

# Etude des fluctuations quantiques du courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel

Pierre Février

# ▶ To cite this version:

Pierre Février. Etude des fluctuations quantiques du courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel. Systèmes mésoscopiques et effet Hall quantique [cond-mat.mes-hall]. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT: 2017SACLS037. tel-01523634

# HAL Id: tel-01523634 https://theses.hal.science/tel-01523634

Submitted on 16 May 2017  $\,$ 

**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.





NNT : 2017SACLS037

# Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay préparée à l'Université Paris-Sud

Ecole doctorale n°564 Physique en Île-de-France Spécialité de doctorat : Physique

par

# PIERRE FÉVRIER

Étude des fluctuations quantiques du courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 9 février 2017.

## Composition du Jury :

M. JEAN-JACQUES GREFFET	Professeur,	Président du jury
	LCF, Institut d'Optique Palaiseau	
Mme. Adeline CRÉPIEUX	Professeur assistant,	Rapporteur
	CPT, Université d'Aix-Marseille	
M. Alexandre BOUHELIER	Directeur de recherche,	Rapporteur
	ICB, Université de Bourgogne	
M. MARC SANQUER	Directeur de recherche,	$\operatorname{Examinateur}$
	LaTEQs, CEA Grenoble	
M. FABIEN PORTIER	Chargé de recherche,	Invité
	SPEC, CEA Saclay	
M. Marco APRILI	Directeur de recherche,	Directeur de thèse
	LPS, Université Paris-Sud	
M. Julien GABELLI	Chargé de recherche,	Codirecteur de thèse
	LPS, Université Paris-Sud	

# Remerciements

Dans ces prochaines lignes j'aimerais remercier toutes les personnes qui ont contribué directement ou indirectement à ce travail de thèse.

Je souhaite remercier en particulier Marco Aprili pour avoir été mon directeur de thèse, pour ses conseils et ses encouragements. Je remercie chaleureusement Julien Gabelli de m'avoir encadré pendant ces trois années. Tu as toujours été encourageant et excellent pédagogue, même dans les moments de doute. Je vous remercie de m'avoir écouté et conseillé lors de la préparation de la soutenance. Je remercie également Jérôme Esteve, Julien Basset, Sophie Guéron et Richard Deblock qui m'ont également beaucoup aidé pour cette dernière ligne droite. Merci à Cyril Vaneph, avec qui j'ai partagé le bureau pendant plus de deux ans, et qui devient, aujourd'hui "le prochain sur la liste". Merci également aux autres membres de l'équipe NS2 que je n'ai pas encore cité, Charis Quay Huei Li, Francis 'Tito' Williams, Freek Massee, Alexis Morvan, Mathieu Féchant, Gianluca Aiello et Marko Kuzmanović. Je remercie Sylvie Gaultier pour son aide technique sur les outils de nanofabrication, mais également pour la bonne humeur qu'elle apporte au sein de l'équipe. Je remercie l'équipe IDMag, dans laquelle j'ai effectué mon premier travail de recherche lors du stage de Master 1. Je remercie en particulier Stanislas Rohart pour m'avoir encadré et encouragé lors de mon orientation vers la matière condensée, et Vincent Jeudy de m'avoir parrainé pendant la thèse. Merci à Julien Bobroff et Frédéric Bouquet, de l'équipe La Physique Autrement, pour leur encadrement lors de mon monitorat en vulgarisation scientifique.

J'ai eu l'occasion de visiter le laboratoire du traitement des signaux quantiques à l'Université de Sherbrooke. Je remercie le Pr Bertrand Reulet de m'avoir invité pour partager ce travail, ainsi que toute son équipe pour son accueil. Je remercie Adeline Crépieux, Alexandre Bouhelier, Marc Sanquer, Jean-Jacques Greffet et Fabien Portier pour avoir accepté d'être mon jury de thèse, et pour la séance de questions très intéressante lors de la soutenance.

Ces trois années ont été très riches en rencontres, grâce aux autres thésards du Laboratoire de Physique du Solide, Raphaëlle, Anil, Joseph, Alesia, Elise, Shayma, Emilie... Merci pour les bonnes soirées ensemble (merci JC!), le super weekend organisé en Normandie (merci Anaïs et Thibaut!) et les vacances à la montagne! (merci Emilie!). J'aimerais à présent remercier les personnes m'ayant communiqué le goût des sciences et la motivation m'ayant permis d'arriver jusqu'ici. J'ai commencé mes études scientifiques dans l'excellent cadre de la Licence PCSI à l'Université de Bretagne Sud, dont je remercie chaleureusement les enseignants. Je pense également dans ces lignes à mes compagnons de l'époque, partis vers d'autres horizons. Lors de mes années de Master, j'ai travaillé au sein du Palais de la Découverte à Paris. J'ai eu la chance d'y croiser des personnes de différents parcours, mais guidées par le même plaisir de comprendre et de partager. Je remercie tous les médiateurs, permanents, moniteurs et vacataires avec lesquels j'ai eu l'occasion de travailler et d'échanger.

Enfin je remercie ma famille, mes parents et mon frère pour leurs encouragements et leur confiance. Je remercie mes amis pour leur présence et leur soutien. La plus méritante est certainement Sophie, qui a vécu (subi?) cette thèse par procuration. Je te remercie de n'avoir jamais douté de moi.

# Table des matières

In	trod	uction		i
	0.1	Fluctu	ations quantiques du courant à fréquence finie	iii
	0.2	Émissi	ion de lumière par une jonction tunnel	vii
	0.3	Étude	des fluctuations du courant aux fréquences optiques $\ldots \ldots \ldots$	ix
1	Émi	ission (	de photons par une jonction tunnel	1
	1.1	Transp	port électrique dans une jonction tunnel	2
		1.1.1	Modèle heuristique	2
		1.1.2	Fluctuation du courant à fréquence nulle	4
		1.1.3	Fluctuation du courant à fréquence finie	9
		1.1.4	Conclusion	15
	1.2	Couple	age électron-photon	15
		1.2.1	Plasmon-polariton de surface	16
		1.2.2	Plasmonique d'une jonction tunnel	19
		1.2.3	Conclusion	25
	1.3	Densit	é spectrale du champ de photons	25
		1.3.1	Terme de source	26
		1.3.2	Couplage au champs $E_z$	29
<b>2</b>	Tec	hnique	s expérimentales	31
	2.1	Échan	tillons	31
		2.1.1	Fabrication	32
		2.1.2	Propriétés électriques	36
		2.1.3	Propriétés optiques en montage Kretschmann	43
		2.1.4	Simulations pour l'optimisation des systèmes optiques	46
		2.1.5	Conclusion	48
	2.2	Dispos	sitifs expérimentaux	49
		2.2.1	Cryostat	49
		2.2.2	Mesure calibrée de la capacité des jonctions	51
		2.2.3	Mesure de Bruit, traitement du signal	53
		2.2.4	Validation du dispositif de mesure	58
3	Mes	sure de	es fluctuations de courant loin de l'équilibre	61
	3.1	Caract	téristiques des échantillons	63
		3.1.1	Description des échantillons	63
		3.1.2	Caractéristiques électriques	64
		3.1.3	Régime fortement hors équilibre	66

# TABLE DES MATIÈRES

	3.2	Mesure du bruit à fréquence nulle		69	
		3.2.1	Montage expérimental	69	
		3.2.2	Principe de la mesure calibrée	70	
		3.2.3	Extraction de $S_{II}$ à forte polarisation	73	
		3.2.4	Conclusion	77	
	3.3	3.3 Mesure du bruit aux fréquences optiques		78	
		3.3.1	Mesure de la puissance lumineuse $P_{ph}(V)$ sur un jonction avec réseau	78	
		3.3.2	Mesure de $P_{ph}(V)$ sur une jonction en configuration Kretschmann .	85	
		3.3.3	Violation de la relation fluctuation-dissipation	86	
		3.3.4	Rendement de l'émission	91	
		3.3.5	Confinement des corrélations	95	
		3.3.6	Reproductibilité	95	
	3.4	Interprétation des résultats		96	
		3.4.1	Position du problème	96	
		3.4.2	La relation fluctuation-dissipation et processus inélastiques	97	
		3.4.3	Courant dans la barrière	104	
<b>4</b>	Con	clusio	n et perspective	107	
	4.1	Résult	ats	108	
	4.2	4.2 Perspectives, corrélations des fluctuations de la puissance lumineuse avec les			
		fluctuations de courant $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$		109	

L'idée de relier la dynamique des électrons dans un conducteur au flux de photons qu'il émet est à l'origine de la formule de Johnson-Nyquist [1, 2]  $S_{II} = 4k_BT/R$  donnant la densité spectrale des fluctuations de courant  $S_{II}$  en fonction de la constante de Boltzmann  $k_B$ , de la température T et de la résistance R du conducteur. L'argument thermodynamique utilisé par H. Nyquist en 1928 consiste à identifier la puissance électrique dissipée par le conducteur à l'équilibre thermodynamique à la puissance du rayonnement du corps noir à la même température. Il est ainsi possible de décrire les fluctuations thermiques du courant dans un conducteur à partir des propriétés du champ électromagnétique qu'il rayonne. Le lien entre les fluctuations de courant au sein d'un conducteur et la densité spectrale de puissance rayonnée  $dP_{ph}/d\nu$  peut alors se résumer de manière très générale par :

$$\frac{dP_{ph}}{d\nu} = \mathcal{R}(\nu)S_{II}(\nu),\tag{1}$$

où  $\mathcal{R}(\nu)$  est une impédance de rayonnement exprimée en Ohms. Cette formulation montre qu'il est possible d'étudier les fluctuations de courant à fréquence  $\nu$  dans un conducteur en mesurant le champ qu'il rayonne à la même fréquence ou, réciproquement, de générer un champ électromagnétique connaissant la dynamique du transport électronique dans un conducteur. C'est ainsi que l'étude des fluctuations hautes fréquences du courant dans des conducteurs quantiques a permis ces dernières années aux domaines de l'électronique quantique et de l'optique quantique de se rejoindre. Plus précisément, il est possible de « transférer » aux photons émis par un conducteur, les corrélations quantiques du courant qui le traverse. Sachant que les énergies caractéristiques du transport à l'échelle mésoscopique sont de l'ordre du  $\mu eV$ , les photons émis par ces conducteurs ont des fréquences de l'ordre du GHz, on parle alors d'optique quantique micro-onde. Les conducteurs mésoscopiques apparaissent alors comme de bons candidats pour la réalisation de sources quantiques micro-ondes contrôlées électriquement. Le problème devient intéressant lorsque les photons émis résultent de la dynamique électronique propre au conducteur et plus particulièrement lorsque cette dynamique est d'origine quantique. Dans les conducteurs mésoscopiques, cette dynamique peut être reliée à la granularité de la charge et au principe d'exclusion de Pauli [3–6], aux interactions coulombiennes [7] ou encore à la cohérence de phase du conducteur [3, 8]. Un travail théorique important a permis de décrire précisément le couplage entre un conducteur quantique simple et son environnement électromagnétique micro-onde [9–15]. Cela a permis de prédire l'existence de corrélations quantiques dans le champ de photons micro-onde émis. Parmi les réalisations expérimentales, nous pouvons citer la génération d'états comprimés ou de paires de photons micro-onde par une jonction tunnel dissipative [7, 16], l'observation de corrélations entre des fluctuations du vide et les fluctuations de courant dans ce même type de jonction ou encore la réalisation d'une source de photon unique à l'aide d'une jonction Josephson fortement couplée à un résonateur micro-onde [17].



**Figure 1** – Figure extraite de la référence [18]. Densité spectrale du rayonnement émis par des jonctions tunnels  $Al/AlO_x/Ag$  et  $Al/AlO_x/Au$  polarisées sous des tensions de plusieurs volts et mesurées à 77 K. Les lignes en pointillés rouges ont été ajoutées pour représenter la densité spectrale du bruit de grenaille d'une jonction tunnel linéaire. L'écart entre  $dP_{ph}/d\nu$  et  $S_{II}$  peut être attribué dans un premier temps à la dépendance en fréquence de l'impédance de rayonnement  $\mathcal{R}(\nu)$ .

Comme nous l'avons déjà mentionné, les fréquences associées aux énergies caractéristiques du transport quantique appartiennent au domaine micro-onde. Est-il alors possible d'étendre les concepts développés précédemment en vue de réaliser des sources quantiques dans le domaine de l'optique visible ou infrarouge? Cette question a été abordée de manière détournée dès les années 1970 par J. Lambe et L. McCarthy [18] lorsqu'ils ont observé de la lumière visible à la surface d'une jonction tunnel polarisée sous une tension de plusieurs volts (voir fig. 1). La densité spectrale du rayonnement  $dP_{ph}/d\nu$  émis par ces jonctions est large bande et présente une coupure à haute fréquence  $h\nu < eV$ . Elle est qualitativement décrite par la densité spectrale du bruit de grenaille  $S_{II} = eI [1 - h\nu/eV]$  d'une jonction tunnel linéaire. Cette coupure en fréquence s'interprète aisément comme un processus tunnel inélastique : seul les électrons d'énergie  $eV > h\nu$  peuvent émettre des photons de fréquence  $\nu$  en relaxant leur énergie lors d'un processus tunnel inélastique. Cette émission de lumière a été rapidement décrite [19–21] comme résultant de l'excitation de modes plasmoniques à la surface de la jonction par les fluctuations de courant dans la barrière. Le transport électronique, couplé à la plasmonique, rend ainsi le domaine optique accessible au conducteur quantique le plus simple, la jonction tunnel.

## 0.1. FLUCTUATIONS QUANTIQUES DU COURANT À FRÉQUENCE FINIE iii

Cependant, la preuve de principe donnée par l'expérience de J. Lambe et L. McCarthy a ouvert la voie à de nombreuses questions laissées sans réponse :

- la description du transport électronique dans le régime linéaire est-elle encore justifiée lorsque la jonction tunnel est polarisée sous de telles tensions?
- les mécanismes de couplage des fluctuations de courant aux modes plamoniques des électrodes de la jonction sont-ils bien décrits par un couplage dipolaire dans la barrière isolante de la jonction ?
- y a-t-il des corrélations non-triviales dans la statistique des photons émis par la jonction tunnel?

En essayant de répondre à ces questions, nous nous adressons à deux communautés : celles des « mésoscopistes », qui étudient les mécanismes du transport électronique et celles des « opticiens », qui veulent comprendre et optimiser les mécanismes liés à l'émission de lumière. Nous avons pour cela :

- (i) étudié les fluctuations quantiques du courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel fortement non linéaire et montré que ce régime fait apparaître des problèmes liés à l'accumulation de charge dans le conducteur,
- (ii) proposé une interprétation du mécanisme d'émission basé sur une recombinaison de paires « électron-trou » dans les électrodes de la jonction tunnel.

Dans ce chapitre d'introduction, nous allons dans un premier temps présenter l'état de l'art concernant l'étude des fluctuations de courant à fréquence finie  $(h\nu \gg k_B T)$  dans un conducteur quantique afin d'identifier les problèmes relatifs à (i). Nous nous intéresserons ensuite aux mécanismes responsables de l'émission de lumière par des jonctions tunnels et présenterons quelques résultats théoriques et expérimentaux pour mettre en perspective (ii). Nous présenterons finalement brièvement les jonctions tunnels que nous avons utilisées et détaillerons le plan de la thèse.

# 0.1 Fluctuations quantiques du courant à fréquence finie

Le courant dans un conducteur quantique est décrit par des opérateurs courants  $\hat{I}_L(t)$ et  $\hat{I}_R(t)$  définis dans les électrodes de la jonction (voir figure 2). L'étude des fluctuations de courant à fréquence finie pose deux problèmes bien distincts :

- les opérateurs courant, pris à des temps différents t et t', ne commutent pas nécessairement :  $[\hat{I}_{L/R}(t), \hat{I}_{L/R}(t')] \neq 0$ . La définition de la densité spectrale de bruit  $S_{II}$ dépend donc de la symétrisation choisie,
- bien qu'il y ait conservation du courant en valeur moyenne,  $\langle \hat{I}_L \rangle = \langle \hat{I}_R \rangle$ , les valeurs instantanées ne sont pas nécessairement égales,  $\hat{I}_L(t) \neq \hat{I}_R(t)$ . Cela traduisant des effets d'accumulation de charges au sein du conducteur.

#### INTRODUCTION



**Figure 2** – Profil en énergie vu par un électron traversant la jonction tunnel. La jonction est composée de deux électrodes métalliques séparées par une barrière isolante. La densité d'état dans les électrodes est supposée constante et la probabilité d'occupation de l'électrode de gauche (*resp.* droite) est donnée par la fonction de Fermi-Dirac de potentiel électrochimique  $\mu_L = \epsilon_F + eV$  (*resp.*  $\mu_R = \epsilon_F$ ) où  $\epsilon_F \sim 10 \text{ eV}$  est l'énergie de Fermi dans le métal. Lorsque la jonction est polarisée sous une tension V les électrons peuvent passer au travers de la jonction par effet tunnel avec une transmission  $\mathcal{T}(\epsilon, eV)$ . La situation représentée ci-dessus correspond à V < 0 et l'électron de charge négative passe de l'électrode de gauche à l'électrode de droite.

Le problème lié à l'ordonnancement des opérateurs dans la définition de la densité spectrale de bruit a largement été étudié, tant sur le plan théorique [22–25], que sur le plan expérimental[4, 6, 26–28]. Le choix de la symétrisation à adopter est lié à la nature du détecteur utilisé. Si le détecteur est un détecteur « classique » , par exemple un amplificateur linéaire dans le régime micro-onde, alors la densité spectrale de bruit mesurée correspond à l'ordonnancement de Keldysh qui correspond ici au bruit symétrisé [29, 30] :

$$S_{II}(\nu) = \frac{1}{2} \left( S_Q(\nu) + S_Q(-\nu) \right),$$
(2)

avec  $S_Q(\nu) = \int d\tau \langle \hat{I}_L(t) \hat{I}_L(t+\tau) \rangle e^{2\pi i \nu \tau}$ . Si le détecteur est passif (modélisé par exemple par un oscillateur harmonique de fréquence  $\nu$  à la température T), alors la densité spectrale de bruit mesurée est donnée par [22] :

$$S_{II}(\nu) = (N(h\nu, k_BT) + 1) S_Q(\nu) - N(h\nu, k_BT) S_Q(-\nu),$$
(3)

où  $N(h\nu, k_BT) = 1/(1 + e^{h\nu/k_BT})$  est la fonction de Bose-Einstein à la température T.

<sup>1.</sup> On se place ici dans le cas où la fréquence  $\nu$  est inférieure aux fréquences caractéristiques du conducteur quantique de sorte que  $\hat{I}_L(t) = \hat{I}_R(t)$ .

Le corrélateur  $S_Q(\nu > 0)$  s'interprète alors facilement comme le bruit émis par le conducteur alors que  $S_Q(\nu < 0)$  correspond au bruit émis par le détecteur à température T et absorbé par le conducteur. Pour plus de détails, le lecteur pourra se référer à l'article de revue [31]. Le bruit symétrisé (*resp.* non symétrisé) a été observé expérimentalement à très basse température ( $T \sim 10 \text{ mK}$ ) sur des jonctions tunnel dans le domaine micro-onde à l'aide d'un amplificateur linéaire suivi d'un détecteur quadratique [28, 32] (*resp.* d'un détecteur à base de jonctions Josephson [27, 33]). Cette distinction ne fait maintenant plus l'objet de débats : un système de détection est sensible aux fluctuations quantiques du vide à condition de mesurer le bruit symétrisé ou une partie du bruit en absorption. Les mesures effectuées dans cette thèse étant dans le domaine optique ou infrarouge, le détecteur utilisé est une photodiode que l'on pourra considérer à température nulle ( $h\nu \sim 10^4 \text{ K}$ ). Le bruit mesuré sera alors un bruit en émission.

Avant d'aborder le problème relatif à l'accumulation de charges dans le conducteur, nous rapportons le résultat expérimental obtenu par E. Zakka-Bajjani *et al.* [3]. Il s'agit de la détection de photons micro-ondes émis par un contact ponctuel quantique. En plus d'avoir mis en évidence la fréquence de coupure  $h\nu = eV$  observée dans les jonctions tunnel, E. Zakka-Bajjani *et al.* ont observé la « réduction » de bruit (voir fig. 3) imposée par la statistique de Fermi-Dirac dans le cas de canaux de conduction de transmission 1 [34, 35] :

$$\Delta S_{II}(\nu, V) = \frac{2e^2}{h} \sum_n \mathcal{T}_n (1 - \mathcal{T}_n) (eV - h\nu) \coth\left(\frac{h\nu}{2k_B T}\right).$$
(4)

On s'est contenté ici d'exprimer le bruit en excès  $\Delta S_{II}(\nu, V) = S_{II}(\nu, V) - S_{II}(\nu, V) = 0$ ) afin d'ignorer l'effet de la symétrisation de la densité spectrale de bruit. Ce résultat montre l'effet de la statistique électronique sur le champ de photons émis par le conducteur quantique. Dans le cas d'une jonction tunnel,  $\mathcal{T}_n \ll 1$  et la densité spectrale de bruit s'exprime directement en fonction de la caractéristique I(V) de la jonction :

$$S_{II}(\nu, V) = e \left[ \left( N(eV - h\nu) + 1 \right) I \left( V - \frac{h\nu}{e} \right) + N(eV + h\nu) I \left( V + \frac{h\nu}{e} \right) \right].$$
(5)

Cette expression, appelée relation fluctuation dissipation (RFD), est une généralisation du théorème fluctuation-dissipation qui, d'après B. Roussel et al. [36] n'impose qu'un nombre limité d'hypothèses : (i) le couplage tunnel doit rester perturbatif, (ii) aucun courant supraconducteur ne doit traverser la jonction et (iii) la règle de la balance détaillée doit être satisfaite par le Hamiltonien tunnel. Ces hypothèses sont-elles vérifiées dans le cas d'une jonction tunnel fortement non-linéaire? Dans ce travail de thèse, la jonction est polarisée jusqu'à une tension de 2 V pour pouvoir émettre des photons optiques. Celle-ci présente de fortes non-linéarités (voir fig. 6a) liées au champ électrique dans la barrière. Il en résulte une dépendance en énergie et en tension de la transmission tunnel  $\mathcal{T}(\epsilon, eV)$  invalidant l'hypothèse (iii). Les mesures de puissance lumineuse que nous avons effectuées dans le proche infrarouge sont, comme attendu, en désaccord avec l' équation (5). En effet, la RFD est déduite du calcul du courant tunnel  $\hat{I}_T$  et impose donc implicitement  $\hat{I}_L = \hat{I}_T = \hat{I}_R$  alors que  $\hat{I}_L \neq \hat{I}_R$  en raison de la dépendance en énergie et tension de la transmission.

La non conservation du courant à fréquence finie signifie qu'il y a des fluctuations de la charge  $\hat{Q}_T$  dans la barrière tunnel telle que :

$$\frac{d\hat{Q}_T}{dt} = \hat{I}_L(t) + \hat{I}_R(t). \tag{6}$$

La description microscopique du couplage de cette charge avec les modes plasmoniques des électrodes imposerait de tenir compte des interactions électron-électron dans la barrière diélectrique afin de définir l'opérateur courant dans la barrière. Nous avons décidé de négliger l'effet de ce courant et de ne tenir compte que des fluctuations de courant dans les réservoirs en définissant les densités spectrales de bruit suivantes [37–39] :

$$S_{LL}(\nu) = \langle \hat{I}_L(\nu) \hat{I}_L(-\nu) \rangle,$$
  

$$S_{RR}(\nu) = \langle \hat{I}_R(\nu) \hat{I}_R(-\nu) \rangle,$$
  

$$2S_{LR}(\nu) = \langle \hat{I}_L(\nu) \hat{I}_R(-\nu) \rangle + \langle \hat{I}_L(\nu) \hat{I}_R(-\nu) \rangle,$$
  
(7)

où  $\hat{I}_{L/R}(\nu)$  est la composante de Fourier de  $\hat{I}_{L/R}(t)^2$ . Cette approche est très bien décrite pas la théorie de Landauer-Buttiker et est en bon accord avec nos résultats expérimentaux. Nous avons ainsi prouvé que, bien que dans le régime tunnel, la RFD pouvait être violée à condition d'être suffisamment hors de l'équilibre. Ce régime est atteint lorsque l'énergie de polarisation eV est de l'ordre de la hauteur de la barrière tunnel. Ce résultat est à mettre en perspective avec les résultats expérimentaux obtenus dans le régime micro-onde pour une jonction tunnel en régime de Blocage de Coulomb Dynamique [5]. Dans ce régime, la jonction tunnel présente des non-linéarités induites par l'environnement électromagnétique auquel elle est couplée (un oscillateur harmonique). Ces non-linéarités sont liées aux processus tunnels inélastiques permettant d'exciter les modes électromagnétiques de l'environnement. La puissance lumineuse émise par la jonction vérifie alors la RFD. Le régime de forte polarisation que nous avons étudié fait intervenir des énergies bien supérieures à l'énergie de charge et peut être décrit par une simple relaxation dans les électrodes.

<sup>2.</sup> La composante de Fourier est en faite définie par  $\hat{I}_{L/R}(t)/\sqrt{\Delta t}$  avec  $\Delta t$  le temps d'intégration sur lequel est évalué la moyenne de la fonction d'autocorrélation  $\langle \hat{I}_L(t)\hat{I}_L(t+\tau)\rangle$ .



**Figure 3** – Figure extraite de la référence [3]. Elle présente la réduction de la puissance rayonnée dans la bande [4 - 8 GHz] lors de l'ouverture de deux premiers canaux de transmissions d'un contact ponctuel quantique à une température  $T \sim 70 \text{ mK}$ .

# 0.2 Émission de lumière par une jonction tunnel

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'émission de lumière par un conducteur peut être reliée, comme dans le cas d'une antenne, à la densité spectrale des fluctuations de courant via une impédance de rayonnement  $\mathcal{R}(\nu)$  [40]. Dans le cas de la jonction tunnel planaire utilisée par J. Lambe et L. McCarthy [18] ou encore M. Hänisch et A. Otto [41], cette impédance traduit le couplage successif entre les fluctuations de courant dans la jonction, les modes plasmoniques à la surface des électrodes et les modes propagatifs du champ de photons. Le couplage entre modes plasmoniques et modes propagatifs est purement classique et bien connu. Dans le cas présent, il est induit par la rugosité intrinsèque des électrodes. Par contre, les mécanismes à l'origine de l'excitation des modes plasmoniques sont débatus. L'électron peut en effet traverser la barrière tunnel de manière *inélastique* en excitant un mode plasmonique ou de manière *élastique* avant de relaxer une partie de son énergie en excitant un mode plasmonique, on parle alors d' « électron chaud ».

A l'aide d'une description classique du rayonnement, B. Laks et D.L. Mills [21] ont su expliquer qualitativement le taux d'émission en modélisant les sources du champ électromagnétique par des fluctuations de courant dans la barrière de la jonction tunnel privilégiant ainsi les processus inélastiques. Cette description est cependant restée qualitative car le paramètre de rugosité était difficile à évaluer. Afin de mieux contrôler et d'augmenter le taux d'émission, J.R. Kirtley *et al.* [42, 43] and P.D. Sparks *et al.* [44] ont texturé artificiellement la surface des électrodes alors que S. Ushioda *et al.* [45] ont utilisé un montage de type Kretchmann. L'analyse quantitative du taux démission restait encore délicate en raison des pertes non radiatives dans les couches métalliques.



**Figure 4** – Figure extraite de la référence [42]. Elle présente la puissance rayonnée par des jonctions tunnels  $AL/AlO_x/Ag$  dont l'électrode supérieure est texturée par un réseau de pas  $1.1 \,\mu$ m. Le taux d'émission est une fonction exponentiellement décroissante de l'épaisseur mais décroit moins rapidement que la profondeur de pénétration optique donnée par exp $-d/\delta$  où  $\delta \simeq c/\omega_p \sim 20 \,\mathrm{nm}$  dans l'argent (fréquence plasma  $\omega_p = 9.6 \,\mathrm{eV}$ ).

J.R. Kirtley et al. ont néanmoins effectué une étude exhaustive du taux d'émission en fonction de l'épaisseur d des couches et ont observé une décroissance du taux d'émission différente de la longueur de pénétration du champ (voir fig. 4). Cette observation apparaissait alors comme contradictoire avec l'hypothèse d'un processus tunnel inélastique dans la barrière mais aucune description théorique claire n'a émergé. La découverte en 1989 de l'émission de lumière sous la pointe d'un microscope à effet tunnel (STM) par J. K. Gimzewski et al. [46] a alors relancé le débat. Cette émission a de nouveau été attribuée aux fluctuations du courant tunnel et à leur couplage aux plasmons localisés sous la pointe mais les forts taux d'émission ont été clairement attribués à des processus tunnels inélastiques au vu de la description théorique donnée par B. N. J. Persson et A. Baratoff [47]. L'interprétation communément admise est donc celle de l'excitation d'un mode plasmonique par les fluctuations du courant tunnel dans la barrière. Bien que cette description ait été étendue au cas d'un canal de conduction de transmission arbitraire [48, 49] et qu'ait été observée une réduction de l'émission de lumière pour un contact atomique sous pointe STM (voir fig. 5) [50], il n'est pas certain que les processus inélastiques soient dominants dans le cas d'une jonction planaire. Nous pouvons d'ailleurs noter qu'il n'y a pas d'annulation de l'émission dans le cas du contact atomique sous pointe STM et que l'émission résiduelle est attribuée à un rayonnement thermique de 2000 K. Ce rayonnement thermique peut

## 0.3. ÉTUDE DES FLUCTUATIONS DU COURANT AUX FRÉQUENCES OPTIQUESix

même être dominant dans les cas de contacts atomiques réalisés par électromigration [51] ou jonction cassée [52]. Les processus d'excitation de modes plasmoniques mettant en jeu des électrons chauds sont alors en compétition avec une simple relaxation de la distribution électronique, vers un état d'équilibre local associé à un rayonnement thermique. Toutes ces observations semblent indiquer que les deux types de mécanismes, élastique et inélastique, peuvent être à l'œuvre et qu'ils dépendent fortement de la géométrie de la jonction. Dans le cas de nos jonctions, l'approche que nous avons développée pour décrire les fluctuations de courant permet d'interpréter l'émission de photons comme un processus tunnel élastique suivi d'une relaxation dans les électrodes. Les mesures de transport électronique ont cependant permis de fixer une borne supérieure à la température électronique  $T \leq 500$  K rendant le rayonnement thermique négligeable.



**Figure 5** – Figure extraite de la référence [50]. Il s'agit du pendant optique de l'expérience décrite figure 3. L'émission de lumière est fortement réduite lorsque la conductance du contact atomique est égale au quantum de conductance  $G_0 = 2e^2/h$ .

# 0.3 Étude des fluctuations du courant aux fréquences optiques

Les jonctions tunnel étudiées ont toutes été réalisées lors de ce travail de thèse. Ce sont des jonctions planaires de surface  $100 \,\mu\text{m}^2$  et  $0.5 \,\text{mm}^2$ , constituée par le croisement de deux électrodes métalliques séparées par un film isolant. Les électrodes ont une épaisseur de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Elles sont composées d'une couche d'aluminium ou aluminium/or, déposée par évaporation sous ultra-vide avec l'utilisation de masques mécaniques, sur un substrat en silicium ou en saphir. La barrière diélectrique est constituée d'alumine obtenue par l'oxydation de la première électrode par un plasma sous atmosphère d'oxygène. Les barrières formées sont alors propres, stables et reproductibles. La résistance

tunnel obtenue à polarisation nulle est de l'ordre du k $\Omega$  et décroit jusqu'à 100  $\Omega$  lorsque la polarisation atteint 2 V (voir fig. 6a). La jonction est alors traversée par une densité de courant de l'ordre de 10<sup>4</sup> à 10<sup>5</sup> A/m<sup>2</sup>. Les mesures de la puissance rayonnée par ces jonctions résolues spatialement ou en angle, ont montré que la plasmonique des échantillons est maitrisée. L'émission est homogène sur la surface de la jonction (voir fig. 6b), et ne provient pas de « points chauds », ce qui montre que la barrière tunnel est elle-même homogène. Même fortement polarisée (~2 V), la résistance tunnel et l'émission de photons restent stables sur une période de plusieurs semaines.



**Figure 6** – (a) Jonction tunnel  $Al/AlO_x/Al$  déposée sur un substrat de saphir. Le prisme conique permet de réfléchir les rayons lumineux émis à l'angle critique associé au mode plasmonique rapide.(b) Caractéristique courant-tension non linéaire de la jonction tunnel, en encadré, résistance différentielle  $R_{diff}(V) = dV/dI$ . (c) Image en fausse couleur de l'intensité lumineuse émise par la jonction tunnel vue du dessus. (d) Emission par la surface de la jonction.

Dans un premier chapitre, après une introduction au transport quantique dans une jonction tunnel, nous allons développer un modèle de barrière tunnel prenant en compte de manière exacte l'effet de l'interaction coulombienne. Nous déduirons de ce modèle une transmission tunnel dépendante de l'énergie et de la tension. Nous dériverons ensuite la densité spectrale du bruit en émission à partir du formalisme de Landauer-Büttiker en incluant cette transmission. Nous verrons que l'expression de la densité spectrale du bruit dépend de la position au sein de la jonction. Nous expliciterons les modes plasmoniques confinés de la jonction tunnel, avec leur extension spatiale et leur relation de dispersion. Nous verrons qu'il existe deux manières de coupler ces modes aux photons, la première par l'utilisation d'un réseau optique, l'autre par l'utilisation d'un milieu d'indice de réfraction n > 1. Enfin, nous inclurons le calcul quantique des fluctuations de courant dans un modèle classique de couplage électron-photon afin de déduire la relation reliant les paramètres de la barrière tunnel et la dépendance de puissance de photon émise par une jonction tunnel avec la tension de polarisation. Dans le second chapitre, le détail de la méthode de fabrication des échantillons sera développé. Un lot d'échantillons type a été caractérisé électriquement. Nous verrons que les paramètres des barrières tunnel sont contrôlés et reproductibles. Nous verrons que la dépendance spatiale et angulaire de l'émission de photon correspond bien à celle prédite par les calculs de plasmonique. Dans le troisième chapitre seront présentés les résultats expérimentaux. Dans un premier temps nous présenterons les mesures de bruit électronique basse fréquence ( $f \sim 100 \,\mathrm{kHz}$ ). Nous verrons que la densité spectrale du bruit de grenaille suit une loi linéaire en courant comme prédit dans le cas du bruit à fréquence nulle. Cette mesure confirme que même dans un régime loin de l'équilibre nous sommes toujours dans la limite tunnel  $\mathcal{T} \ll 1$ . Dans un deuxième temps nous présenterons les mesures de bruit aux fréquences optiques. Nous mettrons en évidence la violation de la relation fluctuation-dissipation, avant d'expliquer nos résultats par le modèle présenté dans le premier chapitre. Nous interpréterons ces résultats comme la possibilité que l'émission de photons optiques dans une jonction tunnel planaire résulte d'événements tunnel élastiques, suivis d'une relaxation inélastique dans les électrodes.

# INTRODUCTION

- Chapitre 1

# Émission de photons par une jonction tunnel

Dans ce premier chapitre, nous allons développer un modèle permettant d'interpréter l'émission de photons optiques<sup>1</sup> par une jonction tunnel, comme le rayonnement de ses fluctuations de courant à haute fréquence (~10<sup>15</sup> Hz). L'argument de Nyquist, présenté dans le chapitre d'introduction montre que la densité spectrale des fluctuations thermiques du courant dans un conducteur à l'équilibre est reliée à la puissance rayonnée par un corps noir, via une impédance  $\mathcal{R}(\nu)$ . Nous allons appliquer ce raisonnement au cas d'un conducteur présentant une autre source fondamentale de bruit électronique, le bruit de grenaille.

Dans la première section, nous allons utiliser le formalisme de Landauer-Büttiker pour dériver la densité spectrale non symétrisée des fluctuations de courant à fréquence finie dans le cas d'une jonction tunnel fortement non linéaire. Dans la seconde section, nous étudierons le couplage entre les fluctuations d'un courant électrique au sein de la jonction et le champ électromagnétique rayonné, en utilisant les équations classiques de l'électromagnétisme dans la matière. Nous mettrons en évidence que le couplage se fait via les modes plasmoniques de surface de la jonction. Enfin, dans la troisième section, nous allons inclure le calcul quantique des fluctuations de courant dans un modèle classique de couplage aux photons. Nous déterminerons alors la dépendance en tension et en fréquence de la densité spectrale de la puissance émise par une jonction tunnel aux fréquences optiques.

### Sommaire

1.1 Trar	${ m sport}$ électrique dans une jonction tunnel $\ldots \ldots \ldots$	<b>2</b>
1.1.1	Modèle heuristique	2
1.1.2	Fluctuation du courant à fréquence nulle	4
1.1.3	Fluctuation du courant à fréquence finie	9
1.1.4	Conclusion	15
1.2 Cou	plage électron-photon	15
1.2.1	Plasmon-polariton de surface	16
1.2.2	Plasmonique d'une jonction tunnel	19
1.2.3	Conclusion	25
1.3 Den	sité spectrale du champ de photons	<b>25</b>
1.3.1	Terme de source	26
1.3.2	Couplage au champs $E_z$	29

<sup>1.</sup> Nous étendrons la définition de photons optiques aux photons de longueur d'onde proche infrarouge  $\lambda < 1500\,\mathrm{nm}$ 

# 1.1 Transport électrique dans une jonction tunnel



**Figure 1.1** – Illustration d'une jonction tunnel métal-isolant-métal. Une jonction tunnel est constituée d'un isolant séparant deux électrodes métalliques gauche/droite notées L/R. d est l'épaisseur de l'isolant, S la surface en regard des électrodes. Lorsque l'on polarise la jonction à une tension V, un courant I circule. Les électrons passent alors d'une électrode à l'autre par effet tunnel. Ces notations seront gardées tout au long du manuscrit.

On peut déduire la statistique du transport électronique dans une jonction tunnel à partir d'un modèle heuristique. Le courant électrique y est décrit par le passage aléatoire des électrons au travers de la barrière. Ce modèle nous permettra d'aborder simplement des notions relatives à l'étude des fluctuations de courant telle que la densité spectrale de bruit. Nous verrons dans la section 1.1.2, comment dériver le courant moyen à partir de la règle d'or de Fermi. Puis nous expliciterons la transmission de la barrière tunnel dans le cadre de l'approximation WKB (Wentzel-Kramers-Brillouin), avant de parler de la notion de canaux de conduction. Dans la section 1.1.3, nous repartirons du modèle heuristique, pour dériver les fluctuations à fréquence nulle du courant. Puis, nous dériverons les fluctuations à fréquence finie pour une jonction tunnel non linéaire à partir du formalisme de Landauer-Büttiker.

## 1.1.1 Modèle heuristique

Le transport électronique dans une jonction tunnel polarisée à une tension V peut être modélisé par un processus stochastique de transfert de charges où les électrons incidents arrivent sur la barrière tunnel avec un intervalle de temps régulier  $\tau.\mathcal{T}$  est la probabilité qu'un électron incident soit transmis et  $(1 - \mathcal{T})$  qu'il soit réfléchi par la barrière. On considère des événements indépendants. Le nombre de charges transférées de droite à gauche pendant un temps  $\Delta t$  est une variable discrète aléatoire n. La probabilité que l'on mesure  $0 \le n \le N$  charges transférées après un temps  $\Delta t = N\tau$  est donnée par la loi binomiale :

$$P(n) = \binom{N}{n} \mathcal{T}^n (1 - \mathcal{T})^{N-n}$$
(1.1)

On mesure le courant  $I = en/\Delta t$  pendant un temps long  $\Delta t \gg \tau$ . Le courant moven<sup>2</sup> est alors donné par :

$$\langle I \rangle = \frac{e \langle n \rangle}{\Delta t} = \frac{e}{\tau} \mathcal{T}$$
 (1.2)

On reconnait ici la formule de Landauer  $I = e^2/h\mathcal{T}V$  pour un canal de conduction de transmission  $\mathcal{T}$ , à condition de considérer un intervalle de temps  $\tau = eV/h$ . Il est possible de montrer que ce temps universel correspond à la largeur temporelle d'un paquet d'onde électronique entre 2 contacts polarisés sous une tension V[6, 53]. Nous montrerons par la suite que ce temps définit la largeur spectrale  $1/\tau = h/eV$  du rayonnement émis par la jonction.



