down}$  has been recorded after ramping the field down to  $H_a$  starting from a field value much larger than  $H_a$ . The data acquisition has been started after five seconds to allow for the settling of the field and  $J(t)$  has been defined as  $J(t) \propto [B^{down}(t) - B^{up}(t)]/2$ . Fig.2(a) displays the decay of  $J$  for  $T = 4.2\text{K}$  and  $T = 0.4 \text{ K}$  (Sample B). All the effects discussed below have been observed in both samples. As shown, at low temperature (typically  $T < 2\text{K}$ ) and low field (typically  $\mu_0 H_a < 0.1 \text{ T}$ ),  $J(t)$  can be very well described by an algebraic law :  $J(t) \propto 1/t^\alpha$  with  $\alpha \sim 2\%$  for  $T \rightarrow 0$ . Clear deviations from this algebraic decay become visible above  $\sim 2\text{K}$  (and/or for  $\mu_0 H_a > 0.1 \text{ T}$ ) and, as shown on Fig.2(b),  $1/J^\mu$  then varies as  $\ln(t)$  where the relaxation exponent  $\mu$  is both temperature and field dependent (see discussion below).

### III. DISCUSSION

#### A. Creeping models

The decay of the sustainable current density with time is determined by the current dependence of the activation barriers. In the case of thermally activated elastic collective creep, this energy is expected to diverge at low  $J$  as :

$$U(J) = \frac{U_c \times [(J_c/J)^\mu - 1]}{|\mu|} \quad (1)$$

where the value of the relaxation exponent  $\mu$  depends on the dimensionality of the creeping object :  $\mu = 1/7$  for single one-dimensional (1D) vortex lines, and  $\mu = 3/2$  (resp.  $7/9$ ) for small (resp. large) 3D vortex bundles. Writing [12]  $U(J) = kT \ln(t/t_0)$  for  $t \gg \tau$  where  $\tau$  is a characteristic time related to the transients at the onset of relaxation, one expects :

$$J(t) = \frac{J_c}{[1 + (\mu kT/U_c) \times \ln(t/t_0)]^{1/\mu}} \quad (2)$$

and correspondingly the logarithmic creep rate of the sustainable current density :

$$R^{th}(T) = \frac{1}{U_c/kT + \mu \ln(t/t_0)} \quad (3)$$

where  $t_0$  is a macroscopic time related to the sample dimensions (and barrier magnitude)  $t_0 \sim 10^{-6} - 1 \text{ s}$  (see [13] and references therein).

On the other hand, the barriers are expected to remain finite for  $J \rightarrow 0$  in the case of plastic creep [14]. The  $U(J)$  dependence is then expected to be of the same form as that predicted by the theory of thermally activated motion of dislocations in crystalline solids which can be well approximated by inserting a negative  $\mu$  values in Eq.(1). The Kim-Anderson model [15] is also reproduced for  $\mu = -1$ . Finally, it has been suggested by Zeldov *et al.* [16] that barriers could diverge logarithmically :

$$U(J) = U_c \times \ln(J_c/J) \quad (4)$$

(corresponding to  $\mu \rightarrow 0$  in Eq.(1)) which is then expected to give rise to an algebraic decay of the current density [17] :

$$J = \frac{J_c}{(t/t_0)^{kT/U_c}} \quad (5)$$

and the relaxation rate is then time independent :

$$R^{th}(T) = kT/U_c \quad (6)$$

In the case of quantum creep, the tunneling rate,  $R_{|T \rightarrow 0}^{Qu}$ , is determined by the effective Euclidean action [11] :  $R_{|T \rightarrow 0}^{Qu} \sim \hbar/S_Q^{eff} \sim \hbar/U_c t_c$  where  $t_c$  is the tunneling time. In the commonly observed limit of strong dissipation for which the dominant term of the equation of motion is the dissipative term,  $t_c \sim \eta L_c^2/\epsilon^2 \epsilon_0$  [13] where  $L_c = \epsilon \xi_{ab} (J_0/J_c)^{0.5}$  is the collective pinning length and  $\eta = (\xi_{ab} \hbar)^2/e^2 \rho_n$  the Bardeen-Stephen viscous drag coefficient ( $\rho_n$  being the normal state resistivity). One hence finally expects :  $R_{|T \rightarrow 0}^{Qu} \sim (e^2 \rho_n/\epsilon \xi_{ab} \hbar)(J_c/J_0)^{0.5}$  for  $J \sim J_c$  and samples with large normal state resistivities and small coherence lengths can be considered as good candidates for the observation of quantum creep. Taking  $\rho_n \sim 1 \text{ m}\Omega\text{cm}$  [18],  $\xi_{ab} \sim 15 \text{ \AA}$ ,  $\epsilon \sim 1/4$  [4],  $J_0(0) \sim 3 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$  and  $J_c(0) \sim J(0, t = 1\text{s}) \sim 1/\mu_0 \times dB/dx \sim 2 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$  one obtains  $\hbar/S_{eff}^Q = (e^2 \rho_n/\epsilon \xi_{ab} \hbar)(J_c/J_0)^{0.5} \sim 0.1$  indicating that quantum creep can be large in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$ . On the other hand, the pinning energy is very small ( $\sim 10\text{K}$  for  $J_c \sim J_0/100$ ) and the ratio between the classical and quantum rates  $[kT/U_c]/[\hbar/S_Q^{eff}] \sim [T/100] \times [J_0/J_c]$  so that quantum and classical creep are expected to be on the same order of magnitude for  $T \sim 1\text{K}$ .

As for the pinning barriers in the case of classical creep (Eq.(1)), the Euclidian action is expected to diverge for  $J \ll J_c$  ( $S(J) \propto 1/J^{\mu_s}$  with  $\mu_s = \mu + 1$ ), and very similar expressions are obtained for both classical and quantum creep substituting  $U_c/kT$  by  $S_Q^{eff}/\hbar$  and  $\mu$  by  $\mu_s$  [11] leading to :

$$R_{|T \rightarrow 0}^{Qu} = \frac{1}{S_Q^{eff}/\hbar + \mu_s \ln(t/t_0)} \quad (7)$$

(see Eq.(3) in comparison). Note that, as for classical creep, a logarithmic divergence of the Euclidian action would lead to a time independent  $R_{|T \rightarrow 0}^{Qu} = \hbar/S_Q^{eff}$  value. Finally, at finite temperature, quantum tunneling can be thermally assisted and one finally obtains :

$$R^{Qu}(T) = R^{Qu}(0) \times [1 + (T/T_0)^2] \quad (8)$$

where the characteristic temperature  $T_0$  is related to the microscopic parameters of the dynamical equation [11].  $T_0$  also marks the crossover from the quantum to the classical creep regime and is hence expected to be on the order of 1 K in our system (see above).

