



HAL
open science

Manipulation optique de vortex d'Abrikosov individuels

William Magrini

► **To cite this version:**

William Magrini. Manipulation optique de vortex d'Abrikosov individuels. Optique [physics.optics]. Université de Bordeaux, 2017. Français. NNT : 2017BORD0724 . tel-01663047

HAL Id: tel-01663047

<https://theses.hal.science/tel-01663047>

Submitted on 13 Dec 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.

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES PHYSIQUES ET DE
L'INGÉNIEUR

THÈSE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Bordeaux

SPÉCIALITÉ : "LASERS, MATIÈRE, NANOSCIENCES"

présentée et soutenue publiquement par

William MAGRINI

le 8 novembre 2017

**Manipulation optique de vortex d'Abrikosov
individuels**

Commission d'examen :

<i>Directeur de thèse :</i>	M. Alexandre BOUZDINE	Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine
<i>Co-directeur de thèse :</i>	M. Philippe TAMARAT	Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences
<i>Président :</i>	Mme. Hélène BOUCHIAT	Laboratoire de Physique des Solides
<i>Rapporteurs :</i>	M. Javier VILLEGAS	Unité Mixte de Physique CNRS-THALES
	M. Klaus HASSELBACH	Institut Néel
<i>Examineur :</i>	M. Hermann SUDEROW	Universidad Autónoma de Madrid
<i>Membre invité :</i>	M. Brahim LOUNIS	Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences

“Celui qui croit savoir n’apprend plus.”

P. Bottero.

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé entre le Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences et le Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine, tous deux situés à Bordeaux. J'adresse mes premiers remerciements à Philippe Bouyer ainsi qu'à Jean-Pierre Delville, directeurs respectifs de ces deux laboratoires. Je souhaite également remercier Mme. Hélène Bouchiat, M. Hermann Suderow, M. Klaus Hasselbach ainsi que M. Javier Villegas pour m'avoir fait l'honneur d'accepter de faire partie de mon jury de thèse.

Je remercie Brahim Lounis, responsable du groupe Nanophotonique, qui m'a permis d'effectuer cette thèse dans les meilleures conditions humaines et expérimentales possibles. Sa présence fut très importante sur tous les aspects des travaux présentés dans cette thèse. J'ai beaucoup apprécié nos discussions sur différents aspects de la physique, tant expérimentaux que théoriques.

Merci à Alexandre Bouzdine, mon directeur de thèse pour avoir accepté de me co-encadrer pendant ces trois années. Ta disponibilité et ton expertise théorique ont permis d'accroître la qualité des résultats obtenus au cours de cette thèse.

Un grand merci à Philippe Tamarat pour avoir co-encadré ma thèse. Ta présence quotidienne, ta bonne humeur constante ainsi que tes qualités pédagogiques sans faille m'ont permis d'apprendre énormément de choses au cours de ces années. Si ce manuscrit est ce qu'il est aujourd'hui, c'est en grande partie grâce à ton travail de relecture minutieux et à ton soin du détail.

Merci à nos collaborateurs qui nous ont fourni les échantillons que nous avons utilisés pour ces expériences. Merci à Hervé Courtois et à Clemens Winkelmann pour nous avoir fabriqué des échantillons de Niobium. Un grand merci à Javier Villegas pour les échantillons d'YBCO mais aussi pour son accueil chaleureux au sein de son équipe pendant une semaine. J'ai pu y apprendre beaucoup de choses sur les mesures de transport qui nous ont permis par la suite d'étudier l'effet Josephson induit par laser.

Toute ma gratitude va à Ivan Veshchunov pour m'avoir transmis son savoir sur l'imagerie magnéto-optique et de façon plus générale, pour m'avoir formé sur l'expérience lorsque je suis arrivé en stage de Master. Cette thèse ne pourrait pas contenir tous ces résultats s'il n'avait pas été là.

Je suis aussi très reconnaissant envers Jean-Baptiste Trebbia pour avoir répondu à toutes mes questions concernant différents aspects théoriques et expérimentaux de l'optique ainsi que pour m'avoir aidé avec la programmation Matlab et surtout LabView pour lequel je partais de loin quand je suis arrivé.

Merci Antoine Godin pour ta bonne humeur et ton accent québécois qui suffit à lui seul à faire sourire avant même que tes blagues légendaires ne soient prononcées. Merci aussi pour nous avoir grandement aidé dans la réalisation du programme Matlab permettant de déplacer les vortex à l'aide du laser.

Je remercie Sergey Mironov pour avoir travaillé avec moi sur tous les aspects théoriques

de ces travaux. J'ai beaucoup appris sur les méthodes de résolution numériques et grâce à toi, les équations de Ginzburg-Landau n'ont (presque) plus de secrets pour moi.

Merci à Antonine de m'avoir accompagné dans la réalisation des expériences pendant ma dernière année de thèse. Nous avons partagé le même bureau ainsi que la même expérience et tu m'as même initié à l'art de l'escalade!

Je remercie aussi tous les membre actuels et anciens du groupe nanophotonique que j'ai pu croiser pendant ces années au sein de ce laboratoire. Merci à Morgane, Bin, Pierre F., Reenu, Ani, Noémie, Jeanne, Pierre B., Martin, Chiara, Nadezda, Valérian, Laurent, Camille, Ming, Shibu, Franck, Zhenghong et Hatim. Je voudrais aussi remercier le personnel administratif et technique du laboratoire sans qui rien n'est possible, et en particulier Stéphanie et Fabien pour votre bonne humeur et vos qualités humaines.

Un immense merci à Maxime, mon "compagnon de projet" qui a partagé nos repas pendant ces deux dernières années. Grâce à toi je n'oublierai jamais que "pour rencontrer M. Li, il vaut mieux avoir une bonne couverture"! J'espère que nos soirées jeux de société ont un long avenir devant elles.

Enfin, merci à mes proches qui m'ont soutenus tout au long de cette thèse et qui m'ont encouragés. Merci à mes parents pour avoir fait de moi ce que je suis aujourd'hui. Vous m'avez tout donné. Ma gratitude et mon amour envers vous sont éternels. Mon attention se dirige finalement vers Caroline, la femme que j'aime et qui a toujours été là pour moi. Nous nous sommes soutenus mutuellement pendant nos thèses respectives qui se sont déroulées en parallèle. Tu as fait preuve d'un courage et d'une volonté sans faille durant ces trois années. Je suis fier de toi!

Table des matières

Remerciements	iii
Introduction	3
I Physique des vortex	9
I.1. Bases théoriques	9
I.1.1. Propriétés des supraconducteurs	9
I.1.2. Origine microscopique de la supraconductivité	10
I.1.3. La théorie de Ginzburg-Landau	12
I.1.3.1. Les équations de Ginzburg-Landau	12
I.1.3.2. Longueur de cohérence.	13
I.1.3.3. La longueur de pénétration de London.	14
I.1.3.4. Quantification du flux	14
I.1.3.5. Deux types de supraconducteurs	15
I.1.4. Effet Josephson	17
I.1.4.1. Les équations de Josephson.	17
I.1.4.2. Jonction Josephson dans un champ magnétique externe .	20
I.2. Propriétés des vortex d'Abrikosov	23
I.2.1. Propriétés magnétiques	23
I.2.1.1. Champ magnétique d'un vortex.	23
I.2.1.2. Énergie d'un vortex	25
I.2.1.3. Interactions entre vortex	25
I.2.2. Forces exercées sur un vortex	26
I.2.2.1. Forces de piégeage	27
I.2.2.2. Force thermique	28
I.2.2.3. Autres forces	28
I.2.3. Techniques de manipulation	29
I.2.4. Propriétés électriques	30
I.3. Conclusion	32
II Méthodes expérimentales	37

II.1. Imagerie magnéto-optique de vortex d'Abrikosov	37
II.1.1. Principe de l'imagerie magnéto-optique	37
II.1.1.1. Effet Faraday.	37
II.1.1.2. Calcul du profil d'intensité d'un vortex	39
II.1.2. Propriétés des grenats magnétiques	42
II.1.3. Montage expérimental	44
II.1.3.1. Le cryostat.	44
II.1.3.2. Le montage optique	45
II.2. Détection locale de champ électrique avec des molécules uniques	47
II.2.1. Résonances optiques à basse température	48
II.2.1.1. Niveaux énergétiques d'une molécule fluorescente	48
II.2.1.2. Modélisation de l'interaction avec un laser	49
II.2.2. Détection d'un champ électrique local par effet Stark	51
II.2.3. Montage expérimental	52
II.2.3.1. Le cryostat.	53
II.2.3.2. La source laser	55
II.2.3.3. Le montage optique	56
II.3. Conclusion	59
III Mise en évidence expérimentale de l'effet flexomagnétoélectrique	63
III.1. Présentation des matériaux multiferroïques	63
III.2. Combinaison de l'imagerie magnéto-optique et de la spectroscopie de molécules uniques	67
III.2.1. Conception de l'échantillon.	67
III.2.2. Images des parois de domaines et des molécules fluorescentes	69
III.3. Observation du champ électrique créé dans le grenat par effet flexomagnétoélectrique	71
III.3.1. Modulation du signal de fluorescence	72
III.3.2. Preuve du déplacement spectral des molécules	75
III.3.3. Comparaison des mesures aux estimations théoriques	77
III.4. Conclusion	83
IV Manipulation optique de vortex d'Abrikosov	87

IV.1. Vortex dans un gradient thermique	87
IV.1.1. Transport d'entropie	87
IV.1.2. Concept de force thermique attractive	88
IV.2. Manipulation de vortex uniques	90
IV.2.1. Principe de l'expérience	90
IV.2.2. Efficacité de la méthode	95
IV.3. Survie d'un vortex en présence du laser	97
IV.3.1. Estimation numérique de l'élévation de température	99
IV.3.2. Mesure des forces de piégeage.	102
IV.4. Sculpter le flux magnétique par chauffage laser	104
IV.4.1. Observation d'agrégats de vortex après chauffage laser	104
IV.4.2. Calcul du paramètre d'ordre à la frontière Normal/Supra	105
IV.4.3. Le concept de barrière géométrique	109
IV.4.4. Modélisation du profil de champ magnétique dans l'agrégat.	111
IV.5. Conclusion	114
V Création et contrôle d'une jonction Josephson par laser	117
V.1. Résolution des équations de GL à 1D dans le cas d'une distribution de température non-uniforme	118
V.1.1. Équations de Ginzburg-Landau	118
V.1.2. Calcul du paramètre d'ordre	121
V.1.3. Calcul de la relation courant-phase	122
V.1.4. Marches de Shapiro	124
V.2. Estimation du courant critique pour une structure réelle	125
V.2.1. Description du modèle utilisé.	125
V.2.2. Optimisation de la géométrie de l'échantillon	125
V.2.3. Calcul des propriétés de la jonction Josephson	127
V.3. Résultats expérimentaux préliminaires	130
V.3.1. Description du montage expérimental	130
V.3.2. Caractérisation du fil supraconducteur utilisé.	132
V.3.2.1. Résistance à température ambiante	132
V.3.2.2. Résistance à basse température	132
V.3.2.3. Caractéristiques courant-tension pour $T < T_c$	134
V.3.2.4. Caractéristiques courant-tension en présence du laser	135
V.4. Conclusion	138
Conclusion	141
Bibliographie	147

Introduction

Depuis sa découverte en 1911 par Heike Kamerlingh Onnes [15], la supraconductivité fait partie des grandes avancées scientifiques ayant permis de nombreuses applications technologiques modernes. Elle est maintenant à l'origine de nombreux dispositifs rencontrés dans des domaines variés de la recherche [1]. Dans les supraconducteurs de type II, le champ magnétique peut pénétrer sous la forme de vortex d'Abrikosov qui représentent l'objet magnétique le plus compact que l'on puisse trouver dans un supraconducteur (avec des tailles pouvant aller de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres) portant un quantum de flux et autour duquel circulent des courants électriques non dissipatifs (des supercourants).

Certaines théories prédisent l'apparition d'une redistribution de charges au cœur du vortex produisant un champ électrique statique similaire à celui d'un dipôle de quelques Debye [2]. La présence de cette charge électrique au cœur d'un vortex devrait fortement influencer les interactions mutuelles entre les vortex, notamment en ce qui concerne l'étude de la stabilité des réseaux de vortex denses dans les supraconducteurs à haute température critique. Or, à ce jour, aucune preuve expérimentale directe et indiscutable n'existe. Il est envisageable de mesurer ce champ électrique à l'aide de la spectroscopie de molécules uniques. Lorsque l'on place certaines molécules aromatiques dans une matrice organique bien choisie à la température de l'hélium liquide, les processus de déphasage du dipôle de transition par les phonons tendent à disparaître, rendant la raie de résonance purement électronique excessivement fine, dont la largeur atteint sa limite fondamentale déterminée par la durée de vie de l'état excité (~ 20 MHz) [3]. Bien qu'à l'origine centrosymétriques, ces molécules, si elles sont placées dans une matrice polycristalline (comme les alcanes), peuvent subir une brisure de symétrie rendant leurs résonances optiques très sensibles à un champ électrique externe par effet Stark linéaire. Le champ électrique créé à quelques dizaines de nanomètres d'un vortex, estimé à 10^4 V/m [4], est détectable par une molécule car suffisamment élevé pour produire un déplacement de résonance d'une largeur de raie.