Figure 1.2 – Modèle heuristique semi-classique du processus de transfert de charges dans une jonction tunnel. Les électrons incidents soumis à une différence de potentiel eV arrivent sur la barrière à une cadence donnée par le temps  $\tau$ . Les électrons ont une probabilité  $\mathcal{T}$  d'être transmis et  $(1 - \mathcal{T})$  d'être réfléchis. Le nombre n d'électrons ayant traversé après un temps long  $\Delta t$  est donné par une loi de Poisson.

La donnée de la loi de probabilité P(n) permet de calculer l'ensemble des moments<sup>3</sup> des fluctuations de courant. Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés aux trois premiers moments,  $\langle I \rangle$ ,  $\langle \Delta I^2 \rangle$ ,  $\langle \Delta I^3 \rangle$ , et à leur lien avec la statistique des photons émis. Ce modèle heuristique, n'a de sens qu'aux temps longs, mais permet de dégager certains concepts que nous utiliserons pour décrire l'émission de photons.

<sup>2.</sup> La valeur moyenne est ici statistique : $\langle f(n) \rangle = \sum_{n=0}^{N} f(n)P(n)$ 3. Les moments  $M_k$  de la distribution de probabilité P(n) peuvent être définis à partir de la fonction génératrice  $G(\lambda) = \langle e^{-i\lambda n} \rangle = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{M_k}{k!} e^{-ik\lambda}$ . On définit alors les cumulants  $C_k$  de la distribution P(n)par :  $\ln(G(\lambda)) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{C_k}{k!} e^{-ik\lambda}$ 

En effet, les fluctuations de courant sont données par :

$$\left\langle \Delta I^2 \right\rangle = \left\langle \left(I - \left\langle I \right\rangle\right)^2 \right\rangle = e(1 - \mathcal{T}) \left\langle I \right\rangle \frac{1}{\Delta t}$$
 (1.3)

On appelle généralement le terme  $(1 - \mathcal{T})$  facteur de Fano. Dans la limite tunnel, que l'on définit par  $\mathcal{T} \ll 1$ , le facteur de Fano est 1, le transfert des charges est non corrélé[54], et la statistique du bruit est Poissonienne. c'est le bruit de grenaille ou « shot-noise ». Tous les cumulant sont alors connus, et en particulier :

$$\left\langle \Delta I^3 \right\rangle = e \left\langle \Delta I^2 \right\rangle = e^2 \left\langle I \right\rangle$$
 (1.4)

où *e* est la charge élémentaire. Moyenner le courant, ou ses fluctuations, pendant un temps  $\Delta t$ , revient à effectuer une mesure sur une bande passante  $\Delta f = 1/\Delta t$ . On peut alors définir une densité spectrale de bruit caractéristique au conducteur<sup>4</sup>:

$$S_{II} = \frac{\langle \Delta I^2 \rangle}{\Delta f} = e \langle I \rangle \tag{1.5}$$

## 1.1.2 Fluctuation du courant à fréquence nulle

Nous allons traiter ici les processus tunnel à l'aide de la règle d'or de Fermi, dans le but d'obtenir une description quantique du transfert de charge.

#### Courant moyen

Le courant moyen entre les deux électrodes est donné par le bilan du nombre de transfert net :

$$I = -e(\Gamma_L - \Gamma_R) \tag{1.6}$$

 $\Gamma_L(\text{resp. }\Gamma_R)$  est le nombre d'électrons transférés de la gauche (resp. droite) vers la droite (resp. gauche) par unité de temps ou taux de transfert. e est la charge de l'électron  $(|e| = 1.6 \times 10^{-19} \text{ C})$ . En traitant le couplage entre les électrodes comme une perturbation  $H_T$ , les taux de transfert peuvent être déduit de la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma_L = \frac{2\pi}{\hbar} \int dE \left| \langle f | H_T | i \rangle \right|^2 \rho_L \rho_R f_L(E) \left( 1 - f_R(E) \right)$$
(1.7)

où  $\rho_L$  (resp.  $\rho_R$ ) est la densité d'état à gauche (resp. droite).  $f_L$  (resp.  $f_R$ ) le taux d'occupation à gauche (resp. droite) donné par la distribution de Fermi-Dirac :

$$f_{FD}(E,\mu,T) = \frac{1}{1 + \exp(\frac{E-\mu}{k_B T})}$$
(1.8)

où  $\mu$  est le potentiel électrochimique et T la température des électrons.

<sup>4.</sup> En électronique on écrit parfois  $S_{II} = 2e \langle I \rangle$ , car on définie  $\Delta f = 1/2\Delta t$  pour des fréquences positives. Dans notre cas nous considèrerons les spectres pour  $f \in \mathbf{R}$ .

Le Hamiltonien tunnel  $H_T$  est défini par :

$$H_T = \sum_{kq\sigma} T_{kq} c_{q\sigma}^{\dagger} c_{k\sigma} + h.c.$$
(1.9)

 $c_{q\sigma}^{\dagger}$  (resp.  $c_{k\sigma}$ ) est l'opérateur création (resp. anihilation) d'un électron dans l'électrode de gauche (resp. droite). On définit alors la transmission tunnel  $\mathcal{T}(E) = (2\pi)^2 \langle |H_T| \rangle^2 (E) \rho_L \rho_R$ , et on en déduit :

$$\Gamma_L(V) = \frac{1}{h} \int \mathcal{T}(E) f_L(E) \left(1 - f_R(E)\right) dE$$
(1.10)  
avec  $f_L(E) = 1/\left(1 + e^{\frac{E - E_F}{k_B T}}\right)$  et  $f_R(E) = 1/\left(1 + e^{\frac{E - E_F - eV}{k_B T}}\right)$ .

En utilisant cette formule dans la définition du courant net, on obtient l'expression du courant moyen et on retrouve la formule de Landauer[55] :

$$I(V) = 2\frac{e}{h} \int \mathcal{T}(E) \left[ f_L(E) - f_R(E + eV) \right] dE$$
(1.11)

Le facteur 2 tient compte de la dégénérescence en spin des électrons.

#### Fluctuations de courants

Avec le modèle simple de l'introduction 1.1.1, nous avons introduit la quantité  $\langle \Delta I^2 \rangle$ qui représente l'amplitude au carré des fluctuations de courant autour de sa valeur moyenne  $\langle I \rangle$  et  $S_{II} = \langle \Delta I^2 \rangle / \Delta f$  la densité spectrale du bruit. Ces fluctuations résultant de la nature stochastique du processus de transfert de charge. On cherche à présent à connaitre le lien entre  $S_{II}(V)$ , le courant moyen et la température<sup>5</sup>. Que ce soit à l'équilibre (V=0) ou hors de l'équilibre (V $\neq$ 0), la jonction tunnel est le siège de fluctuations de courant, un bruit fondamental du à la quantification de la charge. On peut montrer que la densité spectrale des fluctuations de courant s'exprime en fonction de la somme des taux de transfert  $\Gamma_L$  et  $\Gamma_R$ :

$$S_{II}(V) = e^2(\Gamma_L + \Gamma_R) \tag{1.12}$$

En utilisant la règle d'or de Fermi (1.10) dans l'équation (1.12) on obtient :

$$S_{II}(\omega = 0, V) = eI(V) \coth\left(\frac{eV}{2k_bT}\right)$$
(1.13)

<sup>5.</sup> La caractéristique I(V) d'un conducteur peut s'écrire de manière générale :  $I(V) = G_0 + G_1 V + G_2 V^2 \dots$ Avec  $G_0 = 0$  pour un composant passif. Sans perte de généralité, la densité spectrale de puissance peut également se développer en série :  $S_{II}(V) = S_0 + S_1 V + S_2 V^2 \dots$ 

Trouver le lien entre les coefficients  $G_i$  et  $S_j$  revient à trouver la *relation de fluctuation* pour ce conducteur[56].

Deux cas limites sont à distinguer :

$$S_{II} = \begin{vmatrix} e|I(V)| & \text{pour } k_B T \ll eV\\ 2k_B T G & \text{pour } k_B T \gg eV \end{aligned}$$
(1.14)

A température nulle  $(k_B T \ll eV)$ , on obtient la densité spectrale du bruit de grenaille. A V = 0, nous obtenons le bruit à l'équilibre, ou bruit thermique. On retrouve ici le résultat donné par le théorème fluctuation-dissipation[57] où  $G = \frac{dI}{dV}\Big|_{V=0}$  est la conductance de la jonction à polarisation nulle.

#### Modèle de transmission pour une barrière tunnel

Dans une jonction tunnel, la transmission  $\mathcal{T} \ll 1$  a pour origine la présence d'une barrière de potentiel, avec un profil en énergie U(x), que les électrons doivent traverser par effet tunnel. A forte polarisation ( $eV \approx 1 \text{ eV}$ ), cette transmission reste faible mais dépend de l'énergie E et de la tension V. En effet, il faut alors tenir compte de l'interaction des électrons avec le champ électrique dans la barrière. Nous allons pour cela inclure le potentiel électrostatique vu par un électron au potentiel de la barrière.

Pour une particule à une énergie E < U(x), nous utiliserons la transmission à une dimension donnée par l'approximation de Wentzel-Kramers-Brillouin[58]:

$$\mathcal{T}_{1D}(E) = e^{-\frac{4\pi}{h} \int_{d} [2m^{*}(U(x) - E)]^{\frac{1}{2}} dx}$$
(1.15)

où h est le quantum d'action, d la largeur de la barrière,  $m^*$  la masse effective de l'électron dans la barrière, U(x) le profil en énergie de la barrière en fonction de la position x. Cette approximation est valide dans le cas où le potentiel U(x) varie lentement devant la longueur d'onde de Fermi  $\lambda_F \approx 1$ Å. En notant  $V_L$  (resp.  $V_R$ ) le potentiel électrique de l'électrode de gauche (resp. droite) le profil en énergie vu par l'électron est :

$$U(x,V) = \phi(x) + e\left[V_L + (V_R - V_L)\frac{x}{d}\right]$$
(1.16)

où  $\phi(x)$  est le profil en énergie de la barrière, d son épaisseur. L'électron est dans la barrière pour 0 < x < d. On note  $V = V_L - V_R$ . Ce potentiel modifie la valeur de la transmission, dont la dépendance en tension est nécessaire pour conserver l'invariance de jauge de l'électrocinétique (voir fig. 1.3). En effet, si on écrit :

$$I(V_L, V_R) = \frac{2e}{h} \int \mathcal{T}(E, V_L, V_R) \left[ f_{FD}(E - eV_L) - f_{FD}(E - eV_R) \right] dE$$
(1.17)

En utilisant les formules (1.15) et (1.16) on obtient l'identité :

$$T(E + V_R, V_L, V_R) = T(E, V_L - V_R)$$
(1.18)

Le courant ne dépend que de la différence  $V_L - V_R$ .



**Figure 1.3** – Invariance de jauge pour T(E,V). En bleu, distributions des états électroniques occupés dans les électrodes, en gris, barrière tunnel. (a) représente une barrière tunnel symétrique avec  $V_L = V_R$ . On peut définir  $E_F + eV_L$  comme l'origine des énergies. (b) (resp. (c)) représente le même système polarisé à une tension  $V = V_L - V_R < 0$  (resp. V > 0). L'invariance de jauge impose que les deux situations soient équivalentes. Cette condition est respectée si on considère la dépendance en tension de la transmission

Dans les électrodes d'une jonction planaire, les électrons se déplacent dans les trois dimensions de l'espace. Pour une interface métal/diélectrique plane, La transmission 1D calculée précédemment reste valable, et dépend alors de l'énergie cinétique associée à la quantité de mouvement dans la direction x. L'énergie totale d'un électron est alors  $E = E_x + E_{\perp}$ , où  $E_{\perp}$  est l'énergie cinétique associée à la quantité de mouvement transverse  $k_{\perp}$ . On considère que les modes électroniques sont indépendants pour différents  $k_{\perp}$ . Le courant total est alors obtenu en sommant sur les vecteurs d'onde transverses :

$$I(V) = 2\frac{e}{h} \int_0^\infty \sum_{k_\perp} \mathcal{T}_{1D}(E_x) \left[ f_L(E) - f_R(E + eV) \right] dE$$
(1.19)

Les dimensions  $L_x, L_y$  des contacts sont grandes devant  $\lambda_F$ , on néglige donc la quantification de  $k_{\perp}, \sum_{k_{\perp}} \rightarrow \frac{L_x L_y}{2\pi} \int_0^{\infty} k_{\perp} dk_{\perp} = \frac{L_x L_y}{2\pi} \int_0^{\infty} \frac{m}{\hbar^2} dE_{\perp}$ .

$$I(V) = 2\frac{e}{h}\frac{S\pi}{\lambda_F^2}\frac{1}{\epsilon_F}\int_0^\infty dE \int_0^\infty dE_{\perp} \mathcal{T}_{1D}(E - E_{\perp}) \left[f_{FD}(E) - f_{FD}(E + eV)\right] dE \qquad (1.20)$$

On retrouve alors la formule (1.11) avec une transmission :

$$\mathcal{T}_{3D}(E) = N \int_{-\infty}^{E} \frac{dE_{\perp}}{\epsilon_F} \mathcal{T}_{1D}(E_{\perp})$$
(1.21)

où  $N = S\pi/\lambda_F^2$  est le nombre de modes transverses, ou canaux de conduction, de la jonction que l'on a considérés comme indépendants et ayant la même transmission. Typiquement, pour les jonctions tunnel étudiées dans cette thèse,  $\mathcal{T} \sim 10^{-10}$  et  $N \sim 10^{10}$ .

#### Modèle de la barrière trapézoïdale

Calculer la caractéristique I(V) d'une jonction tunnel via l'approximation WKB nécessite la connaissance du profil en énergie de la barrière de potentiel  $\phi(x)$  [59]. A forte polarisation, on observe expérimentalement une asymétrie de la caractéristique couranttension :  $I(V) \neq -I(-V)$ . Afin de rendre compte de cet effet de la tension il faut choisir un modèle de barrière présentant une asymétrie gauche-droite[60]. Nous utiliserons un modèle de barrière trapézoïdale, caractérisée par sa largeur d, sa hauteur moyenne  $\phi_0$  et son asymétrie  $\Delta \phi$ . La figure 1.4 montre une caractéristique I(V) typique, simulée pour une barrière trapézoïdale dépendante de la tension.

Il existe cependant des modèles plus développés du profil en énergie de la barrière prenant en compte une non uniformité de la chimie, ou de l'épaisseur [61, 62]. Cependant, nous avons gardé ce modèle simple de barrière trapézoïdale tout au long de ce travail de thèse, afin de limiter les paramètres à déterminer à  $\phi_0$ ,  $\Delta \phi$  et d. Nous considérons que les effets de charge image peuvent se résumer à une renormalisation de la hauteur  $\phi_0$  et de l'épaisseur d.



**Figure 1.4** – A gauche, Caractéristique I(V) simulée avec  $\mathcal{T}_{3D}(eV, E)$  et un modèle de barrière trapézoïdale (paramètres :  $m^* = 0.5m_e$ ,  $A = (100\mu m)^2$ ,  $\phi_0 = 3.2 \text{ eV}$ ,  $\Delta \phi = 0.6\phi_0$ , d = 1.7 nm). La courbe en tiret représente -I(-V), et met en évidence l'asymétrie de la caractéristique. Dans le cadre, profil en énergie de la barrière de potentiel trapézoïdale.

## **1.1.3** Fluctuation du courant à fréquence finie

Nous avons considéré, dans la section précédente, des fluctuations à fréquence nulle  $(\Delta f \rightarrow 0)$ . Nous voulons associer aux fluctuations de courant dans la jonction l'émission de photons de fréquence  $\nu$ . Nous allons donc à présent définir la densité spectrale des fluctuations de courant à fréquence finie  $S_{II}(\nu, V)$ 

#### Description du transport quantique par la théorie de Landauer-Büttiker

Le formalisme de Landauer traite le transport dans un conducteur quantique dont la taille caractéristique est inférieure à la longueur de cohérence des électrons. Le transport est traité comme la diffusion d'ondes électroniques en provenance des électrodes [55, 63], appelées réservoirs dans ce contexte. Toute onde électronique entrant dans un réservoir, après diffusion, perd toute cohérence. Les électrons sont émis avec une distribution à l'équilibre suivant la statistique de Fermi-Dirac (1.8).

Nous supposerons dans ce qui suit, que les processus de transmission/réflexion par la barrière tunnel, sont élastiques, c-à-d se font à énergie constante. L'échange d'énergie entre les électrons et l'environnement via les interactions se fait alors uniquement dans les réservoirs.

Dans la section 1.1.2, les fluctuations de courant ont été déduites d'une équation de taux (1.12) déduite du calcul de  $\langle I \rangle$ , et valable uniquement aux temps longs, donc à fréquence nulle. Nous allons utiliser le formalisme de Landauer-Büttiker, au cas du transport à fréquence finie (temps courts)[64], et l'expression de l'opérateur courant à tout temps  $\hat{I}(t)$ , pour calculer la fonction d'auto-corrélation du courant.

Les modes incidents (diffusés) sont décrits par les opérateurs de création (resp. d'annihilation)  $a^{\dagger}$  (resp. a) et  $b^{\dagger}$  (resp. b) d'un électron à gauche ou à droite. On considère que la vitesse des électrons et que le nombre de modes transverses changent peu autour de l'énergie de Fermi<sup>6</sup>. Sans perte de généralité, on peut se restreindre à un seul canal de conduction :

$$\hat{\mathbf{I}}_{\alpha}(t) = \frac{2e}{h} \int dE dE' e^{i(E-E')t/\hbar} [a^{\dagger}_{\alpha}(E)a_{\alpha}(E') - b^{\dagger}_{\alpha}(E)b_{\alpha}(E')]$$
(1.22)

 $\alpha = L/R.$ 

A l'équilibre thermique, le taux d'occupation d'un mode est donné par la statistique de Fermi-Dirac :

$$\left\langle a_{\alpha}^{\dagger}(E)a_{\beta}(E')\right\rangle = f_{\alpha}(E)\delta(E-E')\delta_{\alpha\beta}$$
 (1.23)

La transformée de Fourier de (1.22), donne le courant à fréquence finie :

$$\hat{\mathbf{I}}_{\alpha}(\omega) = \frac{2e}{\hbar} \int dE \left[ a_{\alpha}^{\dagger}(E) a_{\alpha}(E - \hbar\omega) - b_{\alpha}^{\dagger}(E) b_{\alpha}(E - \hbar\omega) \right]$$
(1.24)

<sup>6.</sup>  $eV \approx 10\% E_F, E_F \approx 10 \text{ eV}$ 

Le conducteur est décrit par une matrice de diffusion S :

$$\begin{pmatrix} b_L \\ b_R \end{pmatrix} = S \begin{pmatrix} a_L \\ a_R \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r(E) & t^*(E) \\ t(E) & -r^*(E) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_L \\ a_R \end{pmatrix}$$
(1.25)

avec  $r(E) = i\sqrt{1 - \mathcal{T}(E)}$  et  $t(E) = t^*(E) = \sqrt{\mathcal{T}(E)}$ . A fréquence nulle, la moyenne de  $I_L$  à l'équilibre thermique redonne bien le résultat obtenu précédemment :

$$\left\langle \hat{\mathbf{I}}_{L}(\omega=0) \right\rangle = \left\langle \hat{\mathbf{I}}_{R}(\omega=0) \right\rangle = \int dE \,\mathcal{T}(E) \left[ f_{L}(E) - f_{R}(E) \right]$$
(1.26)



Figure 1.5 – Modèle diffusif de Landauer-Büttiker du transport dans un conducteur mésoscopique. Le système est composé d'un diffuseur caractérisé par sa matrice de diffusion S, connecté à deux réservoirs, caractérisés par leur distribution électronique  $f_{L/R} = f_{FD}(E, V_{L/R}, T)$ 

### Fluctuations du courant à fréquence finie

Nous nous intéressons maintenant à la dérivation du bruit à fréquence finie ( $\omega \neq 0$ ) pour un conducteur, avec l'approche de Landauer-Büttiker vue dans la section précédente.

Les fluctuations d'un courant électrique classique sont caractérisées par la fonction d'auto-corrélation du courant :

$$C(t,t') = \langle i(t)i(t')\rangle \tag{1.27}$$

Les chevrons désignent une moyenne temporelle<sup>7</sup>. Dans un régime stationnaire, elle ne dépend que de la différence t-t'. La densité spectrale des fluctuations est reliée à l'équation (1.27) par le théorème de Wiener-Khintchine :

$$S_{II}(\omega) = \mathcal{F}\left\{ \langle i(0)i(\tau) \rangle \right\} = \langle i(\omega)i(-\omega) \rangle$$
(1.28)

7.  $\langle f(t) \rangle = \frac{1}{\Delta t} \int_0^{\Delta t} f(t) dt$ 

où  $\Delta f = 1/\Delta t$  et  $\mathcal{F}$  désigne la transformée de Fourrier. Dans le cas quantique, l'opérateur courant  $\hat{\mathbf{l}}(t)$  ne commute pas avec lui-même à deux temps différents. Se pose alors la question de l'ordonnancement des opérateurs dans la fonction d'autocorrélation (1.27). Les deux ordonnancements possibles correspondent, dans le domaine spectral, au bruit à des fréquences négatives ou positives. Ces deux quantités ont une signification physique différente. En effet, si on définit<sup>8</sup> :

$$S_{II}(\omega) = \left\langle \hat{\mathbf{I}}(\omega)\hat{\mathbf{I}}(-\omega) \right\rangle \tag{1.29}$$

Les fréquences positives (resp. négatives), correspondent au bruit en émission (resp. absorption), c-à-d, à la puissance émise par la jonction vers l'environnement (resp. par l'environnement vers la jonction) sous forme de photons [22, 65, 66]. Dans une jonction tunnel linéaire de conductance G, ces deux quantités ont la même dépendance en tension, mais diffèrent d'une quantité constante due aux fluctuations quantiques du vide :

$$S_{II}(\omega > 0) - S_{II}(\omega < 0) = G\hbar\omega \tag{1.30}$$

Il a été montré[23] que ces fluctuations ne peuvent être mesurées par un détecteur passif, c-à-d, sans apport d'énergie. Un détecteur classique, comme un amplificateur électronique, ne distingue pas le bruit en émission et en absorption et mesurera le bruit symétrisé [29] :

$$S_{II}(\omega) = \frac{\left\langle \hat{\mathbf{I}}(-\omega)\hat{\mathbf{I}}(\omega) \right\rangle + \left\langle \hat{\mathbf{I}}(\omega)\hat{\mathbf{I}}(-\omega) \right\rangle}{2} \tag{1.31}$$

Lors d'une mesure à fréquence finie, on considère les fluctuations à une fréquence proche ou au delà de l'énergie caractéristique du système, dans notre cas eV et  $k_BT$ . Soit  $\hat{I}_L(\omega)$ (resp.  $\hat{I}_R(\omega)$ ) le courant de particule à gauche (resp. à droite) du conducteur. Les valeurs moyennes des courants doivent suivre les lois de Kirchhoff afin d'assurer la conservation de la charge :  $\langle \hat{I}_L \rangle = -\langle \hat{I}_R \rangle$ . Cependant, l'opérateur courant défini par 1.24 n'est pas le même à gauche et à droite  $\hat{I}_L(\omega) \neq -\hat{I}_R(\omega)$ . Ceci peut s'interpréter comme la possibilité de l'accumulation de charges dans la barrière. On étend alors la définition de la densité spectrale à la transformée de Fourier du corrélateur courant-courant à deux positions différentes[37, 67] :

$$S_{\alpha\beta} = \langle I_{\alpha}(\omega)I_{\beta}(-\omega) \rangle \quad \text{avec } \alpha, \beta = L/R$$
 (1.32)

<sup>8.</sup> Par abus d'écriture nous considérerons que  $S_{II} = \langle i(\omega)i(-\omega) \rangle$ , le terme  $\Delta f$  est inclus dans la définition de  $i(\omega) \to i(\omega)/\sqrt{\Delta f}$  exprimé en  $A/\sqrt{\text{Hz}}$ .

En utilisant l'expression (1.24) de l'opérateur courant, on obtient le bruit non symétrisé à fréquence finie pour une jonction tunnel non linéaire avec  $\mathcal{T} \ll 1$ :

$$S_{LL} = 2\left(\frac{e}{\hbar}\right)^2 \int dE \,\mathcal{T}(E - \hbar\omega) f_L(E) (1 - f_R(E - \hbar\omega)) + \mathcal{T}(E) f_R(E) (1 - f_L(E - \hbar\omega))$$
(1.33)

$$S_{RR} = 2\left(\frac{e}{\hbar}\right)^2 \int dE \,\mathcal{T}(E - \hbar\omega) f_R(E)(1 - f_L(E - \hbar\omega)) + \mathcal{T}(E) f_L(E)(1 - f_R(E - \hbar\omega))$$
$$S_{LR} = -2\left(\frac{e}{\hbar}\right)^2 \int dE \sqrt{\mathcal{T}(E - \hbar\omega)\mathcal{T}(E)} [f_L(E)(1 - f_R(E - \hbar\omega)) + f_R(E)(1 - f_L(E - \hbar\omega))]$$
(1.34)

 $S_{RL} = S_{LR}$ 

avec, pour un canal de conduction  $\mathcal{T}(E) = \mathcal{T}_{1D}(E, V)$  la transmission calculée en (1.1.2). On peut généraliser ces formules au cas à 3 dimensions en sommant sur les états transverse. Pour N canaux indépendants les transmissions se réécrivent :

$$\mathcal{T}(E) = \mathcal{T}_{3D}(E, V) \qquad \text{pour } (1.33) \qquad (1.35)$$

$$\sqrt{\mathcal{T}(E-\hbar\omega)\mathcal{T}(E)} = N \int_0^\infty \frac{dE}{E_F} \sqrt{\mathcal{T}_{1\mathrm{D}}(E-\hbar\omega,V)\mathcal{T}_{1\mathrm{D}}(E,V)} \qquad \text{pour (1.34)}$$
(1.36)

On distingue donc trois termes sources, dont la contribution et la signification physique est différente.  $S_{LL}$  et  $S_{RR}$ , s'interprètent intuitivement comme l'énergie dissipée dans le réservoir de gauche et de droite, car on peut les relier aux fonctions d'autocorrélation  $\langle I_L I_L \rangle$ et  $\langle I_R I_R \rangle$ . On remarque d'ailleurs que la contribution de  $S_{RR}$  domine celle de  $S_{LL}$  pour V < 0, lorsque le flux d'électron va majoritairement de L vers R avec relaxation dans R, et vice versa pour V > 0. L'interprétation de  $S_{LR}$  avec cette vision est plus délicate car elle fait intervenir deux processus de relaxation.

Ces quantités peuvent s'interpréter en terme de collisions à deux particules [38]. Les quatre processus sont représentés figure 1.6. Un électron est réfléchi depuis la droite (resp. gauche) à une énergie E et un trou transmis depuis la gauche (resp. droite) à une énergie  $E - h\nu$ . La paire se recombine à droite (resp. gauche). L'amplitude de probabilité de cet événement est donné par  $t(E-h\nu)r^*(E)$ (resp.  $t(E-h\nu)r(E)$ ). Un électron est transmis depuis la gauche (resp. droite) et un trou est réfléchi depuis la droite (resp. gauche). La paire se recombine à droite (resp. gauche). L'amplitude de cet événement est alors  $t(E)r^*(E-h\nu)$  (resp.  $t(E)r(E-h\nu)$ ). La densité spectrale d'autocorrélation  $S_{\alpha\alpha}$  est alors donnée par la somme des amplitudes au carré des processus (en prenant la limite tunnel  $\mathcal{T} \ll 1$ ) aboutissant à une recombinaison dans le réservoir  $\alpha$  (voir fig. 1.6a et b).  $S_{\alpha\neq\beta}$  correspond alors au terme d'interférence dans la superposition cohérente de deux processus (voir fig. 1.6c).



**Figure 1.6** – Interprétation de la dissipation liée à  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$  en processus de recombinaison électron-trou dans les réservoirs, d'après le travail de Zamoum *et al.*[38].

Les équations (1.33) et (1.34) donnent le bruit en émission pour  $\omega > 0$  et le bruit en absorption pour  $\omega < 0$ . Ces équations vérifient plusieurs résultats attendus pour le bruit non symétrisé. A température nulle, pour le bruit en émission, on retrouve le seuil en tension  $S_{\alpha\alpha}(\hbar\omega > eV) = 0$  et  $S_{\alpha\neq\beta}(\hbar\omega > eV) = 0$ . La transmission  $\mathcal{T}(E, V)$  est une fonction de deux variables et ne peut être déduite de la seule mesure de I(V). Il est donc impossible d'exprimer analytiquement  $S_{\alpha\beta}(\omega, V)$  en fonction de  $I(V)^9$ . Un calcul numérique de  $S_{\alpha\alpha}$ et  $S_{\alpha\beta}$  a été réalisé à partir des paramètres de la jonction typique présentée section 1.1.2, dont les résultats sont représentés figure 1.7.



**Figure 1.7** – Dépendance en fréquence (a) et en tension (b) des densités spectrales  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$  calculées avec les paramètres de la jonction non linéaire et asymétrique de la figure 1.4.

9. Si  $\mathcal{T}(E)$  ne dépend que de l'énergie,  $\frac{\partial I}{\partial V} = \mathcal{T}(eV)$ .
## Relation de fluctuation à fréquence finie, pour une transmission indépendante de l'énergie

On reprend les densités spectrales  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$ , dérivées précédemment, et l'on suppose une transmission indépendante de l'énergie, dans le cas par exemple, d'une barrière tunnel faiblement polarisée  $eV \ll \phi$ .

En prenant  $f_{\beta}(E) = f(E)$  et  $f_{\alpha}(E) = f(E + eV)$ , on obtient alors :

$$S_{\alpha\alpha} = -S_{\alpha\neq\beta} = 2\left(\frac{e}{\hbar}\right)^2 \mathcal{T} \int [f(E+eV+\hbar\omega) + f(E) - f(E)f(E+\hbar\omega + eV) - f(E)f(E+eV-\hbar\omega)]dE$$
(1.37)

Que l'on peut réécrire  $^{10}$  :

$$S_{\alpha\alpha} = 2\left(\frac{e}{\hbar}\right)^2 \mathcal{T} \int N(eV + \hbar\omega)[f(E) - f(E + eV + \hbar\omega)] + (N(eV - \hbar\omega) + 1)[f(E) - f(E + eV - \hbar\omega)]dE$$
(1.38)

Par identification on peut ré-exprimer le bruit non symétrisé en fonction de la caractéristique I(V) et de la distribution de Bose-Einstein  $N(E) = (e^{E/k_BT} - 1)^{-1}$ :

$$S_{RFD}(\omega, V) = e[N(eV + \hbar\omega)I_{DC}(V + \hbar\omega/e) + (N(eV - \hbar\omega) + 1)I_{DC}(V - \hbar\omega/e)] \quad (1.39)$$

Ce résultat connu a été dérivé par Scalapino et Rogovin à partir d'une théorie de la réponse linéaire au premier ordre en le Hamiltonien tunnel[68]. Cette formule, dans sa forme symétrisée, est considérée comme la généralisation du théorème fluctuation-dissipation. En effet, si  $V \to 0$ ,  $I(V) \to G_0 V$ , avec  $G_0$  la conductance linéaire à tension nulle, on retrouve le théorème fluctuation dissipation [57] :

$$S_{II}(\omega) = G_0 \hbar \omega \coth \frac{\hbar \omega}{2k_B T} \tag{1.40}$$

Nous désignerons la relation de fluctuation (1.39) Relation Fluctuation-Dissipation (RFD). Il faut noter que si on considère une transmission dépendante de l'énergie, mais indépendante de la tension on peut montrer que  $S_{\alpha\alpha}(\omega) = S_{RFD}(\omega)$ . On perd cependant l'égalité entre  $S_{\alpha\alpha}$ ,  $S_{\beta\beta}$  et  $|S_{\alpha\neq\beta}|$ .

Dans notre dérivation du courant tunnel, une transmission indépendante de l'énergie implique une caractéristique I(V) linéaire, car nous avons considéré une densité d'état constante en énergie dans les électrodes. La formule de Scalapino-Rogovin s'applique dans des situations où la caractéristique I(V) n'est pas linéaire, mais la transmission  $\mathcal{T}$  reste constante, par exemple avec une jonction tunnel dans le régime de blocage de Coulomb

<sup>10.</sup> On utilisera pour cela la relation  $f(\epsilon)f(\epsilon + \epsilon_0) = [1 + N(\epsilon_0)]f(\epsilon + \epsilon_0) - N(\epsilon_0)f(E)$  où  $N(\epsilon)$  est la distribution de Bose-Einstein.

dynamique, ou pour une jonction avec des contacts supraconducteurs. Ce point sera développé plus en détail au chapitre 3. Nous montrerons notamment que (1.39) n'est plus vérifiée pour une jonction intrinsèquement non linéaire à cause de la dépendance en tension de la transmission.

## 1.1.4 Conclusion

Dans cette section, nous avons dérivé l'expression du courant à fréquence nulle et à fréquence finie pour une jonction tunnel fortement non linéaire. Nous en avons déduit l'expression de la caractéristique courant-tension I(V), la densité spectrale de fluctuations de courant à fréquence nulle  $S_{II}(0) = eI$ , et les densités spectrales de bruit à fréquence finie  $S_{LL}(\omega)$ ,  $S_{RR}(\omega)$  et  $S_{LR}(\omega)$ . Ces densités quantifient les corrélations de courant dans les électrodes de la jonction. Nous avons constaté que, à fréquence finie, lorsque la transmission de la barrière tunnel est dépendante de l'énergie, ces quantités s'écartent de la relation fluctuation-dissipation généralisant le Théorème fluctuation dissipation. On ne peut alors exprimer la puissance de photon émis en fonction d'une unique densité spectrale de courant  $S_{II}$ . Dans les deux sections suivantes, nous allons développer notre modèle de l'émission de photons par une jonction tunnel en expriment la puissance  $P_{ph}$  en fonction de  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$ .

# 1.2 Couplage électron-photon

Dans la section précédente, nous avons vu que la jonction tunnel était le siège de fluctuations de courant, résultant de processus aléatoires de transfert de charges à travers la barrière. En suivant l'argument de Nyquist, nous avons vu que la puissance rayonnée par ces fluctuations à fréquence  $\nu$  sont proportionnelles à une impédance de rayonnement  $\mathcal{R}(\nu)$ . Du point de vue de l'électrocinétique, une jonction tunnel planaire est modélisée par une source de courant  $\delta I(t)$ , correspondant au bruit de grenaille, et un circuit RC parallèle, où R est la résistance tunnel, et C, la capacité formée par les électrodes de la jonction. Pour les jonctions que nous considérons, ce circuit est équivalent à un filtre passe bas d'une fréquence de coupure  $f_c = (2\pi RC)^{-1}$  de l'ordre de 100 kHz à 1 MHz. Cependant, la fréquence des photons émis par une jonction tunnel est de l'ordre de  $10^{14}$  Hz. L'impédance de la jonction à cette fréquence n'est donc pas déterminée par le modèle électrocinétique que nous utilisons habituellement à basse fréquence. Nous allons voir que cette impédance de rayonnement peut être déduite des équations de Maxwell, en considérant les modes électromagnétiques possédant une dépendance spatiale le long des électrodes, les modes plasmoniques de surfaces. Ces modes sont excités par les fluctuations de courant aux fréquences optiques générées par le transport dans la jonction. Après une brève description physique des plasmons-polaritons de surface, nous étudierons plus en détail les modes propres de la jonction. Nous verrons que, sous certaines conditions, ces modes peuvent se coupler au champ lointain<sup>11</sup>, convertissant les fluctuations de courant en photons. Nous

<sup>11.</sup> Nous appellerons champ lointain, les photons se propageant librement hors de la jonction

partirons pour cela d'une description classique du transport des électrons dans un métal.

## **1.2.1** Plasmon-polariton de surface

#### Plasmonique, généralités

Le modèle de Drude d'un métal donne la conductivité complexe à fréquence finie :

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 + i\omega\tau} \qquad \sigma_0 = \frac{e^2 N_e \tau}{m_e} \tag{1.41}$$

où  $\sigma_0$  est la conductivité du métal à fréquence nulle,  $\tau$  le temps moyen entre deux collisions,  $m_e$  la masse de l'électron, et  $N_e$  le nombre d'électrons libres par unité de volume  $(N_e = 2.1 \times 10^{29} \,\mathrm{m}^{-3}$  dans l'aluminium). En utilisant les équations de Maxwell dans la matière, on peut relier la permittivité diélectrique à la conductivité :

$$\epsilon_r(\omega) = 1 - i\omega\mu_0\sigma(\omega) \tag{1.42}$$

En incluant la conductivité obtenue via le modèle de Drude (1.41) on obtient la permittivité diélectrique du métal :

$$\epsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2 - i\omega/\tau} \tag{1.43}$$

où  $\omega_P = \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_0 m}}$ , est la fréquence plasma, caractéristique au métal ( $\omega_P \approx 15 \text{ eV}$  dans l'aluminium et 9 eV dans l'or). A basse énergie, telle que  $\omega \ll \omega_P$ , la permittivité du métal est négative. Le modèle de Drude ne permet pas de rendre compte des transitions inter-bande. Il n'est par exemple valable dans l'aluminium que pour  $\omega \leq 0.2\omega_P$ . Pour rendre compte de ce type de transition, on peut introduite de manière heuristique des termes résonnant dans la permittivité de Drude. C'est le modèle de Drude-Lorentz<sup>12</sup>. La permittivité de Drude permet de décrire la propagation des champs électromagnétiques dans les métaux. Le cas particulier d'une interface métal diélectrique fait apparaître un mode localisé appelé plasmon de surface.

#### Mode propre d'un interface métal-diélectrique

Les coefficients de réflexion du champ électrique à un interface (x,y) depuis un milieu 1 vers un milieu 2 sont donnés par les lois de Fresnel pour une onde polarisée Transverse-Magnétique  $(\vec{H} = H\vec{y})$  et Transverse-Électrique  $(\vec{E} = E\vec{y})$ :

$$r_{TM} = \frac{E_r}{E_i} = \frac{\epsilon_1 k_{2z} - \epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_2 k_{1z} + \epsilon_1 k_{2z}} \qquad r_{TE} = \frac{k_{1z} - k_{2z}}{k_{1z} + k_{2z}}$$
(1.44)

<sup>12.</sup>  $\epsilon_{DL}(\omega) = \epsilon_{Drude}(\omega) + \sum_{m=1}^{N} \frac{G_m \omega_{0m}^2}{\omega_{0m}^2 - \omega^2 + i\gamma\omega}, \ \omega_{0m}$  est la fréquence de résonance de l'oscillateur  $m, \gamma$  le coefficient d'amortissement.

## 1.2. COUPLAGE ÉLECTRON-PHOTON

avec  $E_i$ ,  $E_t$ ,  $E_r$  le champ électrique incident, transmis, réfléchi, et  $k_{iz}$ , la composante transverse du vecteur d'onde dans le milieu i = 1, 2. Pour une onde transverse-magnétique, si l'un des milieux possède une permittivité négative, une singularité apparait dans le coefficients  $r_{TM}$ , pour  $k_{1z}/\epsilon_1 = -k_{2z}/\epsilon_2$ . Dans ces conditions, il existe un mode propre du champs électromagnétique à l'interface, évanescent en  $\pm z$ , et propagatif en x résultant de l'interaction de la lumière avec les électrons dans le métal appelé plasmon-polariton de surface.