### B. Temperature and field dependence of the relaxation rate

For low magnetic fields, the relaxation rate is field independent (see below) and  $R(T, t = 100s)$  first increases with  $T$ , then decreases for  $T > T_{max} \sim (0.2 - 0.3) \times T_c$  and finally rises again as  $T$  tends towards the irreversibility line (being close to  $T_c$  for the small  $H_a$  values used here, see Fig.3(a)). Very similar behaviors were obtained in both samples and, as shown,  $T_{max}/T_c$  slightly decreases with  $H_a$ . Note that even though identical  $R(T, t = 100s)$  values are obtained for different temperatures ( $R(T, t = 100s) \sim 3\%$  for  $T/T_c \sim 0.1$ ,  $\sim 0.5$  and  $\sim 0.8$  for instance), those values correspond to very different creeping regimes (see discussion below).

Indeed, for  $T < 2$  K (and  $\mu_0 H_a \leq 0.1$  T)  $1/R(T, t)$  is time independent (see Fig.3(a)) indicating that  $U(J)$  (or equivalently  $S(J)$  for quantum creep) is diverging logarithmically with  $J$  in this temperature (and field) range (Eq.(4-6), correspondingly, as shown in Fig.2(a),  $J(t) \propto 1/t^\alpha$  with  $\alpha = R$ ). As  $R$  remains finite down to the lowest temperature ( $\sim 2\%$  for  $T \rightarrow 0$ ) whereas  $R^{Th}(T) = kT/U_c$  is expected to vanish for  $T$  tending towards zero, our data are clearly indicating that the relaxation is dominated by quantum creep at low temperature. Note that,  $R(T)$  can be well fitted by a  $1 + (T/T_0)^2$  law with  $T_0 \sim 2$  K (thick solid line in Fig.3(a)), in good agreement with the thermally assisted quantum creep scenario (Eq.(8)). However, our data show that the relaxation process can not be described by the *elastic* collective creep scenario for which  $\mu_s$  is expected to be significantly different from zero ( $\mu_s = 8/7$  for single vortices and even larger in the bundle regime) and the nature of the microscopic mechanism leading to a logarithmic divergence of  $S(J)$  still has to be elucidated.

As shown in Fig.3(a-b), a clear change in the relaxation process occurs around  $T_0$ . Indeed for  $T > T_0$   $R(T, t = 100s)$  decreases and concomitantly  $1/R(T, t)$  is no longer time independent but varies linearly with  $\ln(t)$ . This logarithmic variation is then characteristic of a  $1/J^\mu$  divergence of the activation barriers (Eq.(3)) [19]. The *decrease* of  $R(T, t = 100s)$  above  $T_0$  is hence a direct consequence of an *increase* of the relaxation exponent  $\mu$ . Similarly,  $R(H_a, t = 100s)$  also presents a

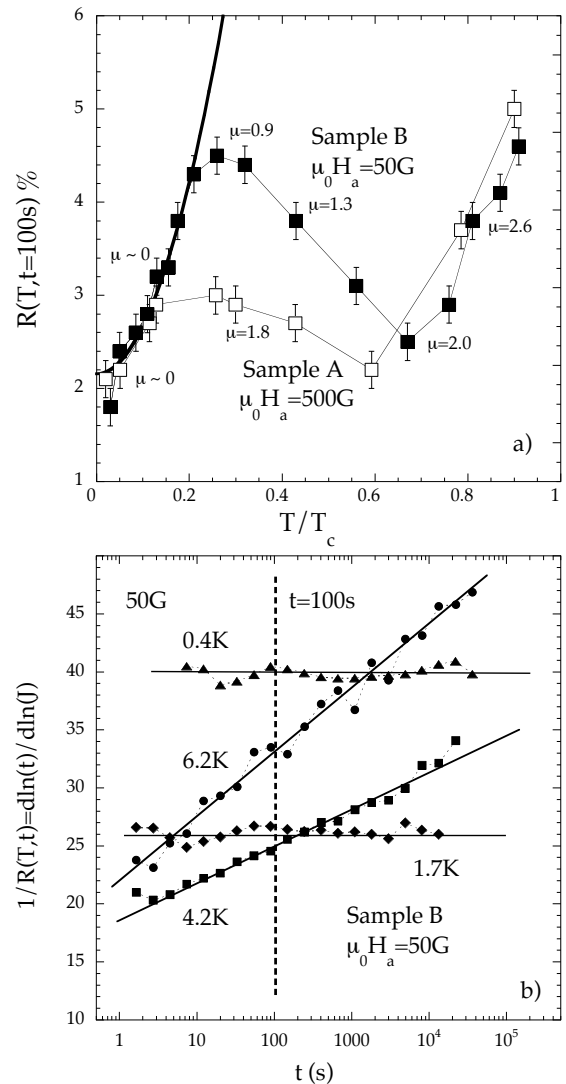


FIG. 3. (a) Temperature dependence of the logarithmic relaxation rate  $R = -d \ln(J) / d \ln(t)$  at  $t = 100s$  for the indicated field values in sample A ( $T_c \sim 14$  K, open squares) and sample B ( $T_c \sim 10$  K, solid squares). Thin lines are guides to the eyes and the thick solid line is a  $R(0) \times [1 + (T/T_0)^2]$  fit to the data (see text for details). Relaxation exponent ( $\mu$ ) values are indicated for some characteristic temperatures, note that  $\mu$  rapidly increases above the  $R(T)$  peak. (b)  $1/R$  as a function of  $t$  (Sample B,  $\mu_0 H_a = 50$  G) for the indicated  $T$  values. As shown the slope of the curve (i.e.  $\mu$ ) is close to 0 below  $\sim 2$  K and increases at higher temperatures (see text for details).

clear maximum for  $\mu_0 H_a (= \mu_0 H_{max}) \sim 500 - 1000G$  at 4.2K (see Fig.4(a)). At low field  $\mu$  is constant ( $\sim 1.3$  at 4.2 K) and  $R(H_a, t = 100s)$  increases due to a decrease of the pinning energy with  $H_a$  but, as observed for  $R(T)$ ,  $R(H_a, t = 100s)$  rapidly decreases above  $H_{max}$  due, again, to an increase of  $\mu$  (tending toward  $\sim 3.5 - 4$