Une telle mesure nécessite dans un premier temps de pouvoir localiser ces vortex. Pour cela, nous utiliserons au cours de ce travail de thèse l'imagerie magnéto-optique [5] qui, étant une méthode optique, peut être facilement combinée avec la spectroscopie de molécules uniques. Cette technique d'imagerie basée sur l'effet Faraday permet de déterminer la distribution de champ magnétique à la surface d'un matériau à l'aide d'un indicateur magnéto-optique. Ces indicateurs sont des matériaux ferrimagnétiques qui, par définition, sont constitués de domaines magnétiques différenciés par des aimantations antiparallèles. Il a été prédit que les parois de domaines de type Néel que l'on peut rencontrer dans le type d'indicateurs magnéto-optiques que nous utilisons ont des géométries propices à la création d'une polarisation non nulle. Il est donc important d'examiner en premier lieu l'existence d'une telle polarisation électrique. En effet, s'il s'avère qu'elle est détectable par spectroscopie de molécules uniques, alors elle sera considérée comme un effet parasite lorsque nous voudrions mesurer le champ électrique d'un vortex d'Abrikosov. En revanche, l'effet flexomagnétoélectrique qui est supposé être à l'origine de cette polarisation électrique n'a jamais été observé expérimentalement de manière directe. Nous avons donc ici une excellente op-

portunité de révéler cet effet en utilisant la méthode de la spectroscopie de molécules uniques. Sa mise en évidence expérimentale serait un progrès dans la compréhension de ces matériaux, qui offrent la possibilité de contrôler l'aimantation par simple application d'un champ électrique, ouvrant la voie au développement de nouveaux éléments de mémoire à faible consommation électrique.

Dans la perspective de mesurer le champ électrique d'un vortex d'Abrikosov par spectroscopie de molécules uniques, il est nécessaire de déplacer la résonance moléculaire par effet Stark, donc de moduler temporellement le champ électrique ressenti par les molécules. Celles-ci étant piégées dans la matrice polycristalline, elles ne peuvent pas être déplacées. Il est donc nécessaire de pouvoir déplacer le vortex au voisinage d'une molécule. Cependant, jusqu'à présent, la manipulation de vortex uniques n'a pu être réalisée qu'à l'aide de méthodes à sondes locales, intrinsèquement lentes et difficiles à mettre en place dans des environnements cryogéniques. Nous proposons donc de développer une méthode optique rapide et précise permettant de manipuler efficacement et sur de larges échelles des vortex d'Abrikosov individuels. Celle-ci repose sur l'absorption de photons par le métal supraconducteur, qui doit créer une force thermique attractive sur un vortex isolé dont l'amplitude dépend du gradient thermique et des propriétés du supraconducteur.

Le déplacement de vortex uniques peut aussi s'avérer utile en ce qui concerne le développement d'éléments d'électronique supraconductrice. En effet, leur fonctionnement est basé sur l'utilisation de jonctions Josephson, qui sont des dispositifs supraconducteurs constitués de deux électrodes supraconductrices séparées par une fine couche non supraconductrice. Les propriétés de conduction d'une jonction Josephson sont essentiellement régies par la différence de phase existant entre les deux électrodes supraconductrices via la relation courant-phase de la jonction [13]. Or, il a été montré qu'un vortex placé à proximité d'une jonction Josephson peut fortement affecter la différence de phase entre les deux électrodes, et par conséquent modifier les propriétés de transport de cette dernière [8, 9]. Ainsi, une méthode offrant une manipulation rapide, précise et réversible d'un vortex d'Abrikosov peut offrir des perspectives prometteuses en ce qui concerne le contrôle de dispositifs supraconducteurs.

Enfin, les vortex constituent des sources de bruit et de dissipation d'énergie dans de nombreux dispositifs supraconducteurs et sont donc souvent un obstacle limitant leur fonctionnement [6]. Pour venir à bout de ces limitations, il est important de développer des méthodes simples et rapides permettant de faire disparaître ces vortex du supraconducteur. Pour cela, on peut envisager d'utiliser cette méthode optique pour "débarrasser" une zone du supraconducteur de tous ses vortex sans nécessité de recourir à une structuration préalable du matériau ou à une incorporation de défauts.

De part sa plus grande bande passante ainsi que son coût énergétique plus faible, l'électronique supraconductrice [6] est l'une des alternatives les plus prometteuses à l'électronique classique basée sur la technologie des semiconducteurs. Cela est rendu possible grâce à l'utilisation de jonctions Josephson jouant le rôle d'interrupteurs ultra-rapides. Cependant, cette logique supraconductrice fait face à de multiples défis [10], dont les plus importants sont le développement d'éléments de mémoire avec des capacités de stockage suffisamment importantes et la miniaturisation des circuits [11, 12]. Une des principales problématiques liées à l'utilisation de ces jonctions dans des circuits supraconducteurs complexes réside dans l'inhomogénéité de leurs propriétés (chaque jonction aura une relation courant-phase

et un courant critique différent), limitant l'efficacité des circuits supraconducteurs. Il existe néanmoins des méthodes permettant de modifier les propriétés d'une jonction Josephson basées sur l'application de champs magnétiques locaux ou sur la variation de la température [14]. Cependant, ces techniques restent difficilement applicables sur de larges ensembles de jonctions Josephson formant un circuit supraconducteur.

Afin d'apporter une solution à ces problèmes, nous proposons de créer et contrôler optiquement une jonction Josephson en utilisant un faisceau laser focalisé sur un ruban supraconducteur : l'élévation de température locale entraînée par l'absorption des photons du laser par le supraconducteur aura pour effet d'affaiblir voire de détruire localement le caractère supraconducteur du ruban, faisant ainsi apparaître un lien faible situé entre deux électrodes supraconductrices. La géométrie ainsi créée sera alors analogue à celle d'une jonction Josephson classique et il est envisageable d'observer un effet Josephson dans une telle structure. Le contrôle des propriétés de la jonction, et notamment de sa relation courant-phase, via des modifications des caractéristiques du faisceau laser utilisé pour créer le lien faible, représente un avantage par rapport à une jonction classique : la possibilité de contrôler en temps réel les propriétés de la jonction, de façon réversible. Cette solution pourrait permettre notamment de résoudre les problèmes liées aux inhomogénéités des jonctions Josephson qui existent lorsque l'on crée un circuit supraconducteur.

Ce manuscrit sera composé de 5 chapitres. Tout d'abord seront exposés les principes fondamentaux de la théorie de la supraconductivité et les propriétés des vortex d'Abrikosov dont nous aurons besoin pour développer les chapitres suivants.

Un second chapitre nous permettra de décrire les différentes méthodes expérimentales que nous emploierons. Nous décrirons ainsi le principe de la technique de l'imagerie magnéto-optique, puis nous détaillerons le fonctionnement des différents cryostats et montages optiques utilisés.

Dans le troisième chapitre, nous présenterons le principe de l'expérience ayant permis de démontrer l'existence de l'effet flexomagnétoélectrique dans les grenats de fer par spectroscopie de molécules uniques. Nous comparerons ensuite les résultats obtenus à des calculs théoriques.

Le quatrième chapitre sera, quant à lui, consacré à l'étude du déplacement de vortex uniques dans des supraconducteurs de type II à l'aide d'une méthode optique simple en champ lointain, basée sur l'échauffement local du supraconducteur. Nous commencerons par décrire la méthode ainsi que ses avantages par rapport aux techniques de déplacement déjà existantes. Ensuite, nous présenterons différents régimes de manipulation : de la première démonstration du déplacement de vortex avec une pince optique rapide et précise à la mise en évidence de la barrière géométrique dans un supraconducteur de type II à l'aide d'un laser focalisé.

Enfin, le cinquième chapitre sera dédié aux calculs théoriques permettant de montrer qu'il est possible de créer une jonction Josephson à l'aide d'un faisceau laser focalisé sur un fil supraconducteur. Nous développerons ainsi le modèle théorique nous permettant de calculer la relation courant-phase du dispositif et nous montrerons que cette dernière peut-être modifiée en ajustant les paramètres du laser. Enfin, nous exposerons les résultats expérimentaux préliminaires obtenus.

Pour terminer, une synthèse des résultats obtenus au cours de ce travail de thèse ainsi que plusieurs perspectives seront présentées dans la conclusion.

Chapitre I

Physique des vortex

I.1. Bases théoriques

La supraconductivité confère à certains matériaux des propriétés électriques et magnétiques complètement modifiées lorsqu'ils sont refroidis en dessous d'une température critique T_c : ils deviennent alors des conducteurs et des diamagnétiques parfaits. Cela se traduit macroscopiquement par l'absence totale de résistance électrique ainsi que par l'expulsion du champ magnétique externe.

I.1.1. Propriétés des supraconducteurs

La première propriété remarquable des métaux supraconducteurs fut celle qui permit leur découverte. Lorsqu'un supraconducteur est refroidi en dessous de sa température critique T_c , sa résistivité transite d'une valeur non nulle ρ_n dans l'état normal (pour une température $T > T_c$) vers 0 dans l'état supraconducteur (lorsque $T < T_c$). Cette propriété explique pourquoi les supraconducteurs offrent de grandes possibilités technologiques : si la résistance est nulle, alors aucune énergie n'est dissipée par effet Joule. Ainsi, un courant électrique circulant dans un supraconducteur n'étant relié à aucune source de courant peut circuler dans ce dernier de façon perpétuelle.

Une autre propriété fondamentale des supraconducteurs est leur diamagnétisme parfait. En effet, si l'on considère l'induction magnétique au sein d'un matériau, on peut écrire :

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}), \quad (\text{I.1})$$

où \vec{H} est le champ magnétique appliqué et \vec{M} l'aimantation induite par ce champ externe, que l'on peut écrire $\vec{M} = \chi_m \vec{H}$ où χ_m est la susceptibilité magnétique du matériau. L'équation précédente peut alors se réécrire :

$$\vec{B} = \mu_0(1 + \chi_m)\vec{H}. \quad (\text{I.2})$$

Dans la plupart des matériaux, cette susceptibilité est positive. On peut cependant trouver certains matériaux dits diamagnétiques qui montrent une susceptibilité négative. Cela se traduit par la création d'un champ qui s'oppose au champ magnétique appliqué, réduisant ainsi la valeur de l'induction magnétique au sein du matériau. Les susceptibilités magnétiques de ces matériaux sont typiquement de l'ordre de -10^{-5} .

Les supraconducteurs, quant à eux, se comportent comme des diamagnétiques parfaits, c'est-à-dire que leur susceptibilité magnétique est égale à -1 . On voit, grâce à l'équation (I.2), que si cette condition est respectée, l'induction magnétique est strictement nulle dans le matériau. C'est ce phénomène de répulsion totale du champ magnétique appliqué aussi appelé *effet Meissner* [16] qui est à l'origine de la lévitation magnétique à base de supraconducteurs.

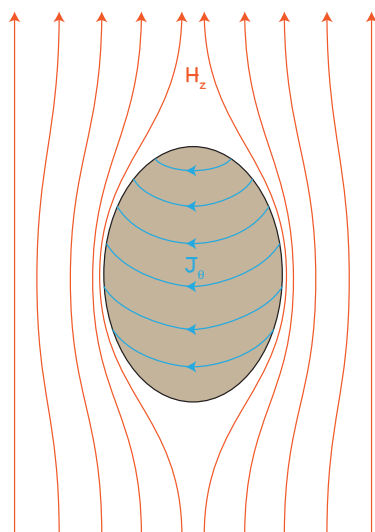


FIGURE I.1 – Illustration de l’effet Meissner : le champ magnétique extérieur induit des supercourants dans le supraconducteurs créant un champ magnétique exactement opposé au champ extérieur.

I.1.2. Origine microscopique de la supraconductivité

Dans l’état supraconducteur, les électrons forment des paires liées appelées *paires de Cooper*, dans lesquelles les électrons ont un spin et un vecteur d’onde opposés. Ces paires portent ainsi un spin total nul et obéissent donc à la statistique de Bose-Einstein : dans l’état fondamental (à basse température), elles occupent toutes l’état de plus basse énergie. De plus, les paires de Cooper ont une extension spatiale relativement large (de l’ordre de 10 à 1000 nm), ce qui est bien plus grand que la distance typique séparant deux de ces paires (environ 10^8 paires de Cooper dans $1 \mu\text{m}^3$). Ainsi, les fonctions d’onde de chaque paire se recouvrent. De ce fait, toutes les paires d’un matériau supraconducteur forment un seul état pouvant être décrit quantiquement par une unique fonction d’onde Ψ . C’est de cette manière que des variables macroscopiques telles que le courant électrique peuvent dépendre de la phase globale θ de cette fonction d’onde. Cette dépendance entraîne non seulement l’absence de résistivité et l’effet Meissner observés dans les supraconducteurs que nous avons déjà abordés dans le paragraphe précédent, mais aussi d’autres effets tels que la quantification du flux ou l’effet Josephson que nous aborderons dans la suite de ce chapitre.

L’origine de cette création de paires de Cooper est une interaction attractive entre deux électrons décrite dans le cadre de la théorie BCS (nommée ainsi d’après les noms des scientifiques qui l’ont développée : J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer) [17]. Cette attraction survient lorsqu’un électron libre se déplaçant dans le matériau interagit avec le réseau cristallin et le déforme. Il en résulte un excès local de charges positives attirant alors un second électron. C’est ainsi que les deux électrons mis en jeu dans ce mécanisme se retrouvent *attirés* l’un par l’autre. Il est cependant important de noter que cette attraction n’est rendue possible que lorsque les interactions entre les électrons et les phonons du matériau sont suffisamment importantes pour permettre cette déformation du réseau.