#### Relation de dispersion

Nous cherchons maintenant la relation de dispersion du mode plasmonique de l'interface métal/diélectrique, que nous considérons plane et infinie. Le relation  $\omega(k_x)$ , se déduit de la résolution des équations de Maxwell à l'interface. Nous avons montré, avec les relations de Fresnel, que le mode n'existe que pour une onde polarisée TM, le champ magnétique est donc :

$$\vec{H} = H_y \vec{y} \qquad \vec{E} = E_x \vec{x} + E_z \vec{z} \tag{1.45}$$

La continuité de  $D_x = \epsilon_i E_x$  et  $H_y$ , à l'interface impose les conditions en  $(z_0)$ 

$$H_y\left(z_0^+\right) = H_y\left(z_0^-\right) \tag{1.46}$$

$$\frac{1}{\epsilon_d} \frac{dH_y}{dz} \left( z_0^+ \right) = \frac{1}{\epsilon_m} \frac{dH_y}{dz} \left( z_0^- \right) \tag{1.47}$$

où les indices d et m correspondent respectivement au milieu diélectrique et métallique. On note que les quantités  $H_y$  et  $k_x$  sont conservées à l'interface. Le champ magnétique de part et d'autre de l'interface en z = 0 s'écrit :

$$H_y^m(z) = H_y^0 e^{-\alpha_m z} \qquad H_y^d(z) = H_y^0 e^{\alpha_d z} \qquad \text{avec } \alpha_m, \alpha_d > 0 \tag{1.48}$$

où  $\alpha_m = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_m k_0^2}$  et  $\alpha_d = \sqrt{k_x^2 - \epsilon_d k_0^2}$ , et  $k_0 = \omega/c$ , le vecteur d'onde d'un photon dans le vide. En incluant (1.48) dans les équations (1.46) et (1.47), on obtient un système d'équations, dont la solution peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{\alpha_m}{\epsilon_m} + \frac{\alpha_d}{\epsilon_d} = 0 \tag{1.49}$$



**Figure 1.8** – Représentation schématique d'un plasmon-polariton de surface à un interface métal/diélectrique de permittivités  $\epsilon_d$  et  $\epsilon_m$ . A gauche, onde de densité de charge appelée plasmon. A droite, confinement du champs électromagnétique formant un polariton de surface. Le champ magnétique est décrit pas sa composante  $H_y$  car l'onde est polarisée TM. Les champs  $H_y$  et  $E_x$  sont continus à l'interface afin de vérifier les équations (1.46) et (1.47). Les deux excitations couplées forment un plasmon-polariton de surface. L'excitation se propage avec un vecteur d'onde  $k_{spp}$ .

En utilisant la définition (1.48), on en déduit la relation de dispersion du plasmon de surface :

$$k_x^{spp}(\omega) = k_0(\omega) \sqrt{\frac{\epsilon_m(\omega)\epsilon_d}{\epsilon_m(\omega) + \epsilon_d}}$$
(1.50)

Si on néglige la dissipation, la relation de dispersion devient :

$$k_x^{spp}(\omega) = k_0(\omega) \sqrt{\frac{\epsilon_d \left[1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2\right]}{\epsilon_d + 1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2}}$$
(1.51)

Dans la limite des grandes longueurs d'onde, cette relation se linéarise en  $\omega$  et tend de manière asymptotique vers la dispersion des photons dans le diélectrique, tout en restant au dessous de celle-ci :

$$k_x^{spp}(\omega) \gtrsim \sqrt{\epsilon_d} \frac{\omega}{c} \tag{1.52}$$

Il n'y a donc pas de couplage possible entre les photons dans le diélectrique et le plasmon de surface conservant le vecteur d'onde  $k_x$ . Le plasmon ne rayonne pas, et possède, en l'absence de dissipation, un temps de vie infini. On peut déduire les longueurs de pénétration du plasmon, à basse énergie ( $\omega \ll \omega_P$ ) :

$$z_m = \frac{1}{\alpha_m} \approx \frac{c}{\omega_p} \qquad z_d = \frac{1}{\alpha_d} \approx \frac{c}{n^2 \omega} \frac{\omega_p}{\omega}$$
 (1.53)

Dans le cas de l'aluminium, on a typiquement,  $z_m \approx 10 \text{ nm}$  et  $z_d \approx \lambda$ , la longueur d'onde dans le diélectrique.



**Figure 1.9** – (a) Relation de dispersion du mode plasmonique de surface à l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu métallique. Avec  $\epsilon_d = 1$  et  $\epsilon_m = 1 - (\omega_P/\omega)^2$ . A basse énergie, la relation de dispersion tend asymptotiquement vers la droite de lumière  $k = \omega/c$ . A haute énergie,  $\omega(k_x)$  tend asymptotiquement vers  $\omega_P/\sqrt{2}$ . (b) Longueur de pénétration du champ magnétique  $z_d$  dans le diélectrique et  $z_m$  dans le métal. A basse énergie,  $z_m = c/\omega_P$  est constante et  $z_d \propto \lambda$ 

## 1.2.2 Plasmonique d'une jonction tunnel

#### La jonction tunnel comme environnement électromagnétique

Les jonctions tunnel sont constituées de deux électrodes métalliques (quelques dizaines de nm), séparées par un isolant constituant la barrière tunnel (~1nm) d'indice  $n_{ox}$ , déposée sur un substrat diélectrique d'indice  $n_s$ . Cet empilement comporte trois types d'interfaces (vide/métal, métal/barrière, métal/substrat). A chacune de ces interfaces se localise un mode plasmonique de surface (resp. mode rapide (fast), mode lent (slow), mode de substrat (sub.)). Pour des électrodes épaisses devant la longueur de pénétration du champ magnétique, ces modes sont indépendants. Les relations de dispersion du mode rapide et de substrat sont alors simplement données par (1.51), et dans la limite linéaire  $\omega \ll \omega_P$ ,  $k_{fast} = \omega/c$  et  $k_{sub} = n_s \omega/c$ .

Dans nos jonctions, la barrière tunnel est une mince couche de diélectrique d'épaisseur  $d \sim 1 \text{ nm} \ll z_m \approx 10 \text{ nm}$ . La relation de dispersion du mode lent n'est donc pas celle de deux interfaces oxyde/métal isolées. On peut trouver la relation de dispersion modifiée dans le cas de deux électrodes semi-infinies en résolvant le système d'équation basé sur les conditions (1.46) et (1.47) aux deux interfaces. On peut montrer que la solution du système vérifie l'annulation du déterminant :

$$D = \alpha_2 \epsilon_3 \left(\beta \alpha_2 \epsilon_1 + \alpha_1 \epsilon_2\right) + \alpha_3 \epsilon_2 \left(\alpha_2 \epsilon_1 + \beta \alpha_1 \epsilon_2\right) = 0 \tag{1.54}$$

avec  $\beta = \alpha_2 d$  et  $\epsilon_1 = \epsilon_3 = \epsilon_m$  et  $\epsilon_2 = n_{ox}^2$ .



**Figure 1.10** – Représentation schématique des modes plasmoniques d'une jonction tunnel métal-oxyde-métal. Le mode rapide (a), le mode lent (b) et le mode de substrat (c) sont localisés respectivement au niveau des interfaces métal-vide, métal-oxyde, et métal-substrat.

Les valeurs de D pour  $k_x, \omega \in \mathbb{R}$  sont représentées figure (1.11) pour  $d = \omega_P/c = 10, 1$  et 0.1. On visualise la relation de dispersion où D = 0. On note  $n_{slow}$  l'indice effectif défini par la pente à l'origine de  $k_{slow}(\omega) \approx n_{slow}\omega/c$ . En développant (1.54) au premier ordre en  $\omega/\omega_P$ , on trouve :

$$n_{slow} = n_{ox} \sqrt{1 + \frac{2c}{d\omega_P}} \tag{1.55}$$

Pour une jonction tunnel Al/AlOx/Al, avec  $\hbar\omega_P = 15 \text{ eV}$ , d = 1 nm, et  $n_{ox} = 1.75$ , on trouve  $n_{slow} \approx 9$ .



**Figure 1.11** – Effet de l'épaisseur finie de la barrière tunnel sur la relation de dispersion du mode lent. En niveau de gris, valeur du déterminant (1.54) pour  $\epsilon_1 = \epsilon_3 = \epsilon_m$  et  $\epsilon_2 = n_{ox}^2 = 1.5^2$ . La relation de dispersion correspond aux  $k_x(\omega)$  pour lesquels  $D \to 0$ . En rouge, trait plein, droite de lumière dans le vide. En bleu, relation de dispersion approchée (1.55) pour le mode lent. Une barrière tunnel de 1 nm dans l'aluminium ( $\omega_P = 15 \text{ eV}$ ), correspond à une distance adimentionnée d'environ 0,1.

20

## 1.2. COUPLAGE ÉLECTRON-PHOTON

#### Couplage via un réseau optique

Un premier moyen de coupler les modes plasmoniques de surface au champ lointain consiste à texturer l'interface en un réseau optique [43]. Un réseau optique est, dans le cas le plus simple, une modulation spatiale sinusoïdale de période a de la hauteur z de l'interface métal-diélectrique suivant une direction  $\vec{x}$  (voir fig. 1.12). La périodicité est caractérisée par le vecteur réciproque  $\vec{q} = 2\pi/a\vec{x}$ . On peut montrer que, dans ces conditions, si  $\vec{k}_0$ ,  $\vec{k}_{SPP}$ et  $\vec{q}$  sont colinéaires, la condition de couplage est donnée par la loi des réseaux :

$$\frac{\omega}{c}\sin\theta = k_{SPP}(\omega) \pm Nq \tag{1.56}$$

où N est un entier et  $\theta$  l'angle formé par le vecteur  $\vec{k_0}$  et la normale à l'interface. Si  $k_0$  et  $k_{spp}$  sont orthogonaux, il n'y a pas de couplage. A une pulsation  $\omega$  donnée, un réseau permet le couplage de chaque mode à des angles  $\theta$  différents (voir fig. 1.13). Remarque : La rugosité naturelle de l'interface métal-vide, peut être vue comme une superposition de réseaux de vecteur  $\vec{q}$  aléatoire. Le mécanisme d'émission est similaire à celui cité précédemment, et donnera un rayonnement quasi-isotrope dans le demi-plan au-dessus de la jonction.



**Figure 1.12** – Diffraction d'un plasmon-polariton de surface par une interface métal/vide en réseau. Le réseau est caractérisé par sa périodicité spatiale a, ou son vecteur réciproque  $q = 2\pi/a$ .

### Couplage via un environnement d'indice n>1 (montage type Kretschmann)

En reprenant la relation de dispersion d'un mode plasmonique à une interface métalvide, on remarque que celui ci peut se coupler aux photons dans un diélectrique d'indice de réfraction n > 1 en vérifiant la condition :

$$n\frac{\omega}{c}\sin\theta = k_{spp} \tag{1.57}$$



**Figure 1.13** – Couplage des modes rapides et lents d'une jonction tunnel au champ lointain avec un réseau optique. La partie non grisée correspond aux vecteurs d'onde possibles pour les photons dans le vide. Les courbes en rouge, sont les relations de dispersion du mode rapide translatées de  $\pm Nq$  avec N = 0, 1, 2. En bleu, relation de dispersion du mode lent (avec  $n_{slow} = 5.8$ ), translatées de  $\pm Nq$  avec N = 0, 1...6. Le vecteur d'onde q est de  $0.08 \frac{\omega_P}{c}$  correspondant à un réseau de période 1 µm pour  $\omega_P=14 \text{ eV}$ . A une pulsation  $\omega$ , Les conditions de couplage vérifient la loi des réseau :  $\frac{\omega}{c} \sin \theta = k_{spp}(\omega) \pm Nq$  où  $\theta$  est l'angle d'émission/d'incidence dans le vide. Ici, à  $\omega =$  $0.05\omega_P$ , cette condition est vérifiée pour le mode rapide à  $\theta_f \approx 37^\circ$  et pour le mode lent à  $\theta_s \approx 32^\circ$  (points violets). La relation de dispersion et le couplage du mode de substrat n'est pas montré par soucis de clarté.

Dans la limite d'une dispersion linéaire, ce couplage se fait à l'angle de réflexion totale de l'interface vide/diélectrique quelque soit la fréquence. Dans le cas de notre jonction tunnel, cela signifie que le mode rapide peut se coupler aux photons dans le substrat diélectrique, si ce substrat est transparent. L'efficacité de ce couplage est fonction de la longueur d'onde et de l'épaisseur de la jonction (voir équation (1.2.2)). Comme pour tout oscillateur couplé à un environnement, on peut s'attendre à une modification de la relation de dispersion du mode rapide à fort couplage, lorsque l'épaisseur d des électrodes devient comparable à  $z_m$ . La figure (1.14) montre la modification de la relation de dispersion en fonction de l'épaisseur, par le calcul du déterminant (1.54), pour  $\epsilon_1 = 1$ ,  $\epsilon_2 = \epsilon_m$  et  $\epsilon_3 = n^2$ . On remarque que lorsque d devient de l'ordre de  $z_m = c/\omega_P$ , la solution  $k_x$  sort du plan (Re[ $k_x$ ],  $\omega$ ) et devient complexe pour  $\omega$  réel. La partie imaginaire de  $k_x$  correspond à l'amortissement du mode rapide par les fuites radiatives dans le substrat. On peut en déduire une longueur d'atténuation du mode plasmonique  $L_{spp} = 1/\text{Im}[k_x]$ .



**Figure 1.14** – Effet de l'épaisseur finie des électrodes de la jonction tunnel sur la relation de dispersion du mode rapide et du mode de subtrat. En niveau de gris, valeur du déterminant (1.54) pour  $\epsilon_1 = 1$ ,  $\epsilon_2 = \epsilon_m$  et  $\epsilon_3 = n_{sub}^2 = 1.5^2$ . La relation de dispersion correspond aux  $k_x(\omega)$  pour lesquels  $D \to 0$ . En rouge, ligne de lumière dans le vide  $k = \omega/c$ . en vert, relation de dispersion approchée au second ordre en  $\omega/\omega_P$ . On remarque que à faible épaisseur  $(d \leq z_m)$ , la relation de dispersion du mode rapide n'existe plus pour des  $k_x$  réels.

Pour étudier quantitativement l'effet de l'épaisseur sur le taux de fuite du mode rapide, nous avons résolu l'équation (1.54) à l'ordre 3 en  $\omega/\omega_P$ . Cette solution approchée sera valable dans la limite des longueurs d'onde infrarouges  $\omega/\omega_P < 0.2$ . En posant  $k_x = k_0 + \delta k$ :

$$\operatorname{Re}[\delta k] = k_0 \frac{1}{2\beta^2} \left(\frac{\omega}{\omega_P}\right)^2 \qquad \operatorname{Im}[\delta k] = k_0 \left(\frac{\omega}{\omega_P}\right)^3 \frac{n_{sub}^2}{\sqrt{n^2 - 1}} \frac{1 - \beta^2}{\beta^3} \tag{1.58}$$

$$\beta = \tanh(\alpha_m d) \approx \tanh(\frac{\omega_p}{c}d) \qquad k_0 = \frac{\omega}{c}$$
 (1.59)

La figure (1.15) montre l'évolution de la relation de dispersion du mode rapide en fonction de l'épaisseur de la jonction. On remarque qu'à faible épaisseur, à  $\omega/\omega_P > 0.1$ , que la partie réelle du vecteur d'onde devient supérieure à  $\omega/c$ , et ne représente plus un mode propagatif.

On peut également calculer la modification de la relation de dispersion du mode de substrat. On développe alors (1.54) au second ordre en  $\omega/\omega_P$  autour de  $k_n = n\frac{\omega}{c}$ :

$$n_{sub} = n \left[ 1 + \frac{1}{2} \left( \frac{n}{d} \frac{\omega}{\omega_P} \right)^2 \right] \tag{1.60}$$

#### Effet de la dissipation

Nous avons considéré ici des matériaux non dissipatifs ( $\tau = \infty$  et  $\epsilon_m, \epsilon_d \in \mathbb{R}$ ). En réalité, la permittivité d'un métal possède une partie imaginaire. Une partie de l'énergie transportée par le plasmon-polariton est dissipée par effet Joule. Pour un métal, dans la limite de faible dissipation  $\gamma = 1/\tau \ll \omega$  la permitivité (1.43) devient :

$$\epsilon_m = 1 - \left(\frac{\omega_P}{\omega}\right)^2 + i\left(\frac{\omega_P}{\omega}\right)^2 \frac{\gamma}{\omega} \tag{1.61}$$

Apparait une nouvelle contribution à la partie imaginaire de  $k_{SPP}$  (à l'ordre 2 en  $\omega/\omega_P$  et 1 en  $\gamma$ ) :

$$\delta \operatorname{Im}\left[k_{Joule}\right] = \frac{1}{2} \frac{\gamma}{c} \frac{\omega^2}{\omega_P^2} \tag{1.62}$$

Le plasmon est alors atténué sur une distance  $L_{joule} = 1/\text{Im} [k_{Joule}] \approx 1-100 \,\mu\text{m}$  dans la gamme visible-infrarouge. La longueur d'atténuation  $L_{tot}$  est donnée par la somme des taux :

$$\frac{1}{L_{tot}} = \frac{1}{L_{spp}} + \frac{1}{L_{joule}} \tag{1.63}$$

La figure 1.15 montre les longueurs d'atténuation dans l'aluminium liées aux pertes radiatives et Joule en fonction de l'énergie et de l'épaisseur de la jonction. Dans l'aluminium  $(\gamma/\omega_P \sim 0.07)$  et aux longueurs d'onde considérées  $(\lambda \sim 1 \,\mu\text{m}, \,\omega/\omega_P \sim 0.1)$ . On en conclue que le couplage Kretschmann devient efficace devant les pertes Joule lorsque l'épaisseur totale de la jonction est inférieure à 10 nm, et  $L_{tot} \sim 10 \,\mu\text{m}$ .



**Figure 1.15** – Modification de la relation de dispersion du mode rapide par l'épaisseur finie d de la jonction en configuration Kretschmann. (a) Partie réelle et imaginaire du vecteur d'onde  $k_x$  en fonction de  $\omega/\omega_P$ , pour différentes épaisseurs, avec  $\omega_P=15 \text{ eV}$ . On remarque que la partie réelle est peu modifiée à basse énergie. La partie imaginaire augmente avec l'énergie, et lorsque l'épaisseur descend en dessous de la longueur de pénétration du champ dans le métal. (b) Longueur d'atténuation du plasmon liée aux pertes radiatives (traits pleins) et Joule (tirets) pour des électrodes en aluminium.

## 1.2.3 Conclusion

Le champ électromagnétique dans une jonction tunnel épaisse (>10 nm) est confiné aux interfaces diélectrique/métal. Ces modes, appelés plasmon-polariton de surface résultent de l'interaction de la lumière avec le gaz d'électron dans le métal. Dans une jonction tunnel métal/isolant/métal/substrat. Ces modes sont au nombre de trois : le mode rapide localisé à l'interface vide/métal, le mode lent, confiné à la barrière isolante, et le mode de substrat confiné à l'interface métal/substrat. A faible énergie ( $\omega \ll \omega_P$ ), leurs relations de dispersions sont linéaires. Les trois modes peuvent être assimilés à des ondes planes de vecteur d'onde se propageant dans le plan de l'interface avec un milieu effectif d'indice  $n_{fast}$ ,  $n_{slow}$  et  $n_{sub}$ . Ces trois relations de dispersion sont sous la droite de lumière  $k = \frac{\omega}{c}$ , il n'y a donc pas de couplage avec les photons dans le vide préservant l'énergie et le vecteur d'onde. Nous avons vu cependant qu'en utilisant un réseau optique, c'est à dire, en modulant spatialement l'interface, il était possible de coupler les trois modes plasmoniques aux photons de vide à des angles  $\theta_{fast}(\omega), \theta_{slow}(\omega), \theta_{sub}(\omega)$  déterminés. Une autre méthode consiste à coupler le mode rapide aux photons dans un milieu d'indice n > 1. Le plasmon rayonne alors à toute fréquence à un angle  $\theta_{spp} = \arcsin \frac{1}{n}$ . La technique favorisée dans la suite de la thèse, a été la configuration Kretschmann, consistant à fabriquer la jonction sur un substrat transparent. Le couplage est alors assuré par des électrodes fines ( $\leq z_m$ ). Nous avons caractérisé l'environnement électromagnétique de la jonction tunnel aux longueurs d'ondes optiques. Nous allons à présent nous intéresser, dans une troisième section, à la manière dont les courants se couplent au champs lointain par l'intermédiaire des plasmons de surface.

## **1.3** Densité spectrale du champ de photons

Dans la section précédente, nous avons dérivé la dépendance en fréquence et en tension des fluctuations de courant dans la jonction. Nous avons alors considéré le courant comme un opérateur quantique, et utilisé le formalisme de Landauer-Büttiker basé sur un formalisme de matrice de diffusion. Trois quantités ont été déduites de ce calcul,  $S_{LL}(\nu, V)$ (resp.  $S_{RR}(\nu, V)$ ) la densité spectrale lié à la fonction d'autocorrélation du courant à gauche (resp. à droite), et  $S_{LR}(\nu, V)$ , la densité spectrale liée à la fonction de corrélation croisée gauche-droite. Dans la seconde section, nous avons dérivé les modes électromagnétiques de la jonction tunnel, en fonction de sa géométrie, avec une approche purement classique. Ces modes, dans certaines conditions peuvent se coupler avec les modes prorogatifs en champs lointain. Il est alors possible d'exprimer la puissance lumineuse émise par la jonction comme le produit d'une impédance de rayonnement  $\mathcal{R}(\nu)$  et de la densité spectrale des fluctuations de courant :

$$P_{ph} = \mathcal{R}(\nu) S_{II}(\nu, V) \Delta \nu \tag{1.64}$$

où  $\Delta \nu$  est la bande passante de détection. Nous allons à présent exprimer cette puissance avec les fonctions de corrélation quantiques  $S_{\alpha\beta}$  déduites précédemment.

## 1.3.1 Terme de source

Dans leur publication de 1979 [21], Laks et Mills (LM) dérivent la formule du couplage courant-photon à l'aide de la fonction de corrélation en courant  $\mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu)$ . Elle fait intervenir la composante perpendiculaire de la densité locale de courant  $j_z(z)$ . La puissance du flux lumineux émis dans un angle solide  $\Omega$  autour d'une direction k est alors donné par :

$$P_{Ph}(\nu, V) = \int_{\Omega} \int_{\Delta\nu} d\nu \, d\Omega \frac{(2\pi)^2 S_{mes} \nu^2}{c^3} \frac{1}{|D(\omega, k)|^2} \int dz dz' E_z(z) E_z^*(z') \mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu) \quad (1.65)$$

 $S_{mes}$  est l'aire de la jonction adressée par le système optique.  $E_z(z)$  est la composante perpendiculaire du champs électrique du mode plasmonique considéré dans le métal.  $|D(\nu, k)|$ possède des pôles lorsque  $k = k_{spp}(\nu)$ .  $\mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu)$  est la fonction de corrélation de la composante perpendiculaire du courant  $j_z(z, \nu)$  à deux positions :

$$\mathcal{J}(z, z', \nu) = \Delta(z, z') \int d^2 q_{\parallel} e^{iq_{\parallel} \cdot (r_{\parallel} - r'_{\parallel})} \left\langle j_z^*(r, \nu) j_z(r', -\nu) \right\rangle$$
(1.66)

 $r_{\parallel}$  (resp.  $q_{\parallel}$ ) est la composante parallèle au plan de la jonction du vecteur position r (resp. vecteur d'onde q).  $0 \leq \Delta(z, z') \leq 1$  est une fonction prenant en compte la dépendance en z de la corrélation longitudinale. Compte tenu de la géométrie et du calcul du courant sur l'ensemble des modes électroniques transverses (voir page 7) on peut supposer que  $j_z = I/S$ . Prenons à présent un corrélateur courant-courant de la forme :

$$\langle j_z(\vec{r},\nu)j_z(\vec{r}',-\nu)\rangle \propto S_{II}(z,z',\nu)G(r_{\parallel}-r'_{\parallel}) \qquad G(r_{\parallel}-r'_{\parallel}) = \frac{1}{\pi\xi_0^2 S} e^{-|r_{\parallel}-r'_{\parallel}|/\xi_0} \qquad (1.67)$$

 $G(r_{\parallel} - r'_{\parallel})$  est une fonction de corrélation transverse ajoutée de manière ad hoc par LM. Elle est homogène à  $[m^{-4}]$  et inversement proportionnelle à la surface de la jonction.  $\xi_0$ est une longueur de corrélation transverse, que LM identifient au libre parcours moyen des électrons dans le métal. Il faut noter que cette formule a été dérivée à partir des équations de l'électromagnétisme classique, et qu'aucune hypothèse n'a été faite sur la nature du courant  $I(\nu)$ . Nous allons maintenant, inclure le bruit à fréquence finie calculée en 1.1 dans ce modèle.

#### Longueur de corrélation transverse $\xi_0$

Il est naturel d'introduire une borne supérieure  $\xi_0$  à l'extension spatiale transverse des corrélations. LM supposent dans [21] que  $\xi_0$  est donné par le libre parcours moyen  $l_e \approx 10$  nm. Nous avons cependant montré que le transport à travers la jonction se fait via  $N \sim 10^{11}$  canaux indépendants. Chaque canal à une extension spatiale de l'ordre de la longueur d'onde de Fermi et implique donc  $\xi_0 \sim \lambda_F \sim 1$  Å. Cependant d'après (1.66) et (1.67) l'amplitude du terme source  $\mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu)$  est atténuée par cette longueur de corrélation :

$$\mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu) \propto \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{\xi_0}{\lambda_{spp}}\right)^2\right]^{3/2}}$$
(1.68)

 $\lambda_{spp}$  est la longueur d'onde du mode plasmonique. Pour nos jonctions  $\xi_0$  est majoré par l'épaisseur d'une électrode ~5 nm. Pour le mode plasmonique rapide,  $\lambda_{spp} \sim 1 \,\mu\text{m}$ , on aura donc toujours  $\mathcal{J}(z, z', \nu) \propto 1$ .

## Corrélation longitudinale $\Delta(z, z')$

Revenons sur l'extension spatiale des corrélations représentée par la fonction  $0 < \infty$  $\Delta(z, z') < 1$ . La dépendance spatiale de  $\Delta$  a été l'objet de nombreuses questions dans la littérature, car elle dépend du mécanisme d'émission avancé. L'émission a été traitée dans un premier temps par Hone et al. [20] et Davis et al. [19]. Le terme source est alors donné par l'excitation du moment dipolaire de la barrière par les fluctuations de courant, et est associé à des événements tunnel inélastiques. Cette théorie fait suite aux mesures de spectroscopie tunnel, mettant en évidence l'excitation de moments dipolaires moléculaires par le courant tunnel [69, 70]. Le terme source est alors localisé dans la barrière et est confiné dans les électrodes sur une distance correspondant au libre parcours moyen. Plus tard, LM calculent le rendement théorique du couplage plasmon-photon via la rugosité de la jonction (voir p.26). Un accord quantitatif avec l'expérience de Lambe et McCarthy [18] est obtenu si  $\Delta = 1$  dans toute la jonction. Cependant, la rugosité restait un paramètre ajustable. Ushioda mesure l'émission d'une jonction tunnel en configuration Kretschmann, sans rugosité [45], et adapte le formalisme de LM à cette géométrie [71]. Il explique quantitativement l'intensité de l'émission sans paramètre ajustable, avec  $\Delta = 1$  dans la barrière. Cependant, l'explication qualitative des spectres en énergie en fonction de l'angle d'incidence de l'émission nécessite d'inclure une contribution indirecte à l'émission du mode lent, se couplant au mode rapide via une rugosité résiduelle sur la jonction. Kirtley [43] avança quand à lui une théorie où le processus de relaxation de l'énergie est localisé dans les électrodes et non dans la barrière [42]. Les expériences qu'il a réalisé ont montré que la puissance émise décroit exponentiellement avec la distance entre l'interface vide/métal et la barrière tunnel avec une distance caractéristique différente de la longueur de pénétration du mode rapide  $\delta$ . Il propose que le couplage des électrons « chauds » aux plasmons est localisé au niveau de l'interface vide-métal.

Deux visions du couplage électron plasmon s'opposent ici. La première considère que le couplage est localisé au niveau de la barrière via des événements tunnel inélastiques, l'électron donne une énergie  $h\nu$  aux plasmons, pendant son transfert d'une électrode à l'autre. La seconde considère des événements tunnel élastiques suivis d'une relaxation de l'énergie dans les électrodes. Les arguments en faveur d'un modèle étaient souvent basés sur des calculs prédictifs du rendement de l'émission. Cependant, la description du transport a toujours été sommaire. En effet, la densité spectrale  $S_{II}(\nu, V)$  employée est toujours celle du cas linéaire :  $S_{II}(\nu, V) = eI(1 - h\nu/eV)$ . Nous savons aujourd'hui, que pour une jonction non linéaire, cette simplification apporte une erreur quantitative sur la puissance émise à une fréquence (voir figure 1.16, et section 1.1).



**Figure 1.16** – Comparaison qualitative de la densité spectrale de bruit en émission calculée avec le formalisme de LB (en rouge) et les paramètres de la jonction figure (1.4), avec la densité spectrale obtenue avec la RFD (noir) et le spectre triangulaire non-physique utilisé dans [21] (tirets).

Le formalisme de Landauer-Büttiker utilisé précédemment pour dériver la densité spectrale des fluctuations du courant décrit le courant uniquement dans les électrodes, les processus tunnel étant considérés comme élastiques. Nous allons donc considérer que  $\Delta = 0$ dans la barrière et  $\Delta \propto S_{\alpha\beta}$  dans les électrodes. Comme dans le modèle de LM, il est nécessaire d'introduire une extension longitudinale. On définit alors :

$$\mathcal{J}_{zz}(z, z') \propto S_{II}(z, z') e^{-\frac{|z|+|z'|}{\xi_{\perp}}}$$
(1.69)  
$$S_{II}(z, z') = \begin{vmatrix} S_{LL} & \text{pour} & z, z' < 0 \\ S_{RR} & \text{pour} & z, z' > 0 \\ -S_{LR} & \text{pour} & z < 0, z' > 0 \text{ ou } z > 0, z' < 0 \end{vmatrix}$$

avec z = 0 la position de la barrière que l'on considère d'épaisseur nulle.

 $\xi_{\perp}$  est une longueur de corrélation longitudinale, que l'on introduit de manière phénoménologique, pour que l'autocorrélation du courant disparaisse à très grande distance de la barrière. L'existence de cette longueur d'atténuation des corrélations corrobore les observations de Kirtley sur l'atténuation de l'émission avec l'augmentation de l'épaisseur des électrodes.

## **1.3.2** Couplage au champs $E_z$

Avec la définition de  $\mathcal{J}_{zz}(z, z', \nu)(1.66)$ , l'équation (1.65) devient :

$$P_{ph} \propto \left[-2\text{Re}[A_R A_L^*]S_{LR}(\nu) + S_{LL}(\nu)A_L^2 + S_{RR}(\nu)A_R^2\right]$$
(1.70)

$$A_R = \int_{d/2}^{d_1} dz \, E_z(z) e^{-z/\xi_\perp} \qquad A_L = \int_{-d_2}^{-d/2} dz' E_z^*(z') e^{z'/\xi_\perp} \tag{1.71}$$

où  $d_1$  et  $d_2$  sont les épaisseurs des électrodes R et L et d l'épaisseur de la barrière. Pour des champs  $E_z$  réels, on peut réécrire (1.70) sous la forme :

$$P_{Ph}(\nu, V) = \mathcal{R}(\nu) \left[ \alpha^2 S_{LL}(\nu, V) + (1 - \alpha)^2 S_{RR}(\nu, V) - 2\alpha (1 - \alpha) S_{LR}(\nu, V) \right] \Delta \nu \quad (1.72)$$

$$\alpha = \frac{A_L}{A_L + A_R} \tag{1.73}$$

 $\mathcal{R}(\nu)$  est l'impédance de rayonnement,  $0 < \alpha < 1$  est un coefficient traduisant l'asymétrie gauche-droite de la superposition des fluctuations  $\mathcal{J}_{zz}$  avec le champ  $E_z$ . Remarque :  $S_{LR}$ étant une quantité négative,  $-2\alpha(1-\alpha)S_{LR}$  apporte une contribution positive à l'émission.



Figure 1.17 – Champs magnétique  $H_y(z)$  associé au mode plasmonique rapide dans une jonction tunnel en configuration Kretschmann. Le mode rapide est localisé à l'interface vide/métal. Dans le métal, le champ est atténué sur une longueur  $\delta = c/\omega_P$ . Ici l'épaisseur de la jonction est  $d \sim \delta$ . On remarque que la solution du champ dans le substrat est un mode propagatif.

Plaçons nous dans un cas simple où le mode plasmonique couplé à l'environnement est le mode rapide, en configuration Kretschmann. Nous avons calculé précédemment la dispersion de ce mode à grande longueur d'onde  $\omega/\omega_P \ll 1$ . A partir de cette relation, il est possible de calculer le champs magnétique  $H_y$  à toute position z (voir figure 1.17). En polarisation transverse magnétique,  $E_z \propto H_y$ . On en déduit que quand  $d \sim \delta = c/\omega_P$ , la longueur de pénétration du plasmon, le champs  $E_z$  décroit quasi-linéairement depuis l'interface air-métal dans la jonction. Dans notre modèle, nous avons considéré une barrière tunnel infiniment fine. Cette hypothèse est imposée par le formalisme de



Figure 1.18 – (a) Couplage du champs  $E_z$  aux fluctuations de courant. Le champs  $E_z(z)$  est le champ électrique (en noir) du mode plasmonique rapide calculé pour une jonction en aluminium d'épaisseur 10 nm, et non perturbé par la présence de la barrière. Les lignes en pointillé, délimitent la position de la barrière diélectrique. Le terme source des fluctuations de courant  $\mathcal{J}(z, z')$  décroit exponentiellement depuis la barrière sur une distance  $\xi_{\perp}$ . Le couplage des fluctuations de courant au mode rapide dans chaque électrode est donné par le recouvrement de  $\mathcal{J}(z, z')$  et  $E_z(z)$ .(b) L'asymétrie L/R de ce couplage est représentée par le paramètres  $0 < \alpha < 1$ , ici calculé en fonction de la longueur de corrélation  $\xi_{\perp}$ . Lorsque  $\xi_{\perp} \to 0$ ,  $\alpha$  est donné par la discontinuité du champs électrique  $\Delta E_z$  de part et d'autre de la barrière.

Landauer-Büttiker, où le courant tunnel n'est pas défini dans la barrière mais dans les réservoirs. Cependant, du point de vue de la plasmonique, cette barrière est d'une épaisseur finie. Le champs électrique peut être différent de part et d'autre de la barrière. On note  $\Delta E_z = E_z(d/2) - E_z(-d/2)$  la discontinuité de la composante z du champs électrique au niveau de la barrière. En première approximation, on considère que la présence de l'oxyde ne perturbe pas la relation de dispersion du mode rapide, ainsi que le profil du champs magnétique  $H_y(z)$ . Dans le cas où  $\xi_{\perp} \ll \delta$ ,  $\alpha$  peut facilement s'exprimer en fonction de la discontinuité  $\Delta E_z$ :

$$\alpha = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\Delta E_z}{2E} \right) \tag{1.74}$$

La longueur  $\xi_{\perp}$  a été assimilée par LM au libre parcours moyen des électrons dans les électrodes (~10 nm). Cependant nos résultats expérimentaux présentés au chapitre 3, montrent que cette longueur de corrélation est bien plus petite, et de l'ordre du nanomètre. Nous supposerons que  $\xi_{\perp}$  ne dépend pas de la polarisation électrique.  $\mathcal{R}(\nu)$  ne dépend pas du courant ou de la tension appliquée sur la jonction, ce qui signifie que mesurer la puissance de photons émise par la jonction à une fréquence  $\nu$  donnée revient à mesurer la densité spectrale  $S_{II}(\nu)$ .

30

- Chapitre 2

# Techniques expérimentales

## Sommaire

2.1 Échantillons				
	2.1.1	Fabrication	32	
	2.1.2	Propriétés électriques	36	
	2.1.3	Propriétés optiques en montage Kretschmann	43	
	2.1.4	Simulations pour l'optimisation des systèmes optiques	46	
	2.1.5	Conclusion	48	
2.2 Dispositifs expérimentaux			<b>49</b>	
	2.2.1	Cryostat	49	
	2.2.2	Mesure calibrée de la capacité des jonctions	51	
	2.2.3	Mesure de Bruit, traitement du signal $\hdots$	53	
	2.2.4	Validation du dispositif de mesure	58	

# 2.1 Échantillons

Les mesures présentées dans ce travail de thèse ont nécessité la fabrication de nombreux échantillons, dont la conception a été progressivement améliorée. Ils sont constitués d'une jonction tunnel planaire, consistant en deux électrodes métalliques perpendiculaires entreelles, déposées sur un substrat, séparées à leur jonction par un film diélectrique en alumine. La jonction en elle-même est un empilement de films ultraminces Al/AlOx/Al. La couche d'alumine est réalisée par l'oxydation de la première électrode. La méthode de déposition et de croissance des couches est détaillée dans la section 2.1.1. Une série d'échantillons a été caractérisée électriquement (voir section 2.1.2), afin de vérifier leur reproductibilité. Les conditions électriques de claquage ou de destruction de la barrière ont été déterminées. Nous en avons déduit les conditions sûres d'utilisation en terme de température et de tension de polarisation afin d'assurer leur stabilité électrique lors d'expériences de longue durée. Deux méthodes de couplage plasmon-photon ont été étudiées. Les premières jonctions ont été réalisées sur un réseau optique gravé sur un substrat de silicium. Le procédé de gravure sera rapidement détaillé. Ces jonctions nous ont donné les premiers résultats expérimentaux (voir chapitre 3). Afin de mieux maitriser le couplage électron-photon dans une large gamme de longueur d'onde [500 nm - 1300 nm], des échantillons avec un couplage en configuration Kretschmann ont été développées. Ils sont équipés d'optiques permettant la collimation de la lumière émise par la jonction. La caractérisation de l'émission par ce type de jonction sera détaillée dans une dernière section.

## 2.1.1 Fabrication

#### Déposition des couches métalliques

Les électrodes sont déposées par évaporation d'une masse métallique chauffée, à travers un masque mécanique dans une enceinte sous ultra-vide (quelques  $10^{-10}$  mbar). Le masque mécanique est ajouré de la forme de l'électrode souhaitée. Les différents masques sont disposés sur une platine tournante, manipulable depuis l'extérieur, permettant de les placer in-situ sous l'échantillon. L'épaisseur du dépôt est contrôlée via une balance à quartz, avec une précision de l'ordre de quelques couches atomiques. Une grande vitesse de dépôt est conseillée pour la fabrication d'échantillon ayant de bonnes propriétés plasmoniques, si possible supérieure à 150 Å/s[72, 73]. Cependant, le meilleur taux obtenu avec le bâti d'évaporation a été de l'ordre de 15 Å/s. Les effets d'ombrage, limitant la netteté du dépôt, sont limités par la proximité du masque avec le substrat. Les flancs des dépôts ont une largeur de l'ordre de quelques micromètres. La figure 2.1 montre les différents masques utilisés. Les jonctions épaisses ont une contre électrode en Al/Au, afin d'augmenter le temps de vie des plasmons à l'interface vide/métal grâce à la faible dissipation dans l'or. Cependant, afin d'obtenir une continuité électrique, la couche d'or doit avoir une épaisseur d'au moins une dizaine de nanomètres. Les jonctions les plus fines (<10 nm) possèdent donc des contres-électrodes en aluminium seul.



**Figure 2.1** – A gauche, masques mécaniques utilisés pour la fabrication des jonctions sur réseau. (b) est le masque de l'électrode du dessous, (a) est le masque de l'électrode du dessus. La photo représente une jonction sur réseau. A droite, masques mécaniques utilisés pour la fabrication des jonctions sur saphir. (c) est le masque des connecteurs, (d) est le masque de l'électrode du dessous, et (e) le masque de l'électrode du dessus. Deux jonctions sont fabriquées simultanément avec ces masques. La photo représente une jonction sur saphir.

## 2.1. ÉCHANTILLONS

#### Croissance de la barrière tunnel

La barrière diélectrique est réalisée par oxydation superficielle de la première électrode en aluminium. Cette oxydation est réalisée dans un plasma de dioxygène à une pression  $8 \times 10^{-2}$  mbar, et est suivie d'une étape de passivation dans une atmosphère de dioxygène à 10 mbar. L'épaisseur de la couche d'oxyde formée dépend du temps d'oxydation (environ 2min) qui a été déterminé empiriquement de manière à obtenir une résistance tunnel de quelques k $\Omega$ . Cette technique permet une formation contrôlée de la barrière tunnel, reproductible, exempt de défauts et contaminants, au contraire d'une oxydation à l'air libre. Cette dernière pouvant amener à une épaisseur inhomogène, à la formation de trous et à la présence de systèmes résonants (N<sub>2</sub>,H<sub>2</sub>O). La stœchiométrie de la couche n'étant pas parfaitement déterminée, nous la désignerons par la formule chimique AlO<sub>x</sub>. Le contrôle de l'oxydation (injection du di-oxygène, régulation de la pression, chronométrage), étant entièrement manuel, le temps réel de l'oxydation, diffère légèrement du temps nominal. Le taux d'oxydation dépend également de la position de l'échantillon dans le plasma qui est inhomogène. Ces différences apporteront une dispersion de la valeur de la résistance tunnel (voir figure 2.2).