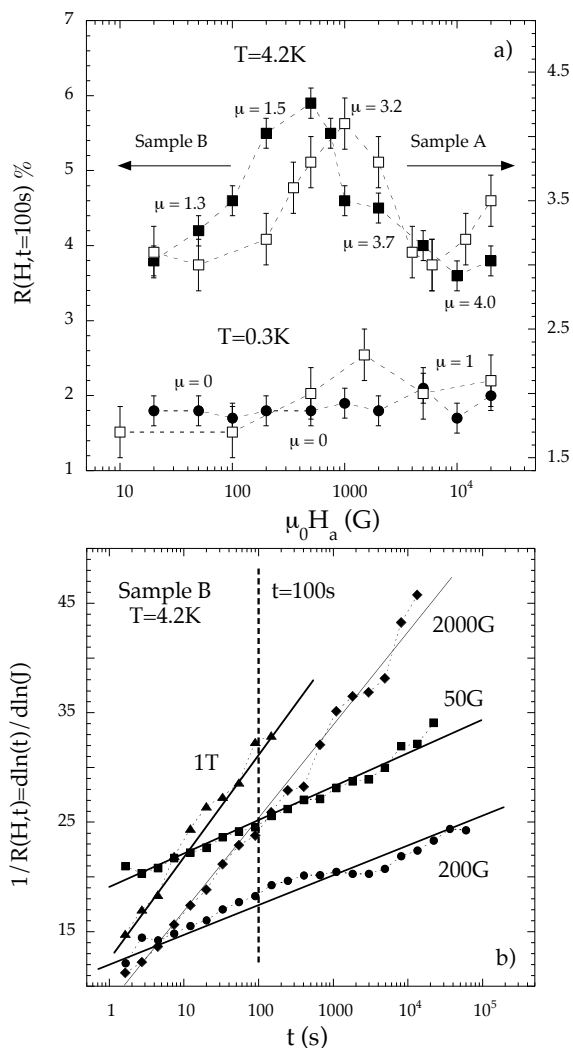


FIG. 4. (a) Magnetic field dependence of the logarithmic relaxation rate  $S = d\ln(J)/d\ln(t)$  at  $t = 100s$  for the indicated  $T$  values in sample A (open squares, right scale) and sample B (solid symbols, left scale). Relaxation exponent ( $\mu$ ) values are indicated for some characteristic fields, note that  $\mu$  rapidly increases above the  $R(H)$  peak. The dotted lines are guides to the eyes. (b)  $1/R$  as a function of  $t$  (Sample B,  $T = 4.2K$ ) for the indicated  $H_a$  values. As shown the slope of the curve ( $\mu$ ) increases at high fields (see text for details).

around 1T). Finally note that a slight increase of  $\mu$  has also been observed at 0.3K but for  $\mu_0 H_a \geq 1$  T. Note also that  $R$  finally increases at high temperature. This increase has recently been attributed to a crossover from an elastic (positive  $\mu$ ) to a plastic (negative  $\mu$ ) creep regime [20]. However, we did not observe such a change in the sign of  $\mu$  and the increase of  $R$  is rather due to a decrease of the pinning energy in the vicinity of the irreversibility line.

In the collective elastic pinning model, pinning is ex-

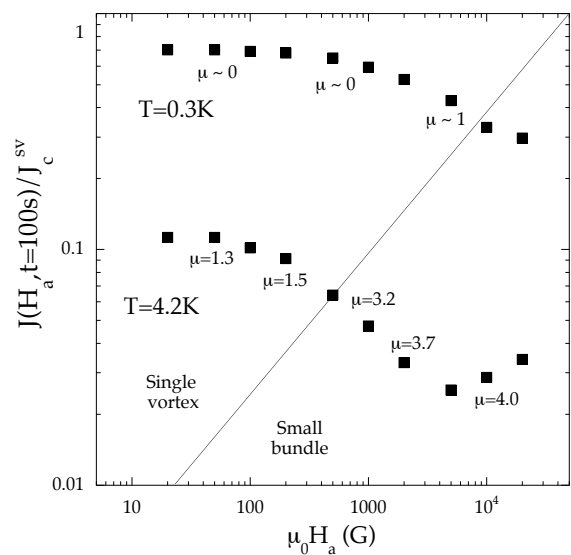


FIG. 5. (Magnetic field dependence of the current density at  $t = 100s$  for the indicated temperatures. The solid line separates the single vortex (1D) from the small bundle (3D) creep regimes. Relaxation exponent ( $\mu$ ) values are indicated for some characteristic fields.

pected to be of single vortex type until the vortex spacing  $a_0$  reaches the collective pinning length  $L_c$  e.g. for  $\mu_0 H_a \leq B_{sb} \sim 5B_{c2}J_c^{SV}/J_0$  [13]. Taking  $J_c^{SV} \sim J(0, t = 1s) \sim 2 \times 10^5$  A/cm<sup>2</sup>  $\sim J_0(0)/100$  one obtains  $B_{sb} \sim 5T$  (below 4.2K) in our samples, and the small bundle *pinning* regime is never reached.  $J_c$  is hence expected to remain field independent ( $= J_c^{SV}$ ) over the whole magnetic field range used here. However, as  $J(t)$  decreases, the characteristic size of the creeping segment  $L(J)$  increases ( $L(J) \sim (L_c/\epsilon) \times (J_c^{SV}/J)^{5/7}$  [13]) and a crossover from single vortex (1D) to bundle (3D) *creep* is then expected to be observed when  $L$  reaches  $a_0$  even though  $\mu_0 H_a < B_{sb}$ . As  $L_c \sim 10\xi \sim 150\text{\AA}$  and  $J_c^{SV}/J \sim 10$  in our samples at 4.2 K (see Fig.5)  $L \sim 3000\text{\AA}$  reaches  $a_0$  for  $\mu_0 H_a \sim 300$  G i.e. for  $H_a \sim H_{max}$ .  $\mu$  is hence small (and even  $\sim 0$  for  $T < T_0$ ) in the low field single vortex creep regime and increases with  $H_a$  (and/or  $T$ ) as  $L \rightarrow a_0$ , finally tending towards  $\sim 3.5 - 4$  for  $L > a_0$ . Note that although larger, this  $\mu$  value is on the order of the one expected in the small bundle creep regime ( $\mu = 2.5$ ).