Cette superfluidité des électrons condensés persiste tant que l’énergie apportée au système est inférieure à l’énergie de liaison des paires (aussi appelée *gap supraconducteur*)

qui est donnée à température nulle par

$$\Delta(0) = 1.76k_B T_c, \quad (\text{I.3})$$

où k_B est la constante de Boltzmann. Ces énergies de liaison sont de l'ordre du meV pour les supraconducteurs à basse température critique, la rendant extrêmement faible devant l'énergie cinétique des paires qui est de l'ordre de $2E_F - \Delta$, avec $E_F \approx 1$ eV l'énergie de Fermi. Or dans un système classique, un état lié n'est formé uniquement si l'énergie potentielle soit supérieure ou environ égale à l'énergie cinétique. On a donc ici un système pour lequel aucun état lié ne devrait exister. Cependant, d'après le principe de Pauli, si l'on veut casser une paire d'énergie $2E_F - \Delta$, alors au moins un des deux électrons se retrouvera dans un état avec une énergie cinétique inférieure à E_F . Ces états étant tous occupés par les électrons non liés, on a donc un blocage de Pauli qui est à l'origine du fait que ces états restent liés.

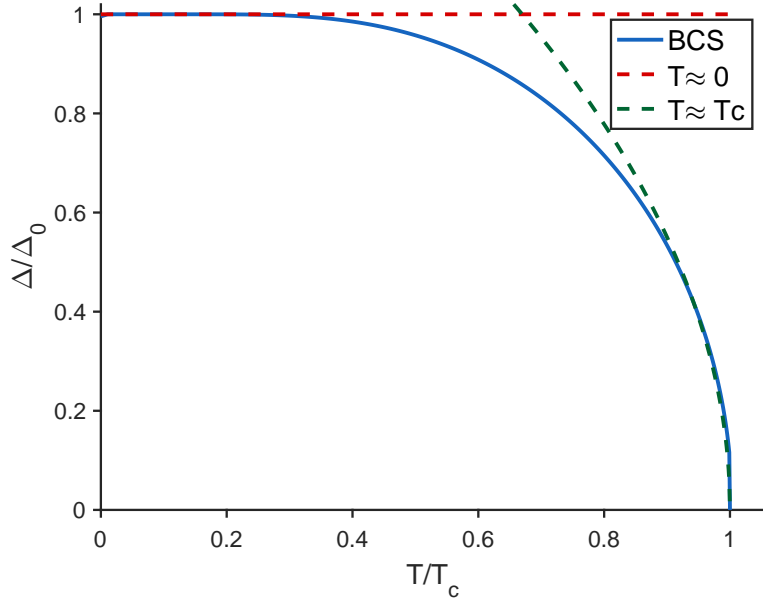


FIGURE I.2 – Résultat numérique de l'évolution du gap en fonction de la température. Le comportement asymptotique en $T \approx 0$ et $T \approx T_c$ est lui aussi tracé.

La dépendance en température de cette énergie de liaison selon ce modèle ne pouvant être obtenue que numériquement (figure I.2), il est cependant possible d'étudier analytiquement les cas limites correspondant à $T \approx 0$ et $T \approx T_c$. Dans le premier cas, il est possible de montrer que le gap est constant tandis que si l'on est proche de la température de transition, on peut écrire [18] :

$$\Delta(T \approx T_c) = 1.74\Delta(0)\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}. \quad (\text{I.4})$$

Ainsi, lorsque la température se rapproche de la valeur critique, cette énergie diminue et il devient plus facile de détruire la supraconductivité.

I.1.3. La théorie de Ginzburg-Landau

La théorie de Ginzburg-Landau est une théorie macroscopique permettant de rendre compte de la plupart des propriétés des supraconducteurs dans le cas où la température reste proche de la température critique [19].

I.1.3.1. Les équations de Ginzburg-Landau

Cette théorie part du principe que le supraconducteur peut être décrit par une fonction d'onde quantique macroscopique :

$$\Psi(\vec{r}, t) = \psi(\vec{r}, t)e^{i\theta(\vec{r}, t)}, \quad (\text{I.5})$$

où ψ et θ sont respectivement l'amplitude et la phase de cette fonction d'onde aussi appelée *paramètre d'ordre*. Ce paramètre d'ordre complexe permet d'exprimer la densité d'énergie libre F_s d'un supraconducteur¹ [20] :

$$F_s(\vec{r}, t) = F_n(\vec{r}, t) + a|\Psi|^2 + \frac{b}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m} \left| (-i\hbar\vec{\nabla} + 2e\vec{A}) \Psi \right|^2 + \frac{1}{2\mu_0} \vec{B}^2, \quad (\text{I.6})$$

où F_n est la densité d'énergie libre dans l'état normal, a et b des paramètres dépendant de la température et \vec{A} le potentiel vecteur qui est relié à l'induction magnétique via la formule $\vec{B} = \vec{\nabla} \wedge \vec{A}$. On peut voir ici que le terme $(-i\hbar\vec{\nabla} + 2e\vec{A})$ correspond à l'expression de l'opérateur quantique de moment cinétique en présence d'un champ magnétique pour une particule de charge $-2e$ et de masse $2m_e$. Ces particules décrites ici sont les paires de Cooper. Cette équation permet d'avoir un accès direct à la densité de paires de Cooper $n_s(\vec{r}, t)$. Par analogie avec la mécanique quantique, on a :

$$|\Psi(\vec{r}, t)|^2 = n_s(\vec{r}, t). \quad (\text{I.7})$$

Dans le cas le plus simple correspondant à une densité de paires de Cooper uniforme et un champ magnétique nul, la minimisation de l'énergie libre donne l'équation suivante :

$$2a|\Psi| + 2b|\Psi|^3 = 0, \quad (\text{I.8})$$

qui admet comme solutions :

$$|\Psi|^2 = 0 \quad \text{et} \quad |\Psi|^2 = -\frac{a}{b}. \quad (\text{I.9})$$

Ces deux solutions correspondent respectivement aux solutions dans les états normal et supraconducteur. On a ainsi $a = 0$ dans l'état normal et $a < 0$ dans l'état supraconducteur. Les expressions de a et b peuvent être obtenues en considérant les termes d'ordre les plus petits dans une expansion de ces coefficients en une série de termes dépendants de la température pour une température proche de T_c . On obtient ainsi :

$$a = \alpha(T - T_c) \quad \text{et} \quad b = \beta \quad (\text{I.10})$$

où α et β sont des constantes positives.

1. Notons que F_s doit être une fonction réelle de \vec{r} et de t , c'est pourquoi il n'apparaît dans son développement que des puissances paires de $|\Psi|$.

Enfin, le terme $\frac{1}{2\mu_0}\vec{B}^2$ de l'équation (I.6) correspond à l'énergie magnétique du système.

La première équation de Ginzburg-Landau est obtenue en minimisant l'énergie libre du système donnée par (I.6) par rapport au paramètre d'ordre Ψ . On obtient ainsi :

$$\alpha(T - T_c)\Psi + \beta\Psi|\Psi|^2 + \frac{1}{4m_e}(-i\hbar\vec{\nabla} + 2e\vec{A})^2\Psi = 0. \quad (\text{I.11})$$

La seconde équation de Ginzburg-Landau est déduite de la minimisation de l'énergie libre du supraconducteur par rapport au potentiel vecteur \vec{A} . Cette équation permet d'obtenir l'expression du supercourant \vec{J} :

$$\vec{J} = \frac{e}{2m_e}[\Psi^*(-i\hbar\vec{\nabla} + 2e\vec{A})\Psi + c.c.], \quad (\text{I.12})$$

que l'on peut aussi écrire :

$$\vec{J} = \frac{e}{m_e}n_s[\hbar\vec{\nabla}\theta + 2e\vec{A}]. \quad (\text{I.13})$$

On constate alors que ce supercourant est directement lié à la phase macroscopique θ du système quantique. Il est alors possible de déduire l'expression de la vitesse des paires de Cooper en écrivant $\vec{J} = -2en_s\vec{v}_s$:

$$\vec{v}_s = -\frac{1}{2m_e}[\hbar\vec{\nabla}\theta + 2e\vec{A}]. \quad (\text{I.14})$$

I.1.3.2. Longueur de cohérence

En l'absence de champ magnétique appliqué, l'équation (I.11) s'écrit :

$$\alpha(T - T_c)\Psi - \frac{\hbar^2}{4m_e}\vec{\nabla}^2\Psi + \beta\Psi|\Psi|^2 = 0. \quad (\text{I.15})$$

En posant $\xi = \sqrt{\frac{\hbar^2}{4m_e\alpha(T-T_c)}}$, l'équation précédente devient :

$$\xi^2\vec{\nabla}^2\Psi = \frac{\beta}{\alpha(T - T_c)}\Psi|\Psi|^2 + \Psi. \quad (\text{I.16})$$

De plus, si on considère que la température est proche de la température critique, on peut négliger les termes d'ordre supérieur en Ψ et on a :

$$\vec{\nabla}^2\Psi = \frac{\Psi}{\xi^2}. \quad (\text{I.17})$$

La solution est ici donnée par une exponentielle décroissante. La distance caractéristique de cette décroissance est appelée *longueur de cohérence* et a pour expression :

$$\xi = \frac{\xi_0}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}}, \quad (\text{I.18})$$

avec $\xi_0 = \sqrt{\hbar^2/(4m_e\alpha T_c)}$ la valeur de $\xi(T)$ pour une température nulle. Cette longueur caractérise la distance sur laquelle la densité de paires de Cooper retrouve sa valeur d'équilibre au voisinage d'une perturbation.

I.1.3.3. La longueur de pénétration de London

Si on prend le rotationnel de l'équation (I.13), on obtient :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{J} = -\frac{2e^2 n_s}{m_e} \vec{\nabla} \wedge \vec{A} = -\frac{2e^2 n_s}{m_e} \vec{B}. \quad (\text{I.19})$$

En considérant l'équation de Maxwell-Ampère $\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0 \vec{J}$, cette équation devient :

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} = \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B}. \quad (\text{I.20})$$

L'application d'un champ magnétique donne lieu à une induction magnétique qui décroît exponentiellement à l'intérieur du matériau sur une distance caractéristique de $\lambda_L = \sqrt{\frac{m_e}{2\mu_0 n_s e^2}}$ appelée *longueur de pénétration de London*. C'est ce que l'on appelle l'effet Meissner. De façon analogue à la longueur de cohérence, la dépendance en température de λ_L est donnée par [18] :

$$\lambda_L(T) = \frac{\lambda_{L,0}}{\sqrt{1 - \frac{T}{T_c}}}, \quad (\text{I.21})$$

où $\lambda_{L,0}$ est la valeur de $\lambda_L(T)$ pour une température nulle.

I.1.3.4. Quantification du flux

Dans le cas d'un métal classique, si le champ magnétique appliqué augmente, alors le flux passant au travers du métal augmente de façon continue, proportionnellement au champ magnétique appliqué. Nous allons démontrer dans cette partie que la situation est différente pour un supraconducteur.

Nous considérons ici un matériau supraconducteur contenant une zone normale à l'intérieur de laquelle pénètre le champ magnétique (figure I.3). Si un champ magnétique non nul

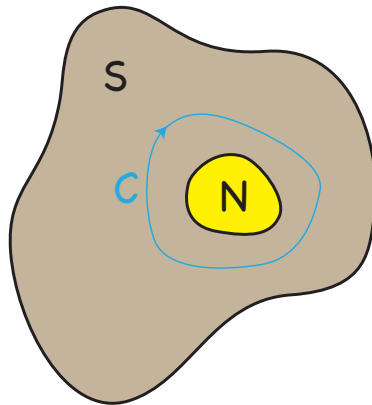


FIGURE I.3 – Illustration d'un supraconducteur contenant une zone normale dans laquelle le champ magnétique pénètre. On définit alors un contour d'intégration arbitraire autour de cette zone normale.

pénètre dans cette zone, alors ce dernier induira des supercourants dans le supraconducteur sur une distance de l'ordre de λ_L . Nous définissons alors un contour d'intégration

encerclant la zone normale mais suffisamment éloigné de celle-ci pour que les supercourants d'écrantage soient nuls. On a alors :

$$\oint_C \vec{J} \cdot d\vec{l} = 0. \quad (\text{I.22})$$

Si l'on remplace le courant par son expression donnée par l'équation (I.13), on obtient :

$$\oint_C \vec{\nabla}\theta \cdot d\vec{l} + \frac{2e}{\hbar}\Phi = 0, \quad (\text{I.23})$$

où Φ est le flux contenu dans la zone normale. Étant donné que nous avons ici un contour fermé, le premier terme de l'équation précédente est égal à $2\pi n$. Le flux contenu dans la zone normale apparaît alors comme étant quantifié et on a :

$$\Phi = n\Phi_0, \quad (\text{I.24})$$

où $\Phi_0 = h/(2e)$ est une constante fondamentale appelée *quantum de flux*.

I.1.3.5. Deux types de supraconducteurs

Lorsque l'on étudie les supraconducteurs, il est d'usage de distinguer deux types de supraconducteurs en fonction d'un paramètre noté κ que l'on appelle *paramètre de Ginzburg-Landau*. Ce paramètre, dont l'expression est donnée par $\kappa = \lambda/\xi$ permet de différencier ces deux types de supraconducteurs (figure I.4) :

- si $\kappa < 1/\sqrt{2}$, alors on dit que le supraconducteur est de type I ;
- si $\kappa > 1/\sqrt{2}$, alors on dit que le supraconducteur est de type II².