**Figure 2.2** – Résistance tunnel d'un lot d'échantillons pour différents temps d'oxydation. La ligne noire en pointillés est un guide pour les yeux avec une dépendance exponentielle.

## Jonctions sur réseau

On utilise pour la fabrication des jonctions sur réseau, un substrat de silicium préalablement texturé. Ce substrat présente des sillons en créneaux périodiques de hauteur 40nm et de périodicité 1 µm. Les électrodes déposées ont une épaisseur comparable à la hauteur des créneaux 40 nm, et présentent donc la même périodicité. La période du réseau

## CHAPITRE 2. TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

a été choisie de manière à favoriser l'émission par le mode plasmonique rapide à l'interface vide-métal (voir 1.2). Le substrat est texturé par gravure par faisceau d'ions. La zone à graver est délimitée par un masque en aluminium déposé par évaporation sous ultra-vide. Les vitesses de gravure pour l'aluminium et le silicium étant différents, il est possible, en choisissant l'épaisseur de masque adéquat, de graver le silicium à la position, et à l'épaisseur souhaitée. Les étapes de gravure sont schématisées figure 2.3.



**Figure 2.3** – Étapes de fabrication du réseau sur substrat de silicium. (a) Insolation d'une résine photosensible au microscope SEM-FEG, (b) Révélation de la résine, (c) dépôt d'un masque en aluminium par évaporation sous ultra-vide, (d) Dissolution de la résine, (e) Gravure du réseau par IBE.



Figure 2.4 – Vu au microscope électronique à balayage d'un réseau optique gravé sur un substrat de silicium. La périodicité du réseau est de  $1 \,\mu m$ 

## 2.1. ÉCHANTILLONS

La déposition des électrodes se faisant en incidence normale à la surface du substrat, la texturisation provoque un amincissement de la couche métallique sur les flancs des créneaux. Afin d'assurer la continuité électrique des films, les dépôts effectués sur réseau ont une épaisseur minimale de 20 nm. Les étapes de déposition des couches métalliques sont résumées tableau 2.1.

Étape	Métal déposé	Épaisseur	Masque
Dépôt électrode bas	Al	25nm	(b)
Oxydation/Passivation		$6 \mathrm{nm}$	
Dépôt électrode haut	Al	$15 \mathrm{nm}$	(a)
	Au		(a)

Table 2.1 – Étapes de fabrication d'une jonction sur réseau

## Jonctions sur saphir

Les jonctions en configuration Kretschmann on été fabriquées sur un substrat de saphir transparent aux fréquences optiques. Elles ont subi plusieurs modifications par rapport aux jonctions sur réseau :

- Leur surface a été réduite (100micron x 100micron) par rapport aux jonctions sur réseau, afin de réduire la capacité formée par les deux électrodes en regard, augmentant la fréquence de coupure. Des masques mécaniques ont été fabriqués spécialement pour ces jonctions et sont montrés figure 2.1.
- L'épaisseur des électrodes a été réduite au maximum, afin d'augmenter le couplage électron-photons. Dans un premier temps à une épaisseur totale de 20-25nm puis à 8-10nm avec l'addition de couches de lissage et de protection en oxyde de silicium (SiO). Les calculs montrent (voir figure (1.15b) page 24) que le couplage Kretschmann devient efficace pour une épaisseur <10nm.</li>
- Afin de faire converger les photons émis vers le détecteur, un prisme conique est collé sur le substrat, sur la face opposée à la jonction.

Les étapes de déposition des couches métalliques sont résumées tableau 2.2.

Étape	Métal déposé	Épaisseur	Masque
Dépôt connecteurs	Al	$5 \mathrm{nm}$	(c)
	Au	$30 \mathrm{nm}$	(c)
Dépôt électrode bas	Al	5-15nm	(d)
Oxydation/Passivation			
Dépôt électrode haut	Al	5-15nm	(e)

Table 2.2 – Étapes de fabrication d'une jonction sur saphir

## 2.1.2 Propriétés électriques

Vingt-six jonctions Al/AlOx/Al et Al/AlOx/Al/Au ont été réalisées, dans des conditions similaires, et permettent d'estimer la disparité des caractéristiques courant-tension. Ces jonctions ont également servi à une étude systématique des conditions de destructions de la barrière tunnel, par claquage disruptif ou thermique du diélectrique. Cette série de mesures permet d'établir la zone sûre de polarisation des jonctions, pour des expériences de longue durée. Les conditions de claquage sont également une indication sur l'existence de défauts dans la barrière.

#### Échantillons

Les jonctions sont dénommées par la composition des électrodes  $(01A/B \rightarrow 12A/B \text{ pour les jonctions Al/AlOx/Al}, et Au12A/B,Au13A/B pour les jonctions Al/AlOx/Al/Au). Les jonctions fabriquées ensembles portent le même numéro et le suffixe A/B. Elles possèdent donc exactement le même temps d'oxydation effectif.$ 

Les 18 premières jonctions (01A...09B) ont des paramètres identiques (épaisseurs des couches, temps nominal d'oxydation). Elles ont été séparées en trois lots, dont les caractéristiques I(V) ont été mesurées à 300K, 77K (immersion dans l'azote liquide), et 4.2K (immersion dans l'hélium liquide). Les jonctions  $10A \rightarrow 12B$ , ont des électrodes d'épaisseur différentes, afin d'en étudier l'impact sur l'asymétrie de la caractéristique courant-tension. Les jonctions  $01A \rightarrow 02B$ , ont une contre-électrode constituée d'une couche d'Al de 8nm, et d'une couche d'Au de 10nm. La couche d'Al empêche la diffusion de l'O<sub>2</sub> à travers l'Au. Elles permettent d'observer l'effet d'une éventuelle différence entre les travaux de sortie des différents métaux sur l'asymétrie de la barrière tunnel donc de la caractéristique courant-tension. Les paramètres de fabrication sont résumés dans le tableau 2.3.

Nom échantillon	électrode bottom	électrode top
TJ_AlAl_01A/B	15nm Al	15nm Al
TJ_AlAl_09A/B		
TJ_AlAl_10A/B	10nm Al	15nm Al
TJ_AlAl_11A/B	10nm Al	15nm Al
TJ_AlAl_12A/B	$15 \mathrm{nm} \mathrm{Al}$	10nm Al
TJ_AlAu_12A/B	10nm Al	8nm Al/10nm Au
TJ_AlAu_13A/B	5nm Al	8nm Al/10nm Au

**Table 2.3** – Tableau récapitulatif des échantillons utilisés pour la caractérisation électrique et l'étude du claquage.

## 2.1. ÉCHANTILLONS

#### Mesure à faible polarisation

Les résistances tunnel à polarisation nulle et à 300K ont été mesurées en sortie du bâti pour chaque jonction. Les mesures sont résumées dans la figure 2.5. La dispersion de la valeur de  $R_0$  d'un couple A/B à l'autre est due à l'erreur sur le temps d'oxydation. Deux échantillons A et B fabriqués en même temps ont des résistances différentes, car leur position au sein du plasma de O<sub>2</sub> inhomogène était différente. La gamme de résistance recherchée est  $1 \text{ k}\Omega < R_T < 5 \text{ k}\Omega$ . Avec ce critère, le taux de succès de la fabrication est de ~80% sur 26 échantillons.



**Figure 2.5** – Dispersion des résistances à polarisation nulle des jonctions Al/AlOx/Al et Al/AlOx/Al/Au à 300K.

Afin de mesurer les conductances différentielles à différentes températures, les jonctions Al/Al ont été séparées en trois lots. Les jonctions de 01A à 03B ont été placées à 300K, de 04A à 07B à 4.2K et 08A à 09B à 77K. La conductance différentielle de chaque jonction a été mesurée en 4 fils par mesure synchrone, et est représentée figure (2.8). Après la mesure de  $G_{diff}(V)$ , la tension et le courant de claquage ont été mesurés à la même température (voir section suivante).

On observe à basse température (4.2K, et dans une plus faible mesure à 77K), l'apparition d'anomalies dans la conductance différentielle à  $V \approx 110 \text{ mV}$  (voir fig. 2.6). Ces anomalies sont une modification de la caractéristique I(V) due à des événements tunnel inélastiques liés à des collisions électron-phonon dans la barrière. La présence de ces anomalies est assimilée à une barrière de bonne qualité et d'épaisseur  $\approx 1 \text{ nm}$  [74]. Entre 300K et 4.2K, on observe une augmentation de 15 à 20% de la résistance à polarisation nulle. Elle s'explique par une diminution de la température électronique [75] et par une augmentation de la hauteur de la barrière tunnel avec la température [76]. Il faut également remarquer la similarité de la dépendance de G(V)/G0 pour deux jonctions fabriquées en même temps (couple A/B), bien que les valeurs de G(0) soit différentes. Cet effet peut s'explique par une hauteur de barrière identique, mais une épaisseur d'oxyde différente, à cause de la non-uniformité du plasma d'oxygène.



**Figure 2.6** – Dérivée seconde de la caractéristique courant-tension des échantillons 04A/B, 06A/B, 07A/B mesurées à 4K. Les points gris sont les 6 courbes superposées. La courbe noire est la moyenne des 6 courbes. On distinguent deux pics symétriques en tension à environ 110mV. La présence de ces discontinuités est associée à une barrière de bonne qualité et d'épaisseur  $\approx 1 \text{ nm}$ 

Brinkman, Dynes et Rowell dérivent, dans leur article de 1970 [77], une série d'équations pour la conductance tunnel à faible polarisation. Ces équations sont dérivées à partir de la formule du courant tunnel et d'une modélisation de la barrière par un modèle WKB (voir chapitre 1). Ces équations sont valides dans le cas où la barrière est d'une épaisseur de l'ordre de 1nm.

$$\frac{G(V)}{G(0)} = 1 - \frac{A_0 \Delta \phi}{16\phi_0^{\frac{3}{2}}} V + \frac{9A_0^2}{129\phi_0} V^2$$
(2.1)

$$G_0 = \frac{3.16 \times 10^{10} \sqrt{\phi_0}}{d} e^{-1.025d} \sqrt{\phi_0}$$
(2.2)

où  $\phi_0$  est la hauteur en énergie moyenne de la barrière,  $\Delta \phi$  est la différence de hauteur à gauche et à droite et  $A_0$  est défini par :

$$A_0 = \frac{4e\sqrt{2m^*}d}{3\hbar}$$

avec  $m^*$  la masse effective de l'électron dans la barrière. Avec les équations (2.1) et (2.2), et en ajustant la dépendance parabolique des conductances différentielles, il est possible d'extraire les paramètres d,  $\phi_0$  et  $\Delta\phi_0$ . La figure (2.7) donne les valeurs des paramètres extraits de la conductance pour chaque échantillon avec  $m^* = 0.75m_e$ . On estime la hauteur de la barrière à  $\phi_0 = 2.5 \pm 0.5$ eV ce qui est une valeur typique pour les jonctions Al/AlO<sub>x</sub>/Al [74]. L'épaisseur est estimée à  $d = 1.28 \pm 0.02$  nm. On note une asymétrie moyenne de 30%

## 2.1. ÉCHANTILLONS

 $(\Delta \phi/\phi_0 \approx -0.3)$ , mais pouvant aller jusqu'à 80% pour quelques échantillons. L'asymétrie dans l'épaisseur des couches ne semble pas apporter un effet systématique. Cette asymétrie peut venir d'une différence entre les deux interfaces Al/Ox et Ox/Al, une inhomogénéité de la barrière le long de l'épaisseur (liée à des contraintes mécaniques aux interfaces apparues lors du dépôt).



**Figure 2.7** – Paramètres des barrières tunnel extraits de la dépendance parabolique de la conductance différentielle dI/dV. Le modèle est celui d'une barrière trapézoïdale. On utilise les équations (2.1) et (2.2), pour déduire  $\phi_0$ , la hauteur moyenne de la barrière,  $\Delta \phi / \phi_0$ , son asymétrie et d son épaisseur.



**Figure 2.8** – Conductance différentielle des échantillons de (a) 01A à 03B, mesurées à 300K, (b) de 08A à 09B mesurées à 77K et (c) de 04A à 07B, mesurées à 4.2K.

## Claquage thermique et disruptif

L'étude des conditions de claquage apporte une information supplémentaire sur la qualité de la barrière. Deux mécanismes de claquage ont été montrés dans les barrières d'oxyde, le claquage intrinsèque, du à la rigidité diélectrique de l'alumine, et le claquage extrinsèque, du à la présence de défauts pouvant favoriser l'apparition d'un trou (pin-hole), dans le diélectrique[78]. Chaque jonction a été soumise à des rampes de tension d'amplitude croissante. La tension de claquage considérée ici est la tension mesurée aux bornes de

## 2.1. ÉCHANTILLONS

la jonction, juste avant l'évolution brutale de sa caractéristique I(V) vers un comportement ohmique. Cette transition correspond à l'apparition d'un chemin métallique dans le diélectrique court-circuitant la barrière tunnel. Dans tous les cas, cette transition est destructive, et un comportement tunnel (forte résistance et non linéarité I(V)) n'est pas retrouvé lorsque la tension est diminuée. On mesure également le courant traversant la jonction afin de déduire la puissance dissipée avant le claquage.

Cette expérience a été réalisée sur les jonctions présentées précédemment, placées à 300K (Échantillon à l'air libre), 77K (Échantillon plongé dans l'azote liquide) et 4.2K (Échantillon plongé dans l'hélium liquide), les tensions et puissances de claquage mesurées sont résumées figure (2.9).



**Figure 2.9** – Comparaison de la puissance dissipée avec la tension aux bornes de la jonction, mesurées avant claquage, pour différentes températures.

On distingue deux cas limites. A haute température (~300K), le claquage se produit autour d'une puissance dissipée d'environ 2 mW. A basse température ( $\leq$ 77K), le claquage se produit autour d'une tension de 2.5 V. Cette dépendance en température des conditions de claquage est compatible avec un claquage intrinsèque. La tension que l'on peut appliquer sur la barrière d'oxyde est limitée par la rigidité diélectrique de la couche d'alumine. D'après les mesures de caractérisation des jonctions, l'épaisseur de la barrière est  $\approx$ 1.3 nm. On en déduit le champ disruptif du diélectrique à basse température : 2 GV m<sup>-1</sup>. Des valeurs de champ disruptif similaires ont été observées dans des jonctions Al/AlOx/Al par [74] et [79]. Cette caractérisation est très importante car elle détermine les conditions sûre d'utilisation de nos jonctions tunnel, c'est à dire, être à basse température ( $\approx$  100 K) et ne pas polariser les jonctions à des tensions supérieures à 2V.

#### Résistance des films

La résistance électrique des électrodes est directement liée à la qualité des dépôts métalliques. Les résistances des électrodes ont été mesurées à 300K, pour différentes épaisseurs et composition des électrodes. Tous les dépôts ont été effectués avec un taux de déposition de 11 Å s<sup>-1</sup>. La figure 2.10 montre la résistivité  $\rho$  en fonction de l'épaisseur de la couche. On note une tendance de la résistivité à augmenter lorsque l'épaisseur de la couche diminue. On s'attend à cet effet lorsque la longueur de diffusion des électrons est limitée par le confinement dans la couche mince. On prend un modèle simple, où l'effet du confinement dans une couche d'épaisseur d d'un électron à la vitesse  $v_F$  se traduit pas un temps de collision  $\tau_{conf}(d) = d/v_F$ , que l'on compare au temps de collision électron-phonon  $\tau_{ph} \propto T$ . En partant du modèle de Drude (voir (1.41) page 16) on déduit la résistivité :

$$\rho(d) = \frac{m}{ne^2} \left( \frac{1}{\tau_{ph}} + \frac{1}{\tau_{conf}} \right) = \rho_0 (1 + \frac{l_0}{d})$$
(2.3)

 $\rho_0 = 2.8 \times 10^{-8} \Omega \mathrm{m}$ , est la résistivité de l'or massif.  $l_0 = \tau_{ph} v_F$  est le libre parcours moyen de l'électron du aux collisions avec les phonons. Après la fabrication des 12 premières jonctions, le bâti d'évaporation a subi une opération de maintenance (remplacement des cibles d'aluminium). La qualité des dépôts s'en est trouvée améliorée. Malgré cela, pour une même épaisseur, nous avons une forte dispersion (facteur 2) de la résistivité. Nous pensons que nos couches métalliques sont en limite de continuité. Cette hypothèse est renforcée par le fait que l'ajout d'or sur l'électrode du dessus ne diminue pas significativement sa résistivité.



**Figure 2.10** – Résistivité des couches métalliques déposées en fonction de leur épaisseur et de leur composition. A gauche, les épaisseurs sont notées  $d_1/d_2$  où  $d_1$  (resp.  $d_2$ ) est l'épaisseur de l'électrode du dessous (bottom) (resp. du dessus (top)). Après 12 jonctions, le bâti d'évaporation a subi une opération de maintenance (changement des cibles en Al). Les 4 dernières jonctions ont une électrode top constituée d'une couche de 8 nm d'Al et de 10 nm d'Au. A droite, la résistivité mesurée (après maintenance) en fonction de l'épaisseur d'Al déposée. La courbe en trait plein est le modèle (2.3) avec  $l_0=20$  nm

## 2.1.3 Propriétés optiques en montage Kretschmann

La conception et la caractérisation de l'optique des échantillons en configuration Kretschmann sera développée dans cette section. Les caractéristiques de l'émission par une jonction sur réseau seront développées au chapitre 3, en regard de résultats expérimentaux. Dans la partie 1.2, il a été montré que l'émission de photons via le mode plasmonique rapide de la jonction tunnel se faisait au delà de l'angle de réflexion total :  $\theta_{spp} = \sin^{-1}(\frac{1}{n})$  pour  $\omega \ll \omega_P$ , où *n* est l'indice de réfraction du substrat. Avec un substrat à plans parallèles, les photons émis sont donc totalement réfléchis aux interfaces air-diélectrique (voir fig. 2.11a). L'ajout d'un prisme droit au substrat sur la face opposée à la jonction, prévient la réflexion totale et permet la collecte des photons en champ lointain après deux réfractions successives (voir figure 2.11(b)). Si l'usage d'une prisme droit permet de d'étudier la dépendance angulaire de l'émission [45, 80], il ne permet pas la collecte de l'ensemble des photons émis. La propagation des plasmons ne suit pas de direction privilégiée dans le plan de la jonction, l'émission se fera donc à un angle  $\theta_{spp}$  dans le saphir pour tout angle azimutal  $\phi$ . On utilisera un prisme conique centré sur la jonction afin de collecter l'ensemble des photons émis (voir fig. 2.12a).



**Figure 2.11** – Principe de la collecte des photons émis par les plasmons en couplage Kretschmann.

#### Conception du réflecteur

Le réflecteur est un cône de révolution tronqué en verre optique (BK7, d'indice n=1.5), de hauteur 4 mm, le rayon de la base inférieure est de 2 mm et le rayon de la face supérieure est de 3.5 mm. L'angle formé par la génératrice et la normale du substrat est choisi de manière à obtenir des rayons quasi-parallèles en sortie. En effet, un rayon lumineux issu de la jonction dans le saphir, après une réfraction à l'interface saphir/verre arrive sur la génératrice avec un angle  $\theta_r = 68^{\circ}$  par rapport à la normale, au delà de l'angle de réflexion total verre/vide de 42°. Le rayon est donc réfléchi et sort du réflecteur par la face supérieure après une réfraction à l'interface verre/vide. L'angle  $\theta_c$  formé par la génératrice et la normale au substrat a été choisi de manière à obtenir des faisceaux parallèles à l'axe optique. L'épaisseur du saphir, 1.5 mm, a été choisie de manière à ce que la réflexion se fasse à environ mi-hauteur dans le réflecteur.



**Figure 2.12** – (a) Coupe du réflecteur conique conçu pour collimation de la lumière émise à  $\theta_{spp}$  dans le saphir par le mode plasmonique rapide. L'angle entre la génératrice du cône et la normale  $\theta_c$  a été choisi de manière à ce que les faisceaux sortent parallèles à l'axe optique.(b) Hypothèse sur la forme réelle du réflecteur d'après les mesures du diagramme de rayonnement. La puissance lumineuse est émise autour de l'axe optique à un angle ~ 10 sur une largeur angulaire d'environ 10°.

## Angle d'émission

Mesurer l'angle d'émission  $\theta_{spp}$  des photons dans le substrat permet de vérifier la relation de dispersion du mode plasmonique rapide (1.51). Dans notre cas, avec un indice pour le subtrat de  $n_s = 1.75$  (saphir), l'angle d'émission dans le substrat doit être de 34.8 ° par rapport à la normale.

L'émission d'une jonction tunnel en couplage Kretschmann équipée d'un réflecteur conique a été imagée par une camera (voir fig. 2.13). L'échantillon a été placé dans un cryostat à une température de 110K. La jonction est celle étudiée de manière exhaustive dans le chapitre 3. Les clichés obtenus sont présentés figure (2.15). Les faisceaux lumineux émis depuis la jonction par le mode rapide sont en partie diffusés sur la surface du cône, l'autre partie étant réfléchie de manière spéculaire. On remarque premièrement que l'émission se fait bien avec une symétrie de révolution autour de la jonction. On définie cet axe de symétrie comme axe optique du système. Deuxièmement, le diamètre du cercle marquant l'intersection faisceau-cône donne avec une simple relation de géométrie l'angle d'émission par le mode plasmonique rapide dans le saphir  $\theta_{spp} = 34.5\pm1$ °, ce qui est très proche de l'angle attendu  $\arcsin(1/n_{saphir}) = 34.7$ °.

Le diagramme de rayonnement en sortie du cône n'a pas été directement mesuré. Cependant, en mesurant le flux de photon collecté en fonction de la rotation  $\theta$  autour de l'axe y, nous avons estimé que le flux de photons était maximum à  $\sim 10 \pm 5$  deg autour de l'axe optique (voir figure 2.12). Nous pensons que cette divergence est due à la génératrice mal définie du réflecteur.



**Figure 2.13** – Montage optique pour la mesure de l'émission par une caméra CCD bas bruit (Atik Titan). Le système optique fait l'image du plan de la jonction sur le capteur CCD grâce à deux lentilles convergentes. Un passage optique a été ouvert dans le cryostat en regard de l'échantillon. La mise au point est effectuée par une lentille convergente de focale 100mm. L'échantillon peut être tourné autour de l'axe y.

On sait que l'émission par un mode plasmonique est polarisée TM. Les réfractions saphir/verre et verre/vide ainsi que la réflexion totale verre/vide dans le réflecteur conservent cette polarisation Pour vérifier la réflexion spéculaire du faisceau dans le réflecteur, on ajoute devant la camera un polariseur optique. Deux images ont été prises avec des orientations orthogonales du polariseur (voir fig. 2.14). On distingue bien la contribution d'une réflexion spéculaire en plus de la diffusion. Les deux mesures précédentes, confirment deux choses. Premièrement, l'émission par le mode rapide via le couplage Kretschmann se fait bien à l'angle  $\theta_{spp}$ . Cela montre que nous contrôlons bien la plasmonique de ce type de jonction. Deuxièmement, la mesure de la réflexion spéculaire montre que le flux de photons issu du mode plasmonique converge bien vers le détecteur grâce au prisme. L'émission provenant directement de la jonction a été également imagée (voir fig. 2.15b), en réalisant la mise au point du système optique dans le plan de l'échantillon. On observe que l'émission est homogène sur le carré de 100x100µm délimitant la jonction.



**Figure 2.14** – Photographie de l'intensité renvoyée par le réflecteur, avec deux orientations orthogonales du polariseur optique. On observe un maximum d'intensité pour une polarisation  $\uparrow$ , et un minimum pour une polarisation  $\rightarrow$ . La polarisation de la lumière collectée met en évidence la contribution d'une réflexion spéculaire.



**Figure 2.15** – Photographie en fausses couleurs et vue de dessus de l'émission d'une jonction tunnel polarisée à ~2V. Le couplage lumière-plasmon est en configuration Kretschmann, avec un réflecteur conique. (a) La contribution isotrope due au couplage des plasmons grâce à la rugosité de la jonction, est visible de par l'émission directe (point central), et la diffusion sur la base du prisme (premier cercle concentrique). L'émission liée au mode plasmonique rapide est visible par la diffusion sur les irrégularités du réflecteur (second cercle concentrique). Le rayon mesuré  $r = 2.7 \pm 0.1$ mm, permet de déduire l'angle d'émission dans le saphir,  $\theta_{spp} = 34.5 \pm 1$ deg. La diffusion sur le haut du cône est faiblement visible (tirets blancs). L'asymétrie  $\pm y$  de l'émission peut être expliquée par une inclinaison de 1deg de l'échantillon autour de l'axe x. (b) Mise au point sur le plan de la jonction avec agrandissement, seule la contribution isotrope de l'émission est visible. Les tirets blancs marquent l'électrode coté saphir (A) et l'électrode coté vide (B) On note que l'émission est homogène sur toute la jonction.

## 2.1.4 Simulations pour l'optimisation des systèmes optiques

La caractérisation de l'émission par le réflecteur permet d'optimiser le système optique de collecte des photons. Dans un premier temps, la lumière émise par la jonction a été collectée via une fibre optique de 400 µm de diamètre, ou directement détectée avec un photo-détecteur d'un diamètre de quelques millimètres. Les faisceaux lumineux parallèles émis par le cône seront focalisés par une lentille convergente de courte focale et de grande ouverture numérique.

Un programme de simulation par lancer de rayon (raytracing) a été développé pour déterminer la tolérance sur l'alignement de la jonction sous le cône. Ce programme calcule, à partir des lois de l'optique géométrique, la direction d'un rayon lumineux après chaque réflexion/réfraction sur un dioptre et trouve l'intersection avec le dioptre suivant.

## 2.1. ÉCHANTILLONS

Par itérations successives on retrace le chemin d'un rayon lumineux émis par la jonction jusqu'à la fibre ou au détecteur. On inclue pour cela les paramètres de la lentille asphérique (coefficients d'asphéricité, indice de réfraction ), du réflecteur, et l'angle d'émission  $\theta_{spp}$  par le mode rapide. La taille finie de la jonction tunnel (100x100µm) a été inclue dans la simulation, en la divisant en un maillage de neuf émetteurs ponctuels.

On simule l'effet du décentrage de la jonction par rapport au centre du cône sur le nombre de rayons collectés (voir fig. 2.16). On constate que un point d'émission sur la jonction a pour image une caustique dans le plan de collection. On observe que pour une jonction décentrée de plus de 100  $\mu$ m, une partie importante des rayons lumineux manquent le détecteur, ici de 1mm de diamètre. On en conclue donc que si l'on souhaite faire converger les faisceaux lumineux vers une petite surface (photodiode, fibre optique) inférieure à 1 mm, en utilisant une lentille convergente de focale 8mm et d'ouverture numérique 0.5 NA, le centrage de la jonction doit être précis à 100  $\mu$ m. L'alignement des cônes sur l'échantillon pour collage a donc été réalisé grâce à une camera montée sur un microscope optique. La caméra affiche l'image de la jonction par le microscope à travers le cône. Une mire affichée à l'écran, permet l'alignement de la jonction avec le centre de la base du cône, avec une précision de l'ordre de 50  $\mu$ m.



**Figure 2.16** – Effet de la distance entre le centre de la jonction et l'axe de révolution du prisme conique sur la convergence du faisceau après une lentille asphérique (focale 8mm et ouverture numérique 0.5NA). (a) Capture d'écran de la simulation, avec, de bas en haut, l'échantillon, le réflecteur, la lentille asphérique et le plan de détection. (b) Taille du faisceau lumineux dans le plan de détection simulé en fonction du décentrage de la jonction par rapport à l'axe de symétrie du réflecteur. La source étendue représentant la jonction est modélisée par 9 sources ponctuelles réparties à sa surface. L'image de chaque source est une caustique dans le plan de détection. L'une d'entre-elles a été mise en évidence en bleu. Cette simulation a quantifié la précision nécessaire lors du montage du réflecteur sur l'échantillon.

## 2.1.5 Conclusion

Les jonctions tunnel métal-isolant-métal étudiées dans cette thèse sont des multicouches Al/AlOx/Al et Al/AlOx/Al/Au. Une technique de fabrication simple et versatile a été mise en place permettant la production de nombreux échantillons. Elle consiste en la déposition des couches en aluminium par évaporation sous ultra-vide à travers un masque mécanique, et en une croissance contrôlée de la barrière tunnel par oxydation de l'aluminium dans un plasma d'oxygène. La mesure des caractéristiques électriques d'un lot d'échantillons a montré que cette technique de fabrication est fiable et donne des résultats reproductibles. La dispersion dans la valeur des résistances tunnel obtenue est expliquée par le contrôle manuel du temps d'oxydation lors de la croissance de la barrière. Malgré leur surface importante (100x100µm), les jonctions tunnel présentent des barrières propres, fines ~1 nm sans trous et sans contaminants.

L'utilisation de jonctions tunnel dont la barrière est à base d'alumine n'est pas préconisée dans ces conditions de polarisation, car réputées instables dans le temps, à forte polarisation et température ambiante [43, 81]. Ceci au profit de barrière en nitrure de bore, dont la fabrication est plus délicate. Nous avons cependant déduit de l'étude des conditions de claquages de la barrière une tension maximum d'opération  $V_{max}=2V$  à  $T \sim 100$ K, permettant l'émission de photons par la jonction dans le domaine infra-rouge/proche visible,  $\lambda > hc/eV_{max} = 620$  nm. Grâce à la qualité de nos barrières, la stabilité des jonctions est telle qu'elle permet d'effectuer des mesures sur plusieurs mois dans ces conditions.

Afin de collecter un maximum des photons émis par les jonctions en configuration Kretschmann, on utilise un prisme conique. En imageant directement l'émission de la jonction avec une caméra, nous avons confirmé que l'angle d'émission dans le saphir est bien l'angle  $\theta_{spp} = \arcsin(1/n_{substrat}) = 34.5\pm1^{\circ}$ , montrant que la plasmonique des jonctions est bien contrôlée. De plus, nous avons observé que l'émission est homogène sur toute la jonction tunnel, montrant que cette émission est bien liée au transport tunnel dans toute la barrière, et que cette dernière est dépourvue de point chaud.

# 2.2 Dispositifs expérimentaux

## 2.2.1 Cryostat

Les mesures sur les jonctions à forte polarisation électrique ont été réalisées dans un cryostat refroidi à l'azote liquide. Une vue en coupe du cryostat est représentée figure 2.17.



**Figure 2.17** – Vue en coupe du cryostat. En opération, le cryostat est retourné (réservoir vers le haut).

## Berceau

Les échantillons sont placés sur un berceau en cuivre assurant leur thermalisation et la connexion électrique. Ce berceau peut être tourné autour d'un axe horizontal et translaté depuis l'extérieur via une tige en inox afin de modifier in-situ l'angle/la position par rapport au système optique de collecte des photons. La translation se fait manuellement par une vis micrométrique, la rotation en pilotant de manière électronique un moteur pas à pas. Le berceau joue le rôle de relais pour la connectique de la jonction via un circuit imprimé. Des fils d'argent sont soudés sur le circuit puis collés avec une laque conductrice aux électrodes
de la jonction. Le circuit imprimé relie ces connections au câblage du cryostat via des câbles en nappe souple. L'utilisation d'une nappe évite les contraintes sur les fils pouvant provoquer des ruptures après des rotations/translations répétées du berceau.



**Figure 2.18** – Photographie de la platine. Le montage expérimental est celui de la mesure d'émission de photon en fonction de l'angle de la section (3.3.1). L'échantillon est placé sur un berceau pouvant être tourné et translaté.

(a)



(b)



Figure 2.19 – Vue de dessus(a)/dessous(b) du berceau accueillant les échantillons.

## 2.2. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

#### Cryogénie, thermalisation de l'échantillon

Le berceau est ancré thermiquement au cryostat. Afin d'éviter un apport de chaleur de l'extérieur, la tige de rotation en inox est reliée au berceau par un manchon isolant. La température est mesurée par une sonde placée sous le berceau. Les câbles en nappe du berceau sont reliés à des fils en Manganin via un circuit relais. Le Manganin présente une faible conductivité thermique, ce qui minimise l'apport de chaleur. Ces fils sont thermalisés en les entourant autour d'une masse métallique ancrée à la platine. Un écran à  $\approx 150 \,\mathrm{K}$  protège la platine du rayonnement à 300 K de l'environnement.

L'écran, la platine, et le réservoir d'azote sont isolés thermiquement de l'extérieur par une enceinte sous vide statique ( $\approx 10^{-5}$  mbar). La température du berceau se stabilise généralement entre 90 et 100K.

# 2.2.2 Mesure calibrée de la capacité des jonctions

On peut estimer la capacité des jonctions tunnel avec un modèle de condensateur plan. Pour un diélectrique en alumine ( $\epsilon_r \approx 4 - 9[74]$ ), d'épaisseur 1.3 nm, et une jonction de surface 100x100 µm, la capacité sera de l'ordre de la centaine de pF.

Le dispositif de mesure consiste en une mesure de l'impédance de l'échantillon par une mesure 4 fils. Les capacités d'entrée des instruments, et les capacités parasites avec la masse apportent une erreur systématique sur la mesure de l'impédance. Une calibration du dispositif de mesure permet de corriger en partie ces erreurs. On modélise le dispositif avec le circuit électrocinétique présenté figure 2.20. On excite l'échantillon d'impédance  $Z_e(\omega)$  avec un signal sinusoïdal  $V_0(\omega)$ . On mesure les tensions  $\Delta V = V_A - V_B$ . Les tensions  $V_1, V_2, V_A, V_B$  s'écrivent sous la forme de fonctions homographiques :

$$V_A = \frac{V_1}{1 + Z_{A1}/Z_{A2}} \qquad V_B = \frac{V_2}{1 + Z_{B1}/Z_{B2}}$$
(2.4)

$$V_1 = \frac{V_2 + (V_0/Z_0 + V_A/Z_{A1})Z_e}{1 + (1/Z_0 + 1/Z_{A1})Z_e} \qquad V_2 = \frac{V_1 + V_B Z_e/Z_{B1}}{1 + (1/Z_g + 1/Z_{B1})Z_e}$$
(2.5)

On peut montrer que  $\Delta V(\omega) = V_A(\omega) - V_B(\omega)$  peut s'écrire sous la forme d'une fonction homographique de  $Z_e(\omega)$ :

$$\Delta V = \frac{1 + aZ_e}{b + cZ_e} \tag{2.6}$$

En effectuant trois mesures de calibration  $\Delta V_0$ ,  $\Delta V_\infty$  et  $\Delta V_L$ , en remplaçant l'échantillon par trois impédances connues, respectivement Z = 0 (court-circuit),  $Z = \infty$  (circuit ouvert) et  $Z = R_L$ , on peut extraire les paramètres caractérisant le circuit de mesure et déduire :

$$Z_e = R_L \frac{(\Delta V_0 - \Delta V)(\Delta V_L - \Delta V_\infty)}{(\Delta V_0 - \Delta V_L)(\Delta V - \Delta V_\infty)}$$
(2.7)

La capacité s'extrait alors simplement de l'impédance si on considère la jonction tunnel comme un circuit RC :



**Figure 2.20** – Schéma équivalent au dispositif de mesure de la capacité d'une jonction tunnel représentée par l'impédance  $Z_e$ .

Les mesures de capacité suivantes ont été réalisées sur deux jonctions Al(20nm)/Al0x/Al(10nm) de surface  $100 \times 100 \,\mu\text{m}$ , numérotées 53b et 54a. Elles ont pour résistance à tension nulle respectivement 4700  $\Omega$  et 1700  $\Omega$ . Pour la jonction 53b, la calibration s'est effectuée à 300K et la mesure à 4K. Pour 54a, la mesure a été réalisée à 4K et la calibration à 300K et 4K pour comparaison. Une calibration effectuée à 300K induit une erreur systématique sur C(V = 0) de -10% mais négligeable sur C(V)/C(V = 0). Les capacités déduites sont respectivement 210 pF±10% et 321 pF. La jonction tunnel est un condensateur plan, en prenant l'épaisseur  $d \approx 1$  nm on en déduit la permittivité diélectrique de la barrière : $\epsilon_r \approx 4$ , ce qui est attendu pour des barrières de cette épaisseur [74].

Ce dispositif permet également l'étude de la dépendance de la capacité avec la tension, liée aux non linéarités de la constante diélectrique :

$$\epsilon_{eff}(E) = \epsilon(0) \left( 1 + \beta E + \alpha E^2 \right) \tag{2.9}$$

où E = V/d est le champ électrique dans la barrière dont l'épaisseur d a été estimée à 1.3 nm (voir section 2.1 page 39). La figure 2.21 montre la mesure de C(V) à forte et faible polarisation pour 53B et 54A. On en déduit les coefficients de non linéarités qui sont comparables à ceux mesurés par [82] :

Échantillon	$C_0$	$\alpha ((MV/cm)^{-2})$	$\beta ((MV/cm)^{-1})$
53b	$210\pm20\mathrm{pF}$	$3.5  imes 10^{-3}$	$2.6 \times 10^{-4}$
54a	$321\mathrm{pF}$	$6 \times 10^{-3}$	$2.6 \times 10^{-4}$
[82]	$\sim \! 100  \mathrm{pF}$	$2.2 \times 10^{-3}$	$3\text{-}7 \times 10^{-4}$

L'effet de l'augmentation de C avec la tension sur la fréquence de coupure  $(2\pi RC)^{-1}$  de la jonction est cependant négligeable devant la forte diminution de la résistance tunnel.



**Figure 2.21** – Mesure de capacité des jonctions 53b (a) et 54a (b) en fonction de la tension de polarisation.

# 2.2.3 Mesure de Bruit, traitement du signal

Que ce soit pour la mesure du bruit en grenaille en corrélation croisée, ou pour la mesure des corrélations courant-photon, nous allons digitaliser deux signaux en tension  $v_1(t)$  et  $v_2(t)$  préalablement amplifiés. La figure 2.22 montre le dispositif de mesure après les amplificateurs. L'acquisition est réalisée par un oscilloscope numérique. Pour des vitesses d'échantillonnage relativement basses (~500 kS/s), il est possible de calculer en temps réel les transformées de Fourier rapides (FFT)  $v_1(f)$  et  $v_2(f)$  ainsi que les densités spectrales en autocorrélation et corrélation croisée :

$$S_{v_1v_1}(f) = \left\langle |v_1(f)|^2 \right\rangle \Delta f \tag{2.10}$$

$$S_{v_2v_2}(f) = \left\langle |v_2(f)|^2 \right\rangle \Delta f \tag{2.11}$$

$$\operatorname{Re}[S_{v_1v_2}](f) = \langle \operatorname{Re}[v_a(f)]\operatorname{Re}[v_b(f)] + \operatorname{Im}[v_a(f)]\operatorname{Im}[v_b(f)] \rangle \Delta f$$
(2.12)

$$\operatorname{Im}[S_{v_1v_2}](f) = \langle \operatorname{Re}[v_b(f)]\operatorname{Im}[v_a(f)] - \operatorname{Re}[v_a(f)]\operatorname{Im}[v_b(f)] \rangle \Delta f$$
(2.13)

Les moyennes  $\langle \rangle$  correspondent à un nombre de réalisations données  $N = \Delta t/T$ , avec T, le temps d'intégration et  $\Delta t$  la durée d'une acquisition. Si on néglige le temps de calcul, le temps d'acquisition dépend du taux d'échantillonnage S en S/s et du nombre d'échantillons  $N_s : N_s = S \Delta t$ . La résolution en fréquence de la mesure est limitée par le temps d'intégration :  $\Delta f = 1/T$ . Le théorème de Shannon impose que la fréquence d'échantillonnage soit au moins deux fois supérieure à la fréquence la plus élevée du signal. Nous utilisons donc deux filtres passe-bas à l'entrée de l'oscilloscope afin d'éviter les artefacts liés au repliement de spectre.

$$T = \frac{N_s}{S} = \frac{f_{max}}{\Delta f S} \tag{2.14}$$



**Figure 2.22** – Dispositif d'acquisition et de digitalisation du signal pour les mesures de corrélation.

Le but d'une mesure de bruit électronique, est la reconstruction par digitalisation de la distribution statistique des fluctuations de tension P(v) à l'entrée de l'appareil de mesure, par exemple, en mesurant le second moment  $\int v^2 P(v) dv$  (valeur RMS). La digitalisation peut introduire des erreurs systématiques sur la mesure de P(v) : la non linéarité du convertisseur analogique-digital, les effets de saturation et les effets de repliement de spectre.