### C. Temperature and field dependence of the sustainable current density

The size of the creeping segment reaches  $a_0$  when  $J(t)$  is becoming on the order of  $J_{sb}(H_a) = J_c^{SV} \times (L_c/\epsilon a_0)^{7/5}$ . This crossover current between single vortex (1D) and bundle (3D) creep is displayed in Fig.5 (solid line) together with  $J(t = 100s, H_a)$  at  $T = 0.3K$  and 4.2K. As  $\mu_0 H_a < B_{sb}$ ,  $J_c$  is expected to be field independent for all

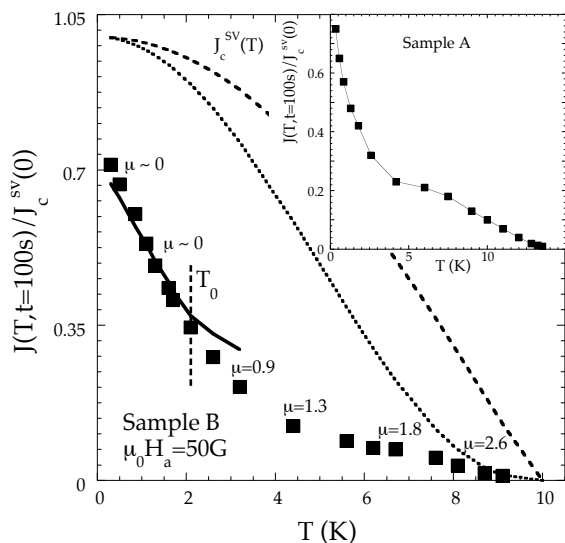


FIG. 6. Temperature dependence of the current density at  $t = 100\text{s}$  and  $\mu_0 H_a = 50\text{G}$  (sample B). The dotted and dashed lines correspond to the temperature dependence of the critical current (single vortex regime) for  $\delta l$  and  $\delta T_c$  pinning, respectively. The solid line correspond to  $J_c(T)/[t/t_0]^{R(T)}$  with  $t_0 \sim 1\mu\text{s}$  ( $\delta l$  pinning as an example). In the inset,  $J(T)$  in sample A showing a very similar dependence, note the knee in  $J(t)$  for  $T \sim T_c/2$  for both samples. Relaxation exponent ( $\mu$ ) values are indicated for some characteristic temperatures.

$T$  and  $H_a$  values used here ( $J_c = J_c^{SV}$ ). On the contrary, a significant decrease in  $J(t = 100\text{s}, H_a)$  is observed for field values much lower than  $B_{sb}$  and  $J(t = 100\text{s}, H_a)$  even becomes non monotonic at 4.2 K. This dip in  $J(H_a)$  is induced by relaxation effects and is not related to an increase of  $J_c(H_a)$  which could be induced by the proliferation of dislocations at the vicinity of an order-disorder phase transition [21]. Indeed, the increase of  $\mu$  when  $J(t = 100\text{s}, H_a)$  crosses the  $J_{sb}(H_a)$  line induces a slow down of the relaxation (see Fig.4(a)) and hence gives rise to a dip in  $J(H_a)$  [22].

Similarly, the temperature dependence of the relaxation rate is also significantly influencing the temperature dependence of the current density. Indeed, In the single vortex pinning regime,  $J_c^{SV}(T) = J_0(\epsilon\xi_{ab}/L_c)^2$  with  $J_0(T) \propto 1/\lambda_{ab}^2(T)\xi_{ab}(T) \approx [1 - (T/T_c)^2]^{3/2}$  and  $(\epsilon\xi_{ab}/L_c)^2 \approx [1 - (T/T_c)^2]^\alpha$  where the exponent  $\alpha$  depends on the microscopic origin of pinning [23]. Never-

theless for both pinning induced by fluctuations of the mean free path ( $\delta l$  pinning) or fluctuations in the critical temperature ( $\delta T_c$  pinning),  $J_c(T)$  is only expected to decrease slowly with  $T$  at low temperature (see dotted and dashed lines in Fig.6) in striking contrast with the observed  $J(T)$  dependence ( $\sim$  exponential decrease). This strong dependence can then be well described by a  $J(T, t) = J_c(T)/[t/t_0]^{R(T)}$  law with  $t_0 \sim 1\mu\text{s}$  (see solid line Fig.6) in good agreement with the  $\mu$  (or  $\mu_s$ ) = 0 value (see Eq.(5)). Note that, in this low  $T$  range it was not possible to distinguish between  $\delta l$  and  $\delta T_c$  pinning and the solid line corresponds, as an example, to  $\delta l$  pinning ( $\alpha = 1$ ). The strong temperature dependence observed below 2K clearly shows that  $J(T) \neq J_c(T)$  shedding some doubt on the conclusion of Bonura *et al.* [7] stating that pinning originates from spatial variations of the mean free path ( $\delta l$  pinning). As for the dip in  $J(H_a, t = 100\text{s})$  (Fig.5), the decrease in  $R(T)$  at high temperature (related to the increase of  $\mu$  as  $J(t)$  is crossing the  $J_{sb}(H_a)$  line) leads to a knee in  $J(T, t = 100\text{s})$  (see inset and main panel of Fig.6).

#### IV. CONCLUSION

We have shown that small activation barriers and a large quantum creep rate are at the origin of a rapid decay of the current density  $J(T, H_a, t)$  in  $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})$ . The logarithmic relaxation rates remain finite down to  $\sim T_c/50$  ( $R|_{T \rightarrow 0} \rightarrow 2\%$ ) suggesting that quantum creep becomes important at low temperature. The relaxation exponent  $\mu \rightarrow 0$  at low  $T$  and low  $H_a$  and  $R(T, H)$  first increases with  $T$  and/or  $H_a$  but then decreases due to a fast increase of  $\mu$  as the size of the creeping segment  $L(J)$  is approaching the vortex spacing  $a_0$ . This crossover from single vortex (1D) to bundle (3D) creep is at the origin of the dip observed in the  $J(H_a)$  curve as well as in the knee present in  $J(T)$ . Those large creep effects are clearly compromising any analysis of the temperature and/or field dependence of the critical current.

This work has been supported by the French National Research Agency, Grant No. ANR-09-Blanc-0211 SupraTetrafer. T.K. is most obliged to Z.Pribulova from the Centre of Low Temperature Physics, Slovak Academy of Sciences, Košice, Slovakia and F. Gucman from the Institute of Electrical Engineering, Slovak Academy of Sciences, Bratislava, Slovakia for the development of the Hall sensors used in this study. H.G. thanks the LANEF for financial support.

- [1] Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano, and H. Hosono, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008); X. H. Chen, T. Wu, G. Wu, R. H. Liu, H. Chen, and D. F. Fang, *Nature London* **453**, 761 (2008).  
 [2] F. C. Hsu, J. Y. Luo, K. W. Yeh, T. K. Chen, T. W. Huang, P. M. Wu, Y. C. Lee, Y. L. Huang, Y. Y. Chu,

- D. C. Yan, and M. K. Wu, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **105**, 14262 (2008).  
 [3] B. C. Sales, A. S. Sefat, M. A. McGuire, R. Y. Jin, D. Mandrus, and Y. Mozharivskyj, *Phys. Rev. B* **79**, 094521 (2009); K.-W. Yeh, T. W. Huang, Y. L. Huang, T. K. Chen, F. C. Hsu, P. M. Wu, Y. C. Lee, Y. Y. Chu, C. L.