Dans le premier cas, l'énergie de surface séparant les régions normales des régions supraconductrices est positive et la création de zones normales au sein du supraconducteur est défavorable. Dans le cas des supraconducteurs de type II, cette énergie est négative et il devient favorable de créer des zones normales au sein du supraconducteur sous certaines conditions [21].

Ainsi, pour les supraconducteurs de type I, on distingue deux états :

- l'état Meissner dans lequel le matériau est supraconducteur et tout champ magnétique extérieur est expulsé pour $H < H_c(T)$ et $T < T_c$;
- l'état normal dans lequel le matériau n'est plus supraconducteur pour $H > H_c(T)$ et/ou $T > T_c$.

où $H_c(T)$ est le champ magnétique critique dont l'expression est obtenue en égalant l'énergie nécessaire pour expulser le champ magnétique externe à l'énergie de condensation du supraconducteur. Il est donné par [20] :

$$H_c(T) = \frac{\Phi_0}{2\sqrt{2}\pi\mu_0\lambda_L(T)\xi(T)}. \quad (\text{I.25})$$

2. L'origine du nom donné à ces deux types de supraconducteurs vient du fait que, lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué, la transition de l'état normal vers l'état supraconducteur est une transition du premier ordre pour les supraconducteurs de type I et du second ordre pour les supraconducteurs de type II. La majorité des supraconducteurs sont de type II.

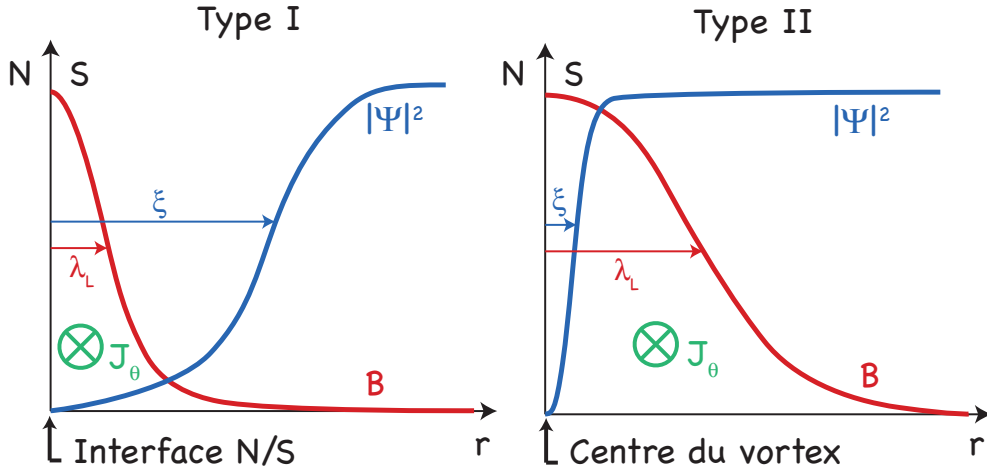


FIGURE I.4 – Comparaison de la variation du champ magnétique et du paramètre d'ordre pour les deux types de supraconducteurs.

Un supraconducteur de type II expulse lui aussi le champ magnétique extérieur. Cependant, si ce dernier excède la valeur du premier champ critique aussi appelé champ de première pénétration $H_{c,1}$, alors le champ magnétique pourra commencer à pénétrer dans le matériau. Son expression est donnée par :

$$H_{c,1}(T) = \frac{\Phi_0}{4\pi\mu_0\lambda_L(T)^2} \ln(\kappa). \quad (\text{I.26})$$

Cette pénétration se fait sous la forme de tubes de flux appelés *vortex d'Abrikosov* [21] portant chacun un flux magnétique égal au quantum de flux Φ_0 . Pour les supraconducteurs de type I, ce champ peut être calculé mais il est toujours supérieur à H_c rendant la pénétration du flux impossible.

Dans le cas d'un supraconducteur de type II, lorsque le champ pénètre, on ne peut plus considérer le champ critique H_c . En effet, celui-ci est calculé en considérant que l'on est dans l'état Meissner. Or après la première pénétration de flux dans le supraconducteur, ce dernier ne peut plus être considéré comme étant dans cet état. On définit donc le second champ critique $H_{c,2}$ comme le champ magnétique pour lequel les cœurs normaux des vortex se recouvrent, détruisant ainsi la supraconductivité. Son expression s'écrit :

$$H_{c,2}(T) = \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\xi(T)^2}. \quad (\text{I.27})$$

On peut maintenant distinguer trois états différents pour les supraconducteurs de type II :

- l'état Meissner dans lequel le matériau est supraconducteur et tout champ magnétique extérieur est expulsé pour $H < H_{c,1}(T)$ et $T < T_c$;
- l'état *mixte* dans lequel le champ magnétique pénètre partiellement pour $H_{c,1}(T) < H < H_{c,2}(T)$ et $T < T_c$;
- l'état normal dans lequel le matériau n'est plus supraconducteur pour $H > H_c(T)$ et/ou $T > T_c$.

Notons qu'en pratique, l'observation de ces champs critiques, et plus particulièrement de l'apparition de vortex pour des champs magnétiques appliqués supérieurs à $H_{c,1}(T)$ nécessite que le matériau ait été préalablement refroidi en l'absence totale de champ magnétique. En effet, si un champ magnétique extérieur est appliqué, celui-ci commence par pénétrer au sein du matériau porté à une température supérieure à T_c . Lorsque le matériau est ensuite refroidi, le champ magnétique se retrouve alors piégé dans le matériau et la minimisation de l'énergie des parois de domaines normal/supraconducteur impose la création de vortex d'Abrikosov. Pour cela, il suffit que le flux traversant l'échantillon soit supérieur ou égal au quantum de flux Φ_0 .

I.1.4. Effet Josephson

Nous allons maintenant aborder l'effet Josephson qui est une autre manifestation macroscopique de la nature quantique de la supraconductivité [22]. Cet effet est aujourd'hui utilisé dans de nombreuses applications telles que la mesure précise de champ magnétique où l'électronique supraconductrice. Il se manifeste lorsque deux supraconducteurs sont connectés par un matériau qui peut être un isolant, un métal normal, un point de contact ou une barrière tunnel. Ce type de dispositif est alors appelé *jonction Josephson*.

Il est bien connu [23] que si l'on sépare deux métaux par une couche isolante suffisamment fine, un électron d'énergie E peut passer au travers de la barrière de potentiel ainsi formée par effet tunnel avec une probabilité de passage qui peut s'écrire, pour une barrière de largeur d , de hauteur U , et suffisamment large³ :

$$T = 16 \frac{K^2 k^2}{(K^2 + k^2)^2} \exp(-2Kd), \quad (\text{I.28})$$

où $k = \sqrt{2mE}/\hbar$ et $K = \sqrt{2m(U - E)}/\hbar$. On voit alors que la probabilité de passer au travers de la barrière est d'autant plus petite que la barrière est large et que sa hauteur relative par rapport à l'énergie de l'électron incident (correspondant à la tension appliquée aux bornes de la jonction) est grande. Pour un électron, la probabilité de passage par effet tunnel est faible. Ainsi, une paire de Cooper composée de 2 électrons doit pouvoir passer au travers de la même barrière avec une probabilité élevée au carré, soit des événements très rares. Or le caractère cohérent des paires de Cooper fait que les deux électrons ne doivent pas être considérés comme indépendants et par conséquent la probabilité qu'une paire de Cooper traverse la barrière est en fait la même que pour un seul électron.

I.1.4.1. Les équations de Josephson

Afin de démontrer les équations de Josephson permettant d'expliquer cet effet, nous devons considérer deux supraconducteurs S_L et S_R d'épaisseur d et de largeur W , dont les fonctions d'onde ont pour amplitude ψ_L et ψ_R et pour phase θ_L et θ_R . Ces deux supraconducteurs sont séparés par un matériau isolant I de longueur L , d'épaisseur d et de largeur W . Considérons d'abord l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = E\Psi. \quad (\text{I.29})$$

Dans le cas d'une jonction Josephson, les paires de Cooper peuvent passer d'un supraconducteur à l'autre avec une probabilité K (correspondant à la hauteur énergétique de la

3. Cette expression n'est valide que dans le cas d'une barrière large, c'est-à-dire pour $Kd \gg 1$.

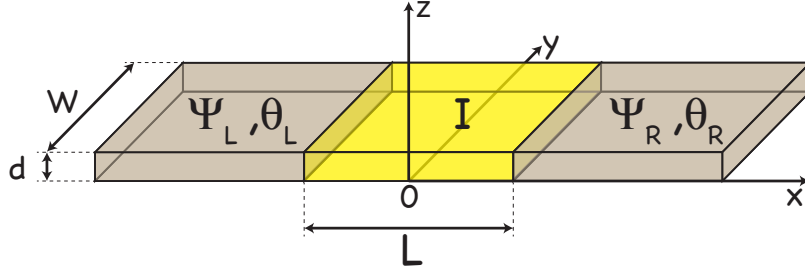


FIGURE I.5 – Schéma d'une jonction Josephson.

barrière). On peut donc réécrire l'équation de Schrödinger sous la forme d'une équation de taux prenant en compte le passage de paires de Cooper d'un supraconducteur vers l'autre. On a ainsi :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_L}{\partial t} = E_L \Psi_L + K \Psi_R, \quad (\text{I.30})$$

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_R}{\partial t} = E_R \Psi_R + K \Psi_L, \quad (\text{I.31})$$

où E_R et E_L sont les énergies fondamentales des deux supraconducteurs lorsqu'ils ne sont pas connectés ($K = 0$). Ces deux énergies vérifient la relation $E_L - E_R = -2eV$ où V est la différence de potentiel appliquée au système. Nous nous placerons dans le cas simple pour lequel les deux supraconducteurs sont identiques, ce qui implique $E_L = E_R$. De plus, pour simplifier les calculs, nous prenons comme origine des énergies la moyenne de ces deux énergies. Cela nous permet d'écrire :

$$\frac{\partial \theta_R}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \left(\frac{n_{s,L}}{n_{s,R}} \right)^{1/2} \cos \varphi + \frac{eV}{\hbar}, \quad (\text{I.32})$$

$$\frac{\partial \theta_L}{\partial t} = -\frac{K}{\hbar} \left(\frac{n_{s,R}}{n_{s,L}} \right)^{1/2} \cos \varphi - \frac{eV}{\hbar}, \quad (\text{I.33})$$

$$\frac{\partial n_{s,R}}{\partial t} = -\frac{2K}{\hbar} (n_{s,L} n_{s,R})^{1/2} \sin \varphi, \quad (\text{I.34})$$

$$\frac{\partial n_{s,L}}{\partial t} = \frac{2K}{\hbar} (n_{s,L} n_{s,R})^{1/2} \sin \varphi, \quad (\text{I.35})$$

où $\varphi = \theta_R - \theta_L$ est la différence de phase entre les deux supraconducteurs. Le supercourant circulant dans la jonction est ensuite calculé en utilisant $J = -2e \frac{\partial n_{s,L}}{\partial t}$, ce qui donne finalement la première équation de Josephson :

$$J = J_c \sin \varphi, \quad (\text{I.36})$$

avec $J_c = 4Ke(n_{s,L}n_{s,R})^{1/2}/\hbar$ le courant critique de la jonction. L'équation (I.36) montre qu'un courant circule spontanément dans la jonction dès qu'une différence de phase apparaît entre les deux supraconducteurs, même en l'absence de tension appliquée. Ces équations permettent également de décrire l'évolution temporelle de la différence de phase entre les deux supraconducteurs en fonction de la tension appliquée. Celle-ci est donnée par :

$$\frac{\partial\varphi}{\partial t} = \frac{2eV}{\hbar}. \quad (\text{I.37})$$

En considérant une tension appliquée constante, l'équation (I.37) nous permet de démontrer que la phase varie linéairement au cours du temps avec une pente $\omega_J = 2eV/\hbar$ appelée *fréquence Josephson*. Par exemple, pour une tension appliquée de $1 \mu\text{V}$, la fréquence sera de 483.6 MHz. Lorsqu'une tension constante est appliquée aux bornes de la jonction, il est possible d'intégrer (I.37) par rapport au temps et on peut réécrire la première équation de Josephson :

$$J = J_c \sin(\phi_0 + \omega_J t), \quad (\text{I.38})$$

où ϕ_0 est la différence de phase en l'absence de tension appliquée. Ce courant oscillant va générer une onde électromagnétique micro-onde. Ainsi, les jonctions Josephson peuvent être considérées comme des oscillateurs que l'on contrôle par la tension appliquée à ses bornes et peuvent être utilisées en tant que générateurs de hautes fréquences. Le processus inverse est aussi réalisable : en appliquant une micro-onde de pulsation ω_r sur la jonction, il est possible de créer une oscillation des paires de Cooper à la fréquence de l'onde incidente. Ce couplage est révélé dans la caractéristique courant-tension de la jonction par l'apparition de marches de courant quantifiées appelées *Marches de Shapiro* [24] apparaissant pour des tensions :

$$V_n = \frac{n\hbar}{2e}\omega_r, \quad (\text{I.39})$$

où n est un entier positif. En effet, lorsque la tension aux bornes de la jonction est égale à V_n , le coût énergétique du passage d'une paire de Cooper à travers la barrière est de $2eV_n$. Lorsqu'une onde électromagnétique radio-fréquence est présente, il est possible qu'une paire de Cooper absorbe ou émette n photons de pulsation ω_r pour traverser la barrière de potentiel que représente le lien faible. C'est lorsque la condition I.39 est respectée que la probabilité de passage des paires d'un côté à l'autre de la jonction devient la plus forte.