#### Digitalisation

Un élément important d'un appareil numérique est son convertisseur analogique-digital (CAD), caractérisé par sa dynamique, c'est-à-dire, la gamme de tension mesurée  $V_{range}$ ,  $(V_{min} = V_0 - V_{range}/2, V_{max} = V_0 + V_{range}/2$  avec  $V_0$  la tension d'offset). La résolution en nombre de bit n donne le nombre de valeurs discrètes possibles (ou bin)  $N = 2^n$  pour le signal numérisé. La résolution en tension est alors donnée par  $\Delta V = V_{range}/N$ . Dans les simulations numériques la réponse du CAD est donnée par la fonction :

$0 \le v < V_{range}:$	$\operatorname{Floor}(v2^n)/2^n$	Le signal est mesuré
v < 0 :	0	Le signal est en dessous
		de la plage du convertisseur qui sature à 0
$v \ge V_{range}$ :	V <sub>range</sub>	Le signal est au dessus
		de la plage du convertisseur qui sature à $V_{range}$

#### Non linéarité du convertisseur

Un CAD possède différents types de non linéarités altérant la distribution P(v) mesurée. L'étude exhaustive de ces non-linéarités n'est pas l'objet de cette section, nous allons

### 2.2. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

cependant estimer leur effet dans le cas de nos mesures. L'étude qui suit a été réalisée sur un oscilloscope rapide dont le CAD possède une résolution de 8 bits (256 valeurs).

On mesure un bruit blanc, gaussien (bruit thermique d'une résistance R de  $10 \,\mathrm{k\Omega}$  à travers un amplificateur de tension) sur l'entrée analogique de l'oscilloscope. On réalise l'histogramme des valeurs mesurées sur le CAD après quelques minutes. On répète l'opération pour différents calibres en tension, afin de vérifier que les non linéarités proviennent bien du convertisseur. On compare alors le nombre d'occurrence de chaque valeur de l'histogramme H(v) avec la prédiction théorique donnée par la gaussienne G(v) dont la largeur est donnée par la valeur RMS du bruit thermique :  $2Rk_BT\Delta f \times \mathrm{Gain}^2$ . L'erreur sur le signal digitalisé est alors :

Erreur(%) = 
$$\frac{H(v) - G(v)}{G(v)} \times 100$$
 (2.15)

La figure 2.23 montre l'erreur systématique apportée par les non linéarités du CAD. Cette erreur peut être modélisée par une dispersion sur la pondération de chaque valeurs v échantillonnées. En résulte une erreur sur la distribution statistique P(v) mesurée. On remarque que la non linéarité sur un bin tend à être compensée par la non linéarité des bin suivants. On veillera donc de manière général à adresser le signal sur un grand nombre de bin.



**Figure 2.23** – Quantification de la non linéarité du CAD de l'oscilloscope rapide. En haut, histogramme des valeurs v échantillonnées lors de la mesure d'un bruit gaussien, pour différentes valeurs RMS  $\sigma$ .  $V_{range}$  est la plage de tension mesurée par le CAD. En bas, erreur entre l'histogramme et un fit gaussien, montrant que les non linéarités ajoutent une dispersion sur la pondération de chaque valeur v. L'histogramme à droite montre que la dispersion tend vers une loi normale de largeur ~10%.

#### Choix de la gamme de tension

Lorsque l'on souhaite mesurer un signal électrique avec un appareil d'acquisition numérique, il est recommandé d'utiliser toute la dynamique  $V_{range}$  du convertisseur, afin de diminuer l'effet des non linéarités (voir précédemment). Il suffit pour cela de connaitre la valeur minimale et maximale du signal et d'adapter le calibre de l'instrument en conséquence. Pour une mesure de bruit cette tache est plus compliquée puisqu'il existera toujours des événements où v(t) sort de la dynamique du convertisseur. La figure 2.24 montre l'erreur systématique sur P(v) liée à cet effet de saturation avec une simulation numérique.



**Figure 2.24** – Effet de la saturation du CAD sur la mesure de P(v). Les saturations à  $v = V_{range}$  et v = 0, conduiront à une erreur systématique sur le calcul du second moment des fluctuations.

On simule numériquement l'acquisition et la corrélation de deux signaux :

$$v_1(t) = V_{range} \left(\frac{1}{2} + \delta v_{\Sigma 1}(t) + \delta v_{\sigma}(t)\right) \qquad v_2(t) = V_{range} \left(\frac{1}{2} + \delta v_{\Sigma 2}(t) + \delta v_{\sigma}(t)\right) \quad (2.16)$$

 $v_{\Sigma 1}(t)$  et  $v_{\Sigma 2}(t)$  sont deux bruits gaussiens non corrélés jouant le rôle du bruit des amplificateurs, d'écart type  $\Sigma$ .  $v_{\sigma}$  est le signal d'intérêt, que l'on simule ici par un bruit gaussien d'écart type  $\sigma$ , on reste dans une limite où on est dominé par le bruit de la chaine d'amplification  $\Sigma \gg \sigma$ . La figure 2.25 montre l'erreur liée à la digitalisation sur les valeurs  $S_{v1v1}$  et  $S_{v1v2}$  mesurées pour différentes résolutions. On note bien une erreur systématique sur le gain lié à la saturation du convertisseur dès que  $\Sigma \geq 0.15V_{range}$ , cet effet se répercute sur la mesure de la corrélation  $S_{v1v2}$  avec de plus, une diminution du rapport signal à bruit. Une autre erreur systématique apparait sur la mesure de  $S_{v1v1}$  lorsque l'on limite la dynamique de conversion, c-à-d, lorsque  $\Sigma$  devient de l'ordre de la résolution  $\Delta v$ .

Le choix du calibre  $V_{range}$  doit être un compromis entre les effets de saturation et les effets de la limitation de la dynamique de conversion. Dans nos mesures, qui utiliseront un convertisseur 16 bits nous choisirons le calibre tel que  $0.05 < \Sigma/V_{range} < 0.15$ .



**Figure 2.25** – Simulation numérique de la mesure de corrélations de deux signaux, pour différentes résolutions du convertisseur analogique-digital. (a) Signal d'autocorrélation de la voie v1 (b) signal de cross corrélation entre les voies v1 et v2.

#### Extraction du second moment

La bande passante de la mesure est limitée par la fréquence de coupure de la jonction tunnel (~ 100 kHz). Or à ces fréquences, il est difficile de blinder le circuit en raison de l'épaisseur de peau (>1 mm). Les spectres mesurés  $S_{vv}(f)$  seront alors entachés de pics provenant de signaux parasites. Leur contribution n'est pas négligeable dans la valeur RMS du signal et apportera une erreur systématique sur l'extraction du second moment.

On peut extraire la valeur RMS du bruit en réalisant l'histogramme H(v) des valeurs de v. Pour l'extraction du second moment du bruit, on peut approximer le signal par un bruit gaussien. La dispersion des valeurs de  $S_{v1v2}(f)$  doit alors suivre une loi normale centrée sur la valeur RMS du bruit. On ajuste l'histogramme du spectre mesuré à une gaussienne, en sélectionnant les points compris entre  $v \pm \sigma_{fit}$ . On élimine ainsi la contribution des pics de signaux parasites.



**Figure 2.26** – Extraction de la valeur RMS du bruit en présence de signaux parasites. On mesure le bruit thermique d'une jonction tunnel à  $\sim 200$ K. On réalise l'histogramme du spectre mesuré et on l'ajuste à une loi normale. L'espérance de cette loi donne une valeur proche de la valeur RMS du bruit sans contribution des pics des signaux parasites (ligne rouge continue). Les tirets rouges montrent la valeur RMS du signal avec la contribution des parasites.

# 2.2.4 Validation du dispositif de mesure

Afin de valider le dispositif de mesure et la procédure de traitement des données, nous l'avons appliqué à un cas électrocinétique simple. Nous avons mesuré le bruit thermique  $\delta v_{th}$  d'une jonction tunnel en fonction de la température. Sa dépendance ne sera pas linéaire à cause de la dépendance de la résistance tunnel avec la température. Afin de nous soustraire du bruit thermique des électrodes  $(r1, r2 \sim 500 \Omega, \delta v_r = 2rk_BT \sim 1.4 \times 10^{-18} \text{ V}^2/\text{Hz})$  et du bruit des amplificateurs ( $4 \times 10^{-18} \text{ V}^2/\text{Hz}$ ), cette mesure a été réalisée en corrélation croisée à l'aide de deux amplificateurs de tension (voir fig. 2.27a). Le signal mesuré en sortie de chaque amplificateur de gain G est :

$$v_1^2 = G^2 \left( \delta v_{a1}^2 + \delta v_{r1}^2 + \delta v_{th}^2 \right)$$
(2.17)

$$v_2^2 = G^2 \left( \delta v_{a2}^2 + \delta v_{r2}^2 + \delta v_{th}^2 \right)$$
(2.18)

Les bruits  $\delta v_{a1}, \delta v_{a2}, \delta v_{r1}, \delta v_{r2}$  étant non corrélés, le calcul temps réel de  $\langle v_1 v_2 \rangle$  donne directement :

$$\langle v_1 v_2 \rangle = G^2 \delta v_{th}^2 \tag{2.19}$$

Le traitement des spectres, développé figure 2.27b utilise la méthode des histogrammes. La figure 2.28 montre un accord expérience-théorie sur  $S_{vv}(T)$  avec un écart maximum de 2%.



**Figure 2.27** – (a) Schéma électrique de la mesure du bruit thermique d'une jonction tunnel en corrélation croisée. Dans le cadre, schéma électrocinétique équivalent de la jonction tunnel de résistance  $R_T$  avec  $\delta v_{th}^2 = 2R_T k_B T$  le bruit à l'équilibre. Mesurer la corrélation  $\langle v_1 v_2 \rangle$  permet de s'affranchir de la contribution du bruit des amplis  $\delta v_{a1}$  et  $\delta v_{a2}$  et du bruit thermique dans les électrodes  $\delta v_{r1}$  et  $\delta v_{r2}$ . (b) Traitement des spectres  $S_{v1v2}(f)$  pour la mesure du bruit thermique  $S_{II}(T)$  d'une jonction tunnel. Les spectres en rouge sont la corrélation  $S_{v1v2}$  à différentes température. La coupure capacitive est due à la capacité de la jonction tunnel et des cables (ici  $C \sim 480 \text{ pF}$ ). Les spectres en noir sont corrigés de cette fréquence de coupure. On utilise la méthode des histogrammes pour extraire le bruit des signaux parasites.



**Figure 2.28** – Évolution de  $S_{II}(T) = S_{vv}(T)$  et  $R_T(T)$ . On obtient un bon accord théorie-expérience validant le dispositif expérimental.

# 

Dans le chapitre 1, nous avons dérivé la densité spectrale du bruit en émission à fréquence finie avec un modèle basé sur le formalisme de Laudauer-Büttiker. Nous avons ensuite montré qu'il est possible de sonder les fluctuations de courant aux fréquences optiques en mesurant le flux de photons émis par la jonction. Nous en avons déduit la relation de fluctuation suivante :

$$P_{Ph}(\nu, V) = \mathcal{R}(\nu) \left( \alpha^2 S_{LL}(\nu, V) + (1 - \alpha)^2 S_{RR}(\nu, V) - 2\alpha (1 - \alpha) S_{LR}(\nu, V) \right) \Delta \nu \quad (3.1)$$

où  $\mathcal{R}$  est une impédance de rayonnement dépendante de l'environnement électromagnétique de la jonction et  $\Delta \nu$  la bande passante de détection.  $0 < \alpha < 1$  est un facteur prenant en compte l'asymétrie du couplage électron-photon entre l'électrode de gauche et l'électrode de droite. En raison du couplage local courant-plasmon, cette densité spectrale de bruit a la particularité de dépendre de quatre corrélateurs,  $S_{LL}$  et  $S_{RR}$  sont les fonctions d'autocorrélation du courant dans les électrodes et  $S_{LR}$  la cross-corrélation gauche-droite. Si cette dépendance est en partie liée au couplage du courant avec les modes électromagnétiques de la jonction, elle permet, pour la première fois de mettre en évidence la dissymétrie des fluctuations de courant dans les électrodes  $S_{LL} \neq S_{RR} \neq S_{LR}$ . Cette dissymétrie apparait à cause de la dépendance en énergie et en tension de la barrière tunnel. Dans le cas d'une transmission constante, on retrouve la relation de fluctuation habituellement utilisée pour décrire le bruit à fréquence finie dans une jonction tunnel donnée par la formule de Scalapino-Rogovin[68] :

$$S(\omega, V) = e[N(eV + \hbar\omega)I_{DC}(V + \hbar\omega/e) + (N(eV - \hbar\omega) + 1)I_{DC}(V - \hbar\omega/e)]$$
(3.2)

Il s'agit d'une généralisation du théorème fluctuation-dissipation pour une jonction tunnel hors équilibre[36], et est appelée *relation Fluctuation-Dissipation (RFD)*. (3.1) et (3.2) donnent le même résultat à fréquence nulle, ou à fréquence finie dans le cas d'une transmission tunnel indépendante de l'énergie et de la tension. Cependant, la mesure du flux de photons infrarouge émis par la jonction nécessite un régime de forte polarisation où la jonction est fortement non linéaire. Dans ce chapitre, nous allons montrer de manière claire, que la relation de fluctuation décrivant l'émission de photons par une jonction tunnel n'est pas la RFD, mais celle que nous avons déduit du formalisme de Landauer-Bütikker. Dans un premier temps nous allons définir les caractéristiques des échantillons étudiés dans ce chapitre. Nous verrons que dans nos conditions expérimentales  $eV \sim \phi$ , la jonction tunnel est dans un régime fortement hors équilibre. Dans une seconde partie seront présentées les mesures du bruit de grenaille à basse fréquence (<MHz). Nous verrons que la RFD est respectée, avec une déviation de ~10% liée à des erreurs de mesure systématiques. La mesure du bruit de grenaille à forte polarisation confirmera également que nous restons bien dans un régime tunnel avec  $\mathcal{T} \ll 1$ . Dans une troisième partie seront présentées les mesures de la puissance de photons émise aux longueurs d'onde proches infrarouge en fonction de la tension. Nous verrons que la RFD est violée dans ce régime fortement hors équilibre. Dans une dernière partie, nous interpréterons nos résultats et montrerons qu'ils sont compatibles avec un modèle prenant en compte un effet tunnel élastique suivis d'une relaxation dans les réservoirs. Ceci remet en question le modèle actuel d'émission de lumière dans une jonction tunnel par un processus tunnel inélastique.

## Sommaire

3.1	Cara	actéristiques des échantillons	63
	3.1.1	Description des échantillons	63
	3.1.2	Caractéristiques électriques	64
	3.1.3	Régime fortement hors équilibre	66
<b>3.2</b>	Mes	ure du bruit à fréquence nulle	69
	3.2.1	Montage expérimental	69
	3.2.2	Principe de la mesure calibrée	70
	3.2.3	Extraction de $S_{II}$ à forte polarisation $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	73
	3.2.4	Conclusion	77
<b>3.3</b>	Mes	ure du bruit aux fréquences optiques	78
	3.3.1	Mesure de la puissance lumineuse $P_{ph}(V)$ sur un jonction avec réseau	78
	3.3.2	Mesure de $P_{ph}(V)$ sur une jonction en configuration Kretschmann	85
	3.3.3	Violation de la relation fluctuation-dissipation	86
	3.3.4	Rendement de l'émission	91
	3.3.5	Confinement des corrélations	95
	3.3.6	Reproductibilité	95
<b>3.4</b>	Inte	rprétation des résultats	96
	3.4.1	Position du problème	96
	3.4.2	La relation fluctuation-dissipation et processus in élastiques $\ . \ .$	97
	3.4.3	Courant dans la barrière	104

# 3.1 Caractéristiques des échantillons

Deux types d'échantillons ont été étudiés pendant ce travail de thèse, ils se distinguent par le type de couplage électron-photon utilisé. Les premières jonctions étudiées étaient fabriquées sur un réseau optique, permettant la diffraction des plasmons de surface. Des jonctions couplées en configuration Kretschmann ont ensuite été développées. Le principe de chaque type de couplage est décrit dans la section 1.2 du chapitre 1. Les méthodes de fabrication de chaque type d'échantillon sont décrites dans la section 2.1 du chapitre 2. Les mesures effectuées sur deux des échantillons étudiés seront développées dans ce chapitre : Ech45\_j910, est une une jonction sur réseau, et Jsaph19A une jonction en configuration Kretschmann. La composition et les caractéristiques électriques de ces échantillons sont développées dans cette section.

# 3.1.1 Description des échantillons

La composition des couches métalliques des deux échantillons est détaillée tableau 3.1.

#### Ech45\_j910

La période du réseau  $(a = 1 \,\mu\text{m})$  a été choisie de manière à favoriser un couplage des modes plasmoniques aux longueurs d'onde proche-infrarouge. Une contre électrode en Au a été utilisée afin de diminuer la dissipation du plasmon à l'interface vide/métal. Malgré la présence de la texturation, le couplage plasmon-photon est en partie assurée par la rugosité de cette couche d'or. Une couche d'aluminium est déposée avant la couche d'or, afin de constituer une barrière tunnel Al/AlOx/Al contrôlée.

#### Jsaph19A

Les électrodes de l'échantillon Jsaph19A en aluminium ont chacune une épaisseur de 5 nm, le couplage en configuration Kretschmann devenant efficace pour une jonction d'épaisseur 10 nm ou moins (voir section 1.2). Afin de prévenir une dégradation des électrodes et de la barrière tunnel liée à la formation d'alumine par contact avec l'air, une couche de SiO imperméable de 20 nm a été déposée par dessus la jonction. Afin de lisser les éventuels défauts du substrat une couche de lissage de 10 nm de SiO a été déposée avant la jonction. La mesure de l'angle d'émission par le plasmon dans le saphir (voir section 2.1.3) montre que le SiO a un effet négligeable sur la relation de dispersion du mode rapide.

Échantillon	Couche	Matériau	épaisseur
Ech45	Substrat	Silicium	
	Électrode 1	Al	$25\mathrm{nm}$
	Barrière	AlOx	${\sim}1\mathrm{nm}$
	Électrode 2	Al	$6\mathrm{nm}$
		Au	$15\mathrm{nm}$
Jsaph19A	Substrat	Saphir	
	Lissage	SiO	$10\mathrm{nm}$
	Électrode 1	Al	$5\mathrm{nm}$
	Barrière	AlOx	${\sim}1\mathrm{nm}$
	Électrode 2	Al	$5\mathrm{nm}$
	Protection	SiO	$20\mathrm{nm}$

**Table 3.1** – Constitution du multicouche pour les échantillons Jsaph 19A et Ech<br/>45\_j910, par ordre de dépôt



Figure 3.1 – Photographie des échantillons Ech45 et Jsaph\_19A

# 3.1.2 Caractéristiques électriques

Pour chaque échantillon, les connections sont numérotées suivant la convention de la figure 3.2. Cette convention suit la numérotation des contacts du berceau porte-échantillon. Les résistances des électrodes sont détaillées dans le tableau 3.2.



**Figure 3.2** – Numérotation des connections pour les échantillons Jsaph 19A et Ech<br/>45\_j910. Sur l'échantillon Ech 45, la jonction 9-10 a été déposée sur un réseau optique.

# 3.1. CARACTÉRISTIQUES DES ÉCHANTILLONS

	/						
	Electrode	Matériau	épaisseur	R(300K)	$R_{\Box}(300K)$	R(77K)	$R_{\Box}(77K)$
Ech45_j910	L	Al	$25\mathrm{nm}$	$45\Omega$	$1.8\Omega$	$31\Omega$	$0.7\Omega$
(avec réseau)	R	Al/Au	$21\mathrm{nm}$	$657\Omega$	$26\Omega$	$501\Omega$	$20.8\Omega$
(sans réseau)	R	Al/Au	$21\mathrm{nm}$	$317\Omega$	$12\Omega$	$193\Omega$	$8\Omega$
						R(100K)	$R_{\Box}(100K)$
Jsaph19A	L	Al	$5\mathrm{nm}$	$706.5\Omega$	$35\Omega$	$595\Omega$	$30\Omega$
	R	Al	$5\mathrm{nm}$	$482.7\Omega$	$24\Omega$	$393\Omega$	$20\Omega$

Table 3.2 – Résistances des amenées de Jsaph19A et Ech45\_j910

Les caractéristiques courant-tension ont été mesurées pour chaque échantillon, à une température de 100 K. Par convention, dans ce chapitre, une tension positive désignera une électrode du dessus, portée à un potentiel positif par rapport à l'électrode du dessous. Un courant I > 0 désignera donc un courant allant de l'électrode du dessus vers l'électrode du dessous.

A faible polarisation (<0.2 V), la conductance différentielle G = dI/dV d'une jonction tunnel est parabolique :  $G(V)/G(0) = 1 + \alpha V + \beta V^2$ . L'asymétrie de la barrière est alors donnée par  $\Delta \phi/\phi_0 = 4.22\alpha/\sqrt{\beta}$ . Les conductances différentielles de Jsaph19A et Ech45\_j910 sont représentées figure 3.3. On en déduit une asymétrie  $\Delta \phi/\phi_0 = 1.7$  pour Jsaph19A et  $\Delta \phi/\phi_0 = 1.34$  pour Ech45\_j910. Les ajustements à plus haute polarisation des caractéristiques montrent que l'asymétrie est sur-estimée par cette méthode. Cependant, elle donne une comparaison qualitative entre deux échantillons.



**Figure 3.3** – Ajustement parabolique de la caractéristique courant-tension à basse polarisation de Jsaph19A et Ech45\_j910. Bien que les conductances à tension nulle  $G_0$ soient différentes, la conductance différentielle renormalisée  $G_{diff}/G_0$  sont semblables, signe d'une hauteur de barrière identique. On remarque cependant que Jsaph19A est légèrement plus asymétrique que Ech45\_j910.

## 3.1.3 Régime fortement hors équilibre

A forte polarisation ( $\gtrsim 1 \text{ eV}$ ), on observe une forte diminution de la résistance différentielle des échantillons (voir figure 3.4). La résistance de Ech45\_j910 diminue d'un facteur 15 entre 0 et 1.5V, et la résistance de Jsaph19A d'un facteur 50 entre 0 et 2V. Cette évolution confirme le caractère fortement non linéaire caractéristique du transport fortement hors équilibre.

```
(a) Ech45_j910
```

(b) Jsaph19A



**Figure 3.4** – Évolution de la résistance différentielle dV/dI des jonctions tunnel, avec la tension de polarisation.

#### Paramètres de la barrière tunnel

Les caractéristiques courant-tension à forte polarisation sont approchées numériquement par la formule du courant tunnel (1.19).  $\mathcal{T}_{3D}(E, V)$  est calculé à partir de la formule (1.21), pour un modèle de barrière trapézoïdale avec l'approximation WKB. On choisit une collection de paramètres pour la barrière  $(d, \phi_0, \Delta \phi)$  qui ajustent le mieux la caractéristique calculée à celle mesurée. Les valeurs trouvées via l'ajustement par WKB sont confortées par celles déduites de mesure à faible polarisation sur un lot d'échantillons test (voir section 2.1.2, p. 36).

La valeur de la masse effective de l'électron dans l'alumine dépend de l'épaisseur de la barrière[74]. Les calculs de structure de bande donne une faible masse effective  $m^* \approx 0.2m_e$  [83] dans l'alumine massif, alors que des mesures BEEM sur des barrières de faibles épaisseurs donnent une valeur proche de  $m^* \approx m_e$ [84]. Cependant l'effet d'un choix arbitraire de la masse effective conduit uniquement à une renormalisation de l'épaisseur de la barrière. Nous choisissons une masse effective de  $0.5m_e$  pour les calculs de la transmission.

Les résultats des ajustements sont présentés figure 3.5 et tableau 3.3. Les effets de charge image ne sont pas implémentés dans le modèle, car ils peuvent se résumer, dans notre cas à une renormalisation de l'épaisseur et de la hauteur de la barrière.



**Figure 3.5** – Caractéristiques courant-tension des jonctions étudiées dans ce chapitre. Les paramètres de l'ajustement sont donnés dans le tableau 3.3

Echantillon	$S(m^2)$	$m^*/m_e$	d(nm)	$\phi_0(eV)$	$\Delta \phi / \phi_0$
Ech45_j910	$0.5 \times 10^{-6}$	0.5	1.84	3.2	-0.9
Jsaph19A	$10^{-8}$	0.5	1.77	2.8	-1.15

**Table 3.3** – Paramètres de l'ajustement des caractéristiques I(V). S est la surface de la jonction,  $m^*$  la masse effective de l'électron dans la barrière, d l'épaisseur de la barrière,  $\phi_0$  et  $\Delta \phi$  la hauteur de la barrière et son asymétrie.  $R_0$  est la résistance mesurée de la jonction non polarisée.

#### Température électronique

Nous avons remarqué qu'il est difficile d'ajuster un modèle simple de barrière trapézoïdal à la caractéristique courant-tension de nos jonctions, à la fois à forte polarisation négative et positive. Le choix arbitraire a été d'ajuster au mieux sur la partie négative de la caractéristique. L'erreur entre la valeur I(V) mesurée et simulée est majorée à 8% pour Jsaph19A à +2V et de 20% pour Ech45\_j910 à +1.5V. Un chauffage des électrons par la puissance Joule dissipée dans la jonction (4 mW à 2V) peut amener à une diminution de la résistance tunnel et donc à un écart entre la I(V) calculée à  $T_e = 100$ K, et la I(V) réelle mesurée. Avec cet écart théorie-expérience on peut donner une fourchette supérieure pour la température électronique à forte polarisation (voir figure 3.6). Pour Jsaph19A, cet écart peut s'expliquer par une température électronique  $T_e \approx 500$ K à 2V, et pour Ech45\_j910,  $T_e \approx 1000$ K à 1.5V. Ces températures sont certainement sur-évaluées, car l'écart entre la caractéristique mesurée et celle donnée par WKB, provient également d'une connaissance incomplète du profil en énergie de la barrière. Autrement dit, un chauffage des électrons à une température supérieure à 1000K à forte polarisation, provoquerait une plus forte non linéarité dans la caractéristique I(V) que celle mesurée.



**Figure 3.6** – Simulation de l'effet de la température électronique sur la caractéristique I(V) de Jsaph19A et Ech45\_j910. La caractéristique mesurée est ajustée par la caractéristique donnée par WKB à  $T_e=100$  K, avec les paramètres de barrière du tableau (3.3). En gardant les mêmes paramètres, on calcule les caractéristiques I(V) pour des distributions électroniques à  $T_e=500$  K,700 K,1000 K et 2000 K.

#### Stabilité de la barrière

Les deux échantillons ont des caractéristiques comparables, bien que la résistance différentielle à polarisation nulle de Ech45\_j910 soit inférieure à celle de Jsaph19A. Pour cette raison, et afin d'éviter la destruction de la barrière, Ech45\_j910 a été polarisée à une tension inférieur à 1.5 V. Nous n'avons pas observé d'évolution dans sa résistance tunnel sur l'échelle de plusieurs semaines. En revanche, Jsaph19A a pu être polarisée jusqu'à 2 V en positif, au prix d'une légère évolution de sa caractéristique I(V) au cours du temps (augmentation de 15% de la résistance à polarisation nulle sur quelques jours). Cette augmentation est réversible par un cyclage thermique de la jonction à 100K $\rightarrow$ 300K $\rightarrow$ 100K. La mesure de la caractéristique courant-tension est très importante pour la détermination de la relation de fluctuation. Afin de prendre en compte les dérives ou l'évolution de cette caractéristique, le courant et la tension de polarisation sont enregistrés à chaque point de mesure.

# **3.2** Mesure du bruit à fréquence nulle

Nous voulons confirmer la description du bruit à fréquence nulle par la relation fluctuationdissipation décrite dans la section (1.1):

$$S_{II}(V) = eI(V) \coth\left(\frac{eV}{2k_BT}\right)$$
(3.3)

où I(V) peut avoir une dépendance non linéaire avec la tension. Si on suppose que les électrons restent à la température du réseau ~100 K, la vérification du RFD par le bruit de grenaille a pour critère une valeur constante du facteur de Fano sur toute la gamme de tension :  $F = S_{II}(V)/eI = 1$ .

Après une description du dispositif de mesure, nous allons voir que le théorème fluctuationdissipation généralisé est conservé avec une incertitude de  $\sim 10\%$ . Les mesures ont été effectuées sur un échantillon dont l'émission de photon a été étudiée de manière exhaustive. L'échantillon Jsaph19A a été choisi devant Ech45\_j910 en raison de sa plus faible capacité  $\sim 300 \text{ pF}$  devant  $\sim 10 \text{ nF}$  pour Ech45\_j910, autorisant une plus grande bande passante.

La forte non linéarité de la jonction impose une étude exhaustive de son environnement électrocinétique afin d'extraire  $S_{II}(V)$  de la mesure. Nous avons préféré utiliser une procédure de calibration, permettant l'extraction du bruit de grenaille avec une connaissance limitée du circuit. Après une présentation rapide du dispositif de mesure, la procédure de calibration sera détaillée. Nous verrons ensuite que, malgré ces précautions, le facteur de Fano sera mesuré avec une erreur de 10%.

## 3.2.1 Montage expérimental

Le schéma du dispositif de mesure est représenté figure 3.7. On mesure la corrélation croisée des fluctuations de tension aux bornes de l'échantillon, en utilisant deux amplificateurs de tension. L'acquisition est effectuée par un oscilloscope numérique calculant en temps réel la corrélation des deux signaux  $\delta v_1(t)$  et  $\delta v_2(t)$  (la procedure de traitment du signal est présentée en 2.2.3). La mesure en corrélations croisées supprime la contribution du bruit en tension des amplificateurs<sup>1</sup>. La caractéristique courant-tension de la jonction est mesurée simultanément en configuration 4 fils standard. La jonction est connectée via des câbles coaxiaux vers l'extérieur du cryostat. Lors de la procédure de calibration du gain du dispositif, un bruit blanc est généré par un générateur de signal arbitraire et est injecté via une forte impédance dans le dispositif.

<sup>1.</sup> En raison du circuit de polarisation (Résistance  $R_p$ ), il reste une contribution du bruit thermique associé aux électrodes de la jonction (voir équation (3.9))



**Figure 3.7** – Dipositif de mesure calibrée du bruit à fréquence nulle dans une jonction tunnel fortement non linéaire.

# 3.2.2 Principe de la mesure calibrée

#### Schéma équivalent

Le modèle électrocinétique utilisé est représenté figure 3.8. Il prend en compte les résistances des contacts de la jonction et des câbles car elles deviennent supérieures à la résistance différentielle de la jonction à forte polarisation ( $R_{46} = 520\Omega$ ,  $R_{23} = 500\Omega > R_T (I_b = 2 \text{ mA}) \sim 100 \Omega$ ). Le bruit thermiques de ces résistances ( $\delta i_{46}^2 \approx \delta i_{23}^2 \approx 5 \times 10^{-25} \text{ A}^2/\text{Hz}$ à 100K et  $\delta i_{Rp}^2 \approx 8 \times 10^{-25} \text{ A}^2/\text{Hz}$  à 300K) doit être inclus dans le modèle car il est de l'ordre de grandeur du bruit en courant de la jonction à basse polarisation  $\delta i_n^2 (I_b = 0) \approx 4 \times 10^{-25} \text{ A}^2/\text{Hz}$ . Le bruit en tension des amplificateurs  $\delta v_{a1}$  et  $\delta v_{a2}$  n'apportent pas de contribution à la mesure en corrélation croisée. Leur bruit en courant  $\delta i_{a1}, \delta i_{a2} = 15 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$ peut être négligé devant les sources de bruit thermiques.



**Figure 3.8** – Schéma électrocinétique équivalent à fréquence finie au dispositif de mesure de  $S_{vv}$ .  $\delta i_n$  est le bruit en courant de la jonction que l'on souhaite mesurer. Les sources de bruit des amplificateurs sont représentées en bleu. Les sources de bruit thermique des résistances  $R_P$ ,  $R_{46}$  et  $R_{23}$  sont représentées en rouge. La dépendance du gain avec la polarisation de la jonction est mesurée par l'injection d'un bruit blanc  $\delta i_{cal}$  en A.

#### Tensions mesurées

En utilisant les lois de l'électrocinétique, on peut calculer les tensions en sortie des amplificateurs de tension :

$$\begin{split} \delta v_1^2 / G^2 &= \delta v_{a1}^2 + \left( \delta i_{a1}^2 + \delta i_{Rp}^2 \right) \left[ \frac{R_P (R_T + R_{46})}{R_{\Sigma}} \right]^2 + \left( \delta i_n^2 + \delta i_{a2}^2 \right) \left[ \frac{R_T R_P}{R_{\Sigma}} \right]^2 + \delta i_{46}^2 \left[ \frac{R_{46} R_T}{R_{\Sigma}} \right]^2 \\ \delta v_2^2 / G^2 &= \delta v_{a2}^2 + \delta i_{a2}^2 \left[ R_{23} + \frac{R_T (R_P + R_{46})}{R_{\Sigma}} \right]^2 + \delta i_{23}^2 R_{23}^2 + \delta i_{Rp}^2 \left[ \frac{R_P R_T}{R_{\Sigma}} \right]^2 \\ &+ \delta i_n^2 \left[ \frac{R_T (R_P + R_{46})}{R_{\Sigma}} \right]^2 + \delta i_{46}^2 \left[ \frac{R_{46} R_T}{R_{\Sigma}} \right]^2 + \delta i_{a1}^2 \left[ \frac{R_P R_T}{R_{\Sigma}} \right]^2 \end{split}$$

$$(3.4)$$

avec  $R_{\Sigma} = R_T + R_P + R_{46}$ .

#### Corrélation croisée des signaux

On peut montrer que le signal de corrélation s'écrit sous la forme :

$$\left\langle \delta v_1 \delta v_2 \right\rangle / G^2 = \left( \delta i_{a1}^2 + \delta i_{Rp}^2 \right) Z_1^2 + \delta i_{a2}^2 (Z_2^2 + Z_3^2) + \delta i_n^2 Z_3^2 + \delta i_{46}^2 Z_4^2 \tag{3.5}$$

$$Z_{1}(V)^{2} = \frac{R_{T}(V)R_{P}^{2}(R_{T}(V) + R_{46})}{R_{\Sigma}(V)^{2}} \qquad Z_{2}(V)^{2} = R_{23}\frac{R_{T}(V)R_{P}}{R_{\Sigma}(V)}$$

$$Z_{3}(V)^{2} = \frac{R_{T}(V)^{2}R_{P}(R_{T}(V) + R_{46})}{R_{\Sigma}(V)^{2}} \qquad Z_{4}(V)^{2} = \frac{R_{46}^{2}R_{T}(V)R_{P}}{R_{\Sigma}(V)^{2}}$$
(3.6)

On note que les impédances effectives  $Z_1, Z_2, Z_3, Z_4$  dépendent de  $R_T$ , donc de la tension. Cette dépendance peut être corrigée par une mesure de calibration.

#### Calibration en fonction de la tension

On ferme maintenant l'interrupteur K. On injecte en A un bruit blanc  $\delta i_{cal}$  très grand de sorte que les autres sources de bruit soit négligeables. De même que précédemment, on peut calculer la tension mesurée par chaque amplificateur, puis le signal corrélé :

$$\delta v_{cal}^2/G^2 = \delta i_{cal}^2 Z_1^2 \tag{3.7}$$

On peut calculer le ratio  $\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle / \delta v_{cal}^2$ , pour des amplificateurs identiques, et en explicitant les bruits thermiques  $\delta i_{46}$  et  $\delta i_{Rp}$ :

$$\frac{\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle}{\delta v_{cal}^2} = A \left[ C(V) + \delta i_n^2 \left( \frac{1 + R_{46}/R_P}{1 + R_{46}/R_T(V)} \right) \right]$$
(3.8)

A est un gain à déterminer (incluant la valeur de l'excitation en courant  $\delta i_0$ ). C(V) est une contribution faiblement dépendante de la tension et qui est dominée par le bruit thermique de la résistance de polarisation :

$$C = \frac{2k_B T_{300K}}{R_P} + \frac{4k_B T_{100K}}{R_P} \left(\frac{1}{1 + \frac{R_T}{R_{46}}}\right)$$
(3.9)

#### Calibration du gain à faible polarisation

Le gain A et le bruit C peuvent être déterminés en mesurant le bruit de grenaille dans la gamme de tension ou  $R_T(V) \approx cst$ . En prenant (3.8) avec  $R_T = R_0 = cst$ :

$$\frac{\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle}{\delta v_{cal}^2} (V \approx 0) = B_0 + A_0 \delta i_n^2 \tag{3.10}$$

 $\delta i_n^2$  étant donné par  $eI \coth(eV/2k_BT)$ , on peut déduire  $A_0$  et  $B_0$ , et donc le gain absolu  $A \sim A_0$  de la chaine de mesure. La mesure du bruit de grenaille est détaillée figure 3.10. Le gain de la chaine de mesure dépend de la fréquence, comme le montre la coupure en fréquence sur les spectres de  $\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle / \delta v_{cal}^2$ . La fréquence de coupure est estimée à ~150 kHz et est liée à la capacité des cables ~100 pF. On extraie alors un gain moyen sur la plage de fréquence 45 kHz-91 kHz. On trouve  $A \approx A_0 = 1 \times 10^{21}$  et  $B_0/A_0 \approx 2k_BT/R_p =$  $7.55 \times 10^{-25} \text{A}^2/\text{Hz}$ . On retrouve bien le bruit thermique de la résistance de polarisation.



**Figure 3.9** – Bruit de grenaille mesuré à basse polarisation. Comme attendu, il est linéaire en  $I_b$  après le seuil  $eV = 2k_BT$ . Le bruit à l'équilibre est la somme des contributions du bruit thermique de la jonction et du bruit thermique de la résistance de polarisation. Les barres d'erreur sur le facteur de Fano sont données par la largeur de l'ajustement gaussien des histogrammes des spectres.



**Figure 3.10** – Étapes de l'extraction du bruit de grenaille avec la mesure calibrée. (a) Corrélation croisée  $\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle$  en fonction de la fréquence et du courant de polarisation I. (b) Mesure de calibration  $\delta v_{cal}^2$ , l'aspect bruité du spectre est du au fait que le signal de calibration injecté est pseudo-aléatoire.(c) spectres après application de la calibration. On remarque une coupure capacitive à ~150 kHz montrant que la calibration est imparfaite (liée aux capacités de câbles non inclues dans le modèle figure 3.2.2). (d) On effectue l'histogramme des valeurs de  $\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle / \delta v_{cal}^2$  sur une bande fréquence où le gain varie peu (45 kHz-91 kHz). On extraie le second moment avec la méthode des histogrammes présentés dans la section 2.2.3. Le fait que les spectres ne soient pas plats en fréquence, apporte un élargissement des histogrammes, et donc apporte une erreur systématique, et une plus grande incertitude sur l'extraction du second moment.

# **3.2.3** Extraction de $S_{II}$ à forte polarisation

On mesure maintenant la corrélation croisée  $\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle$  à toute polarisation. La procédure de traitement des spectres est la même que pour le bruit à faible polarisation. Avec les paramètres  $A_0$  et  $B_0$  ont peut extraire le bruit  $\delta i_n$  à toute polarisation :

$$\delta i_n^2(V) = \left(\frac{\langle \delta v_1 \delta v_2 \rangle}{\delta v_{cal}^2} - A_0\right) \times \frac{1}{B_0} \frac{1 + R_{46}/R_T(V)}{1 + R_{46}/R_T(0)}$$
(3.11)

Les figures 3.11 et 3.12 représentent la densité spectrale de bruit  $S_{II}(V)$  après calibration, ainsi que le facteur de Fano  $F = S_{II}(V)/eI$ . On note une déviation à la théorie allant jusqu'à 10% à forte polarisation.



**Figure 3.11** – Bruit de grenaille mesuré à forte polarisation. (a) Densité spectrale des fluctuations de tension



**Figure 3.12** – Facteur de Fano mesure à forte polarisation. Les barres d'erreur sont calculées à partir des incertitudes sur les paramètres de calibration  $A_0$  et  $B_0$ , et sur la largeur des ajustement gaussien aux histogrammes des spectres. L'aire en rouge donne la gamme dans laquelle a évolué F(V) pendant la mesure, à cause d'une instabilité de la caractéristique I(V) de la jonction. En bas, facteur de Fano corrigé des erreurs systématiques identifiées, en ajustant le gain  $A_0$  et en incluant l'erreur sur la mesure de  $R_{46}$  et  $R_{diff}$ .