- Chen, J. Y. Luo, D. C. Yan, and M. K. Wu, *Europhys. Lett.* **84**, 37002 (2008); M. H. Fang, H. M. Pham, B. Qian, T. J. Liu, E. K. Vehstedt, Y. Liu, L. Spinu, and Z. Q. Mao, *Phys. Rev. B*, **78**, 224503 (2008).
- [4] T. Klein, D. Braithwaite, A. Demuer, W. Knafo, G. Lapertot, C. Marcenat, P. Rodire, I. Sheikin, P. Strobel, A. Sulpice, and P. Toulemonde, *Phys. Rev. B*, **82**, 184506 (2010).
- [5] A. Tamai, A.Y. Ganin, E. Rozbicki, J. Bacsá, W. Meevasana, P. D. C. King, M. Caffio, R. Schaub, S. Margadonna, K. Prassides, M. J. Rosseinsky, and F. Baumberger, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 097002 (2010).
- [6] A. Serafin, A. I. Coldea, A.Y. Ganin, M.J. Rosseinsky, K. Prassides, D. Vignolles, and A. Carrington, *Phys. Rev. B*, **82**, 104514 (2010).
- [7] M. Bonura, E. Giannini, R. Viennois, and C. Senatore, *Phys. Rev. B*, **85**, 134532 (2012).
- [8] R. Prozorov, N. Ni, M. A. Tanatar, V. G. Kogan, R. T. Gordon, C. Martin, E. C. Blomberg, P. Prommapan, J. Q. Yan, S. L. Budko, and P. C. Canfield, *Phys. Rev. B*, **78**, 224506 (2008); Huan Yang, Cong Ren, Lei Shan, and Hai-Hu Wen, *Phys. Rev. B*, **78**, 092504 (2008); Bing Shen, Peng Cheng, Zhaosheng Wang, Lei Fang, Cong Ren, Lei Shan, and Hai-Hu Wen, *Phys. Rev. B*, **81**, 014503 (2010); M. Konczykowski, C. J. van der Beek, M. A. Tanatar, Huiqian Luo and Zhaosheng Wang, Bing Shen and Hai Hu Wen, R. Prozorov, *Phys. Rev. B*, **86**, 024515 (2012).
- [9] Y. Yeshurun and A. P. Malozemoff, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2202 (1988); A. P. Malozemoff and M. P. A. Fisher, *Phys. Rev. B*, **42**, 6784(R) (1990); N. Chikumoto, M. Konczykowski, N. Motohira, and A. P. Malozemoff, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1260 (1992).
- [10] L. Fruchter, A. P. Malozernoff, I. A. Campbell, J. Sanchez, M. Konczykowski, R. Griessen, and F. Holtzberg, *Phys. Rev. B* **43**, 8709 (1991); A. V. Mitin, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **93**, 590 (1987) [*Sov. Phys. JETP* **66**, 335 (1987)]; A. C. Mota, P. Visani, and A. Pollini, *Phys. Rev. B* **37**, 9830 (1988); A. C. Mota, A. Pollini, G. Juri, P. Visani, and B. Hilti, *Physica A* **168**, 298 (1990).
- [11] G. Blatter and V. Geshkenbein, *Phys. Rev. B*, **47**, 2725 (1993).
- [12] M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2303 (1989).
- [13] G. Blatter, M. V. Feigelman, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 1125 (1994).
- [14] Y. Abulafia, S. Shaulov, Y. Wolfus, R. Prozorov, L. Burlachkov, Y. Yeshurun, D. Majer, Z. Zeldov, H. Wuhl, V. B. Geshkenbein and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1596 (1996); T. Klein, W. Harneit, L. Baril, C. Escribe-Filippini and D. Feinberg, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3795 (1997).
- [15] P. W. Anderson and Y. B. Kim, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 39 (1964).
- [16] E. Zeldov, N. M. Amer, G. Koren, A. Gupta, M. W. McElfresh and R. J. Gambino, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 680 (1990).
- [17] V. M. Vinokur, M. V. Feigelman, and V. B. Geshkenbein, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 915 (1991).
- [18] Hechang Lei, Rongwei Hu, E. S. Choi, J. B. Warren, and C. Petrovic, *Phys. Rev. B*, **81**, 094518 (2010); M. H. Fang, H. M. Pham, B. Qian, T. J. Liu, E. K. Vehstedt, Y. Liu, L. Spinu, and Z. Q. Mao, *Phys. Rev. B*, **78**, 224503 (2008); T. Gebre, G. Li, J. B. Whalen, B. S. Conner, H. D. Zhou, G. Grissonanche, M. K. Kostov, A. Gurevich, T. Siegrist, and L. Balicas, *Phys. Rev. B*, **84**, 174517 (2011).
- [19] A strong  $T$  and  $H$  dependence of  $\mu$  has also been reported in high temperature oxides, see for instance : T. Klein, W. Harneit, I. Joumard, J. Marcus, C. Escribe-Filippini and D. Feinberg, *Europhys. Lett.* **42**, 79 (1998) and references in [13].
- [20] Yue Sun, Toshihiro Taen, Yuji Tsuchiya, Sunseong Pyon, Zhixiang Shi and Tsuyoshi Tamegai, *Europhys. Lett.* **103**, 57013 (2013).
- [21] T. Klein, R. Marlaud, C. Marcenat, H. Cercellier, M. Konczykowski, C. J. van der Beek, V. Mosser, H. S. Lee and S. I. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 047001 (2010) are references therein.
- [22] A similar effect has been previously reported in YBaCuO by L. Krusin-Elbaum, L. Civale, V. M. Vinokur and F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2280 (1992).
- [23]  $\alpha = 1$  for pinning induced by fluctuations of the mean free path and  $\alpha = -1/3$  for fluctuations of the critical temperature, see for instance G. P. Mikitik and E. H. Brandt, *Phys. Rev. B*, **64**, 184514 (2001).