De plus, l'effet de l'onde électromagnétique sur la jonction est d'induire une tension alternative à ces bornes, que l'on peut écrire :

$$V(t) = V_0 + V_1 \cos(\omega_r t), \quad (\text{I.40})$$

où V_0 est la tension continue appliquée aux bornes de la jonction et V_1 l'amplitude des oscillations. Dans ces conditions, la différence de phase de la jonction peut s'écrire :

$$\varphi(t) = \int_0^t V(t') dt'. \quad (\text{I.41})$$

En remplaçant dans la première équation de Josephson (I.36), on obtient l'expression du supercourant circulant dans la jonction :

$$j(t) = j_c \sin \left[\int_0^t V(t') dt' \right]. \quad (\text{I.42})$$

En présence d'une tension variant sinusoidalement dans le temps, le supercourant s'écrit :

$$j = j_c \sin \left[\omega_f t + \frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \sin(\omega_r t) + \varphi_0 \right], \quad (\text{I.43})$$

où $\omega_f = 2eV_0/\hbar$ et φ_0 est la différence de phase initiale. Cette expression aussi se réécrit comme une somme infinie de fonctions de Bessel [14] :

$$j(t) = j_c \left[J_0 \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) \sin(\omega_f t + \varphi_0) + \sum_{n=1}^{\infty} J_n \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) \{ \sin[(n\omega_r + \omega_f)t + \varphi_0] - (-1)^n \sin[(n\omega_r - \omega_f)t + \varphi_0] \} \right], \quad (\text{I.44})$$

où les $J_n(x)$ sont des fonctions de Bessel du premier type. On en déduit alors que si $\omega_f = \pm n\omega_r$, une composante continue du supercourant apparaît, se traduisant sur la caractéristique courant-tension de la jonction comme une marche de courant. Pour un l donné, l'amplitude de ces marches est donnée par :

$$|\langle j \rangle| = j_c \left| J_n \left(\frac{2\pi V_1}{\Phi_0 \omega_r} \right) \right|. \quad (\text{I.45})$$

I.1.4.2. Jonction Josephson dans un champ magnétique externe

Considérons une jonction identique à celle présentée dans la partie précédente d'épaisseur d et de largeur W , dont les fonctions d'onde ont pour amplitude ψ_L et ψ_R et pour phase θ_L et θ_R . Ces deux supraconducteurs sont séparés par un matériau isolant I de longueur L , d'épaisseur d et de largeur W . Nous allons voir dans cette partie l'effet d'un champ magnétique appliqué dans une direction perpendiculaire au plan de la jonction (défini ici par le plan yOz). Nous considérons ici une jonction Josephson ayant la géométrie représentée sur la figure I.6. Le courant circule dans la direction de y et le champ magnétique est appliqué selon x . Afin de calculer l'effet d'un champ magnétique sur cette structure, il est utile d'introduire la phase invariante par changement de jauge :

$$\gamma = \theta + \frac{2e}{\hbar} \int \vec{A} \cdot d\vec{l}. \quad (\text{I.46})$$

En effet, on remarque ici qu'un changement de jauge laisse inchangée l'observable correspondant au courant dont l'expression est donnée par (I.13).

Il s'agit maintenant de déterminer la différence de phase introduite par le champ magnétique entre deux points P et Q alignés selon l'axe z et séparés d'une distance infinitésimale dz . La variation de phase $\Delta\gamma$ entre ces deux points peut être exprimée de la façon suivante :

$$\Delta\gamma = (\gamma_{P_L} - \gamma_{P_R}) - (\gamma_{Q_L} - \gamma_{Q_R}) \quad (\text{I.47})$$

$$= (\theta_{P_L} - \theta_{Q_L}) - (\theta_{P_R} - \theta_{Q_R}) + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{P_R}^{P_L} \vec{A} \cdot d\vec{l} + \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{Q_L}^{Q_R} \vec{A} \cdot d\vec{l}. \quad (\text{I.48})$$

Les deux premiers termes se déduisent de l'expression du supercourant donnée par (I.13). On a ainsi :

$$\Delta\gamma = \frac{2\pi}{\Phi_0} \oint_C \vec{A} \cdot d\vec{l} + \frac{m_e}{e\hbar n_s} \left[\int_{Q_L}^{P_L} \vec{J} \cdot d\vec{l} + \int_{P_R}^{Q_R} \vec{J} \cdot d\vec{l} \right]. \quad (\text{I.49})$$

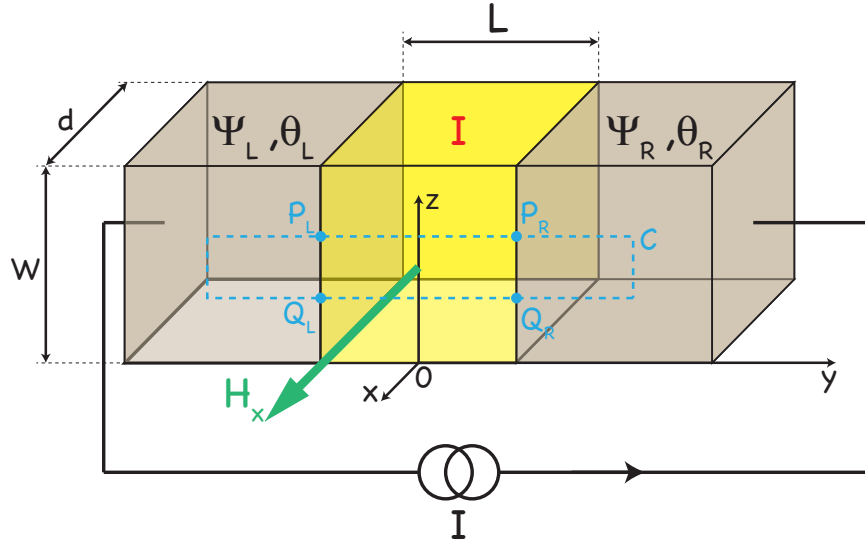


FIGURE I.6 – Schéma d'une jonction Josephson en présence de champ magnétique.

Or le second terme de cette équation est nul. En effet, l'intégrale de la densité de courant le long d'un segment selon y s'annule avec la contribution du chemin adjacent. De plus, l'intégration selon l'axe des z est prise suffisamment loin de la barrière pour que les courants d'écrantages induits par la pénétration du champ sur une distance λ_L soient négligeables. On a finalement :

$$\Delta\gamma = \frac{2\pi\Phi}{\Phi_0}. \quad (\text{I.50})$$

Nous définissons ensuite l'épaisseur magnétique de la jonction comme $L_b = L + \lambda_{L,L} + \lambda_{L,R}$ où $\lambda_{L,L}$ et $\lambda_{L,R}$ sont respectivement les longueurs de pénétrations dans les supraconducteurs de gauche et de droite. Le flux compris dans le contour C est donc défini par :

$$\Phi = H_x L_B dz. \quad (\text{I.51})$$

On peut alors écrire une équation différentielle décrivant l'évolution de la phase invariante en fonction du champ magnétique :

$$\frac{\partial\gamma}{\partial z} = \frac{2\pi}{\Phi_0} H_x L_B. \quad (\text{I.52})$$

Dans le cas d'une jonction étroite ($L \ll W$), le champ magnétique créé par les courants Josephson est négligeable et le champ magnétique externe peut être considéré comme uniforme. On a donc :

$$\gamma(z) = \gamma_0 + \frac{2\pi L_B}{\Phi_0} H_x z, \quad (\text{I.53})$$

où γ_0 est une constante d'intégration. La densité de courant Josephson s'écrit alors, selon (I.36) :

$$J(x, z) = J_c(x, z) \sin\left(\gamma_0 + \frac{2\pi L_B}{\Phi_0} H_x z\right) = J_c \sin(kz + \gamma_0), \quad (\text{I.54})$$

où $k = \frac{2\pi L_B}{\Phi_0} H_x$. Nous allons maintenant calculer la dépendance du courant Josephson en fonction du champ magnétique appliqué. Son expression s'obtient en intégrant la densité

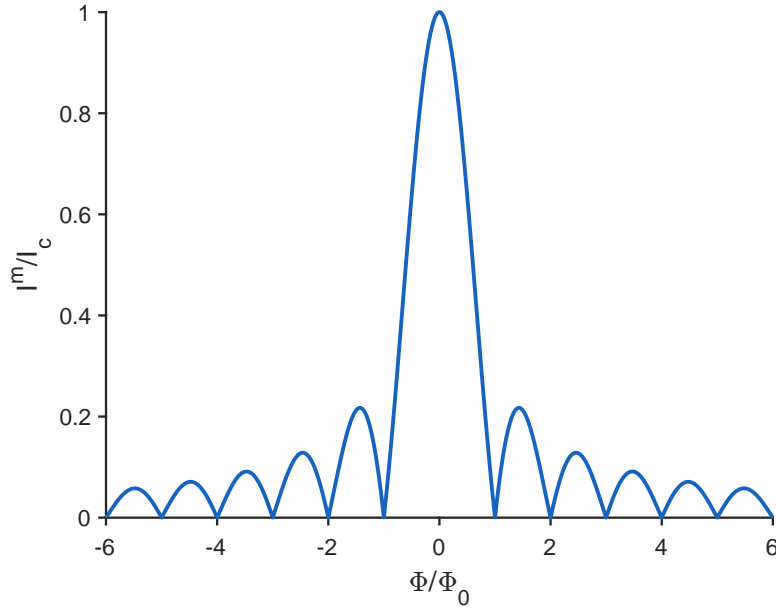


FIGURE I.7 – Dépendance du courant Josephson maximal pouvant circuler dans une jonction en fonction du champ magnétique appliqué.

de courant sur la section de la jonction, soit :

$$I(H_x) = \int_{-d/2}^{d/2} \int_{-W/2}^{W/2} J(x, z) dx dz, \quad (\text{I.55})$$

que l'on peut écrire, après intégration de la densité de courant critique selon x :

$$I(H_x) = \int_{-W/2}^{W/2} i_c(z) \sin(\gamma_0 + kz) dz = \text{Im} \left[e^{i\gamma_0} \int_{-\infty}^{\infty} i_c(z) e^{ikz} dz \right], \quad (\text{I.56})$$

où $i_c(z) = \int_{-d/2}^{d/2} J_c(x, z) dx$. Puisque $i_c(z)$ est nul en dehors de la jonction, nous avons remplacé les bornes d'intégration par $\pm\infty$. Le terme $e^{i\gamma_0}$ n'introduit qu'un changement de phase dans l'expression du courant Josephson. Ainsi, le courant Josephson maximum est donné par l'amplitude de l'équation (I.56), soit :

$$I^m(H_x) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} i_c(z) e^{ikz} dz \right|. \quad (\text{I.57})$$

On remarque alors que la dépendance du courant Josephson maximal en fonction du champ magnétique est donnée par la transformée de Fourier de $i_c(z)$. Ceci est totalement analogue au cas de la diffraction de la lumière par une fente en optique : pour une fente de largeur W ayant pour fonction de transmission $i_c(z)$, la distribution d'intensité après la fente est donnée par la transformée de Fourier de la fonction de transmission. Si la densité de courant critique $J_c(x, z)$ est uniforme, alors l'amplitude de $i_c(z)$ est constante pour $-W/2 < z < W/2$ et nulle pour $|z| > W/2$. Dans ce cas, la dépendance en champ magnétique du courant Josephson maximal est équivalente à la figure de diffraction obtenue

après passage d'une onde électromagnétique au travers d'une fente rectangulaire de largeur W . La figure de diffraction est alors appelée figure de Fraunhofer (Figure I.7) :

$$I^m(\Phi) = I_c \left| \frac{\sin \frac{\pi\Phi}{\Phi_0}}{\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}} \right|, \quad (\text{I.58})$$

où $I_c = J_c dW$ est le courant critique de la jonction.

Nous avons pu montrer dans cette première partie que les jonctions Josephson étaient pilotées par la différence de phase introduite entre les deux supraconducteurs. Ainsi, en manipulant la phase à proximité de la jonction, il est possible de modifier ses propriétés de transport de courant. Or les vortex d'Abrikosov présents dans les supraconducteurs de type II perturbent grandement la phase locale du matériau en induisant une rotation de 2π de cette dernière. En effet, il a été montré [8] qu'un vortex placé à proximité d'une jonction Josephson peut introduire un déphasage additionnel dont la valeur est déterminée par la distance entre le vortex et la jonction [9]. Cela est particulièrement visible sur la courbe $I_c(B)$ de la jonction.

I.2. Propriétés des vortex d'Abrikosov

Dans cette partie, nous allons nous intéresser aux différentes propriétés des vortex d'Abrikosov. En effet, l'observation et le déplacement de ces objets magnétiques peuvent être d'un grand intérêt. Ces derniers peuvent fortement modifier la différence de phase d'une jonction Josephson et il est donc envisageable de les utiliser pour contrôler l'état de ces dernières en les déplaçant à des fréquences élevées [7]. Ils peuvent aussi s'avérer indésirables car ils se comportent comme des sources de bruit, notamment dans les SQUIDS (Superconducting Quantum Interference Device)⁴. Nous nous intéresserons aussi à leurs propriétés électriques qui, bien que peu connues, pourraient s'avérer être un élément clé dans l'interaction entre les vortex et plus précisément dans l'étude de la formation de réseaux de vortex denses dans les supraconducteurs à haute température critique [26].