#### 3.2. MESURE DU BRUIT À FRÉQUENCE NULLE

A forte polarisation (|V| > 1.5V) on observe un facteur de Fano supérieur à 1. Cet effet pourrait être expliqué par un chauffage des électrons par la puissance joule dissipée dans la jonction. Quantifions cet effet, en utilisant la définition du facteur de Fano nous pouvons déduire une température électronique :

$$T_e = \frac{eV}{2k_B \operatorname{atanh}(1/F)} \tag{3.12}$$

A I=1.6mA, F=1.09, on en déduit une température électronique  $T^+=7600$  K, et à V=-1.6mA, F=1.02, une température de  $T^-=3800$  K. Ces températures, sont clairement incompatibles avec l'ajustement de la caractéristique I(V) (voir fig. 3.6). De plus la puissance joule dissipée dans la jonction est symétrique avec le courant de polarisation à 20% près, (voir fig. 3.13a). En négligeant la puissance de rayonnement et en supposant la conductance thermique des électrodes constantes (voir fig. 3.13b), on s'attend à un écart de l'ordre de 20% entre  $T^+$  et  $T^-$ , ce qui n'est pas observé.



Figure 3.13 – (a) Puissance joule dissipée par la jonction Jsaph19A en fonction du courant de polarisation. La courbe en pointillée est  $P_j(-I)$  et montre l'asymétrie +I/-I de la puissance dissipée. (b) Modèle thermique simple, liant l'élévation de température des électrodes par rapport au substrat  $\Delta T = T_0 - T$  avec la puissance Joule dissipée dans la jonction. Les électrodes sont représentées par un bloc à la température T homogène.  $R_{th}$  est la résistance thermique entre les électrodes et le substrat. Le substrat est modélisé par un réservoir à la température  $T_0$ . On apporte une puissance  $P_J$  donnée par la dissipation Joule dans les électrodes. On néglige la puissance rayonnée  $P_{ray} \ll P_J$  ( $P_{ray} \sim pW$ , voir les mesures d'émission). En régime stationnaire,  $\Delta T = P_J R_{th}$ .

La dépendance en tension du facteur de Fano est liée à notre mesure. Nous avons identifié deux sources d'erreur systématique liées à l'évolution de la résistance différentielle  $R_{diff}(V)$  de la jonction avec la polarisation. Premièrement, il y a une erreur systématique sur le rapport  $R_{46}/R_T(V)$ . Ce ratio évolue fortement avec la tension lorsque  $R_T$  évolue de 6 k $\Omega$  à 100  $\Omega$ . Une erreur sur la mesure de  $R_T$  lorsque  $R_T \ll R_{46}$  à forte polarisation apportera une erreur systématique sur  $\delta i_n$ . Nous allons voir en effet que, en raison de la résistivité élevée des électrodes, il est nécessaire d'apporter une correction sur les valeurs de  $R_{46}$  et  $R_T(V)$ . Il y a de plus un effet de capacités parasites non inclues dans le modèle électrocinétique. Leur effet est d'induire une fréquence de coupure  $f_c(V) = (2\pi R_{diff}(V)C)^{-1}$ évoluant avec la tension, amenant une variation du gain  $A_0(V)$  de l'ordre de 10%. Ces deux points sont développés dans les sections suivantes. La figure 3.12 montre le facteur de Fano partiellement corrigé de ces erreurs systématiques.

#### Erreur systématique sur la mesure de $R_T(V)$

La configuration 4 fils permet de s'affranchir de la résistance des amenées lors de la mesure de la résistance tunnel. Nous sommes cependant dans un cas limite où la résistance par carré des amenées devient de l'ordre de grandeur de cette résistance tunnel à forte polarisation. On ne peut alors plus négliger la résistance de la surface des électrodes en regard. Un modèle simple permet de s'en convaincre (voir figure 3.14). La dépendance spatiale de la densité de courant dans l'électrode a été calculée en éléments finis. On montre qu'en mesurant en 4 fils la résistance tunnel, avec des amenées d'une résistance de  $20\Omega/\Box$ , on la sous-estime de  $8\Omega$ . Cette correction est minime lorsque la résistance tunnel est de plusieurs k $\Omega$  mais apporte tout de même une erreur systématique non négligeable lorsque  $R_T \sim 100\Omega$ . Les paramètres à prendre lors du calcul de  $S_{II}$  à partir de  $S_{VV}$  sont donc  $R_{46} = 500 \Omega$  (au lieu de  $520 \Omega$ ) et  $R_T + 8 \Omega$ 



**Figure 3.14** – Modèle simple montrant l'effet de la résistance finie de la couche métallique sur la mesure de la caractéristique I(V) d'une jonction tunnel en configuration 4 fils. On divise la résistance tunnel  $R_T$  en deux résistances parallèles  $2R_T$ . La résistance de l'électrode (en rouge) est modélisée par la résistance de contact  $R_s$ . La résistance mesurée vaut  $R_{mes} = R_T - R_s/2$ .

# 3.2. MESURE DU BRUIT À FRÉQUENCE NULLE

#### Erreur systématique sur le gain

Lors le la mesure du bruit de grenaille à faible polarisation, il a été constaté que la calibration ne permettait pas de retrouver un spectre plat en fréquence. Cette coupure provient de l'association de la capacité des câbles avec des capacités parasites au niveau du porte-échantillon en parallèle avec la résistance tunnel. En résulte une erreur sur le gain d'environ 10%. Avec la diminution de la résistance tunnel, on peut s'attendre à une modification de cette fréquence de coupure, et donc à une variation du gain avec la tension. La résistance différentielle évoluant moins rapidement avec la tension à forte polarisation, on peut corriger le gain en se basant sur les asymptotes horizontales du facteur de Fano. Les gains à gauche et à droite, sont différents, en raison de l'asymétrie de la résistance différentielle  $R_T(V)$  avec la tension.

# 3.2.4 Conclusion

Le bruit de grenaille a été mesuré à forte polarisation, dans un régime où la jonction tunnel est fortement non linéaire. A notre connaissance, aucune mesure du bruit de grenaille n'avait été réalisée auparavant dans ce régime. A l'aide d'une mesure calibrée, nous avons mesuré un facteur de Fano égal à 1, avec une erreur systématique de l'ordre de 10%. Nous attribuons ces erreurs sytématiques à la forte évolution en tension de la résistance différentielle de la jonction à faible polarisation et à la faible valeur de cette dernière à forte polarisation devant la résistance des électrodes. Cette expérience met en évidence la difficulté des mesures sur un objet fortement non linéaire. La mesure du bruit de grenaille montre que malgré l'évolution d'un facteur 50 de la résistance différentielle, nous nous situons toujours dans la limite tunnel où  $\mathcal{T} \ll 1$ . Nous pouvions nous attendre à ce résultat : comme expliqué dans le premier chapitre (page 7), le nombre de canaux de conduction dans nos échantillons est de l'ordre de  $N \sim 10^{10}$ , ce qui donne, pour une jonction tunnel d'environ 10 k $\Omega$ , une transmission de l'ordre de  $\mathcal{T} \sim 10^{-10}$ . Lorsque l'on polarise fortement la jonction, la résistance diminue d'un facteur 50, ce qui signifie que la transmission de chaque canal augmente d'un même facteur 50 pour devenir  $\mathcal{T} \sim 10^{-8} \ll 1$ , on est toujours dans la limite tunnel.

Dans la section suivante nous verrons que le bruit à fréquence finie, mesuré aux fréquences optiques, ne respecte pas la RFD, avec un écart bien plus grand que les 10% d'erreur systématique de cette mesure.

# 3.3 Mesure du bruit aux fréquences optiques

La dépendance en tension de la densité spectrale du bruit non symétrisée à fréquence finie dans une jonction tunnel fortement hors équilibre a été mesurée via la puissance de photons émis aux longueurs d'onde optiques. L'émission de photons a été étudiée dans les deux échantillons. Nous avons montré qu'avec deux méthodes de couplages électronphoton différentes, nous observons une violation de la RFD. La dépendance en tension, et en énergie de l'émission montre que les électrons sont à une température proche de celle du réseau ( $\sim 100 \,\mathrm{K}$ ).

#### Contraintes expérimentales

L'étude des conditions de claquage de jonctions tunnel présentant la même géométrie a permis de déterminer la limite de polarisation pour cette expérience. Elle montre notamment la nécessité d'effectuer les mesures dans un environnement cryogénique à une température proche de 77 K, pour dépasser une tension de polarisation de l'ordre de 1 V. La jonction sera donc refroidie à température de l'azote liquide et polarisée en dessous de 2 V, pour un courant de quelques milliampères. Une basse température, augmentera également le temps de vie des plasmons en diminuant les pertes par dissipation joule dans le métal, ce qui est favorable pour le couplage électron-photon (voir section 1.2).

Les jonctions sont montées sur un berceau pouvant être déplacé en x et tourné en  $\theta$  autour de ce même axe (voir figure du cryostat 3.36).

# 3.3.1 Mesure de la puissance lumineuse $P_{ph}(V)$ sur un jonction avec réseau

#### Montage

Collecte des photons :

Pour collecter les photons émis sur un grand angle solide dans la fibre optique, on utilise un montage de type « microscope » formé de deux lentilles asphériques. Les caractéristiques de la lentille  $L_1$  de l'objectif et  $L_2$  de l'oculaire sont données tableau 3.4.

	focale	Ouverture numérique	diamètre
$L_1$	$8\mathrm{mm}$	0.5	$8\mathrm{mm}$
$L_2$	$11\mathrm{mm}$	0.25	$5.5\mathrm{mm}$

**Table 3.4** – Caractéristiques des lentilles asphériques du montage microscope.  $L_1$  est l'objectif (coté échantillon),  $L_2$  est l'oculaire (coté fibre).

### 3.3. MESURE DU BRUIT AUX FRÉQUENCES OPTIQUES

Le flux de photons passe ensuite par un filtre optique à  $\lambda$  et de largeur  $\Delta\lambda$ . Ces filtres sont placés à l'extérieur afin d'être changés pendant une même mise à froid. Une seconde fibre optique, emmène la puissance lumineuse filtrée vers le photodétecteur, à l'intérieur du cryostat. Le photodétecteur est une photodiode InGaAs amplifiée (G=10<sup>11</sup> à 100 K). Ce détecteur a été choisi pour sa NEP (« Noise Equivalent Power ») basse (7.5 fW/ $\sqrt{\text{Hz}}$ ), il dispose cependant d'une bande passante électronique limitée à quelques Hz. Nous avons remarqué que placer le détecteur à basse température améliore le rapport signal à bruit d'un facteur 4, malgré une diminution du gain d'un facteur 2 (G=5 × 10<sup>10</sup>).

#### Mesure de la puissance :

La tension en sortie de la photodiode amplifiée est mesurée avec un amplificateur à détection synchrone (ADS ou Lock-in), en hachant le courant de polarisation à une fréquence de 3 Hz. La fréquence de mesure est limitée par la bande passante électronique du photodétecteur.

#### Mesure de la caractéristique courant-tension :

La caractéristique courant-tension est mesurée simultanément en configuration 4 fils. Le montage expérimental est schématisé figure 3.15.

La puissance lumineuse  $P_{ph}$  collectée par le système optique est donnée en fonction de la tension  $V_{ph}$  mesurée par l'ADS par :

$$P_{ph}(\nu) = \frac{V_{ph}}{G_{det}h(\nu)} \tag{3.13}$$

où h est la sensibilité de la photodio de en A/W , $G_{det}$  est la transimpédance de l'amplificateur en V/A.

Les paramètres de la chaine de mesure des photons sont résumés dans le tableau 3.5.  $\Delta\lambda$  est la largeur spectrale du filtre optique.

$\lambda$	Photodétecteur	h (A/W)	$\Delta\lambda$	Gain $(V/A)$
$1300\mathrm{nm}$	InGaAs amplifiée	0.95	$30\mathrm{nm}$	$5 \times 10^{12}$
$1550\mathrm{nm}$	InGaAs amplifiée	1.00	$40\mathrm{nm}$	$5 \times 10^{12}$

**Table 3.5** – Paramètres de la chaine de mesure de la puissance  $P_{Ph}$  émise par la jonction Ech45\_j910



**Figure 3.15** – Schéma du dispositif de mesure de  $P_{Ph}(V)$  pour la jonction sur réseau. L'échantillon, le montage optique et le détecteur sont placés dans un crysotat à ~77 K. La jonction est polarisée par une tension hachée à 3 Hz. La caractéristique I(V) de la jonction est mesurée en configuration 4 fils. Le microscope composé des lentilles  $L_1$  et  $L_2$  collecte les photons émis dans un angle solide  $\Omega \sim 0.13 \times 2\pi$  sr. Les photons émis convergent dans une fibre optique multimode de diamètre 400 µm. Un filtre optique sélectionne les photons à  $\lambda \pm \Delta \lambda/2$ . La puissance lumineuse est ensuite collectée par un photodétecteur InGaAs amplifié, et mesurée de manière synchrone avec la tension de polarisation de la jonction.

#### Puissance en fonction de la position

La puissance de photon émise de  $1.1 \,\mu\text{m}$  à  $1.6 \,\mu\text{m}$ . a été mesurée en fonction de la position de la jonction par rapport à l'axe optique du microscope. On utilise pour cela l'axe de translation x du berceau. La figure (3.16) montre le résultat de la mesure lorsque l'on utilise une fibre optique de diamètre 50  $\mu\text{m}$  et 400  $\mu\text{m}$ . La largeur de la jonction le long de x est de 0.5 mm. Cette mesure montre que *il n'y a pas d'émission sur l'électrode hors de la jonction*.

La distance caractéristique sur laquelle décroit l'émission est attribuée à la taille finie de la surface sélectionnée par le microscope. L'ajustement par la convolution d'un spot circulaire avec la jonction donne le diamètre de cette surface  $\approx 200 \,\mu\text{m}$  avec une fibre de 50  $\mu\text{m}$  et  $\approx 400 \,\mu\text{m}$  avec une fibre de 400  $\mu\text{m}$ .



**Figure 3.16** – Puissance rayonnée par Ech45\_j910 dans un angle solide en fonction de la position x, pour deux diamètres de fibre optique, 50 µm et 400 µm. Les courbes ont été ajustées à la convolution d'un spot de rayon  $r_{spot}$  par la surface de la jonction de largeur 0.5 mm (tirets). On en déduit le rayon de la surface émettrice

#### Contribution des différents modes plasmoniques

En plaçant le détecteur au foyer de la seule lentille  $L_1$ , et en utilisant la rotation  $\theta$ , nous avons réalisé la mesure résolue en angle de l'émission. La dépendance angulaire de l'émission (voir fig. 3.19) montre clairement l'effet du réseau, par la présence de pics de diffraction. On remarque également, une contribution isotrope de ~50% attribuée à la rugosité de la couche d'or (voir fig. 3.18). L'émission de la jonction ech45\_j56 a également été mesurée, et ne montre aucune structure en angle. Grâce à la dispersion apportée par le réseau, on peut distinguer la contribution des trois modes plasmoniques de la jonction. Les longueurs d'onde considérées ( $1.5\pm0.1\,\mu$ m), correspondent à des fréquence petites devant la fréquence plasma de l'or ou de l'aluminium. Comme montré au chapitre 1, la relation de dispersion des plasmons est alors linéaire :  $k_{spp} = n_{eff}\omega/c$  avec les indices effectifs respectivement pour le mode rapide, lent et de substrat :

$$n_{fast} = 1$$
  $n_{slow} = n_{Al0_x} \sqrt{1 + 2\frac{\delta}{d}}$   $n_{sub} = n_{Si0_2}$  (3.14)

où d est l'épaisseur de la barrière d'oxyde ~1 nm,  $\delta = c/\omega_P \approx 13$  nm la longueur de pénétration du plasmon, et avec  $n_{AlO_x} = 1.75$  et  $n_{Si0_2} = 1.45$ . On obtient  $n_{slow} \approx 5.8$ . Comme vu dans la section 1.2, le couplage des plasmons se fait à un angle donné par la loi des réseaux. Avec la périodicité du réseau  $a = 1 \,\mu\text{m}$  (voir fig. 3.19) on identifie les modes correspondants aux pics de diffraction :  $\theta_{fast} = \pm \arcsin(1 - \lambda/a) \sim \pm 30^{\circ}$ ,  $\theta_{sub} = \pm \arcsin(n_{SiO_2} - \lambda/a) \sim \pm 0^{\circ}$ . La forme du réseau (créneau avec un rapport cyclique de 70%), permet le couplage du mode lent au quatrième ordre de diffraction :  $\theta_{slow} = \pm \arcsin(n_{AlO_x} - 4\lambda/a) \sim \pm 11$  deg. Afin de décrire la dépendance angulaire de l'émission, nous utilisons un modèle heuristique de la diffraction d'un plasmon de surface par un réseau périodique (voir fig. 3.17). L'intensité du  $p^{ème}$  ordre de diffraction d'un plasmon de surface de vecteur d'onde  $k = n\omega/p$  est donné par :

$$I_{p}(\theta, n) = \cos^{2}\theta \int_{0}^{a} dx_{0} \left| \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{1 + \cos\frac{2\pi}{a}p(x - x_{0})}{2} e^{-\frac{|x|}{L_{spp}}} \left\{ e^{i\frac{2\pi}{\lambda}(n - \sin\theta)x} + e^{-i\frac{2\pi}{\lambda}(n + \sin\theta)x} \right\} \right|^{2}$$
(3.15)



**Figure 3.17** – Modèle heuristique de la dépendance angulaire de l'émission par un plasmon sur un réseau optique.

 $L_{spp}$  est la longueur d'atténuation du plasmon. Le terme  $\cos^2\theta$  est la dépendance angulaire d'un rayonnement dipolaire polarisé p. Si on considère une superposition non cohérente de la contribution des trois modes, l'intensité totale  $I(\theta)$  devient :

$$I(\theta) = \alpha I_1(\theta, n_{fast}) + \beta I_1(\theta, n_{sub}) + \gamma I_4(\theta, n_{slow})$$
(3.16)

On décrit alors l'émission avec les contributions  $\alpha = \beta = 0.25$  et  $\gamma = 0.5$ . La longueur d'atténuation ~2µm est ajustée sur la largeur des pics. L'importante contribution du mode lent comparée à celle du mode rapide peut sembler surprenante du fait le l'épaisseur de métal entre la barrière et l'interface air/vide, d'autant plus que le couplage se fait à un ordre élevé de diffraction. On peut l'attribuer cependant à un confinement des fluctuations de courant autour de la barrière, sur une longueur  $\xi_{\perp}$  plus courte que la pénétration du mode rapide,  $\xi_{\perp} \ll 10$  nm. (a)



**Figure 3.18** – (a) Vu au microscope électronique à balayage de Ech45\_j910. La périodicité du réseau est de 1  $\mu$ m, avec une asymétrie de 70%. (b) Granulosité de la couche d'or, hors du réseau optique.



**Figure 3.19** – Couplages des différents modes plasmoniques de la jonction tunnel par le réseau. (a) Contribution des différents modes plasmoniques en fonction de l'émission en utilisant le modèle heuristique (3.15). La courbe en tirets résulte de la superposition non cohérente des trois contributions. (b) Comparaison de la courbe théorique avec les données expérimentales (normalisées à  $P_ph(\theta = 0)$ ). A la contribution du réseau optique, on ajoute une contribution isotrope de la rugosité, évaluée ici à 50%.

#### Puissance en fonction de la tension

La puissance collectée par le photodétecteur en fonction de la tension et du courant de polarisation est représentée figure 3.20 à  $\lambda = 1.3 \,\mu\text{m}$  et  $\lambda = 1.55 \,\mu\text{m}$ . On note bien le seuil en énergie à  $eV = hc/\lambda$ . On remarque également, que la dépendance de l'émission n'est linéaire ni en tension ni en courant à partir de ce seuil.



**Figure 3.20** – Puissance de photon émise par Ech45\_j910 et collectée par le photodétecteur, en fonction de la polarisation électrique, à  $\lambda = 1.3 \,\mu\text{m}$  et 1.55  $\mu\text{m}$ . Le temps d'acquisition pour chaque point en tension est de 5 secondes. La mesure de la puissance collectée à 1300nm est moyennée sur 14 courbes, celle à 1550nm sur 40 courbes, qui amène à un temps d'acquisition total de respectivement 2 heures et 5 heures. Les courbes en pointillé sont les courbes symétriques autour de l'axe V=0, mettant en évidence l'asymétrie de l'émission.

# **3.3.2** Mesure de $P_{ph}(V)$ sur une jonction en configuration Kretschmann

#### Montage

Le cône collé sur l'envers de l'échantillon assure la collimation des photons vers le système de détection. On utilise la lentille  $L_1$  pour faire converger le flux de photons vers le photodétecteur. Les photodiodes utilisées sont chacunes adaptées à la longueur d'onde de mesure (voir tableau 3.6). Le signal en sortie de la photodiode est amplifié par un amplificateur de courant externe bas bruit. Le gain est fixé à  $2 \times 10^8 \text{ V/A}$ , pour un bruit en courant de  $51 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Le bruit de la mesure est alors limité par la NEP de la photodiode.

#### Paramètres expérimentaux

Les paramètres expérimentaux sont résumés dans le tableau suivant :

$\lambda$	Photodiode	h (A/W)	$\Delta\lambda$	Gain $(V/A)$
$1300\mathrm{nm}$	SM05PD5A	0.85	$30\mathrm{nm}$	$2.10^{8}$
$900\mathrm{nm}$	SM05PD1A	0.55	$40\mathrm{nm}$	$2.10^{8}$

**Table 3.6** – Paramètres de la chaine de mesure de la puissance  $P_{Ph}$  émise par la jonction Jsaph19A



Figure 3.21 – Schéma du dispositif de mesure de  $P_{Ph}(V_b)$  pour la jonction en configuration Kretschmann. L'échantillon, le filtre et le détecteur sont placés dans un crysotat à ~100 K. La jonction est polarisée par une tension hachée à 7 Hz. Le courant de polarisation  $I_b$  est mesuré à partir de la chute de tension sur la résistance  $R_0$ . La caractéristique  $I_b(V_b)$  de la jonction est mesurée en configuration 4 fils. Les photons émis convergent grâce à la lentille  $L_1$  vers la photodiode. Un filtre optique placé entre l'échantillon et la lentille sélectionne les photons à  $\lambda \pm \Delta \lambda/2$ . La puissance lumineuse est mesurée de manière synchrone avec la tension de polarisation de la jonction.
#### Puissance mesurée

La puissance collectée par le photodétecteur en fonction de la tension et du courant de polarisation est représentée figure 3.22 à  $\lambda = 1.3$  µm et  $\lambda = 0.9$  µm. Comme pour l'échantillon précédent, on remarque une dépendance non linéaire de l'émission avec la tension ou le courant de polarisation.



**Figure 3.22** – Puissance de photon émise par la jonction Jsaph19A et collectée dans le photodétecteur, en fonction de la polarisation électrique, à  $\lambda = 1.3 \,\mu\text{m}$  et 0.9  $\mu\text{m}$ . Les courbes en pointillés sont les courbes symétriques autour de l'axe V=0.

#### 3.3.3 Violation de la relation fluctuation-dissipation

#### Estimation des pertes pour une étude quantitative

Afin d'extraire une impédance de couplage qui rend compte du couplage plasmonphoton, il faut renormaliser la puissance collectée par la transmission de la chaine de collecte des photons. Pour la jonction sur réseau, l'émission est quasi-isotrope (voir mesures en angle), on estime que la puissance dans l'angle solide  $\Omega < 2\pi$  sr captée par le microscope

équivaux à 13% de l'émission totale. La surface de la zone d'émission est déduite de la mesure de  $P_{ph}(x)$ . 47% du signal est capté par la lentille  $L_2$  de diamètre inférieur à celui de  $L_1$ . Enfin, on tient compte de la transmission  $T_{filtre} < 1$  du filtre optique. Le tableau 3.7 donne le résumé de ces paramètres, et le facteur correctif à apporter à la puissance collectée. On remarquera l'avantage de la configuration Kretschmann, avec un prisme conique pour l'efficacité de la collecte des photons.

	$\lambda$	surface	$\Omega/2\pi$	$(d_{L2}/d_{L1})^2$	$T_{filtre}$	$P_{em}/P_{col}$
Ech45_j910	$1.3\mu{ m m}$	$1.2 \times 10^{-7} \mathrm{m}^2$	0.13	0.47	0.4	164
	$1.55\mu{ m m}$	$1.2 \times 10^{-7} \mathrm{m}^2$	0.13	0.47	0.5	131
Jsaph19A	$1.3\mu{ m m}$	$10^{-8} \mathrm{m}^2$			0.4	2.5
	$0.9\mu{ m m}$	$10^{-8}{ m m}$			0.8	1.25

**Table 3.7** – Estimations des pertes dans le dispositif de collecte des photons. Le ratio puissance émise sur puissance collectée  $P_{em}/P_{col}$ , montre le net avantage de la configuration Kretschmann avec l'utilisation d'un prisme conique.

#### Extraction de l'impédance de rayonnement

Nous allons à présent déterminer la dépendance de l'émission avec la tension et le courant de polarisation. Dans un premier temps, nous avons utilisé la RFD à fréquence finie. D'après l'équation (1.39) du chapitre 1 :

$$S_{RFD}(\nu, V) = e[N(eV + h\nu)I_{DC}(V + h\nu/e) + (N(eV - h\nu) + 1)I_{DC}(V - h\nu/e)] \quad (3.17)$$

Cette relation présente l'avantage de ne dépendre que de quantités mesurables, la caractéristique courant-tension I(V) et la température T de la jonction. La figure 3.23 montre les mesures de  $P_{ph}(\nu, V)$  pour les deux échantillons, ainsi que le résultat théorique donné par la RFD. On remarque que l'échantillon avec réseau semble bien vérifier la RFD, avec pour impédance de rayonnement  $\mathcal{R}(1300 \text{ nm}) = 5 \text{ m}\Omega$  et  $\mathcal{R}(1550 \text{ nm}) = 0.8 \text{ m}\Omega$ . Cependant, pour l'échantillon en configuration Kretschmann, l'asymétrie de la dépendance en tension de la puissance n'est clairement pas expliquée par la RFD. L'écart au théorème fluctuationdissipation peut être représenté par le ratio :

$$R_{RFD} = \frac{P_{ph}(\nu, V)}{S_{RFD}(\nu, V)}$$
(3.18)

 $R_{RFD}$  est homogène à une impédance. Si  $P_{ph}(\nu, V)$  suit la RFD, alors  $R_{RFD} = cst = \mathcal{R}(\nu)$ . Sur la figure 3.24 on voit bien que  $R_{RFD}$  dépend de la tension pour l'échantillon en Kretschmann. On note, une légère dépendance de  $R_{RFD}$  pour l'échantillon sur réseau (dans une moindre mesure). Une autre particularité vient de l'asymétrie de  $R_{RFD}(V)$  avec la tension, l'effet est d'autant plus important lorsque l'on regarde à courte longueur d'onde (i.e. forte polarisation). Nous avons donc ici, de manière flagrante, une violation de la RFD dans cet échantillon. Il est important de noter que  $R_{RFD}$  est déduit uniquement de grandeurs mesurées, puisque  $S_{RFD}(\nu, V)$  est directement donnée par la caractéristique courant-tension.



**Figure 3.23** – Comparaison de la puissance  $P_{ph}(V)$  mesurée avec la puissance donnée par la relation de fluctuation-dissipation. On remarque, que la RFD semble expliquer la dépendance de l'émission de Ech45\_j910, mais ne rend pas compte de l'asymétrie de l'émission pour la jonction Jsaph19A.



**Figure 3.24** – Ratio *R* de la puissance mesurée à une fréquence avec la densité spectrale des fluctuations de courant à la même fréquence pour (a) Ech45\_j910 à  $\lambda = 1300$  nm (rouge) et  $\lambda = 1550$  nm(vert), (b) Jsaph19A à  $\lambda = 1300$  nm et (c)  $\lambda = 900$  nm. Les traits pleins sont les ratio de la puissance mesurée avec la densité spectrale donnée par Landauer-Büttiker, les points circulaires sont le ratio entre la puissance mesurée et la RFD. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux, servant à déterminer la valeur de l'impédance de rayonnement.

Dans le chapitre 1, nous avons dérivé une autre relation de fluctuation pour le bruit non-symétrique à fréquence finie à partir du formalisme de Landauer-Büttiker :

$$S_{LB}(\nu, V) = \alpha^2 S_{LL}(\nu, V) + (1 - \alpha)^2 S_{RR}(\nu, V) - 2\alpha(1 - \alpha) S_{LR}(\nu, V)$$
(3.19)

où  $\alpha$  est un coefficient tenant compte de l'asymétrie du couplage au mode plasmonique impliqué dans l'émission.  $\alpha < 0.5$  (resp. > 0.5) est en faveur de l'électrode du dessus (R) (resp. dessous (L)). Les trois termes doivent être calculés à partir de la transmission  $\mathcal{T}_{3D}(E, V)$  de la barrière. Nous avons déduit une valeur approchée de la transmission grâce à l'ajustement de la caractéristique I(V). Les  $S_{\alpha\beta}$  sont ensuite calculés à partir des équations (1.33) et (1.34).

Nous avons à présent deux paramètres ajustables par échantillon :  $\alpha(\nu)$  et  $\mathcal{R}(\nu)$ . La figure 3.24 représente les ratio  $R_{LB} = P_{ph}(V,\nu)/S_{LB}(\nu,V)$  pour les deux échantillons.  $\alpha(\nu)$ , est choisi de manière à obtenir un  $R_{LB}$  symétrique avec la tension.

Pour la jonction Ech45\_j910, la quasi symétrie de l'émission  $P_{ph}(V)$  à  $\lambda = 1300$ nm et 1550nm, qui semblait être expliquée par la RFD, l'est également par LB, en prenant un coefficient  $\alpha = 0.45$ . L'impédance de rayonnement déduite est cependant plus faible. Pour la jonction Jsaph19A, on obtient un ratio  $R_{LB}$  quasi constant pour  $V < -hc/\lambda$ . Il évolue cependant légèrement après  $V > hc/\lambda$ . Ceci n'est pas surprenant, puisque nous savons que la caractéristique I(V) mesurée à forte polarisation V > 1V, est mal ajustée par un modèle de barrière trapézoïdale. Nous pensons que cette erreur sur la forme du profil en énergie de la barrière se répercute également sur le calcul de  $S_{LB}(V,\nu)$  dans cette plage de tension.

L'ensemble de nos résultats expérimentaux est donc en accord avec la formulation de LB décrite par l'équation (3.19) et en désaccord avec la RFD (3.17).

On déduit donc les impédances de rayonnement pour les deux jonctions. L'impédance  $\mathcal{R}_{RFD}(\lambda)$  est la moyenne de  $R_{RFD}(\pm hc/\lambda)$ .  $\mathcal{R}_{LB}(\lambda)$  est déduite de la valeur moyenne de  $R_{LB}(V)$ :

	λ	$\mathcal{R}_{LB}(\lambda)$	$\mathcal{R}_{RFD}(\lambda)$	ratio $RFD/LB$
Ech45_j910	$1.3\mu{ m m}$	$2.3\mathrm{m}\Omega$	$5\mathrm{m}\Omega$	2.2
	$1.55\mu{ m m}$	$0.45\mathrm{m}\Omega$	$0.8\mathrm{m}\Omega$	1.8
Jsaph19A	$1.3\mu{ m m}$	$2.1\mathrm{m}\Omega$	$5\mathrm{m}\Omega$	2.4
	$0.9\mu{ m m}$	$2.6\mathrm{m}\Omega$	$15\mathrm{m}\Omega$	6

On remarque que, lorsque l'on considère la RFD, on sous-estime bien la densité spectrale de l'émission, d'un facteur ~ 2 à 1550nm et 1300nm et d'un facteur 6 à 900nm (voir fig. 1.16 p. 28). Il est donc important de redéfinir le rendement de la jonction à l'aide de  $S_{LB}$  et non de  $S_{RFD}$ .



**Figure 3.25** – Comparaison de la puissance  $P_{ph}(V)$  mesurée avec la puissance donnée par le formalisme de Landauer-Büttiker. On remarque que la théorie est en accord avec la mesure sauf pour  $V_b > 1.5$  V pour Jsaph19A. Cet écart correspond à la gamme de tension pour laquelle l'ajustement de la caractéristique  $I_b(V_b)$  est le moins bon.

#### 3.3.4 Rendement de l'émission

#### Comparaison avec la puissance Joule

Le rendement de l'émission de photons par une jonction tunnel est habituellement défini comme le taux de conversion électron-photon, ou efficacité quantique [85][81] :

$$\frac{n_{ph}}{n_e} = \frac{e}{I(V)} \frac{P_{ph}(\nu)}{h\nu}$$
(3.20)

On considère alors qu'un électron traversant la barrière a une certaine probabilité de relaxer son énergie sous la forme d'un photon. Le taux de conversion des jonctions Jsaph19A et Ech45\_j910 sont représenté figure 3.26 et 3.27, et sont comparés aux résultats données par LB et la RFD. On remarque que la RFD ne rend pas compte de la symétrie +V/-V du taux de conversion de Jsaph19A, au contraire de LB avec un couplage  $\alpha = 0.5$ . Dans le cas de Ech45\_j910, l'asymétrie +V/-V du taux de conversion est expliqué par l'asymétrie

du couplage  $\alpha = 0.57$ . A forte polarisation V > 1V, la RFD semble mieux s'ajuster à la mesure que le résultat donné par LB. Cependant, cette gamme de tension est celle où l'ajustement à la caractéristique I(V) par LB est le moins bon. Cette erreur se répercute sur le calcul du taux de conversion.



**Figure 3.26** – Rendement de l'émission de photon en nombre de photon par électron pour la jonction Ech45\_j910. La dépendance en tension semble suivre la RFD, mais peut également être donnée par LB avec un coefficient d'asymétrie du couplage  $\alpha = 0.45$ .

La définition du rendement par un taux de conversion électron/photon nous semble naïve, car un même électron à l'énergie  $eV > E - E_F > 0$  peut relaxer son énergie en émettant plusieurs photons à des énergies différentes, pourvu que l'énergie totale soit conservée. Il serait plus pertinent d'exprimer la puissance rayonnée dans l'environnement comme une fraction de la puissance dissipée dans la jonction, comme proposé par Hone et al. [20] :

$$\eta = \frac{P_{ray}}{P_J} \tag{3.21}$$



Figure 3.27 – Rendement de l'émission de photon en nombre de photon par électron pour la jonction Jsaph19A. On remarque que  $P_{ph}(V)/I_b(V)$  est symétrique en tension malgré l'asymétrie de  $P_{ph}(V)$ . On voit clairement que la RFD ne rend pas compte de cette asymétrie. Les mesures suivent cependant LB avec un coefficient d'asymétrie du couplage  $\alpha = 0.5$  à 1300 nm et  $\alpha = 0.48$  à 900 nm.

Supposons une jonction tunnel d'impédance  $R_T$ , polarisée par un courant continu I à la tension V. Cette jonction est couplée capacitivement à un environnement modélisé ici car la charge  $Z_L$  que l'on suppose constante sur toute la bande passante, connectée via une ligne de transmission adaptée d'impédance caractéristique  $Z_0 = Z_L$  (voir fig. 3.28). La puissance dissipée dans  $Z_L$  par les fluctuations de courant  $\delta i$  à T = 0 est donnée par :

$$P_{ray} = Z_L \delta i^2 \frac{1}{(1 + Z_L/R_T)^2} \qquad \text{avec } \delta i^2 = \int_0^{eV/h} eI\left(1 - \frac{h\nu}{eV}\right) d\nu = \frac{e^2 P_j}{2h} \tag{3.22}$$

où  $P_i$  est la puissance joule dissipée dans la jonction par le courant I. On remarque donc



**Figure 3.28** – Modélisation d'une jonction tunnel couplée à un environnement représenté par l'impédance  $Z_L$  et le cable coaxial adapté d'impédance caractéristique  $Z_0$ .

que la puissance rayonnée par  $Z_L$  est une fraction de la puissance joule. Dans le cas d'un environnement de faible impédance  $R_T \gg Z_L$ , le rendement  $\eta$  devient :

$$\eta = \frac{P_{ray}}{P_i} = \frac{Z_L}{2R_k} \tag{3.23}$$

avec  $R_k = h/e^2 \approx 26 \,\mathrm{k\Omega}$ . Dans notre cas, le calcul du rendement est plus complexe, car il fait intervenir les densités spectrales  $S_{\alpha\beta}$ . De plus l'environnement électromagnétique de la jonction représenté par l'impédance  $\mathcal{R}(\nu)$ , n'a pas été évalué sur l'ensemble du spectre  $\nu \in [0, eV/h]$ . Appliquons cependant naïvement, le modèle ci-dessus à notre jonction, en prenant  $\mathcal{R} = cst$ . On calcule numériquement l'amplitude des fluctuations de courant dans Jsaph19A  $\delta i^2 = \int_0^\infty S_{II}(\nu, V) d\nu$ , en fonction de la puissance joule dissipée (voir fig. 3.29). Dans le cas d'une jonction linéaire,  $\delta i^2 = P_j/2R_k$ . Nous remarquons que l'on retrouve le rendement  $\eta$  défini par (3.23) à basse polarisation, et que ce dernier a diminué de 25% à forte polarisation (3mW). Il est également très important de remarquer que  $\eta$  est symétrique en  $P_j(\pm V)$ , au contraire du taux de conversion électron-photon intégré  $\delta i^2/I$ , montrant bien que la puissance joule dissipée  $P_j$  dans la jonction est bien la grandeur à comparer à la puissance rayonnée, et non le courant I pour exprimer le rendement de l'émission de la jonction.



**Figure 3.29** – Simulation de l'amplitude des fluctuations de courant dans Jsaph19A donnée par le spectre intégré  $\delta i$  (en rouge) sur  $\nu = [0, eV/h]$ , en fonction de la puissance Joule dissipée. La pente  $(2R_Q)^{-1}$  correspond au cas attendu pour une jonction linéaire. En bleu, taux de conversion électron/photon  $\delta i^2/I$  intégré sur  $\nu = [0, eV/h]$ .

#### 3.3.5 Confinement des corrélations

Dans la section 1.3.2, le coefficient  $\alpha$  a été défini en fonction de la longueur de corrélation  $\xi_{\perp}$  et de l'asymétrie de la composante transverse du champ électrique de part et d'autre de la barrière :

$$\alpha = \frac{A_L}{A_L + A_R} \tag{3.24}$$

$$A_R = \int_{d/2}^{l} dz \, E_z(z) e^{-z/\xi_\perp} \qquad A_L = \int_{-l}^{-d/2} dz' E_z^*(z') e^{z'/\xi_\perp} \tag{3.25}$$

avec d'l'épaisseur de la barrière tunnel, l'l'épaisseur d'une électrode. Pour rappel  $\xi_{\perp}$  est la longueur sur laquelle sont confinées les fluctuations de courant aux fréquences optiques autour de la barrière. Le coefficient  $\alpha$  extrait de nos mesures, à trois longueurs d'onde et sur deux échantillons varie entre 0.45 et 0.5. Prenons le cas de la jonction en montage Kretschmann. Nous savons que le mode plasmonique couplé au champ lointain est le mode rapide localisé à l'interface vide/métal. Le champ électrique associé à ce mode pénètre dans la jonction sur une distance  $\delta = c/\omega_P = 13$  nm. La jonction étant d'épaisseur 10 nm, le champ électrique sera plus important dans l'électrode supérieure (coté vide, ou R) que dans l'électrode inférieure (coté saphir, ou L). Un coefficient  $\alpha$  proche de 0.5 ne peut être expliqué que par une longueur de corrélation  $\xi_{\perp}$  très inférieure à  $\delta$ . Dans notre modèle, les fluctuations de courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel sont donc confinées autour de la barrière. Le traitement du cas de la jonction Ech45\_j910 est plus délicat, car comme le montre la mesure de la puissance émise en fonction de l'angle, l'émission est la somme des contributions des trois modes plasmoniques. Rendre compte de l'asymétrie  $\alpha = 0.45$ , nécessiterait la connaissance de la dépendance du champ électrique de chaque mode avec la position dans la nanostructure.