# Bibliographie

- [1] L. Andolfi, G.W. Canters, M.Ph. Verbeet, and S. Cannistraro. Scanning tunneling spectroscopy investigation of self-assembled plastocyanin mutants onto gold substrates under controlled environment. *Biophysical Chemistry*, 107(2) :107 – 116, 2004.
- [2] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 108(5) :1175–1204, 12 1957.
- [3] J. G. Bednorz and K. A. Müller. Possible high  $T_c$  superconductivity in the ba-la-cu-o system. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 64(2) :189–193, 06 1986.
- [4] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. Vortices in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 66(4) :1125, 10 1994.
- [5] G. E. Blonder and M. Tinkham. Metallic to tunneling transition in cu-nb point contacts. *Phys. Rev. B*, 27(1) :112–118, 01 1983.
- [6] G. E. Blonder, M. Tinkham, and T. M. Klapwijk. Transition from metallic to tunneling regimes in superconducting microconstrictions : Excess current and charge imbalance and and supercurrent conversion. *Phys. Rev. B*, 25(7) :4515, 4 1982.
- [7] W.M Bowser and W.H Weinberg. The nature of the oxide barrier in inelastic electron tunneling spectroscopy. *Surface Science*, 64 :377–392, 05 1977.
- [8] A. Brinkman, A. A. Golubov, H. Rogalla, O. V. Dolgov, J. Kortus, Y. Kong, O. Jepsen, and O. K. Andersen. Multiband model for tunneling in mgb2 junctions. *Phys. Rev. B*, 65(180517) :180517–1, 05 2002.
- [9] V. Brouet, M. Marsi, B. Mansart, A. Nicolaou, A. Taleb-Ibrahimi, P. Le Fèvre, F. Bertran, F. Rullier-Albenque, A. Forget, and D. Colson. Nesting between hole and electron pockets in ba(fe(1-x)co(x))(2)as(2) (x=0-0.3) observed with angle-resolved photoemission. *Phys. Rev. B*, 80(165115) :165115–1, 10 2009.
- [10] W. S. Corak, B. B. Goodman, C. B. Satterthwaite, and A. Wexler. Exponential temperature dependence of the electronic specific heat of superconducting vanadium. *Phys. Rev.*, 96(5) :1442–1444, 09 1954.
- [11] Hervé Courtois. *Supraconductivité de proximité dans les nanostructures métalliques artificielles*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 12 1994.
- [12] D. Daghero and R. S. Gonnelli. Probing multiband superconductivity by point-contact spectroscopy. *Supercond. Sci. Technol.*, 23(043001) :043001–1, 03 2010.
- [13] J. G. Daunt and K. Mendelssohn. An experiment on the mechanism of superconductivity. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 185(1001) :225–239, 02 1946.
- [14] P. G. de Gennes and D. Saint-James. Elementary excitations in the vicinity of a normal metal-superconducting metal contact. *Phys. Lett.*, 4(2) :151–152, 03 1963.

- [15] Sultan Demirdis. *Effects of disorder in iron-based superconductors*. PhD thesis, Ecole Polytechnique X, 12 2012.
- [16] D. Dew-Hughes. The critical current of superconductors : an historical review. *Low Temperature Physics*, 27(9-10) :713–722, 10 2001.
- [17] H. Ding, P. Richard, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Arakane, Y. Sekiba, A. Takayama, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, Z. Wang, X. Dai, Z. Fang, G. F. Chen, J. L. Luo, and N. L. Wang. Observation of fermi-surface-dependent nodeless superconducting gaps in  $\text{ba}(0.6)\text{k}(0.4)\text{fe}(2)\text{as}(2)$ . *Europhysics Letters*, 83(4) :47001–p1, 08 2008.
- [18] R. C. Dynes, J. P. Garno, G. B. Hertel, and T. P. Orlando. Tunneling study of superconductivity near the metal-insulator transition. *Phys. Rev. Lett.*, 53(25) :2437–2440, 12 1984.
- [19] Andreas Erb, Michael Lambacher, Astrid Habel, and Rudolf Gross. [http://for538.wmi.badw-muenchen.de//projects/P4\\_crystal\\_growth/index.htm](http://for538.wmi.badw-muenchen.de//projects/P4_crystal_growth/index.htm).
- [20] R.M. Feenstra, Joseph A. Stroscio, and A.P. Fein. Tunneling spectroscopy of the  $\text{si}(111)2 \times 1$  surface. *Surface Science*, 181 :295–306, 03 1987.
- [21] Jian-Feng Ge, Zhi-Long Liu, Canhua Liu, Chun-Lei Gao, Dong Qian, Qi-Kun Xue, Ying Liu, and Jin-Feng Jia. Superconductivity above 100 k in single-layer  $\text{FeSe}$  films on doped  $\text{SrTiO}_3$ . *Nature Materials*, 14 :285–289, 11 2014.
- [22] R. E. Glover and M. Tinkham. Transmission of superconducting films at millimeter-microwave and far infrared frequencies. *Phys. Rev.*, 104 :844–845, 09 1956.
- [23] R. S. Gonnelli, D. Daghero, G. A. Ummarino, V. A. Stepanov, J. Jun, S. M. Kazakov, and J. Karpinski. Direct evidence for two-band superconductivity in  $\text{mgb}_2$  single crystals from directional point-contact spectroscopy in magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.*, 89(24) :247004–1, 11 2002.
- [24] U. Günsenheimer and A. Hahn. Quasiparticles on a normal sphere in a superconducting continuum. *Physica B*, 218 :141–144, 1996.
- [25] A. Hahn, S. Hofmann, K. Humpfer, and M. Schatz. Hot spots in superconducting tantalum. *Phys. Rev. B*, 65(224503) :224503–1, 5 2002.
- [26] Artur Hahn. Geometrical resonances in a high-injection-current nonequilibrium state of superconductor-normal-metal contacts. *Phys. Rev. B*, 31(5) :2816, 8 1984.
- [27] F. Hardy, P. Burger, T. Wolf, R. A. Fisher, P. Schweiss, P. Adelman, R. Heid, R. Fromknecht, R. Eder, D. Ernst, H. v. Löhneysen, and C. Meingast. Doping evolution of superconducting gaps and electronic densities of states in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  iron pnictides. *EPL*, 91(47008) :47008–1, 09 2010.
- [28] H. van Houten, C.W.J. Beenakker, and B.J. van Wees. *Quantum Point Contacts*, pages 9–112. Semiconductors and Semimetals. 35 edition, 1992.
- [29] Fong-Chi Hsu, Jiu-Yong Luo, Kuo-Wei Yeh, Ta-Kun Chen, Tzu-Wen Huang, Phillip M. Wu, Yong-Chi Lee, Yi-Lin Huang, Yan-Yi Chu, Der-Chung Yan, and Maw-Kuen Wu. Superconductivity in the pbo-type structure  $\alpha\text{-FeSe}$ . *PNAS U. S. A.*, 105(38) :14262–14264, 07 2008.
- [30] Dong-Jin Jang, A B Vorontsov, I Vekhter, K Gofryk, Z Yang, S Ju, J B Hong, J H Han, Y S Kwon, F Ronning, J D Thompson, and T Park. Calorimetric evidence for nodes in the overdoped  $\text{ba}(\text{fe}0.9\text{co}0.1)2\text{as}2$ . *New Journal of Physics*, 13(023036) :023036–1, 02 2011.