I.2.1. Propriétés magnétiques

Nous avons vu que lorsqu'un supraconducteur de type II était soumis à un champ magnétique supérieur au premier champ critique $H_{c,1}$, l'écrantage du champ magnétique par les supercourants diminue et on peut observer une pénétration partielle du champ magnétique sous la forme de tubes de flux. Nous allons montrer ici que les expressions du champ magnétique et de l'énergie d'un vortex isolé peuvent être calculées dans le cadre de la théorie de London. Nous généraliserons ensuite cette théorie pour un ensemble de vortex.

I.2.1.1. Champ magnétique d'un vortex

Si on considère un vortex d'Abrikosov comme une zone normale de taille $\sim \xi$ au sein d'un supraconducteur, on peut appliquer l'équation (I.20) pour des distances r supérieures à ξ . En effet, si on considère le cas $r \lesssim \xi$, le paramètre d'ordre varie fortement et cette équation

4. Un SQUID est un dispositif composé de deux jonctions Josephson connectées en parallèle. Cet instrument est utilisé comme détecteur de flux et peut détecter des variations de flux de l'ordre de $10^{-6} \Phi_0 \text{Hz}^{-1/2}$ [25].

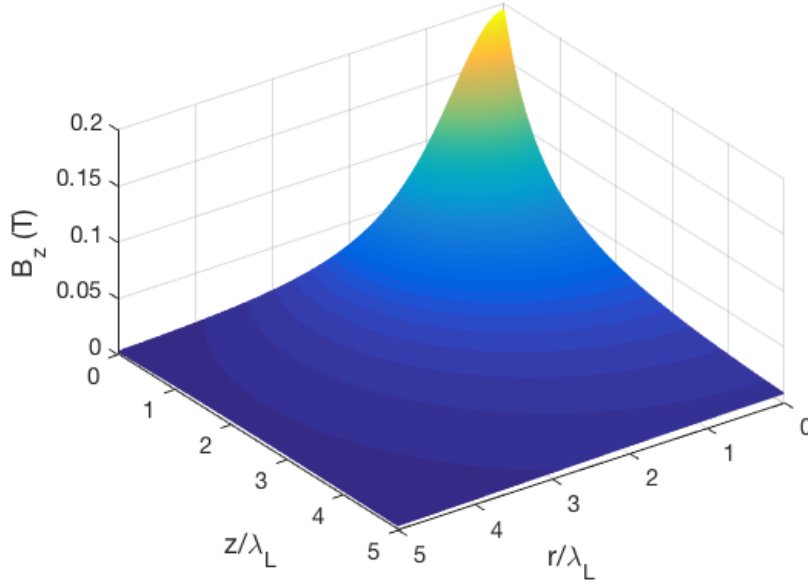


FIGURE I.8 – Profil de champ magnétique d’un vortex en 2 dimensions tracé à partir du modèle du monopole pour $\lambda_L = 100$ nm. On se rend compte ici que le champ magnétique maximal pour de telles valeurs de λ_L peut-être très élevé (de l’ordre de la centaine de mT).

n’est plus valide. Afin de prendre en compte la contribution du cœur, nous modifions cette équation de telle sorte que le flux piégé par le vortex soit égal au quantum de flux. On a donc :

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} - \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B} = -\frac{\vec{\Phi}_0}{\lambda_L^2} \delta(\vec{r}), \quad (\text{I.59})$$

où $\vec{\Phi}_0$ est un vecteur normal à la surface du supraconducteur et $\delta(\vec{r})$ est la fonction delta de Dirac à deux dimensions. La solution à cette équation est donnée par :

$$B(r) = \frac{\Phi_0}{2\pi\lambda_L^2} K_0\left(\frac{r}{\lambda_L}\right), \quad (\text{I.60})$$

où K_0 est une fonction de Bessel d’ordre 0. Il est possible d’obtenir le comportement asymptotique du champ magnétique :

$$\text{pour } r \ll \lambda_L, \quad B(r) \approx \frac{\Phi_0}{2\pi\lambda_L^2} \ln\left(\frac{\lambda_L}{r}\right), \quad (\text{I.61})$$

$$\text{pour } r \gg \lambda_L, \quad B(r) \approx \frac{\Phi_0}{2\pi\lambda_L^2} \left(\frac{\pi\lambda_L}{2r}\right) e^{-r/\lambda_L}. \quad (\text{I.62})$$

La densité de courant circulant autour du vortex peut être obtenue en utilisant l’équation de Maxwell-Ampère $\vec{J} = \vec{\nabla} \wedge \vec{B}/\mu_0$. On obtient alors, pour une orientation de \vec{B} prise suivant l’axe des z :

$$J_\theta(r) = \frac{\Phi_0}{4\pi^2\mu_0\lambda_L^3} K_1\left(\frac{r}{\lambda_L}\right). \quad (\text{I.63})$$

Cette solution n'étant valable qu'à la surface du supraconducteur, il est possible de montrer que le champ magnétique à l'extérieur du supraconducteur peut être approximé comme le champ magnétique d'un monopole magnétique de charge $2\Phi_0$ positionné en $r = 0$ et $z = z_0 = -1.27\lambda_L$. L'expression du potentiel scalaire d'un vortex est alors donnée par [27] :

$$\Phi_v = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{r^2 + (z - z_0)^2}}. \quad (\text{I.64})$$

Le champ magnétique est ensuite calculé par l'équation $\vec{B} = -\vec{\nabla}\Phi_v$. On voit alors (figure I.8) que celui-ci décroît sur une distance de l'ordre de λ_L en z et en r .

I.2.1.2. Énergie d'un vortex

Nous allons maintenant calculer l'énergie par unité de longueur d'un vortex isolé. Pour cela, il faut prendre en compte l'énergie magnétique et l'énergie cinétique des supercourants. On a alors :

$$\varepsilon_l = \frac{1}{2\mu_0} \int_{r>\xi} \left[\vec{B}^2 + \lambda_L^2 (\vec{\nabla} \wedge \vec{B})^2 \right] d\vec{S}, \quad (\text{I.65})$$

où la borne d'intégration est choisie de sorte que la contribution du cœur soit négligée⁵. Dans ce cas-là, le premier terme est alors nul et il reste :

$$\varepsilon_l = \frac{\lambda_L^2}{2\mu_0} \int_{r>\xi} (\vec{\nabla} \wedge \vec{B})^2 d\vec{S}. \quad (\text{I.66})$$

Après intégration, on obtient finalement [20] :

$$\varepsilon_l = \frac{\Phi_0^2}{4\pi\lambda_L^2\mu_0} (\ln \kappa + \varepsilon_c), \quad (\text{I.67})$$

où $\varepsilon_c \approx 0.1$ est une correction apportée lorsque l'on prend en compte l'énergie de condensation du cœur normal $(\mu_0/2)H_c^2\xi^2$. Cette expression nous permet de mieux se rendre compte que l'augmentation de l'énergie du système est moins importante en créant deux vortex portant un quantum de flux, plutôt qu'en ayant un seul vortex portant deux quanta de flux. Le processus le plus stable sera ainsi la création de deux vortex portant chacun un quantum de flux.

I.2.1.3. Interactions entre vortex

Si on considère deux vortex en interaction dont les champs magnétiques pointent dans la direction z , la force par unité de longueur exercée par le premier vortex sur le second peut s'écrire :

$$\vec{f}_2 = \vec{J}_1 \wedge \vec{\Phi}_{0,2}. \quad (\text{I.68})$$

En effet, les supercourants du premier vortex interagissent avec la charge magnétique du second. Il est alors possible d'assimiler cette force à une force de Lorentz. Si les vortex sont parallèles (champs magnétiques pointant dans le même sens), alors l'interaction sera répulsive. S'ils sont antiparallèles, l'interaction est attractive. Il est intéressant de souligner que si deux vortex antiparallèles viennent à se superposer, les champs magnétiques de chaque vortex s'additionnent et le résultat est une annihilation des vortex. Les supercourants créés par les vortex décroissant en $\exp(-r/\lambda_L)$, cette force répulsive devient appréciable lorsque les vortex sont suffisamment proches l'un de l'autre comparé à λ_L .

5. En effet, l'équation de London prise ici n'est valable que dans le cas d'une densité de paire de Cooper ayant des variations spatiales faibles. Or ceci n'est pas le cas à proximité du cœur du vortex.

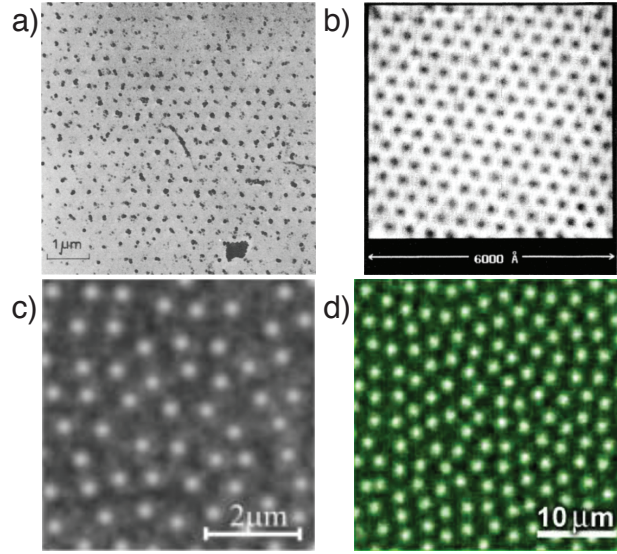


FIGURE I.9 – Images de vortex d’Abrikosov. a) Réseau triangulaire d’Abrikosov observé dans un alliage de plomb et d’indium par décoration de Bitter [28]. b) Réseau triangulaire dans un cristal de NbSe₂ observé par microscopie à effet tunnel [29]. c) Vortex d’Abrikosov dans un film de Nb observés par microscopie à force magnétique [30]. d) Vortex d’Abrikosov observés par microscopie magnéto-optique dans un film de NbSe₂ [31].

Si la densité de vortex est telle que la distance intervortex est inférieure ou de l’ordre de la longueur de pénétration de London, il en résulte une interaction non négligeable entre les vortex. La distribution de champ magnétique du système est alors donnée en modifiant l’équation (I.59) :

$$\vec{B} - \lambda_L^2 \nabla^2 \vec{B} = \Phi_0 \sum_i \delta(\vec{r} - \vec{r}_i), \quad (\text{I.69})$$

où la somme sur i tient compte de tous les vortex présents dans le système et l’intégrale permet de tenir compte du champ de chaque vortex i en un point \vec{r} . La résolution de cette équation mettant en jeu uniquement la force répulsive entre les vortex permet de se rendre compte que les interactions répulsives entre vortex conduisent à un arrangement périodique de vortex dans lequel la distance intervortex est maximisée. Cet arrangement, aussi appelé *réseau d’Abrikosov* (figure I.9 a) et b)) est caractérisé par un réseau triangulaire de pas [21] :

$$a = \sqrt{\frac{2\Phi_0}{\sqrt{3}\mu_0 H}}. \quad (\text{I.70})$$

I.2.2. Forces exercées sur un vortex

Nous avons vu que dans le cas où seule la force d’interaction répulsive entre les vortex est prise en compte, cela se traduit en la formation d’un arrangement de ces vortex sous la forme d’un réseau triangulaire. Nous allons ici déterminer les différents types de forces pouvant agir sur les vortex en changeant le potentiel dans lequel ils évoluent. Tout d’abord, nous avons montré que l’interaction entre vortex pouvait s’écrire sous la forme d’une force de Lorentz $\vec{F} = q\vec{v} \wedge \vec{B}$. Ainsi, n’importe quel courant circulant dans le supraconducteur, qu’il soit d’origine interne ou externe, pourra exercer une force sur les vortex. Nous allons

donc généraliser l'équation (I.68) à un courant quelconque :

$$\vec{f}_L = \vec{J} \wedge \vec{\Phi}_0, \quad (\text{I.71})$$

où \vec{J} est le courant généralisé qui est la somme des supercourants circulant naturellement dans le supraconducteur et d'un éventuel courant extérieur. On voit ici que le moindre courant, aussi faible soit-il, entraînera un déplacement de vortex et, par conséquent, une dissipation d'énergie se traduisant par l'apparition d'un champ électrique dont l'expression est donnée par [32] :

$$\vec{E} = \vec{v} \wedge \vec{B} \quad (\text{I.72})$$

où \vec{v} est la vitesse des vortex.

I.2.2.1. Forces de piégeage

D'un point de vue pratique, le principal avantage des supraconducteurs de type II par rapport à ceux de type I réside dans leur capacité à pouvoir supporter des courants suffisamment forts pour permettre la génération de champs magnétiques par des solénoïdes supraconducteurs de l'ordre de la dizaine de Tesla. Pour cela, il ne suffit pas que le supraconducteur ait un champ critique supérieur à celui que l'on veut générer. Il faut aussi que ce dernier puisse transporter le courant nécessaire à la production de ce champ sans entraîner de dissipation d'énergie par déplacement de vortex.