#### 3.3.6 Reproductibilité

L'émission de plusieurs jonctions similaires à Jsaph19A dans leur fabrication (Jsaph16B, 17A, 17B) a été mesurée en bande large  $\Delta \lambda = 800\text{-}1700 \text{ nm}$  (voir fig. 3.30). Ces jonctions sont similaires électriquement, comme le montre la comparaison des caractéristiques I(V)(la jonction Jsaph17B possède une résistance à polarisation nulle plus faible que les deux autres, mais sa caractéristique I(V) s'ajuste avec un facteur numérique). On note les dépendances de  $P_{ph}$  avec la tension est similaire pour ces trois jonctions. Ceci prouve que pour un profil de barrière donné, la dépendance de  $P_{ph}(\nu, V)$  est totalement déterminée et qu'elle ne dépend que de la transmission de  $\mathcal{T}(E, V)$ .

Échantillon	Couches (nm)	R(V=0)
Jsaph16B	SiO(20)/Al(7)/Ox/Al(7)/SiO(10)	$4.8\mathrm{k}\Omega$
Jsaph17A	SiO(20)/Al(5)/Ox/Al(5)/SiO(10)	$4.1\mathrm{k}\Omega$
Jsaph17B	SiO(20)/Al(5)/Ox/Al(5)/SiO(10)	$2.7\mathrm{k}\Omega$



**Figure 3.30** – (a) Caractéristiques courant-tension de jonctions similaires à Jsaph19A. (b) Puissance émise en fonction de la tension pour ces mêmes jonctions. Les tirets délimitent la plage de tension pour laquelle eV est dans la bande passante en énergie du détecteur.

### 3.4 Interprétation des résultats

#### 3.4.1 Position du problème

Nous avons mesuré la puissance de photon émise par une jonction tunnel aux longueurs d'onde infrarouges en fonction de la tension de polarisation. Nous avons explicité les dépendances en tension et en fréquence de cette puissance lumineuse  $P_{ph}(\nu, V)$ . Nous sommes partis pour cela d'un modèle basé sur un couplage des fluctuations de courant aux fréquences optiques dans les électrodes avec le champ de photon. La densité spectrale des fluctuations de courant a été dérivée dans la section 1.1 via le formalisme de Landauer-Büttker. Dans cette même section nous avons interprété le bruit à fréquence finie comme recombinaisons « électron-trou » dans les réservoirs, se produisant après des événements tunnel élastiques.

Cependant, au sein des communautés étudiant l'émission de lumière par des jonctions planaires, des jonctions ponctuelles ou des pointes STM (microscopie tunnel à balayage), c'est l'hypothèse d'une émission par des événements tunnel inélastiques qui est la plus répandue[81, 85, 86]. Les modèles théoriques d'émission [19, 20, 87] sont en effet en faveur d'une émission par des événements tunnel inélastiques, avec un terme source localisé dans la barrière, au vu des rendements observés. Suite aux mesures d'émission de photons par une pointe STM[46, 88, 89], la question de l'origine de l'émission de photons a été partiellement résolue. Persson et Baratoff[47], ont proposé l'existence d'une contribution élastique et inélastique à l'émission de photons par une pointe STM au dessus d'une particule métallique (voir fig. 3.31). Les électrons tunnelant de manière élastique se couplent au plasmon au sein de la particule métallique, avec un rendement de 100 à 1000 fois inférieur à ceux tunnelant de manière inélastique.



**Figure 3.31** – Interprétation de Persson et Baratoff issue de [47] de l'émission de lumière par des processus tunnel élastiques et inélastiques dans une pointe STM. Les électrons tunnelent depuis une pointe représentée par une sphère de faible rayon vers une particule elle aussi sphérique. (a) Effet tunnel inélastique avec excitation d'un plasmon suivit de l'émission d'un photon. (b) Effet tunnel élastique suivit de l'excitation d'un plasmon par relaxation de l'électron dans l'électrode, suivi dans un deuxième temps d'une émission de photon.

Dans toutes ces études théoriques, la densité spectrale des fluctuations de courant considérée est celle d'une jonction linéaire :  $S_{II}(h\nu, V) = eI [1 - h\nu/eV]$ . Nous avons montré précédemment que cette approximation mène à une erreur quantitative sur le calcul de la densité spectrale des fluctuations et donc du rendement de l'émission. De plus, il est difficile de collecter l'intégralité de la lumière émise par la jonction (nécessite des optiques de grande ouverture numérique) et d'évaluer précisément la dissipation dans les couches métalliques. Nous allons voir dans quelle mesure la dépendance en tension de la puissance lumineuse  $P_{ph}(eV)$  permettrait de distinguer entre les deux processus d'émission possibles :

- (a) Processus tunnel inélastique avec excitation de plasmon suivi de l'émission de photon.
- (b) Processus tunnel élastique suivit d'une excitation de plasmon par relaxation de l'électron dans l'électrode, suivit d'une émission de photon.

#### 3.4.2 La relation fluctuation-dissipation et processus inélastiques

La relation fluctuation dissipation a été dérivée par Rogovin et Scalapino [68] à partir d'une théorie de la réponse linéaire au premier ordre en le Hamiltonien tunnel. La quantité calculée est explicitement le courant traversant la barrière tunnel  $I_T$ . L'interprétation des processus d'excitation des modes plasmoniques vue précédemment, semble associer la RFD à la description de processus inélastiques. Pour développer cette interprétation, nous allons décrire trois situations expérimentales où la RFD s'applique pour la description du bruit à fréquence finie dans le domaine des fréquences micro-onde.

#### Cas d'une jonction linéaire

On considère une barrière tunnel de transmission constante, c'est-à-dire, très grande devant les énergies en jeu. C'est le cas par exemple lorsque l'on mesure le bruit aux fréquences micro-ondes (GHz $\sim$ µeV). La caractéristique I(V) est alors linéaire :

$$I = \frac{V}{R_T} = \frac{2e^2}{h}\mathcal{T}V \tag{3.26}$$

où  $R_T$  est la résistance tunnel alors constante. Comme démontré dans la section 1.1.3 les densités spectrales de bruit  $S_{\alpha\beta}$  deviennent :

$$S_{LL} = S_{RR} = -S_{LR} = S_{lin}(\nu, V) = \frac{e}{R_T} \left[ (V + h\nu/e)N(eV + h\nu) + (V - h\nu/e)\left[N(eV - h\nu) + 1\right] \right]$$
(3.27)

où les N(E) sont des distributions de Bose-Einstein. Ce résultat n'est autre que la RFD (3.2) pour une jonction linéaire :  $I(V) = V/R_T$ . La puissance de photons émise avec notre modèle élastique augmente linéairement avec la tension V à partir d'un seuil à  $V = h\nu/e$ . Dans le cas d'une mesure effectuée dans le domaine micro-onde, la grandeur mesurée à l'aide d'un amplificateur linéaire et d'un détecteur quadratique est le bruit symétrisé[29] :

$$S^{sym} = \frac{S(\nu) + S(-\nu)}{2}$$
(3.28)

$$S_{lin}^{sym}(\nu, V) = \frac{e}{R_T} \left[ (V + h\nu/e) \coth\left(\frac{eV + h\nu}{2k_BT}\right) + (V - h\nu/e) \coth\left(\frac{eV - h\nu}{2k_BT}\right) \right] \quad (3.29)$$

Une mesure à fréquence finie dans une jonction tunnel réalisée par *Gabelli et al.* (et précedement par Schoelkopf *et al.* [90]) dans ce régime est présentée figure (3.32).



**Figure 3.32** – Mesure du bruit symétrisé à fréquence finie par *Gabelli et al.*[28], dans une jonction tunnel linéaire.

#### 3.4. INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS

#### Cas d'une jonction SIS

Une jonction SIS est une jonction tunnel dont les électrodes sont constituées d'un matériau supraconducteur à basse température. La mesure du bruit non symétrisé à fréquence finie dans ce système décrite ci dessus a été réalisée par Basset *et al.*[26]. Deux jonctions Josephson supraconductrices sont couplées par l'intermédiaire d'un circuit résonant de fréquence caractéristique  $\nu_1 = 30$  GHz. La première, désignée comme source, est polarisée à une tension  $V_s > 2\Delta/e$ , avec  $\Delta$  le gap supraconducteur, de sorte qu'elle est traversée par un courant de quasi-particules :

$$I_{qp} = \frac{e}{h} \int dE \,\mathcal{T}\rho_{qp}(E+eV)\rho_{qp}(E) \left[f(E+eV) - f(E)\right]$$
(3.30)

 $\rho_{qp}$  est la densité d'état des quasiparticules, dépendante de l'énergie.  $\rho_N(E)$  est la densité d'état électronique du métal à l'état normal.

$$\rho_{qp}(E) = \begin{vmatrix} 0 & \text{pour } : |E| \le \Delta \\ \rho_N(E) \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}} & \text{pour } : |E| > \Delta \end{vmatrix}$$
(3.31)

Le bruit non symétrisé à la fréquence finie de ce système est détecté par la seconde jonction Josephson polarisée à la tension  $V_d$ . Cette dernière joue le rôle de photo-détecteur permettant, par une simple mesure de courant photo-assisté  $I_{PAT}(V_s)$ , de mesurer le bruit en émission pour  $V_d < \frac{2\Delta}{e}$  et en absorption pour  $V_s > \frac{2\Delta}{e}$ . L'utilisation d'un circuit résonnant couplant source et détecteur permet d'adresser le bruit à une fréquence donnée. La figure 3.34, montre la mesure de la dépendance du bruit en émission  $S_{II}(V_S, \nu_1)$  de la jonction source avec la tension  $V_S$ , ainsi que la caractéristique  $I_S(V_S)$ . On remarque que  $S_{II}(V, \nu_1)$  pour V > 0 est donné par  $I_S(V_S - h\nu_1/e)$ , vérifiant la RFD (3.17).



**Figure 3.33** – A gauche, courant de quasiparticules  $I_P$  dans une jonction supra-isolantsupra en fonction de la tension de polarisation V. Le seuil en énergie  $2\Delta$  correspond à l'énergie nécessaire à la création de quasiparticules dans les électrodes. A droite, densité d'état des quasiparticules dans les électrodes.

La non linéarité de la caractéristique I(V) est ici due à la dépendance en énergie de la densité d'état des quasi-particules dans les électrodes mais la transmission tunnel vue par les particules est constante  $(I_S(V_S)$  est linéaire après  $V_S > 2\Delta/e$ ). Nous sommes donc dans un cas où l'approche de Landauer-Buttiker redonne la RFD (voir section 1.1.3 page 14).



**Figure 3.34** – Résultats expérimentaux de *Basset et al.* issus de la référence [26]. (a) En bleu, caractéristique  $I_S(V_S)$  de la jonction source. En noir et en rouge, courant photoassité apparaissant dans la jonction détectrice voisine. (b) En rouge et noir Densité spectrale du bruit en émission de la jonction source déduite de la mesure de  $I_{PAT}$  à 28.4 GHz et 80.2 GHz. Les lignes en point-tiret représentent la densité spectrale donnée par la RFD.

#### Cas d'une jonction tunnel en régime de blocage de Coulomb Dynamique

Lorsqu'un conducteur cohérent est placé dans un environnement d'impédance non nulle, les fluctuations de courant dans ce conducteur sont converties en fluctuations de tension à ses bornes. Cet effet d'environnement peut être interprété comme une rétroaction négative, entrainant un « blocage de charge ». La caractéristique courant-tension du conducteur est alors modifiée à basse tension. Ce phénomène est appelé blocage de coulomb dynamique (BCD) et est expliqué dans le cadre de la théorie P(E) que nous développerons un peu plus loin.

Parlavecchio *et al.*[5] ont adressé la question de l'effet du BCD sur la densité spectrale de bruit d'une jonction intrinsèquement linéaire. La figure (voir fig. 3.35a) montre la nonlinéarité induite par l'environnement (ici un circuit résonnant à la fréquence  $\nu_0 = 4.1 \text{ GHz}$ ) sur la caractéristique I(V) d'une jonction tunnel à  $V = h\nu_0/e$  et  $V = 2h\nu_0/e$ . Ces tensions correspondent à l'énergie à apporter aux électrons pour qu'ils relaxent leur énergie sous la forme de un ou deux photons à la fréquence  $\nu_0$ .

La densité spectrale du bruit à fréquence finie  $S_{II}(V, \nu_0)$  montre une singularité à  $V = h\nu_0/e$ , c'est le seuil de détection du bruit en émission. Une autre singularité apparait à  $V = 2h\nu_0/e$ . Cette dernière est la réplique de la singularité dans la caractéristique I(V) à  $V = h\nu_0/e$ . La dépendance en tension de  $S_{II}(\nu, V)$  est alors donnée par la caractéristique non linéaire I(V) selon la RFD.



**Figure 3.35** – Résultats expérimentaux de Parlavecchio *et al.*[5]. Dérivée de la densité spectrale du bruit à fréquence finie avec la tension à  $\nu_0 = 4.1$  GHz, dans l'encart, non linéarité induite par l'environnement dans la caractéristique I(V). Les cerles noirs sont les résultats expérimentaux, les tirets bleus représentent la courbe attendue pour une jonction tunnel linéaire. La singularité dans  $S_{II}$  à  $V = h\nu_0/e$  est liée au seuil de détection. La singularité à  $V = 2h\nu_0/e$  est la réplique de la singularité de la I(V) à  $V = h\nu/e$ . La courbe en rouge est donnée par la relation fluctuation-dissipation.

#### Théorie P(E)

Le bruit à fréquence finie dans les trois cas expérimentaux présentés précédemment suit la RFD. Ces trois cas peuvent être décrit par la théorie P(E) du blocage de Coulomb dynamique, les deux premiers étant des cas limites d'un environnement faiblement impédant  $Z_{env} \ll R_Q$ . L'hypothèse de base de la théorie P(E) est la suivante : Le passage d'un électron dans un conducteur cohérent est conditionné par la possibilité que celui-ci a de relaxer son énergie dans l'environnement. La théorie P(E) décrit donc par construction un processus tunnel inélastique. Après une brève description du formalisme, nous présenterons le résultat de Parlavecchio *et al.* reliant P(E) à  $S_{II}$ . Le transport électrique est déduit dans la limite tunnel à l'aide d'une théorie de la perturbation. On décrit le système par le Hamiltonien :

$$H = H_L + H_R + H_T + H_{env} \tag{3.32}$$

avec  $H_{L/R}$  le Hamiltonien des électrons dans les électrodes :

$$H_{L/R} = \sum_{k,\sigma} \epsilon_k c^{\dagger}_{k,\sigma} c_{k,\sigma} \tag{3.33}$$

 $\epsilon_k$  est l'énergie d'un électron de vecteur d'onde k,  $c_{k,\sigma}^{\dagger}$  (resp.  $c_{k,\sigma}$ ) est l'opération de création (resp. annihilation) d'un électron de vecteur d'onde k et de spin  $\sigma$ . Le couplage

tunnel entre les électro des est introduit par le Hamiltonien tunnel (1.9) avec un terme supplémentaire  $e^{-i\hat{\varphi}}$  :

$$H_T = \sum_{kq\sigma} T_{kq} c_{q\sigma}^{\dagger} c_{k\sigma} e^{-i\hat{\varphi}} + H.c.$$
(3.34)

L'opérateur  $\exp(-i\hat{\varphi})$  agit comme un opérateur de translation d'une charge élémentaire d'une électrode à l'autre. En présence d'un environnement le transfert d'une charge induit une différence de potentiel U entre les deux réservoirs reliée à l'opérateur  $\varphi$  par :  $\hat{\varphi}(t) = e/\hbar \int_{-\infty}^{t} U(t') dt'$ . Ce terme décrit le couplage entre les modes électroniques de la jonction  $(c_{k,\sigma}^{\dagger}, c_{k,\sigma})$  et les modes électromagnétiques de l'environnement  $(\hat{\varphi})$ .

 $H_{env}$  est l'Hamiltonien de l'environnement. Dans le cadre du formalisme de Caldeira-Leggett, on peut décrire tout environnement électromagnétique dissipatif comme une collections d'oscillateurs harmoniques de fréquence  $\nu_k[91]$ :

$$H_{env} = \sum_{k=0}^{N} h\nu_k \left( a^{\dagger}a + \frac{1}{2} \right)$$
(3.35)

où  $a^{\dagger}$  (resp. a) est l'opérateur de création (resp. annihilation) d'un photon de fréquence  $\nu_k$  dans l'oscillateur harmonique désigné par l'indice k. Le taux de transfert est dérivé à partir de la règle d'or de Fermi (1.7) :

$$\Gamma_L(V) = \frac{2\pi}{h} \int_{-\infty}^{\infty} dE dE' \mathcal{T}(E) f(E) (1 - f(E' + eV)) \sum_{R,R'} |\langle R'|e^{-i\varphi}|R \rangle|^2 P(R) \delta(E - E' - E_R + E'_R)$$
(3.36)

 $|R\rangle$  et  $|R'\rangle$  sont les états initiaux et finaux de l'environnement, d'énergie  $E_R$  et  $E'_R$ , ce sont les états propres de l'environnement en l'absence de perturbation. P(R) est la probabilité de trouver l'environnement dans l'état R. La somme sur les état  $|R\rangle$ ,  $|R'\rangle$  définit la probabilité P(E - E') de transférer une énergie E - E' dans l'environnement. Dans le cas d'une jonction linéaire ( $\mathcal{T} = cst$ ) le taux de transfert devient :

$$\Gamma_L(V) = \frac{1}{e^2 R_T} \int_{-\infty}^{\infty} dE dE' f(E) \left[ 1 - f(E' + eV) P(E - E') \right]$$
(3.37)

Nous mettons en évidence ici le fait que le taux de transfert d'un électron, donc le transport dans la jonction tunnel est conditionné par la probabilité d'échanger une énergie E - E'avec l'environnement pendant un processus tunnel. La probabilité P(E) peut s'exprimer en fonction de la fonction de corrélation phase-phase J(t) [92] :

$$P(E) = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp[J(t) + iEt/\hbar]$$
(3.38)

J(t) est reliée par le théorème fluctuation-dissipation à l'impédance  $Z_t(\omega)$  du circuit constitué de l'environnement et de la capacité de la jonction en parallèle. A température nulle :

$$J(t) = 2 \int_0^\infty \frac{d\omega}{\omega} \frac{\operatorname{Re}[Z_t(\omega)]}{R_K} \left(e^{-i\omega t} - 1\right)$$
(3.39)

#### 3.4. INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS

avec  $R_K = h/e^2 \approx 25.8 \,\mathrm{k\Omega}$  le quantum de résistance. Nous voyons ici qu'en l'absence d'environnement  $(Z_t = 0)$ , les fluctuations de la phase disparaissent, et  $P(E) = \delta(E)$ . Avec (3.37), et la définition du courant  $I = e(\Gamma_L - \Gamma_R)$ , on retrouve une caractéristique I(V) linéaire.

Considérons un environnement constitué d'un seul oscillateur harmonique monomode à la fréquence de résonance  $\omega_s = 1/\sqrt{LC}$ . *L* est une inductance placée en parallèle de la jonction et *C* la capacité de la jonction. La partie dissipative de l'impédance est donnée par :  $\operatorname{Re}[Z_t(\omega)] = \frac{\pi}{2C}(\delta(\omega - \omega_s) + \delta(\omega + \omega_s))$ , le calcul détaillé dans [92] montre que P(E) devient, a température nulle :

$$P(E) = \sum_{k=0}^{\infty} p_k \delta(E - k\hbar\omega_s) \quad \text{avec} \quad p_k = e^{-E_c/\hbar\omega_s} \frac{1}{k!} \left(\frac{E_c}{\hbar\omega_s}\right)^k \quad (3.40)$$

où  $E_c = e^2/(2C)$  l'énergie de charge de la jonction.  $p_k$  peut être interprété comme la probabilité d'émettre k photons à la fréquence  $\omega_s$  dans l'oscillateur. La caractéristique I(V) présente alors des singularités à  $V = \hbar \omega_s/e$ :

$$I(V) = \frac{1}{eR_T} \sum_{k=0}^{n} p^k \left( eV - k\hbar\omega \right)$$
(3.41)

avec *n* le plus grand entier inférieur à  $|eV/\hbar\omega_s|$ , comme observé expérimentalement figure 3.35. En utilisant une théorie de la réponse linéaire. Parlavecchio *et al.* ont alors relié la probabilité P(E) à la densité spectrale de bruit pour retrouver la RFD :

$$I(V) = \frac{1}{eR_T} \left(\gamma * P(eV) - \gamma * P(-eV)\right)$$
(3.42)

$$S_{II}(V) = \frac{2}{R_T} \left( \gamma * P(eV - h\nu) + \gamma * P(-eV - h\nu) \right)$$
(3.43)

où  $\gamma * P(E) = \int dE' \gamma(E') P(E - E')$  avec  $\gamma(E) = \frac{E}{1 - exp(-E/k_BT)}$ .

#### Interprétation

La théorie P(E) décrit explicitement des processus tunnel inélastiques. En effet l'échange d'énergie avec l'environnement, représenté ici par la fonction P(E) se fait lors du transfert tunnel. L'expérience de Parlavecchio *et al.* montre que la relation fluctuation-dissipation s'applique dans un régime ou une jonction tunnel est en interaction avec l'environnement électromagnétique. Cette interaction est interprétée comme un échange de photons de basse énergie (~20 µeV) entre la jonction et l'environnement via des processus tunnel inélastique. Dans la section 1.1, nous avons vu que notre dérivation de la densité spectrale du bruit à fréquence finie, basée sur une théorie élastique, ne redonnait la RFD que dans le cas d'une transmission constante. Nous savons que la non linéarité de nos jonctions est due à une transmission tunnel dépendante de l'énergie et de la tension, et non à un effet d'environnement. Cette non linéarité « intrinsèque » nous permet donc de discriminer entre les processus « élastique » et « inélastique » à l'origine de l'émission de photons. Sous réserve que la relation fluctuationdissipation soit étendue avec une théorie inélastique au cas d'une transmission  $\mathcal{T}(E, eV)$ , nous pouvons conclure que la violation de la RFD est en faveur d'une vision élastique de l'émission de photons par une jonction tunnel.

#### 3.4.3 Courant dans la barrière

Le formalisme de Landauer-Büttiker traite la barrière tunnel comme un conducteur sans extension spatiale, nous avons donc considéré uniquement les courants  $I_L(\nu)$  et  $I_R(\nu)$ dans les réservoirs. Nous avons utilisé le modèle de Laks et Mills (voir section 1.3) en couplant les fluctuations de courant aux fréquences optiques à la composante transverse du champ électrique des modes plasmoniques uniquement dans les réservoirs. Dans la réalité, la barrière tunnel diélectrique a une épaisseur finie  $d \sim 1$  nm et le champ électrique  $E_z(z)$  est défini dans la barrière. Ceci pose question : Doit-on considérer un courant dans la barrière ?

Cette question a déjà été abordée par Lee et Levitov [93] dans le cadre du blocage de Coulomb dynamique. Ils ont en effet montré que la densité spectrale de bruit  $S_{RR}$  mesurée dans les électrodes (considérées comme un environnement d'impédance R) n'est pas nécessairement égale à la densité spectrale de bruit du courant tunnel  $S_{TT}$ . Cette différence apparait à haute fréquence notamment lorsque l'environnement est fortement impédant  $(R \gg R_k)$  et que le temps de relaxation de la charge  $\tau = RC$  induit des effets d'accumulation de charge pour  $\omega > 1/RC$ . Ce travail a récemment été généralisé au cas du contact ponctuel quantique par Altimiras *et al.*[94], faisant apparaître explicitement le degré de liberté de charge interne au conducteur. Ce travail s'inscrit dans une problématique plus générale : celle du transport électronique quantique non linéaire qui nécessite la détermination de manière auto-consistante du champ électrique à l'intérieur du conducteur [95]. Dans le cas qui nous intéresse, aux fréquences optiques, un moyen simple de définir le courant dans la barrière tunnel est de considérer le courant moyen [37, 94] :

$$I_T(\nu) = \frac{1}{2} \left[ I_L(\nu) - I_R(\nu) \right]$$
(3.44)

Le facteur 1/2 permet de retrouver la conservation du courant :  $\langle I_T \rangle = \langle I_L \rangle = - \langle I_R \rangle$ . Sommes-nous capables de discriminer la contribution d'un courant dans la barrière à l'émission de photons si il existe ? On inclut de manière ad-hoc les fluctuations de courant dans la barrière, dans le modèle de Laks et Mills présenté section 1.3 en redéfinissant  $S_{II}(z, z')$ à partir des  $S_{\alpha\beta}(z, z') = \langle I_{\alpha}(\omega)I_{\beta}(-\omega) \rangle$  (voir tab. 3.8).

#### 3.4. INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS

	z < -d/2	-d/2 < z < d/2	z > d/2
z' < -d/2	$S_{LL}e^{\frac{z+z'-d}{\xi_{\perp}}}$	$S_{TL}e^{-rac{z'-d/2}{\xi_{\perp}}}$	$S_{RL}e^{-\frac{z-z'}{\xi_{\perp}}}$
-d/2 < z' < d/2	$S_{LT}e^{-\frac{d/2-z}{\xi_{\perp}}}$	$S_{TT}$	$S_{RT}e^{-\frac{z-d/2}{\xi_{\perp}}}$
z' > d/2	$S_{LR}e^{-\frac{z'-z}{\xi_{\perp}}}$	$S_{TR}e^{-\frac{-z'-d/2}{\xi_{\perp}}}$	$S_{RR}e^{-\frac{z+z'-d}{\xi_{\perp}}}$

Table	3.	8
-------	----	---

-d <sub>1</sub>	-d	/2 0	d/2	<b>d</b> <sub>2</sub>
	$\overrightarrow{\hat{I}_L}$	$\hat{I}_{T}$		$-\hat{I}_R$ F >0
	Réservoir (L)	Barrière		
		Damere		

**Figure 3.36** – Extension du modèle de Laks et Mills avec un courant ajouté de manière ad hoc dans la barrière. La composante transverse du champs électrique  $E_z$  change de signe entre les électrodes métalliques et le diélectrique en raison du changement de signe de la permittivité.

Avec  $\xi_{\perp}$  une longueur d'atténuation phénoménologique des fluctuations de courant dans les électrodes. On considère que l'amplitude des fluctuations de  $I_T$  n'ont pas de dépendance spatiale dans la barrière. On définit les intégrales :

$$A_L = \int_{-d_1}^{-d/2} E_z(z) e^{-\frac{|z+d/2|}{\xi_\perp}} dz > 0$$
(3.45)

$$A_R = \int_{d/2}^{d_2} E_z(z) e^{-\frac{|z-d/2|}{\xi_\perp}} dz > 0$$
(3.46)

$$A_T = -\int_{-d/2}^{d/2} E_z(z)dz > 0 \tag{3.47}$$

Le champ  $E_z$  est de signe opposé dans la barrière, par rapport au champ dans le métal, car  $\epsilon_m < 0$  dans le métal et  $\epsilon_T > 0$  dans la barrière diélectrique. On considère ici le champ  $E_z$  associé au mode plasmonique couplé au champ de photons.

$$P_{ph} \propto A_L^2 S_{LL} + A_R^2 S_{RR} + A_T^2 S_{TT} - 2A_L A_R S_{LR} - 2A_L A_T S_{LT} + 2A_R A_T S_{RT}$$
(3.48)

Avec la définition ad hoc du courant dans la barrière (3.44), on peut exprimer les densités spectrales  $S_{\alpha,T}$ ,  $\alpha = L, R, T$  en fonction de  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$ :

$$S_{LT} = \frac{1}{2} \left[ S_{LL} - S_{LR} \right] \qquad S_{RT} = \frac{1}{2} \left[ S_{LR} - S_{RR} \right] \qquad S_{TT} = \frac{1}{4} \left[ S_{LL} + S_{RR} - 2S_{LR} \right] \quad (3.49)$$

En insérant les relations (3.49) dans (3.48), nous obtenons la nouvelle impédance de rayonnement :

$$P_{ph} = \mathcal{R}(\nu) \left[ \alpha'^2 S_{LL} + \beta'^2 S_{RR} - 2\alpha' \beta' S_{LR} \right] \Delta \nu$$

$$\alpha' = \left( A_L - \frac{A_T}{2} \right) \frac{1}{A_L + A_R + A_T} \qquad \beta' = \left( A_R - \frac{A_T}{2} \right) \frac{1}{A_L + A_R + A_T}$$
(3.50)

Dans la limite où le couplage s'annule dans la barrière  $A_T \to 0$ , on retrouve bien la formule de la puissance émise dans les électrodes (3.1). Si le couplage courant-photon dans les électrodes est symétrique,  $A_L = A_R$ , alors  $\alpha = \beta$  pour tout  $A_T$ . On ne peut distinguer qualitativement une contribution d'un courant dans la barrière avec l'asymétrie de l'émission, seule une mesure quantitative avec une connaissance de  $\mathcal{R}(\nu)$  serait pertinente. Dans la limite ou le couplage dans la barrière domine l'émission,  $A_T \gg A_L, A_R$ , on retrouve également la situation symétrique  $\alpha = \beta$ .

#### Réponse sur la localisation du couplage

Nous avons extrait de nos mesures d'émission de photons présentées dans la section précédente, les coefficients de couplage suivants :

Échantillon	$\lambda$ (µm)	$\alpha$	$\beta$
Ech45_j910	1.3	0.45	0.55
	1.55	0.45	0.55
Jsaph19A	1.3	0.5	0.5
	0.9	0.48	0.52

Comme nous l'avons vu précédemment, la jonction Jsaph19A présente un couplage symétrique  $\alpha = \beta$ . Connaissant la dépendance du champ électrique du mode rapide avec la position z, nous avons déduit que le couplage entre les fluctuations de courant et les photons est confiné autour de la barrière. La légère différence entre  $\alpha(0.9\,\mu\text{m})$  et  $\alpha(1.3\,\mu\text{m})$ est cohérent avec une longueur de pénétration  $\delta$  du mode rapide qui augmente avec la longueur d'onde, bien que d'après le modèle d'une interface métal/vide simple,  $\delta$  varie peu avec la longueur d'onde entre  $0.9\,\mu\text{m}$  et  $1.3\,\mu\text{m}$  (voir figure 1.9 page 19). D'après l'analyse de la section précédente, nous pouvons également expliquer cette symétrie par un couplage dans la barrière. La jonction Ech45\_j910 présente un couplage légèrement asymétrique. Contrairement à la jonction Jsaph19A, une partie de l'émission par Ech45\_j910 vient de la contribution du mode plasmonique lent, localisé dans et autour de la barrière tunnel. Si l'émission était majoritairement liée au courant dans la barrière, le couplage des fluctuations au mode lent donnerait un couplage symétrique. L'asymétrie observée montre que la contribution d'un couplage dans les électrodes est bien présente. Il est donc difficile de déterminer la localisation exact du couplage électron-photon, cependant nous pensons qu'il est raisonnable de considérer un couplage dans les électrodes, puisque nous disposons d'une interprétation de  $S_{LL}$ ,  $S_{RR}$  et  $S_{LR}$  en terme de processus de relaxation dans les réservoirs. Le calcul de la contribution du couplage au champ dans la barrière avec ce modèle nécessite l'expression du courant  $I_T$  en fonction de  $I_R$  et  $I_L$  dont nous ne disposons actuellement que de manière ad hoc.

– Chapitre 4 –

## Conclusion et perspective

#### 4.1 Résultats

Nous avons effectué une mesure du bruit en émission aux fréquences optiques dans une jonction tunnel. Nous avons pour cela mesuré la puissance du flux de photons émis à une fréquence avec un photodétecteur. La jonction tunnel est alors dans un régime fortement hors de l'équilibre, la tension appliquée étant de l'ordre du volt, et la barrière tunnel d'une hauteur de l'ordre de l'électron-volt. Ce régime est caractérisé par une forte non linéarité et une dissymétrie de la caractéristique courant-tension. Cette caractéristique a été ajustée par une transmission tunnel dépendante de l'énergie et de la tension avec un modèle de barrière trapézoïdale. La dépendance avec la tension de la puissance émise à une fréquence est fortement non linéaire et non symétrique. La relation fluctuation-dissipation habituellement utilisée pour décrire le bruit à fréquence finie dans un conducteur non linéaire hors équilibre est violée :

$$P_{ph} \neq \mathcal{R}(\nu) \times e[N(eV + h\nu)I_{DC}(V + h\nu/e) + (N(eV - h\nu) + 1)I_{DC}(V - h\nu/e)]\Delta\nu$$

Nous avons alors développé un modèle consistant à décrire de manière classique le rayonnement électromagnétique généré par des fluctuations du courant dans la jonction. Nous sommes partis pour cela du corrélateur courant-courant  $S_{II}(z, z')$  obtenu avec un traitement quantique du transport électronique. Nous en avons déduit une nouvelle relation de fluctuation :

$$P_{ph} = \mathcal{R}(\nu) \left[ \alpha^2 S_{LL} + (1-\alpha)^2 S_{RR} - 2\alpha (1-\alpha) S_{LR} \right] \Delta \nu$$

 $\alpha$  est un coefficient traduisant l'asymétrie du couplage électron-photon entre l'électrode de gauche et l'électrode de droite. La relation fluctuation-dissipation peut être associée à une description inélastique de l'échange d'énergie entre la jonction tunnel et l'environnement. Notre modèle montre que l'émission de photon peut être décrite quant à elle par des processus de relaxation dans les électrodes après des événements tunnel élastiques. L'asymétrie de l'émission avec le signe de la tension de polarisation, est compatible avec notre modèle si les fluctuations de courant aux fréquences optiques sont confinées autour de la barrière tunnel sur une distance de moins de 1nm, ce qui est très inférieur au libre parcours moyen des électrons (~10 nm).

Nous avons montré que la définition du rendement de l'émission comme un taux de conversion électron-photon n'était pas pertinente car dépendante du point de polarisation de la jonction. Avec des arguments électrocinétiques, nous avons redéfini un rendement, quasi-indépendant de la polarisation électrique : le ratio de la puissance rayonnée sur la puissance Joule dissipée dans la jonction  $P_{ray}/P_{Joule}$ .

# 4.2 Perspectives, corrélations des fluctuations de la puissance lumineuse avec les fluctuations de courant

Nous avons montré le lien entre les fluctuations de courant et l'émission de photon dans le cas statique. En effet nous avons comparé la valeur moyenne temporelle de la puissance émise  $\langle P_{ph}(\nu, V) \rangle$  avec la valeur moyenne du courant  $\langle I(V) \rangle$ . Pour aller plus loin, nous pouvons mesurer la corrélation temporelle de ces deux signaux  $\mathcal{C} = \langle \delta i(f) \delta P_{ph}(\nu, V, f) \rangle$ .  $\delta i(f)$  est la fluctuation basse fréquence du courant et  $\delta P_{ph}(\nu, V, f)$  les fluctuations basse fréquence de la puissance de photon émise à haute fréquence  $\nu \gg f$  dans la bande passante  $\Delta \nu$ . Ce corrélateur mesure le lien entre la statistique des photons émis et la statistique des fluctuations de courant.

Lorsque la jonction tunnel est polarisée en tension, le corrélateur courant-puissance Cpeut s'exprimer en fonction du troisième cumulant des fluctuations de courant :  $C \propto S_{i^3}[28]$ . L'expression du troisième moment pour un bruit poissonien a été dérivée à fréquence nulle  $f, \nu = 0$  (voir page 4) et peut s'exprimer en fonction du second moment :

$$S_{i^3} = e^2 \langle I \rangle = eS_{i^2} \times \operatorname{sign}(I) \tag{4.1}$$

Ce cumulant a été mesuré dans le cas d'une jonction linéaire, à fréquence nulle[96, 97] et à fréquence finie dans le cas d'un bruit symétrisé[28] donnant la même dépendance linéaire en courant (voir fig. 4.1b). Dans le cas de la corrélation entre le bruit en émission et les fluctuations du courant dans une jonction tunnel linéaire Gabelli *et al.* proposent une formule ad hoc basée sur le résultat à fréquence nulle (4.1):

$$\mathcal{C} = \langle \delta i(0) \delta P_{ph}(\nu) \rangle = \mathcal{R}(\nu) \Delta \nu \left\langle \delta i(0) \delta i(\nu) \delta i(-\nu) \right\rangle$$
(4.2)

$$\mathcal{C} = \begin{vmatrix} \mathcal{R}(\nu)\Delta\nu e^2 I(eV - h\nu) & \text{pour} & eV > h\nu \\ \mathcal{R}(\nu)\Delta\nu e^2 I(eV + h\nu) & \text{pour} & -h\nu > eV \\ 0 & \text{pour} & -h\nu < eV < h\nu \end{vmatrix}$$
 (4.3)

ce qui peut s'exprimer en fonction de la puissance  $P_{ph}$ :

$$\mathcal{C} = eP_{ph}(\nu, V) \times \operatorname{sign}(I) \tag{4.4}$$

Le troisième moment des fluctuations n'a, à ce jour, pas été adressé théoriquement ou expérimentalement dans le cas d'une jonction non linéaire. Nous allons donc utiliser la formule de manière heuristique (4.3) afin d'estimer l'amplitude du signal de corrélation courant-photon.



**Figure 4.1** – Proposition expérimentale et résultat des références [30] et [28]. (a) dispositif de mesure du troisième moment des fluctuations de courant à fréquence finie dans une jonction tunnel avec un amplificateur électronique. On corrèle le bruit basse fréquence  $\delta f$  avec les fluctuations de la puissance émise à  $f \gg \delta f$ . La puissance est ici mesurée via un détecteur quadratique, dont le signal en sortie sont les fluctuations basse fréquence du carré du signal d'entrée. Le bruit mesuré est un bruit symétrisé. (b) En bleu, troisième moment des fluctuations de courant mesuré à fréquence finie dans une jonction tunnel linéaire, mesuré avec détecteur quadratique. En rouge, prédiction heuristique du troisième moment pour un bruit en émission comme mesuré avec un photodétecteur.

#### Calcul du rapport signal à bruit

Le montage expérimental présenté ici a été inspiré de la proposition expérimentale de Gabelli *et al.* [30]. et est représenté figure 4.2. Le signal  $\delta v_e$  (resp.  $\delta v_p$ ) est le signal en sortie de la chaine d'amplification du bruit électronique (resp. de la puissance de photons). Les mesures de  $\delta v_e$  et  $\delta v_p$  sont limitées par le bruit de la chaine d'amplification ( $\delta v_e^{(n)}, \delta v_p^{(n)}$ ). Les deux sources de bruit (bruit en courant (resp. tension)) de l'amplificateur de courant (resp. tension)) ne sont pas corrélées, la variance du signal de corrélation sera donc donnée par le produit des variances des deux signaux. Le rapport signal à bruit pour une bande passante  $\Delta f$ , et un temps d'intégration  $\Delta T$  est alors :

$$SNR = \frac{\langle \delta v_e \delta v_p \rangle}{\sqrt{Var(\delta v_e^{(n)})Var(\delta v_p^{(n)})}} \sqrt{\Delta f \Delta T}$$
(4.5)

En incluant la définition heuristique du troisième moment (4.3), et les paramètres du circuit de mesure décrits dans la figure (4.2), le rapport signal à bruit devient :

$$SNR = \frac{\mathcal{H}R_{\parallel}eP_{ph}}{\delta v_n \delta i_n} \sqrt{\Delta f \Delta T}$$
(4.6)

Estimons le temps d'intégration nécessaire pour obtenir un rapport signal à bruit égal à 1, avec un échantillon similaire à Jsaph19A, étudié dans le chapitre 3. Lorsque cet échantillon est polarisé à 2 V, nous avons mesuré une émission en bande large (limitée par la photodiode à  $\lambda = [350 - 1100 \text{ nm}]$ ) de 30 pW. La jonction est polarisée via une résistance en série

 $R_s = 10 \text{ k}\Omega$ . La résistance  $R_{\parallel}$  est limitée par la résistance de la jonction polarisée  $R_T$  et l'impédance 50  $\Omega$  de l'amplificateur de tension. On estime alors  $R_{\parallel} \sim 100 \Omega$ . Les valeurs des paramètres dans notre dispositif de mesure sont :  $\delta v_n = 2 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ (amp. NF SA-430-F5),  $\delta i_n = 50 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$ ,  $\Delta f = 220 \text{ kHz}$  (amp. FEMTO DHPCA-100) et  $\mathcal{H} = 1 \text{ A/W}$ . On obtient un temps d'intégration de 2 × 10<sup>5</sup> s soit 2,5 jours par point de mesure.