- [31] A. G. M. Jansen, F. M. Mueller, and P. Wyder. *Superconductivity in d- and f-Band Metals : Second Rochester Conference*, chapter Direct measurement of  $\alpha^2F$  in normal metals using point-contacts : noble metals, pages 607–624. D. Douglass, 1976.
- [32] A. G. M. Jansen, A. P. van Gelder, and P. Wyder. Point-contact spectroscopy in metals. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 13(33) :6073–6118, 11 1980.
- [33] Shuai Jiang, Hui Xing, Guofang Xuan, Cao Wang, Zhi Ren, Chunmu Feng, Jianhui Dai, Zhu'an Xu, and Guanghan Cao. Superconductivity up to 30 k in the vicinity of the quantum critical point in  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ . *J. Phys. : Condens. Matter*, 21(38) :382203–1, 09 2009.
- [34] Yoichi Kamihara, Hidenori Hiramatsu, Masahiro Hirano, Ryuto Kawamura, Hiroshi Yanagi, Toshio Kamiya, and Hideo Hosono. Iron-based layered superconductor : Laofep. *J. Am. Chem. Soc.*, 128(31) :10012–10013, 07 2006.
- [35] E. O. Kane, W. Franz, I. Giaever, C. B. Duke, L. Esaki, E. I. Blount, R. T. Shuey, R. Stratton, C. A. Mead, J. G. Simmons, R. A. Logan, H. Fritzsche, L. Kleinman, C. T. Sah, W. Zawadzki, J. Lambe, R. C. Jaklevic, J. M. Rowell, J. R. Schrieffer, G. D. Mahan, W. J. Tomasch, J. W. Wilkins, G. E. Everett, W. Eisenmenger, P. Fulde, T. Claeson, J. E. Mercereau, D. J. Scalapino, D. N. Langenberg, A. F. G. Wyatt, J. A. Krumhansl, and Y. Imry. *Tunneling Phenomena in Solids*. Plenum Press, 1969.
- [36] Satoshi Kashiwaya, Yukio Tanaka, Masao Koyanagi, and Koji Kajimura. Theory for tunneling spectroscopy of anisotropic superconductors. *Phys. Rev. B*, 53(5) :2667–2676, 09 1996.
- [37] T. Klein, H. Grasland, H. Cercellier, P. Toulemonde, and C. Marcenat. Vortex creep down to 0.3 k in superconducting fe(te,se) single crystals. *Phys. Rev. B*, 89(014514) :014514–1, 01 2014.
- [38] J. J. Lee, F. T. Schmitt, R. G. Moore, S. Johnston, Y.-T. Cui, W. Li, M. Yi, Z. K. Liu, M. Hashimoto, Y. Zhang, D. H. Lu, T. P. Devereaux, D.-H. Lee, and Z.-X. Shen. Interfacial mode coupling as the origin of the enhancement of  $T_c$  in  $FeSe$  films on  $SrTiO_3$ . *Nature*, 515 :245–248, 11 2014.
- [39] L J Li, Y K Luo, Q B Wang, H Chen, Z Ren, Q Tao, Y K Li, X Lin, M He, and Z W Zhu. Superconductivity induced by  $Ni$  doping in  $BaFe_2As_2$  single crystals. *New Journal of Physics*, 11(025008) :025008–1, 02 2009.
- [40] J. W. Lynn, H. G. Smith, and R. M. Nicklow. Lattice dynamics of gold. *Phys. Rev. B*, 8(8) :3493–3499, 10 1973.
- [41] Walid Malaeb, Teppei Yoshida, Atsushi Fujimori, Masato Kubota, Kanta Ono, Kunihiro Kihou, Parasharam M. Shirage, Hijiri Kito, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki, Yasuyuki Nakajima, Tsuyoshi Tamegai, and Ryotaro Arita. Three-dimensional electronic structure of superconducting iron pnictides observed by angle-resolved photoemission spectroscopy. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 78(12) :123706–1, 12 2009.
- [42] F. Marsiglio and J. P. Carbotte. *Superconductivity*, chapter Electron-Phonon Superconductivity, pages 73–162. Springer Berlin Heidelberg, 2008.
- [43] C. Martin, H. Kim, R. T. Gordon, N. Ni, V. G. Kogan, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield, M. A. Tanatar, and R. Prozorov. Evidence from anisotropic penetration depth for a three-dimensional nodal superconducting gap in single-crystalline  $ba(fe(1-x)ni(x))_2as_2$ . *Phys. Rev. B*, 81(060505(R)) :060505–1, 02 2010.

- [44] B. T. Matthias, T. H. Geballe, and V. B. Compton. Superconductivity. *Rev. Mod. Phys.*, 35(1) :1–22, 01 1963.
- [45] J.C. Maxwell. *A treatise on electricity and magnetism*. Number vol. 1 à 2 in A Treatise on Electricity and Magnetism. Dover Publications, 1954.
- [46] Igor Mazin. Iron superconductivity weathers another storm. *Physics*, 4(26) :26–1, 03 2011.
- [47] Walther Meissner and Robert Ochsenfeld. Ein neuer effekt bei eintritt der supraleitfähigkeit. *Die Naturwissenschaften*, 21(44) :787–788, 11 1933.
- [48] Yoshikazu Mizuguchi, Fumiaki Tomioka, Shunsuke Tsuda, Takahide Yamaguchi, and Yoshihiko Takano. Superconductivity in s-substituted fete. *Appl. Phys. Lett.*, 94(012503) :012503–1, 01 2009.
- [49] Gang Mu, Bo Gao, Xiaoming Xie, Yoichi Tanabe, Jingtao Xu, Jiazhen Wu, and Katsumi Tanigaki. Gap structure of the overdoped iron-pnictide superconductor  $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.942}\text{Ni}_{0.058})_2\text{As}_2$  : A low-temperature specific-heat study. *Advances in Condensed Matter Physics*, (419017) :419017–1, 03 2015.
- [50] Inga Holl Musselman and Phillip E. Russell. Platinum/iridium tips with controlled geometry for scanning tunneling microscopy. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 8, 1990.
- [51] Yu. G. Naidyuk and I. K. Yanson. *Point-Contact Spectroscopy*, volume 145 of *Springer Series in Solid-State Sciences*. Springer-Verlag New York, 1 edition, 2005.
- [52] A. Olariu, F. Rullier-Albenque, D. Colson, and A. Forget. Different effects of ni and co substitution on the transport properties of  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . *Phys. Rev. B*, 83(054518) :054518–1, 02 2011.
- [53] Heike Kamerlingh Onnes. Communications - leiden 120b. *Proceedings of the Koninklijke Akademie van Wetenschappen te Amsterdam*, pages 1479–1481, 04 1911.
- [54] Heike Kamerlingh Onnes. Communications - leiden 124c. *Proceedings of the Koninklijke Akademie van Wetenschappen te Amsterdam*, pages 799–802, 12 1911.
- [55] P. Pecchio, D. Daghero, G. A. Ummarino, R. S. Gonnelli, F. Kurth, B. Holzapfel, and K. Iida. Doping and critical-temperature dependence of the energy gaps in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  thin films. *Phys. Rev. B*, 88(174506) :174506–1, 11 2013.
- [56] Alex Pronschinske, Daniel J. Mardit, and Daniel B. Dougherty. Modeling the constant-current distance-voltage mode of scanning tunneling spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 84(205427) :205427–1, 11 2011.
- [57] P. Rodière, T. Klein, L. Lemberger, K. Hasselbach, A. Demuer, J. Kačmarčík, Z. S. Wang, H. Q. Luo, X. Y. Lu, H. H. Wen, F. Gucmann, and C. Marcenat. Scaling of the physical properties in  $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ni})_2\text{As}_2$  single crystals : Evidence for quantum fluctuations. *Phys. Rev. B*, 85(214506) :214506–1, 06 2012.
- [58] Marianne Rotter, Michael Pangerl, Marcus Tegel, and Dirk Johrendt. Superconductivity and crystal structures of  $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $x=0-1$ ). *Angew. Chem., Int. Ed.*, 47(41) :7949–7952, 09 2008.
- [59] J. M. Rowell and W. L. McMillan. Electron interference in a normal metal induced by superconducting contacts. *Physical Review Letters*, 16(11) :453–456, 03 1966.
- [60] D. J. Scalapino, Y. Wada, and J. C. Swihart. Strong-coupling superconductor at nonzero temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 14(4) :102–105, 01 1965.