L'origine de la capacité des supraconducteurs de type II à pouvoir supporter de forts courants s'explique, entre autres, par l'ajout d'une force dite de piégeage \vec{f}_p . Ainsi, si le courant appliqué est tel que $|\vec{J} \wedge \vec{\Phi}_0| < |\vec{f}_p|$, alors les vortex resteront immobiles. On définit alors la densité de courant critique comme la densité de courant à partir de laquelle la force de Lorentz exercée sur les vortex est égale à la force de piégeage, soit :

$$J_c = \frac{f_p}{\Phi_0}. \quad (\text{I.73})$$

Cette force est une force locale : elle est créée par des défauts pouvant être naturels ou artificiels introduits dans le matériau supraconducteur. Ces défauts induisent des variations locales de l'énergie par unité de longueur d'un vortex ε_l via des variations locales de λ_L ou de ξ . Cela a un impact direct sur le réseau d'Abrikosov qui est alors déformé (figure I.9 c) et d)). La conséquence de l'équation (I.73) est que le courant critique sera d'autant plus élevé que le piégeage des vortex sera important. Il est admis que sa variation en fonction de la température se fait suivant la loi [33] :

$$F_p = F_p(0) \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^\gamma, \quad (\text{I.74})$$

où $F_p(0)$ est la force de piégeage à température nulle et γ un réel positif.

Des mesures de transport sur des échantillons de Niobium ont permis de montrer que les forces de piégeage étaient de l'ordre de 10^{-2} à $100 \text{ pN}/\mu\text{m}$ avec γ pouvant varier de 1.5 à 3.5 selon le type d'échantillon [34, 35, 36, 37]. L'interaction entre les vortex et les défauts est très étudiée pour les applications technologiques telles que le stockage d'énergie, le transport de courant, etc... C'est pour cette raison que des techniques de piégeage artificielles ont été

développées comme le dopage chimique [38, 39], l’ajout d’impuretés [40, 41, 42] ou encore l’irradiation par des ions [43, 44]. Il est ainsi possible de fabriquer des supraconducteurs ayant des densités de courant critique supérieures à 10^9 A/m² pour des supraconducteurs à basse température critique et de l’ordre de quelques 10^6 A/m² à $T = 77$ K pour des supraconducteurs à haute température critique [45, 46] (pour lesquels la température critique est supérieure à la température d’ébullition de l’azote).

I.2.2.2. Force thermique

Lorsqu’un gradient de température est appliqué à un supraconducteur, il est possible d’observer l’apparition d’un champ électrique non nul. L’origine de ce champ électrique est liée au déplacement de vortex suite à l’apparition d’une force thermique s’appliquant sur les vortex et proportionnelle au gradient thermique [105].

L’apparition d’un déplacement massif de vortex sous l’influence d’un gradient thermique s’explique en considérant un supraconducteur refroidi dans un champ magnétique extérieur B_{ext} . Initialement, la densité de vortex est uniforme et donnée par $n = B_{\text{ext}}/\Phi_0$. La longueur de pénétration de London dépendant de la température, si un gradient thermique est appliqué, les vortex seront plus larges dans les régions plus chaudes. Or nous avons pu voir que l’interaction vortex-vortex avait une portée donnée par λ_L . Cela signifie que la répulsion entre les vortex sera plus forte dans les régions chaudes du supraconducteur, conduisant finalement à un déplacement des vortex vers les régions froides. Enfin, comme le flux à l’intérieur du supraconducteur est conservé, il en résulte un flot continu de vortex avec des vortex entrant dans le supraconducteur à l’extrémité la plus chaude et d’autres vortex sortant lorsqu’ils atteignent la plus froide. Cela se traduit donc par une force thermique dirigée du point le plus chaud vers le point le plus froid et dont l’amplitude est proportionnelle au gradient thermique.

I.2.2.3. Autres forces

Lorsqu’on s’intéresse au déplacement des vortex, il faut souvent considérer d’autres forces. La première est la force de frottement visqueux qui est une force dissipative proportionnelle à la vitesse des vortex et qui s’écrit :

$$\vec{f}_f = -\eta\vec{v}_V, \quad (\text{I.75})$$

où η est la viscosité du milieu environnant. Une autre force intervenant dans le déplacement des vortex est la force de Magnus qui est donnée par [33] :

$$\vec{f}_M = -\alpha n_s e (\vec{v}_V \wedge \vec{\Phi}_0), \quad (\text{I.76})$$

où α est une constante dont la valeur dépend du modèle et du matériau considéré. Cette force décrit l’effet des interactions entre le vortex et le milieu superfluide dans lequel il se déplace. En effet, si on considère le déplacement d’un vortex dans le superfluide à une vitesse \vec{v}_V , du point de vue du vortex, cela revient à dire que le superfluide se déplace à une vitesse $-\vec{v}_V$. D’un côté du vortex, la vitesse \vec{v}_s des supercourants circulant autour du vortex s’ajoute à la vitesse du milieu superfluide tandis que de l’autre côté, les vitesses se soustraient. Il en résulte une différence de “pression” sur le vortex et celui-ci est poussé dans une direction perpendiculaire (figure I.10).

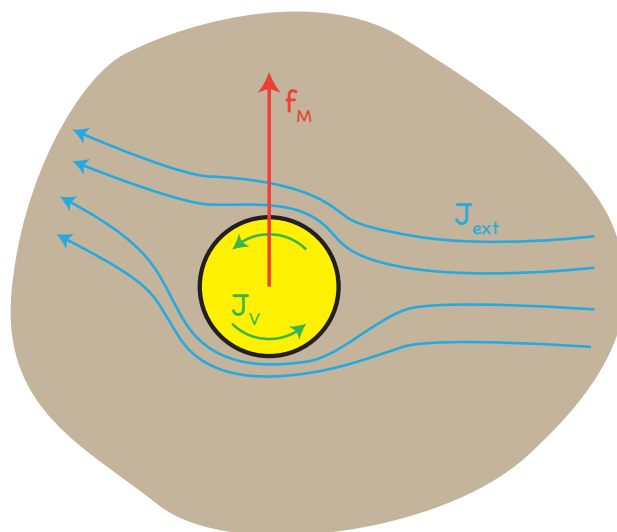


FIGURE I.10 – Illustration de la force de Magnus créée sur le vortex en mouvement par les courants externes appliqués au supraconducteur.

I.2.3. Techniques de manipulation

Le piégeage des vortex dans les supraconducteurs joue un rôle clé en ce qui concerne leurs applications technologiques et plus particulièrement pour le transport de courant. En effet, nous avons vu que l'augmentation des forces de piégeage dans un échantillon supraconducteur se traduit d'un point de vue macroscopique par une augmentation du courant critique du matériau. Par conséquent, l'étude et la mesure de ces forces pourrait permettre de mieux comprendre les mécanismes de piégeage et ainsi d'améliorer les propriétés de transport des supraconducteurs.

Pour mesurer les forces de piégeage, il est nécessaire de développer des méthodes permettant de déplacer les vortex présents dans le supraconducteur. La méthode la plus simple consiste à mesurer le courant critique J_c de l'échantillon. Il est alors ensuite possible de déduire la force de piégeage moyenne de l'échantillon en utilisant l'équation (I.73). Une autre méthode, mise au point par Goa et. al [49] permet de déplacer des vortex de manière contrôlée à l'aide de domaines magnétiques alors présents dans le grenat qui leur permettait de détecter les vortex par imagerie magnéto-optique. Dans cette expérience, c'est le champ magnétique local des parois de domaine présentes dans l'indicateur magnéto-optique qui interagit avec le champ magnétique des vortex. Ainsi, en déplaçant la paroi de domaine à l'aide d'un champ magnétique externe, il est possible d'interagir avec les vortex (figure I.11) et de les déplacer. Cette technique a notamment permis de mesurer les interactions entre les vortex et les parois de domaines. Cependant, elle ne permet pas d'avoir accès aux forces de piégeage locales. En effet, tous les pièges présents dans l'échantillon ne possèdent pas le même potentiel de piégeage. Si l'on veut avoir accès à la distribution locale de ces forces, il est donc nécessaire d'employer d'autres méthodes.

La première méthode de manipulation contrôlée de vortex à l'échelle du vortex unique a été réalisée par l'application d'un champ magnétique local à l'aide d'une bobine placée sur le SQUID servant alors à imager la distribution de vortex [51]. Il fut ainsi possible de mesurer les forces de piégeage locales dans un échantillon d'YBCO. Cette même méthode a par

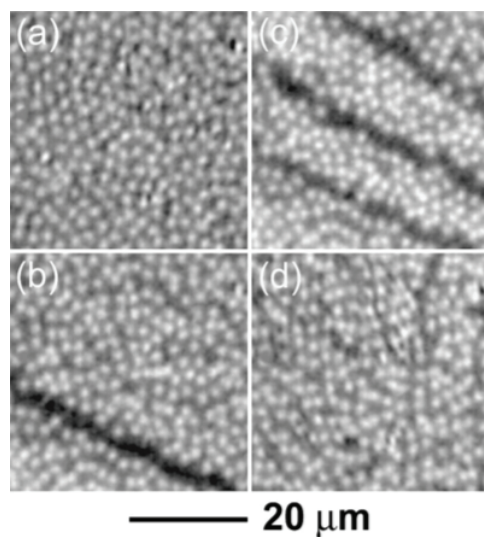


FIGURE I.11 – En partant d’une distribution de vortex spontanée créée par un refroidissement sous champ magnétique externe (a), il est possible de créer des lignes sans vortex aux endroits où la paroi de domaine s’est arrêtée (b) et (c). Ces lignes peuvent ensuite être effacées en balayant la paroi de domaine sur toute la zone de l’image (d). D’après [50].

la suite été utilisée pour mesurer l’effet de la présence de défauts sur le piégeage des vortex [52]. Une technique similaire a ensuite été développée, cette fois-ci basée sur l’interaction magnétique entre la pointe d’un microscope à force magnétique (permettant de détecter les vortex) et un vortex. Cette interaction, jusqu’alors jugée indésirable car ayant tendance à déformer le réseau de vortex pendant le balayage de la pointe au-dessus de l’échantillon, fut utilisée pour sonder les forces de piégeage et manipuler de façon contrôlée et précise les vortex à l’échelle du vortex unique [53, 54].

Plus récemment un groupe de recherche a montré qu’il est possible de déplacer des vortex individuels en appliquant une contrainte mécanique locale à la surface d’échantillons de niobium et de nitrure de niobium à l’aide d’une pointe équipée d’un SQUID pour l’imagerie [55]. L’utilisation de cette méthode pour mesurer les forces de piégeage locales d’un échantillon est encore impossible car l’origine microscopique des forces mises en jeu nécessite encore une interprétation. Néanmoins, c’est la première méthode ne reposant pas sur l’utilisation de courants électriques ou de champs magnétiques.

I.2.4. Propriétés électriques

L’aspect le plus connu des supraconducteurs de type II réside dans le fait que le champ magnétique peut pénétrer partiellement sous la forme de vortex d’Abrikosov dont le flux magnétique est quantifié. Cependant, il a été prédit qu’un vortex peut aussi porter une charge électrique [2]. Malgré le grand nombre d’études théoriques sur le sujet [2, 56, 57, 58], il n’existe pas de preuve directe de l’existence de cette charge. En effet, les quelques expériences basées sur l’observation du changement de signe de l’effet Hall [59] et la résonance magnétique nucléaire [60] n’apportent que des signatures indirectes et leur interprétation est aujourd’hui encore controversée [61, 62]. Cela pourrait notamment expliquer une instabilité du réseau de vortex dans les supraconducteurs à haute température

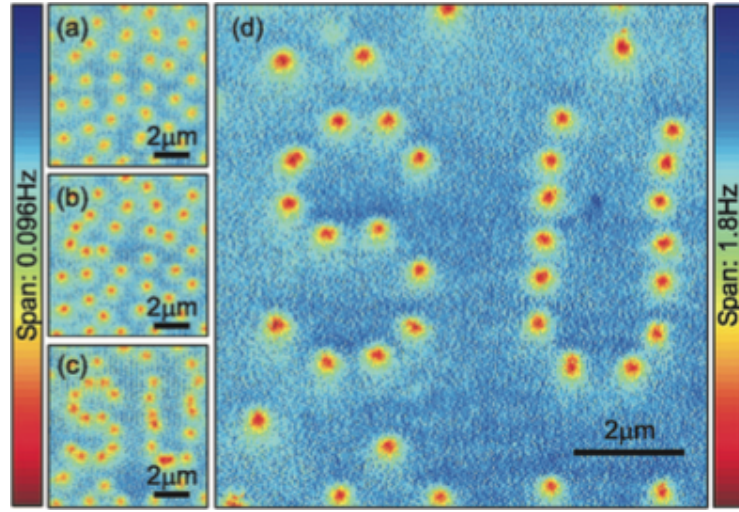


FIGURE I.12 – Manipulation de vortex pour former les lettres “SU”. Un arrangement de vortex initialement créé par refroidissement sous un champ magnétique externe (a) est ensuite modifié à plusieurs reprises sous l’action de la pointe magnétique d’un microscope à force atomique (b) et (c) pour finalement former les lettre “SU” à l’aide des vortex ainsi déplacés. D’après [53].

critique [26].