Figure 4.2 – (a) Montage expérimental pour la mesure des corrélations courant-photon. La puissance du flux de photon  $P_{ph}$  est mesurée par une photodiode de réponse  $\mathcal{H}(A/W)$ , sur une bande passante optique  $\delta \nu$ . Le signal est amplifié par un amplificateur de courant avec un gain  $G_p$  et une bande passante électronique  $\Delta f$ . La mesure est limité par le bruit en courant  $\delta i_n$  de l'amplificateur. Les fluctuations de tension  $\delta v$  aux bornes de la jonction sont amplifiées par un amplificateur de tension avec un gain  $G_e$  et une bande passante  $\Delta f$ . Elles sont reliées aux fluctuations de courant dans la jonction par  $\delta v = -\delta i R_{\parallel}$ .  $R_{\parallel}$  est l'impédance de la jonction en parallèle avec l'impédance de l'environnement :  $R_{\parallel} = R_T R_s/(R_T + R_s)$ . La mesure est limitée par le bruit en tension de l'amplificateur  $\delta v_n$ . Le symbole  $\otimes$  désigne un mélangeur donnant la moyenne du produit  $\delta v_e \delta v_s$ . (b) Puissance de photon mesurée en fonction du courant, proportionnelle à  $S_{i^2}$ .(c) Signal de corrélation attendu en sortie du mélangeur en tenant compte des effets d'environnement.

La présence d'un environnement, représenté ici par la résistance  $R_s$  et l'amplificateur de tension peut avoir d'importants effets sur la mesure du troisième moment[28, 30, 96]. Le bruit de l'amplificateur, ainsi que le bruit intrinsèque de la jonction via l'impédance  $R_s$ , induisent des fluctuations de tension aux bornes de la jonction. La puissance de photon émise est alors modulée (dans la limite de faibles fluctuations  $\delta v \ll V$ ) :

$$P_{ph}(V + \delta v) = P_{ph}(V) + \frac{dP_{ph}}{dV}\Big|_V \delta v$$
(4.7)

Cette modulation induit un terme de corrélation courant-photon supplémentaire dépendant de la tension V. Cette contribution peut être retranchée à postériori, moyennant une bonne connaissance du circuit électrocinétique autour de la jonction, de manière similaire à la démarche de [28, 30]. Cependant, cette étape de traitement des données nécessite une mesure présentant un bon rapport signal à bruit. Le temps d'intégration estimé précédemment n'est alors pas raisonnable. Deux solutions concrètes sont à mettre en œuvre afin de rendre cette expérience réalisable :

- Optimisation de la puissance collectée d'un facteur 10, avec des optiques de plus grande ouverture numérique ou un concept d'échantillon différent.
- Augmentation d'un facteur 100 de la bande passante électronique du dispositif de mesure, avec l'utilisation de matériel radio-fréquence.

Avec l'une de ces deux solutions, le temps d'intégration devient inférieur à une heure, ce qui est acceptable pour déterminer  $S_{i^3}(I)$ .

#### Conclusion

A ce jour, il n'existe pas de théorie donnant le troisième moment des fluctuations de courant  $S_{i^3}$  à fréquence finie pour une jonction non linéaire. De plus, l'utilisation d'un « vrai » photodétecteur, laisse envisager la mesure d'un troisième moment s'annulant en dessous d'un seuil en tension  $V < h\nu/e$  [25] ce qui n'a pas encore été observé. Cette mesure n'a pas été menée à son terme dans le cadre de cette thèse en raison du faible rapport signal à bruit. Néanmoins, des solutions techniques ont été étudiées afin de réaliser cette mesure.

# Table des figures

1	Figure extraite de la référence [18]. Densité spectrale du rayonnement émis par des jonctions tunnels $Al/AlO_x/Ag$ et $Al/AlO_x/Au$ polarisées sous des tensions de plusieurs volts et mesurées à 77 K	ii
2	Profil en énergie vu par un électron traversant la jonction tunnel	iv
3	Figure extraite de la référence [3]. Elle présente la réduction de la puissance rayonnée dans la bande (4-8 GHz) lors de l'ouverture de deux premiers canaux de transmissions d'un contact ponctuel quantique à une température $T \sim 70 \text{ mK}$	vii
4	Figure extraite de la référence [42]. Elle présente la puissance rayonnée par des jonctions tunnels $AL/AlO_x/Ag$ dont l'électrode supérieure est texturée par un réseau de pas $1.1  \mu m$	viii
5	Figure extraite de la référence [50]. Il s'agit du pendant optique de l'expé- rience décrite figure 3. L'émission de lumière est fortement réduite lorsque la conductance du contact atomique est égale au quantum de conductance	
6	$G_0 = 2e^2/h$	ix x
1.1	Illustration d'une ionction tunnel métal-isolant-métal	2
1.2	Modèle heuristique semi-classique du processus de transfert de charges dans une jonction tunnel	-3
1.3	Invariance de jauge pour $T(E,V)$	7
1.4	Caractéristique $I(V)$ simulée avec un modèle de barrière trapézoïale	8
1.5	Modèle diffusif de Landauer-Büttiker du transport dans un conducteur mé- soscopique	10
1.6	Interprétation de la dissipation liée à $S_{LL}, S_{RR}$ et $S_{LR}$ en processus de re- combinaison électron-trou dans les réservoirs	13
1.7	Dépendance en fréquence et en tension des densités spectrales $S_{LL}$ , $S_{RR}$ et $S_{LR}$ du bruit en émission calculées avec les paramètres de la jonction figure $(1.4)$	13
1.8	Représentation schématique d'un plasmon-polariton de surface à une inter-	10
	face métal/diélectrique	18

#### TABLE DES FIGURES

1.9	Relation de dispersion du mode plasmonique de surface à l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu métallique	19
1.10	Représentation schématique des modes plasmoniques d'une jonction tunnel	
	métal-oxyde-métal	20
1.11	Effet de l'épaisseur finie de la barrière tunnel sur la relation de dispersion	
	du mode lent	20
1.12	Diffraction d'un plasmon-polariton de surface par une interface métal/vide en réseau	21
1 1 2	Couplage des modes rapides et lents d'une jonction tunnel au champs lein	41
1.10	tain avec un réseau optique	22
1 1 /	Effet de l'épaisseur finie des électrodes de la jonction tunnel sur la relation	
1.14	de dispersion du mode rapide et du mode de subtret	<u> </u>
1 15	Medification de la relation de dimension du mode rapide par l'énsisseur finie	20
1.10	de la ionation de la relation de dispersion du mode rapide par l'epaisseur linie	94
1 10		24
1.10	Comparaison qualitative de la densité spectrale de bruit en emission calculee avec le formalisme de LB et les paramètres de la jonction figure (1.4), avec la densité spectrale obtenue avec la RFD et le spectre triangulaire non-physique	
	utilisé dans $[21]$	28
1.17	Champ magnétique $H_{u}(z)$ associé au mode plasmonique rapide dans une	
	jonction tunnel en configuration Kretschmann	29
1.18	Couplage du champs $E_z$ aux fluctuations de courant, et extraction du para-	
	mètre $\alpha$	30
0.1		20
2.1	Masques mecaniques utilises fors de l'evaporation des electrodes metalliques	32
2.2	Résistance tunnel d'un lot d'échantillons pour différents temps d'oxydation	33
2.3	Etapes de fabrication du réseau sur substrat de silicium	34
2.4	Vu au microscope électronique à balayage d'un réseau optique gravé sur un	
	substrat de silicium	34
2.5	Dispersion des résistances à polarisation nulle des jonctions Al/AlOx/Al et Al/AlOx/Al/Au à 300K.	37
2.6	Dérivée seconde (calculée numériquement) de la caractéristique courant-	
	tension des échantillons 04A/B, 06A/B, 07A/B mesurées à 4K	38
2.7	Paramètres des barrières tunnel extraits de la dépendance parabolique de la	
	conductance différentielle $dI/dV$	39
2.8	Conductance différentielle des échantillons de (a) 01A à 03B, mesurées à 300K, (b) de 08A à 09B mesurées à 77K et (c) de 04A à 07B, mesurées à 4 2K	40
29	Comparaison de la puissance dissinée avec la tension aux hornes de la jonc-	10
2.9	tion mesurées avant claquage pour différentes températures	41
2 10	Résistivité des couches métalliques déposées en fonction de leur éngissour et	11
2.10	de leur composition	42

#### TABLE DES FIGURES

2.15	Photographie en fausses couleurs et vue de dessus de l'émission d'une jonction tunnel polarisée à $\sim 2 V$ . Le couplage lumière-plasmon est en configura-	
	tion Kretschmann, avec un réflecteur conique.	46
2.17	Vue en coupe du cryostat	49
2.18	Photographie de la platine	50
2.19	Vue de dessus/dessous du berceau accueillant les échantillons	50
2.20	Schéma équivalent au dispositif de mesure de la capacité d'une jonction	
	tunnel représentée par l'impédance $Z_e$	52
2.22	Dispositif d'acquisition et de digitalisation du signal pour les mesures de	
	corrélation	54
3.1	Photographie des échantillons Ech45 et Jsaph_19A	64
3.2	Numérotation des connections pour les échantillons Jsaph19A et Ech45_j910	64
3.3	Ajustement parabolique de la caractéristique courant-tension à basse pola-	
<b>.</b>	risation de Jsaph19A et Ech45_j910	65
3.4	Evolution de la résistance différentielle $dV/dI$ et de la résistance statique	
~ ~	R = V/I des jonctions tunnel, avec la tension de polarisation	66
3.5	Caractéristiques courant-tension des jonctions étudiées dans ce chapitre .	67
3.6	Simulation de l'effet de la température électronique sur la caractéristique $I(U)$ la la caractéristique $I(U)$ la la caractéristique $I(U)$ la car	00
o <b>T</b>	$I(V)$ de Jsaph19A et Ech45_j910	68
3.7	Dispositif de mesure du bruit à fréquence nulle	70
3.8	Schema électrocinétique équivalent au dispositif de mesure de Svv	70
3.9	Bruit de grenaille mesure à basse polarisation. Comme attendu, il est lineaire	70
2 10	en $I_b$ après le seull $eV = 2k_B I$	72
3.10 9.11	Etapes de l'extraction du bruit de grename avec la mesure cambree	13
3.11	Eruit de grenalile mesure à forte polarisation	(4
3.12	Facteur de Fano mesure a forte polarisation	(4
3.13	(a) Puissance joue dissipee par la jonction Jsaph19A en fonction du courant	
	ture des électrodes par repport au substrat avec la puissance. Joule dissipée	
	dans la jonation	75
3 1/	Modèle simple montrant l'affet de la résistance finie de la couche métallique	10
0.14	sur la mesure de la caractéristique $I(V)$ d'une jonction tunnel en configura-	
	sur la mesure de la caracteristique $I(V)$ d'une jonction tunnel en configura- tion 4 fils	76
2 1 5	Schéme du dispositif de mesure de $P_{res}(V)$ pour le jonction sur réseau	80
3 16	Puissance rayonnée par Ech45 i910 en fonction de la position $r$	81
3.17	Modèle heuristique de la dépendance angulaire de l'émission par un plasmon	01
0.11	sur un réseau optique	82
3.18	(a) Vu au microscope électronique à balavage de Ech45 i910. La périodicité	0-
5.10	du réseau est de 1 um, avec une asymétrie de 70%. (b) Granulosité de la	
	couche d'or, hors du réseau optique	83
3.19	Couplages des différents modes plasmoniques de la ionction tunnel par le	
	réseau	83
		-

117

3.20	Puissance de photon émise par Ech45_j910 et collectée par le photodétecteur en fonction de la polarisation électrique, à $\lambda = 1.3 \mu\text{m}$ et $1.55 \mu\text{m}$
3.21	Schéma du dispositif de mesure de $\mathrm{P}(\mathrm{V})$ $\hfill \ldots$ $\hfill \ldots$ $\hfill \ldots$ $\hfill \ldots$
3.22	Puissance de photon émise par la jonction et collectée dans le photodétecteur en fonction de la polarisation électrique, à $\lambda = 1.3 \mu\text{m}$ et $1.55 \mu\text{m}$
3.23	Comparaison de la puissance $P_{ph}(V)$ mesurée avec la puissance donnée par la relation de fluctuation-dissipation
3.24	Ratio $R$ de la puissance mesurée à une fréquence avec la densité spectrale des fluctuations de courant à la même fréquence pour (a) Ech45_j910 à $\lambda = 1300nm$ (rouge) et $\lambda = 1550nm$ (vert), (b) Jsaph19A à $\lambda = 1300nm$ et (c) $\lambda = 900nm$ . les traits pleins sont les ratio de la puissance mesurée avec la densité spectrale donnée par Landauer-Büttiker, les points circulaires sont le ratio entre la puissance mesurée et la RFD
3.25	Comparaison de la puissance $P_{ph}(V)$ mesurée avec la puissance donnée par le formalisme de Landauer-Büttiker
3.26	Rendement de l'émission de photon en nombre de photon par électron pour la jonction Ech45_j910
3.27	Rendement de l'émission de photon en nombre de photon par électron pour la jonction Jsaph19A
3.28	Modélisation d'une jonction tunnel couplée à un environnement
3.29	Simulation de l'amplitude des fluctuations de courant dans Jsaph19A donnée par le spectre intégré $\delta i$ sur $\nu = (0, eV/h)$ , en fonction de la puissance Joule dissipée.
3.30	<ul><li>(a) Caractéristiques courant-tension de jonctions similaires à Jsaph19A. (b)</li><li>Puissance émise en fonction de la tension pour ces mêmes jonctions</li></ul>
3.31	Interprétation de Persson et Baratoff issue de [47] de l'émission de lumière par des processus tunnel élastiques et inélastiques dans une pointe STM
3.32	Mesure du bruit symétrisé à fréquence finie par Gabelli <i>et al.</i> [28], dans une jonction tunnel linéaire.
3.34	Résultats expérimentaux de <i>Basset et al.</i> de la référence [26]. Mesure du bruit en émission du courant de quasi particule d'une jonction Josephson à 28.4 GHz et 80.2 GHz.
3.35	Résultats expérimentaux de <i>Parlavecchio et al.</i> [5]. Dérivée de la densité spectrale du bruit à fréquence finie avec la tension à $\nu_0 = 4.1$ GHz, dans l'encart, non linéarité induite par l'environnement dans la caractéristique I(V)
3.36	Extension du modèle de Laks et Mills avec un courant ajouté de manière ad hoc dans la barrière.

#### TABLE DES FIGURES

4.1	Proposition expérimentale et résultat des références [30] et [28]. (a) disposi-	
	tif de mesure du troisième moment des fluctuations de courant à fréquence	
	finie dans une jonction tunnel avec un amplificateur électronique.(b) Troi-	
	sième moment des fluctuations de courant mesuré à fréquence finie dans une	
	jonction tunnel linéaire, mesuré avec détecteur quadratique et prédiction	
	heuristique du troisième moment pour un bruit en émission comme mesuré	
	avec un photodétecteur	110
4.2	(a) Montage expérimental pour la mesure des corrélations courant-photon.(b)	
	Puissance de photon mesurée en fonction du courant, proportionnelle à	
	$S_{i^2}$ .(c) Signal de corrélation attendu en sortie du mélangeur en tenant compte	
	des effets d'environnement	111

## Bibliographie

- <sup>1</sup>J. B. JOHNSON, « Thermal agitation of electricity in conductors », Phys. Rev. **32**, 97–109 (1928).
- <sup>2</sup>H. NYQUIST, « Thermal agitation of electric charge in conductors », Phys. Rev. **32**, 110–113 (1928).
- <sup>3</sup>E. ZAKKA-BAJJANI, J. SÉGALA, F. PORTIER, P. ROCHE, D. C. GLATTLI, A. CAVANNA et Y. JIN, « Experimental test of the high-frequency quantum shot noise theory in a quantum point contact », Phys. Rev. Lett. **99**, 236803 (2007).
- <sup>4</sup>J. GABELLI et B. REULET, « Dynamics of quantum noise in a tunnel junction under ac excitation », Phys. Rev. Lett. **100**, 026601 (2008).
- <sup>5</sup>O. PARLAVECCHIO, C. ALTIMIRAS, J.-R. SOUQUET, P. SIMON, I. SAFI, P. JOYEZ, D. VION, P. ROCHE, D. ESTEVE et F. PORTIER, « Fluctuation-dissipation relations of a tunnel junction driven by a quantum circuit », Phys. Rev. Lett. **114**, 126801 (2015).
- <sup>6</sup>K. THIBAULT, J. GABELLI, C. LUPIEN et B. REULET, « Pauli-heisenberg oscillations in electron quantum transport », Phys. Rev. Lett. **114**, 236604 (2015).
- <sup>7</sup>J.-C. FORGUES, C. LUPIEN et B. REULET, « Emission of microwave photon pairs by a tunnel junction », Phys. Rev. Lett. **113**, 043602 (2014).
- <sup>8</sup>M. HOFHEINZ, F. PORTIER, Q. BAUDOUIN, P. JOYEZ, D. VION, P. BERTET, P. ROCHE et D. ESTEVE, « Bright side of the coulomb blockade », Phys. Rev. Lett. **106**, 217005 (2011).
- <sup>9</sup>C. W. J. BEENAKKER et H. SCHOMERUS, « Counting statistics of photons produced by electronic shot noise », Phys. Rev. Lett. **86**, 700–703 (2001).
- <sup>10</sup>C. W. J. BEENAKKER et H. SCHOMERUS, « Antibunched photons emitted by a quantum point contact out of equilibrium », Phys. Rev. Lett. **93**, 096801 (2004).
- <sup>11</sup>J.-R. SOUQUET, M. J. WOOLLEY, J. GABELLI, P. SIMON et A. A. CLERK, « Photonassisted tunnelling with nonclassical light », Nature Communications 5, Article, 5562 EP – (2014).
- <sup>12</sup>J LEPPÄKANGAS, G JOHANSSON, M MARTHALER et M FOGELSTRÖM, « Input-output description of microwave radiation in the dynamical coulomb blockade », New Journal of Physics 16, 015015 (2014).
- <sup>13</sup>J. LEPPÄKANGAS, M. FOGELSTRÖM, A. GRIMM, M. HOFHEINZ, M. MARTHALER et G. JOHANSSON, « Antibunched photons from inelastic cooper-pair tunneling », Phys. Rev. Lett. **115**, 027004 (2015).
- <sup>14</sup>U. C. MENDES et C. MORA, « Cavity squeezing by a quantum conductor », New Journal of Physics **17**, 113014 (2015).
- <sup>15</sup>A. L. GRIMSMO, F. QASSEMI, B. REULET et A. BLAIS, « Quantum optics theory of electronic noise in coherent conductors », Phys. Rev. Lett. **116**, 043602 (2016).
- <sup>16</sup>J.-C. FORGUES, C. LUPIEN et B. REULET, « Experimental violation of bell-like inequalities by electronic shot noise », Phys. Rev. Lett. **114**, 130403 (2015).
- <sup>17</sup>F. PORTIER, communication privée.
- <sup>18</sup>J. LAMBE et S. L. MCCARTHY, « Light emission from inelastic electron tunneling », Phys. Rev. Lett. **37**, 923–925 (1976).
- <sup>19</sup>L. C. DAVIS, « Theory of surface-plasmon excitation in metal-insulator-metal tunnel junctions », Phys. Rev. B 16, 2482–2490 (1977).
- <sup>20</sup>D. HONE, B. MÜHLSCHLEGEL et D. J. SCALAPINO, « Theory of light emission from small particle tunnel junctions », Applied Physics Letters **33**, 203–204 (1978).
- <sup>21</sup>B. LAKS et D. L. MILLS, « Photon emission from slightly roughened tunnel junctions », Phys. Rev. B **20**, 4962–4980 (1979).
- <sup>22</sup>G. B. LESOVIK et R. LOOSEN, « On the detection of finite-frequency current fluctuations », Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters **65**, 295–299 (1997).
- <sup>23</sup>U. GAVISH, Y. LEVINSON et Y. IMRY, « Detection of quantum noise », Phys. Rev. B 62, R10637–R10640 (2000).
- <sup>24</sup>E. V. SUKHORUKOV, G. BURKARD et D. LOSS, « Noise of a quantum dot system in the cotunneling regime », Phys. Rev. B **63**, 125315 (2001).
- <sup>25</sup>A. ZAZUNOV, M. CREUX, E. PALADINO, A. CRÉPIEUX et T. MARTIN, « Detection of finite-frequency current moments with a dissipative resonant circuit », Phys. Rev. Lett. 99, 066601 (2007).
- <sup>26</sup>J. BASSET, H. BOUCHIAT et R. DEBLOCK, « Emission and absorption quantum noise measurement with an on-chip resonant circuit », Phys. Rev. Lett. **105**, 166801 (2010).
- <sup>27</sup>E. ZAKKA-BAJJANI, J. DUFOULEUR, N. COULOMBEL, P. ROCHE, D. C. GLATTLI et F. PORTIER, « Experimental determination of the statistics of photons emitted by a tunnel junction », Phys. Rev. Lett. **104**, 206802 (2010).
- <sup>28</sup>J. GABELLI, L. SPIETZ, J. AUMENTADO et B. REULET, « Electron-photon correlations and the third moment of quantum noise », New Journal of Physics **15**, 113045 (2013).
- <sup>29</sup>L. LANDAU et E. LIFSHITZ, *Statistical physics*, vol. 5 (Elsevier Science, 2013).
- <sup>30</sup>J. GABELLI et B. REULET, « High frequency dynamics and the third cumulant of quantum noise », Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment 1, 01049 (2009).
- <sup>31</sup>A. A. CLERK, M. H. DEVORET, S. M. GIRVIN, F. MARQUARDT et R. J. SCHOELKOPF, « Introduction to quantum noise, measurement, and amplification », Rev. Mod. Phys. 82, 1155–1208 (2010).
- <sup>32</sup>C. ALTIMIRAS, O. PARLAVECCHIO, P. JOYEZ, D. VION, P. ROCHE, D. ESTEVE et F. PORTIER, « Dynamical coulomb blockade of shot noise », Phys. Rev. Lett. **112**, 236803 (2014).

- <sup>33</sup>R. MOVSHOVICH, B. YURKE, P. G. KAMINSKY, A. D. SMITH, A. H. SILVER, R. W. SIMON et M. V. SCHNEIDER, « Observation of zero-point noise squeezing via a josephson-parametric amplifier », Phys. Rev. Lett. 65, 1419–1422 (1990).
- <sup>34</sup>M. REZNIKOV, M. HEIBLUM, H. SHTRIKMAN et D. MAHALU, « Temporal correlation of electrons : suppression of shot noise in a ballistic quantum point contact », Phys. Rev. Lett. **75**, 3340–3343 (1995).
- <sup>35</sup>A. KUMAR, L. SAMINADAYAR, D. C. GLATTLI, Y. JIN et B. ETIENNE, « Experimental test of the quantum shot noise reduction theory », Phys. Rev. Lett. **76**, 2778–2781 (1996).
- <sup>36</sup>B. ROUSSEL, P. DEGIOVANNI et I. SAFI, « Perturbative fluctuation dissipation relation for nonequilibrium finite-frequency noise in quantum circuits », Phys. Rev. B **93**, 045102 (2016).
- <sup>37</sup>J.-T. LÜ, R. B. CHRISTENSEN et M. BRANDBYGE, « Light emission and finite-frequency shot noise in molecular junctions : from tunneling to contact », Phys. Rev. B 88, 045413 (2013).
- <sup>38</sup>R. ZAMOUM, M. LAVAGNA et A. CRÉPIEUX, « Nonsymmetrized noise in a quantum dot : interpretation in terms of energy transfer and coherent superposition of scattering paths », Phys. Rev. B **93**, 235449 (2016).
- <sup>39</sup>R. ZAMOUM, M. LAVAGNA et A. CRÉPIEUX, « Finite-frequency noise in a non-interacting quantum dot », Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment **2016**, 054013 (2016).
- <sup>40</sup>J.-J. GREFFET, M. LAROCHE et F. MARQUIER, « Impedance of a nanoantenna and a single quantum emitter », Phys. Rev. Lett. **105**, 117701 (2010).
- <sup>41</sup>M HANISCH et A OTTO, « Light emission from rough tunnel junctions in uhv », Journal of Physics: Condensed Matter **6**, 9659 (1994).
- <sup>42</sup>J. R. KIRTLEY, T. N. THEIS, J. C. TSANG et D. J. DIMARIA, « Hot-electron picture of light emission from tunnel junctions », Phys. Rev. B 27, 4601–4611 (1983).
- <sup>43</sup>J. KIRTLEY, T. N. THEIS et J. C. TSANG, « Light emission from tunnel junctions on gratings », Phys. Rev. B 24, 5650–5663 (1981).
- <sup>44</sup>P. D. SPARKS, T. SJODIN, B. W. REED et J. STEGE, « Light emission from the slow mode of tunnel junctions on short period diffraction gratings », Phys. Rev. Lett. 68, 2668–2671 (1992).
- <sup>45</sup>S. USHIODA, J. E. RUTLEDGE et R. M. PIERCE, « Prism-coupled light emission from tunnel junctions », Phys. Rev. Lett. 54, 224–226 (1985).
- <sup>46</sup>J. K. GIMZEWSKI, J. K. SASS, R. R. SCHLITTER et J. SCHOTT, « Enhanced photon emission in scanning tunnelling microscopy », EPL (Europhysics Letters) 8, 435 (1989).
- <sup>47</sup>B. N. J. PERSSON et A. BARATOFF, « Theory of photon emission in electron tunneling to metallic particles », Phys. Rev. Lett. 68, 3224–3227 (1992).

- <sup>48</sup>F. XU, C. HOLMQVIST et W. BELZIG, « Overbias light emission due to higher-order quantum noise in a tunnel junction », Phys. Rev. Lett. **113**, 066801 (2014).
- <sup>49</sup>F. XU, C. HOLMQVIST, G. RASTELLI et W. BELZIG, « Dynamical coulomb blockade theory of plasmon-mediated light emission from a tunnel junction », Phys. Rev. B 94, 245111 (2016).
- <sup>50</sup>N. L. SCHNEIDER, G. SCHULL et R. BERNDT, « Optical probe of quantum shot-noise reduction at a single-atom contact », Phys. Rev. Lett. **105**, 026601 (2010).
- <sup>51</sup>M. BURET, A. V. USKOV, J. DELLINGER, N. CAZIER, M.-M. MENNEMANTEUIL, J. BERTHELOT, I. V. SMETANIN, I. E. PROTSENKO, G. C. des FRANCS et A. BOUHELIER, « Spontaneous hot-electron light emission from electron-fed optical antennas », Nano Letters 15, PMID: 26214575, 5811–5818 (2015).
- <sup>52</sup>T. MALINOWSKI, H. R. KLEIN, M. IAZYKOV et P. DUMAS, « Infrared light emission from nano hot electron gas created in atomic point contacts », EPL (Europhysics Letters) **114**, 57002 (2016).
- <sup>53</sup>G. LESOVIK, « Charge distribution in quantum shot noise », Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. 58, 225–230 (1993).
- <sup>54</sup>H. BIRK, M. J. M. de JONG et C. SCHÖNENBERGER, « Shot-noise suppression in the single-electron tunneling regime », Phys. Rev. Lett. **75**, 1610–1613 (1995).
- <sup>55</sup>R. LANDAUER, « Spatial variation of currents and fields due to localized scatterers in metallic conduction », IBM J. Res. Dev 1, 223 (1957).
- <sup>56</sup>G. GALLAVOTTI, « Extension of onsager's reciprocity to large fields and the chaotic hypothesis », Phys. Rev. Lett. **77**, 4334–4337 (1996).
- <sup>57</sup>H. B. CALLEN et T. A. WELTON, « Irreversibility and generalized noise », Phys. Rev. **83**, 34–40 (1951).
- <sup>58</sup>D. BOHM, *Quantum theory*, sous la dir. d'E. C.N. J. (PRENTICE-HALL Inc. (1951).
- <sup>59</sup>J. G. SIMMONS, « Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film », Journal of Applied Physics **34**, 1793–1803 (1963).
- <sup>60</sup>J. G. SIMMONS, « Electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film », Journal of Applied Physics **34**, 2581–2590 (1963).
- <sup>61</sup>N. ARAKAWA, Y. OTAKA et K. SHIIKI, « Evaluation of barrier height and thickness in tunneling junctions by numerical calculation on tunnel probability », Thin Solid Films 505, 67–70 (2006).
- <sup>62</sup>M KOBERIDZE, A. V. FESHCHENKO, M. J. PUSKA, R. M. NIEMINEN et J. P. PEKOLA, « Effect of interface geometry on electron tunnelling in al/al 2 o 3 /al junctions », Journal of Physics D: Applied Physics 49, 165303 (2016).
- <sup>63</sup>Y. IMRY et R. LANDAUER, « Conductance viewed as transmission », Rev. Mod. Phys. 71, S306–S312 (1999).

- <sup>64</sup>Y. BLANTER et M. BÜTTIKER, « Shot noise in mesoscopic conductors », Physics Reports 336 (2000) http://dx.doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00123-4.
- <sup>65</sup>P.-M. BILLANGEON, F. PIERRE, H. BOUCHIAT et R. DEBLOCK, « Emission and absorption asymmetry in the quantum noise of a josephson junction », Phys. Rev. Lett. 96, 136804 (2006).
- <sup>66</sup>R. AGUADO et L. P. KOUWENHOVEN, « Double quantum dots as detectors of high-frequency quantum noise in mesoscopic conductors », Phys. Rev. Lett. 84, 1986–1989 (2000).
- <sup>67</sup>H.-A. ENGEL et D. LOSS, « Asymmetric quantum shot noise in quantum dots », Phys. Rev. Lett. **93**, 136602 (2004).
- <sup>68</sup>D. ROGOVIN et D. SCALAPINO, « Fluctuation phenomena in tunnel junctions », Annals of Physics 86, 1–90 (1974).
- <sup>69</sup>R. C. JAKLEVIC et J. LAMBE, « Molecular vibration spectra by electron tunneling », Phys. Rev. Lett. **17**, 1139–1140 (1966).
- <sup>70</sup>J. LAMBE et R. C. JAKLEVIC, « Molecular vibration spectra by inelastic electron tunneling », Phys. Rev. 165, 821–832 (1968).
- <sup>71</sup>S. USHIODA, J. E. RUTLEDGE et R. M. PIERCE, « Theory of prism-coupled light emission from tunnel junctions », Phys. Rev. B **34**, 6804–6812 (1986).
- <sup>72</sup>D. GÉRARD et S. K. GRAY, « Aluminium plasmonics », Journal of Physics D: Applied Physics 48, 184001 (2015).
- <sup>73</sup>K. M. MCPEAK, S. V. JAYANTI, S. J. P. KRESS, S. MEYER, S. IOTTI, A. ROSSINELLI et D. J. NORRIS, « Plasmonic films can easily be better : rules and recipes », ACS Photonics 2, 326–333 (2015).
- <sup>74</sup>K GLOOS, P. J. KOPPINEN et J. P. PEKOLA, « Properties of native ultrathin aluminium oxide tunnel barriers », Journal of Physics: Condensed Matter **15**, 1733 (2003).
- <sup>75</sup>K. GLOOS, R. S. POIKOLAINEN et J. P. PEKOLA, « Wide-range thermometer based on the temperature-dependent conductance of planar tunnel junctions », Applied Physics Letters 77, 2915–2917 (2000).
- <sup>76</sup>E. J. PATINO et N. G. KELKAR, « Experimental determination of tunneling characteristics and dwell times from temperature dependence of al/al2o3/al junctions », Applied Physics Letters **107**, 253502 (2015) http://dx.doi.org/10.1063/1.4938209.
- <sup>77</sup>W. F. BRINKMAN, R. C. DYNES et J. M. ROWELL, « Tunneling conductance of asymmetrical barriers », Journal of Applied Physics **41**, 1915–1921 (1970).
- <sup>78</sup>B. OLIVER, G. TUTTLE, Q. HE, X. TANG et J. NOWAK, « Two breakdown mechanisms in ultrathin alumina barrier magnetic tunnel junctions », Journal of Applied Physics 95, 1315–1322 (2004).

- <sup>79</sup>N. P. MAGTOTO, C. NIU, B. M. EKSTROM, S. ADDEPALLI et J. A. KELBER, « Dielectric breakdown of ultrathin aluminum oxide films induced by scanning tunneling microscopy », Applied Physics Letters **77**, 2228–2230 (2000).
- <sup>80</sup>S. USHIODA, A. AZIZA, J. B. VALDEZ et G. MATTEI, « Effects of surface roughness on surface polaritons », Phys. Rev. B **19**, 4012–4019 (1979).
- <sup>81</sup>M PARZEFALL, P BHARADWAJ, A JAIN, T TANIGUCHI, K WATANABE et L NOVOTNY, « Antenna-coupled photon emission from hexagonal boron nitride tunnel junctions », Nature Nano. **10**, 1058–1063 (2015).
- <sup>82</sup>S. BÉCU, « Study of permittivity non-linearities in dielectrics used in microelectronics. application for mim capacitors. », Theses (Université de Provence - Aix-Marseille I, nov. 2006).
- <sup>83</sup>Y.-N. XU et W. Y. CHING, « Self-consistent band structures, charge distributions, and optical-absorption spectra in mgo, a-al2o3, and mgal2o4 », Phys. Rev. B 43, 4461–4472 (1991).
- <sup>84</sup>W. H. RIPPARD, A. C. PERRELLA, F. J. ALBERT et R. A. BUHRMAN, « Ultrathin aluminum oxide tunnel barriers », Phys. Rev. Lett. **88**, 046805 (2002).
- <sup>85</sup>J. KERN, R. KULLOCK, J. PRANGSMA, M. EMMERLING, M. KAMP et B. HECHT, « Electrically driven optical antennas », Nat Photon 9, 582–586 (2015).
- <sup>86</sup>P. BHARADWAJ, A. BOUHELIER et L. NOVOTNY, « Electrical excitation of surface plasmons », Phys. Rev. Lett. **106**, 226802 (2011).
- <sup>87</sup>R. W. RENDELL, D. J. SCALAPINO et B. MÜHLSCHLEGEL, « Role of local plasmon modes in light emission from small-particle tunnel junctions », Phys. Rev. Lett. **41**, 1746–1750 (1978).
- <sup>88</sup>J. H. COOMBS, J. K. GIMZEWSKI, B. REIHL, J. K. SASS et R. R. SCHLITTLER, « Photon emission experiments with the scanning tunnelling microscope », Journal of Microscopy 152, 325–336 (1988).
- <sup>89</sup>R. BERNDT, J. K. GIMZEWSKI et P. JOHANSSON, « Inelastic tunneling excitation of tip-induced plasmon modes on noble-metal surfaces », Phys. Rev. Lett. **67**, 3796–3799 (1991).
- <sup>90</sup>R. J. SCHOELKOPF, P. J. BURKE, A. A. KOZHEVNIKOV, D. E. PROBER et M. J. ROOKS, « Frequency dependence of shot noise in a diffusive mesoscopic conductorcc », Phys. Rev. Lett. **78**, 3370–3373 (1997).
- <sup>91</sup>A. CALDEIRA et A. LEGGETT, « Quantum tunnelling in a dissipative system », Annals of Physics **149**, 374–456 (1983).
- <sup>92</sup>G.-L. INGOLD et Y. V. NAZAROV, « Charge tunneling rates in ultrasmall junctions », eprint arXiv :cond-mat/0508728 (2005).
- <sup>93</sup>H. LEE et L. S. LEVITOV, « Current fluctuations in a single tunnel junction », Phys. Rev. B 53, 7383–7391 (1996).

## BIBLIOGRAPHIE

- <sup>94</sup>C. ALTIMIRAS, F. PORTIER et P. JOYEZ, « Interacting electrodynamics of short coherent conductors in quantum circuits », Phys. Rev. X 6, 031002 (2016).
- <sup>95</sup>M. BÜTTIKER et T. CHRISTEN, « Admittance and nonlinear transport in quantum wires, point contacts, and resonant tunneling barriers », in *Mesoscopic electron transport*, sous la dir. de L. L. SOHN, L. P. KOUWENHOVEN et G. SCHÖN (Springer Netherlands, Dordrecht, 1997), p. 259–289.
- <sup>96</sup>B. REULET, J. SENZIER et D. E. PROBER, « Environmental effects in the third moment of voltage fluctuations in a tunnel junction », Phys. Rev. Lett. **91**, 196601 (2003).
- <sup>97</sup>Y. BOMZE, G. GERSHON, D. SHOVKUN, L. S. LEVITOV et M. REZNIKOV, « Measurement of counting statistics of electron transport in a tunnel junction », Phys. Rev. Lett. **95**, 176601 (2005).



**Titre :** Étude des fluctuations quantiques du courant aux fréquences optiques dans une jonction tunnel

Mots clefs : Bruit, Quantique, Photon, Tunnel, fluctuations

**Résumé :** A forte polarisation (V>1V), une jonction tunnel planaire peut émettre de la lumière dans le domaine optique à des fréquences  $f{<}eV/h~\sim~10^{14}{
m Hz}$ . Cette émission résulte du rayonnement de plasmons-polariton de surface, générés par le bruit de grenaille dans la jonction. La densité spectrale de rayonnement dP/df est alors directement reliée à la densité spectrale des fluctuations du courant  $S_{II}$  via une simple impédance de rayonnement:  $dP/df = R \times S_{II}$ . De la même manière, la densité spectrale de rayonnement du corps noir est reliée aux fluctuations thermiques du courant dans un conducteur ohmique via le théorème fluctuation-dissipation (TFD). Il semble alors naturel de décrire le rayonnement d'une jonction tunnel par la relation fluctuation-dissipation, dérivée par Scalapino et Rogovin [Annals of Physics 1974], généralisant le TFD aux conducteurs hors équilibre  $(V \neq 0)$ . Nous avons étudié cette relation dans un régime où la jonction tunnel est fortement

hors équilibre, lorsque  $eV \sim 1 eV$  est de l'ordre de la hauteur de la barrière tunnel. La RFD est vérifiée à fréquence nulle (MHz), mais est violée de manière flagrante à fréquence finie  $(10^{14} \text{Hz})$ . Nous attribuons cette violation à la non linéarité intrinsèque de la jonction. Nous dérivons une nouvelle expression pour la puissance émise, à partir de l'approche quantique de Landaueur-Büttiker du transport électronique. L'émission est alors interprétée en terme de recombinaison électron-trou dans les électrodes et rend compte d'une accumulation de charges dans la barrière. L'efficacité du couplage électron-photon est évaluée quantitativement via l'impédance de rayonnement de la jonction. Ce travail de thèse s'adresse à deux communautés, celle de la physique mésoscopique étudiant les mécanismes du transport électronique, et celle des opticiens voulant comprendre et optimiser l'émission de lumière dans ces systèmes.

## **Title :** Quantum current fluctuations in a tunnel junction at optical frequency

Keywords : Quantum, Noise, Photon, Tunnel, fluctuations

Abstract : In a strongly voltaged biased tunnel junction, optical photon emission occurs at frequencies below the threshold  $f < eV/h \sim$  $10^{14}$ Hz, mediated by the shot-noise-generated surface plasmon-polaritons. The spectral power density dP/df depends only on the current fluctuation spectral density  $S_{II}$  and a radiation impedance:  $dP/df = R \times S_{II}$ . This expression is analogous to the relation between the power spectral density of a black body and thermal current fluctuations in a ohmic conductor, via the fluctuation-dissipation theorem (FDT). Therefore, it seems natural that the optical power emitted by a tunnel junction be given by the fluctuation-dissipation relation (FDR) derived by Scalapino and Rogovin [Annals of Physics 1974], which extends the FDT to out-ofequilibrium conductors  $(V \neq 0)$ . When the junction is far-from-equilibrium, i.e. when  $eV \sim 1 \text{eV}$  is of the order of magnitude of the tunnel barrier height, our

experiments show that the FDR holds at zero frequency (MHz), but breaks down at finite frequency  $(10^{14} \text{Hz})$ . We attibute the discrepancy between the FDR and our measurements to the junction's intrinsic current-voltage non-linearity. We derive a new expression for emitted optical power, based on the Landauer-Büttiker formalism for quantum electronic transport. Light emission from the junction can then be interpreted as due to electron-hole recombination processes in the electrodes. This expression also account for charge accumulation in the tunnel barrier. The resulting estimate of the junction's radiation impedance is a measure of the electron-photon coupling efficiency in our device. This work should be of interest to both mesoscopic physicists studying electronic transport mechanisms, and those of optics community studying light emission in microstructures.