- [61] Athena S. Sefat, Rongying Jin, Michael A. McGuire, Brian C. Sales, David J. Singh, and David Mandrus. Superconductivity at 22 k in co-doped  $BaFe_2As_2$  crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 101(117004) :117004–1, 09 2008.
- [62] Athena S. Sefat, Michael A. McGuire, Rongying Jin, Brian C. Sales, David Mandrus, Filip Ronning, E. D. Bauer, and Yuriy Mozharivskyj. Structure and anisotropic properties of  $BaFe_{2-x}Ni_xAs_2$  ( $x=0, 1, \text{ and } 2$ ) single crystals. *Phys. Rev. B*, 79(094508) :094508–1, 03 2009.
- [63] Shilpam Sharma, A. Bharathi, Sharat Chandra, V. Raghavendra Reddy, S. Paulraj, A. T. Satya, V. S. Sastry, Ajay Gupta, and C. S. Sundar. Superconductivity in  $Ru$ -substituted polycrystalline  $BaFe_{2-x}Ru_xAs_2$ . *Phys. Rev. B*, 81(174512) :174512–1, 05 2010.
- [64] Yu V. Sharvin. A possible method for studying fermi surfaces. *J. Exptl. Theoret. Phys.*, 48 :984–985, 03 1965.
- [65] H. Shishido, A. F. Bangura, A. I. Coldea, S. Tonegawa, K. Hashimoto, S. Kasahara, P. M. C. Rourke, H. Ikeda, T. Terashima, R. Settai, Y. Ounuki, D. Vignolles, C. Proust, B. Vignolle, A. McCollam, Y. Matsuda, T. Shibauchi, and A. Carrington. Evolution of the fermi surface of  $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$  on entering the superconducting dome. *Phys. Rev. Lett.*, 104(057008) :057008–1, 02 2010.
- [66] Ilpo Suominen, Jouko Nieminen, R. S. Markiewicz, and A. Bansil. Effect of orbital symmetry of the tip on scanning tunneling spectra of  $Bi(2)Sr(2)CaCu(2)O(8+\delta)$ . *Phys. Rev. B*, 84(014528) :014528–1, 07 2011.
- [67] E. Tekman and S. Ciraci. Theoretical study of transport through a quantum point contact. *Phys. Rev. B*, 43(9) :7145–7169, 03 1991.
- [68] M. Tinkham, M. Octavio, and W. J. Skocpol. Heating effects in high-frequency metallic josephson devices : Voltage limit, bolometric mixing, and noise. *J. Appl. Phys.*, 48(3) :1311–1920, 1977.
- [69] Michael Tinkham. *Introduction to Superconductivity : Second Edition*, volume 1 of *Dover Books on Physics*. Dover Publications, 2 edition, 2004.
- [70] W. J. Tomasch. Resonance effect in superconducting sn. *Phys. Lett.*, 23(3) :204, 10 1966.
- [71] P. Vashishta and J. P. Carbotte. Quasiparticle tunneling in pb near  $T_c$ . *Solid State Communications*, 8 :161–167, 11 1969.
- [72] Qing-Yan Wang, Zhi Li, Wen-Hao Zhang, Zuo-Cheng Zhang, Jin-Song Zhang, Wei Li, Hao Ding, Yun-Bo Ou, Peng Deng, and Kai Chang. Interface-induced high-temperature superconductivity in single unit-cell fese films on  $SrTiO_3$ . *Chinese Physics Letters*, 29(3) :037402–1, 02 2012.
- [73] Hai-Hu Wen and Shiliang Li. Materials and novel superconductivity in iron pnictide superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 2 :121–140, 03 2011.
- [74] G. Wexler. The size effect and the non-local boltzmann transport equation in orifice and disk geometry. *Proc. Phys. Soc.*, 89 :927–941, 06 1966.
- [75] D. Wu, N. Barišić, M. Dressel, G. H. Cao, Z-A. Xu, E. Schachinger, and J. P. Carbotte. Eliashberg analysis of optical spectra reveals a strong coupling of charge carriers to spin fluctuations in doped iron-pnictide  $BaFe_2As_2$  superconductors. *Phys. Rev. B*, 82(144519) :144519–1, 10 2010.

- [76] I. K. Yanson. Nonlinear effects in the electric conductivity of point junctions and electron-phonon interaction in normal metals. *J. Exp. Theor. Phys.*, 39(3) :506–603, 09 1974.
- [77] I. K. Yanson, N. L. Bobrov, L. F. Rybal'chenko, and V. V. Fisun. Relaxation of nonequilibrium quasiparticles in a superconductor normal metal point contact. *Sov. J. Low Temp. Phys.*, 13(11) :635–643, 11 1987.
- [78] Kuo-Wei Yeh, Tzu-Wen Huang, Yi lin Huang, Ta-Kun Chen, Fong-Chi Hsu, Phillip M. Wu, Yong-Chi Lee, Yan-Yi Chu, Chi-Lian Chen, Jiu-Yong Luo, Der-Chung Yan, and Maw-Kuen Wu. Tellurium substitution effect on superconductivity of the  $\alpha$ -phase iron selenide. *Europhysics Letters*, 84(3) :37002–1, 10 2008.