Cette charge résulterait de la différence de potentiel chimique entre le cœur normal du vortex et la région supraconductrice environnante. Cette grandeur peut s’écrire :

$$\delta\mu = -\frac{\Delta^2(T)}{4\mu_N}, \quad (\text{I.77})$$

où μ_N est la valeur du potentiel chimique dans l’état normal et la variation spatiale du gap à proximité du cœur d’un vortex est donnée par [56] :

$$\Delta^2(r) = \Delta_\infty^2 \frac{r^2}{r^2 + \xi^2}, \quad (\text{I.78})$$

avec $r < \lambda_L$ la distance par rapport au centre du vortex et Δ_∞ est la valeur du gap supraconducteur loin du cœur. En fait, la condensation des électrons en paires de Cooper baisse l’énergie des porteurs de charge et provoque un flux de porteurs dirigé de la région normale vers la région supraconductrice. Il en résulte un excès de charges positives au cœur du vortex dont l’expression est donnée par :

$$\delta q_{\text{ext}} = \frac{KeN(\mu_N)\Delta_\infty^2 r^2}{\mu_0(r^2 + \xi^2)}, \quad (\text{I.79})$$

où K est une constante proche de 1 dépendant de la structure de la bande électronique du matériau considéré et $N(\mu_N)$ est la densité d’états. Afin de prendre en compte l’écrantage des charges du cœur, le potentiel scalaire se calcule par :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{\lambda_{TF}^2} \right) \phi(\vec{r}) = -\frac{\delta q_{\text{ext}}}{\epsilon_0}, \quad (\text{I.80})$$

où ε_0 est la permittivité du vide et λ_{TF} est la longueur de Thomas-Fermi : c'est la distance sur laquelle les charges du cœur sont écrantées. Dans un métal classique avec une concentration de porteurs élevée, on a $\lambda_{TF} \sim r_B$ avec r_B le rayon de Bohr. La densité de charges à l'intérieur du cœur est ensuite obtenue à l'aide de l'équation de Poisson $\nabla^2\phi(\vec{r}) = -\delta q/\varepsilon_0$. Ainsi, cette distribution de charges peut être déterminée par $\delta q = -\lambda_{TF}^2 \nabla^2 \delta q_{\text{ext}}$. Le potentiel électrostatique sur l'axe du vortex à une distance z_0 de la surface est ensuite calculé en considérant :

$$\phi_{\text{out}} = -\frac{2KeN(\mu_N)\lambda_{TF}^2\Delta_\infty^2}{\varepsilon_0\mu_N} \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\xi^2 - r^2}{(r^2 + \xi^2)^3 \sqrt{r^2 + (z + z_0)^2}} dz r dr. \quad (\text{I.81})$$

Le champ électrique selon l'axe z étant donné par $E_z = -\partial\phi_{\text{out}}/\partial z_0$, il est possible, dans le cas où $z_0 \gg \xi$, d'obtenir l'expression suivante [63] :

$$E_z(z) \approx -\frac{K\lambda_{TF}^2 eN(\mu_N)\Delta_\infty^2}{2\varepsilon_0\mu_N\xi} \left[\left(\frac{\xi}{z_0}\right)^3 \ln\left(\frac{z_0}{\xi}\right) \right]. \quad (\text{I.82})$$

On remarque que le champ électrique décroît très rapidement en z_0^{-3} lorsqu'on s'éloigne de la surface où le champ est donné par :

$$E_z(0) = \frac{\pi KeN(\mu_N)\Delta_\infty^2\lambda_{TF}^2}{4\xi\varepsilon_0\mu_0}. \quad (\text{I.83})$$

Si l'on considère un supraconducteur classique, on a $E_z(0) \approx 10^5$ V/m.

Afin de sonder ce champ électrique, nous envisageons d'utiliser la spectroscopie de molécules uniques à basse température [64]. En effet, les molécules aromatiques fluorescentes à la température de l'hélium liquide présentent des raies de résonance optique très fines ($\Delta\nu \sim 20$ MHz) dont la largeur spectrale est limitée par la durée de vie de l'état excité, soit un facteur de qualité de l'ordre de $Q = \nu/\Delta\nu \approx 10^8$ [65, 66].

Ces molécules aromatiques sont naturellement centrosymétriques et ne présentent qu'un effet Stark quadratique. Cependant, lorsqu'elles sont piégées dans des matrices cristallines adéquates, leur structure est modifiée et leur symétrie brisée. Elles deviennent alors sensibles à l'effet Stark linéaire avec une sensibilité de l'ordre de 1 GHz/(MV/m) et il devient possible de les utiliser pour mesurer des champs électriques tels que ceux qui sont supposés exister au cœur d'un vortex [3, 4]. Enfin, le couplage au champ magnétique est très faible car la transition singulet-singulet est diamagnétique et, par conséquent, le déplacement Zeeman est quadratique par rapport au champ magnétique appliqué avec un paramètre de déplacement de l'ordre de 8 MHz/T² [67]. Ces molécules sont donc de parfaits candidats pour la détection exclusive et la détermination de ce champ électrique.

I.3. Conclusion

Dans cette section nous avons pu décrire les bases théoriques de la supraconductivité qui nous permettront par la suite d'interpréter nos résultats expérimentaux. Nous avons notamment établi les équations de Ginzburg-Landau et de Josephson qui montreront la manière dont un gradient thermique appliqué localement au centre d'un fil supraconducteur peut induire un effet Josephson. Il a ensuite été montré que les vortex d'Abrikosov

des supraconducteurs de type II peuvent être manipulés par diverses techniques afin de mieux comprendre les propriétés de piégeage des supraconducteurs et ainsi d'augmenter leurs courants critiques. Enfin, nous avons vu que les vortex d'Abrikosov, en plus de leur charge magnétique, peuvent être porteurs d'une charge électrique qui n'a encore jamais été observée directement.

Chapitre II

Méthodes expérimentales

II.1. Imagerie magnéto-optique de vortex d'Abrikosov

Afin d'observer les vortex d'Abrikosov, le plus simple est de profiter de leurs propriétés magnétiques. Il est par conséquent nécessaire d'utiliser des sondes sensibles au champ magnétique. Il existe pour cela plusieurs techniques telles que la décoration de Bitter qui consiste à évaporer des particules magnétiques sur l'échantillon supraconducteur. Ces particules forment alors des agrégats positionnés sur les vortex qui peuvent ensuite être observés à l'aide d'un microscope électronique. Cette méthode a rendu possible la toute première observation d'un réseau de vortex d'Abrikosov [28]. Il est aussi possible d'utiliser des méthodes basées sur le déplacement d'une sonde magnétique dont la position est balayée à la surface de l'échantillon telles que la microscopie à force atomique [68], la microscopie à sonde Hall [69] et la microscopie à SQUID [70]. Ces méthodes à sonde locale diffèrent par leurs sensibilités et leurs résolutions spatiales. Bien que très sensibles, leur principal défaut réside dans le fait que la formation d'une image nécessite de balayer la position de la sonde au-dessus de la surface, ce qui a pour effet de réduire les cadences d'imagerie ainsi que les tailles des images.

Dans le but de combiner imagerie de vortex et spectroscopie de molécules uniques ou manipulation optique de vortex, nous avons besoin d'une méthode de détection optique. C'est pourquoi nous avons choisi d'employer la méthode de l'imagerie magnéto-optique qui permet de déterminer la distribution de champ magnétique à la surface d'un échantillon à l'échelle du vortex individuel, avec l'avantage d'imager à des cadences plus élevées que les techniques à sonde locale et de pouvoir explorer des zones étendues, uniquement limitées par le champ de l'objectif de microscope utilisé (de l'ordre du mm) [71, 72].

II.1.1. Principe de l'imagerie magnéto-optique

L'imagerie magnéto-optique, initiée par Alers [73] et DeSorbo [74] sur des supraconducteurs de type I, a ensuite été améliorée par Goa *et. al* [50] pour atteindre une sensibilité permettant de détecter des vortex d'Abrikosov dans les supraconducteurs de type II. Cette technique repose sur l'effet Faraday : lorsqu'une lumière de vecteur d'onde \vec{k} polarisée rectilignement traverse un matériau optiquement actif soumis à un champ magnétique \vec{B} tel que $\vec{B} \parallel \vec{k}$, sa direction de polarisation tourne alors d'un angle proportionnel à la valeur du champ magnétique appliqué.

II.1.1.1. Effet Faraday

Afin de modéliser simplement l'effet Faraday, nous considérons le matériau magnéto-optique comme un gaz dont les atomes sont décrits au moyen du modèle classique de l'électron élastiquement lié. Dans ce modèle, un électron de masse m et de charge q est plongé dans le potentiel créé par le cœur de l'atome (le noyau et les autres électrons). La force exercée par le cœur correspond à un potentiel harmonique attractif et est donnée par

$\vec{F}_{el} = -m\omega_0^2\vec{r}$. De plus, l'électron est soumis aux forces correspondant au champ statique appliqué $\vec{B} = B_0\vec{e}_z$ ainsi qu'au champ électromagnétique de l'onde lumineuse incidente polarisée circulairement¹ :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{E_0}{\sqrt{2}}e^{-i\omega t}(\vec{e}_x + i\vec{e}_y). \quad (\text{II.1})$$

Nous nous intéressons maintenant à la solution statique de l'équation fondamentale de la dynamique appliquée à ce système :

$$\ddot{\vec{r}} = -\omega_0^2\vec{r} + \frac{q}{m} [\vec{E} + \dot{\vec{r}} \wedge \vec{B}]. \quad (\text{II.2})$$

Sa résolution permet de montrer que l'électron a une trajectoire circulaire autour du noyau contenu dans le plan (xOy) et de rayon :

$$x_0 = \frac{qE_0}{\sqrt{2}m[\omega_0^2 - \omega^2 + 2\omega\omega_B]}, \quad (\text{II.3})$$

où $\omega_B = -qB/(2m)$ est la pulsation de Larmor de l'électron.

On en déduit que l'application d'un champ magnétique statique a pour effet de modifier le rayon de l'orbite de l'électron autour du cœur de l'atome. Cela se traduit directement par une modification de la valeur du moment dipolaire électrique du système que l'on écrit alors :

$$\vec{D} = qx_0\sqrt{2}\vec{e}_+ = \frac{q^2E_0}{m[\omega_0^2 - \omega^2 + 2\omega\omega_B]}\vec{e}_+, \quad (\text{II.4})$$

où $\vec{e}_+ = (\vec{e}_x + i\vec{e}_y)/\sqrt{2}$. Si l'on étend maintenant le système à un matériau de volume V contenant N atomes, il est possible d'écrire sa polarisation $\vec{P} = \frac{N}{V}\vec{D}$. Cela nous permet de trouver l'expression de la susceptibilité électrique du milieu :

$$\chi_+ = \frac{\Omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + 2\omega\omega_B}, \quad (\text{II.5})$$

avec $\Omega_p^2 = Nq^2/(Vm\varepsilon_0)$. Les mêmes calculs effectués pour une onde de polarisation circulaire opposée donnent :

$$\chi_- = \frac{\Omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2\omega\omega_B}, \quad (\text{II.6})$$

Cela revient à changer l'orientation du champ magnétique \vec{B} .

Considérons maintenant une onde électromagnétique polarisée linéairement selon \vec{e}_x se propageant dans le vide ($z < 0$) selon la direction du champ magnétique extérieur :

$$\vec{E}(z < 0, t) = E_0e^{i(kz - \omega t)}\vec{e}_x. \quad (\text{II.7})$$

Cette onde peut aussi se décomposer en la somme de deux ondes polarisées circulairement se propageant chacune avec sa propre susceptibilité :

$$\vec{E}(z, t) = \frac{E_0}{2} [(\vec{e}_x + i\vec{e}_y)e^{i(k+z-\omega t)} + (\vec{e}_x - i\vec{e}_y)e^{i(k-z-\omega t)}], \quad (\text{II.8})$$

1. On néglige ici la force créée par la partie magnétique de l'onde lumineuse qui est très petite devant celle créée par le champ magnétique statique, d'un facteur $\|\dot{\vec{r}}\|/c$

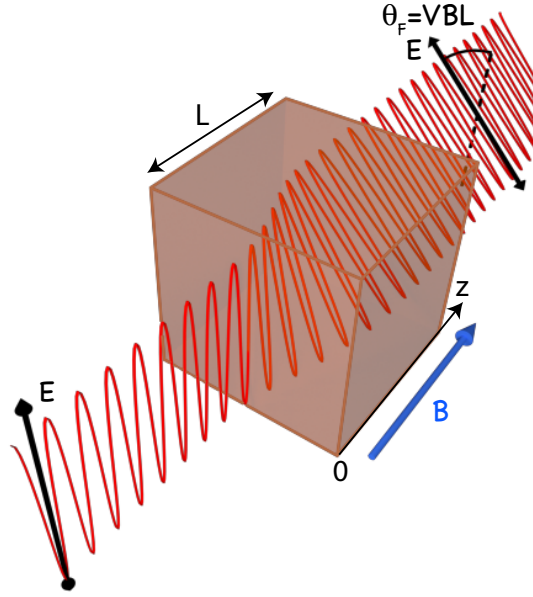


FIGURE II.1 – Illustration de la rotation de la direction de polarisation d’une lumière polarisée après la traversée d’un milieu sensible à l’effet Faraday plongé dans un champ magnétique extérieur.

ou encore :

$$\vec{E}(z, t) = E_0 e^{i(\bar{k}z - \omega t)} \left[\vec{e}_x \cos\left(\frac{k_+ - k_-}{2} z\right) - \vec{e}_y \sin\left(\frac{k_+ - k_-}{2} z\right) \right], \quad (\text{II.9})$$

où $\bar{k} = (k_+ + k_-)/2$. Nous pouvons mieux nous rendre compte que pendant la traversée d’un milieu optiquement actif occupant l’espace $z > 0$ soumis à un champ magnétique statique, la direction du vecteur champ électrique tourne d’un angle $\theta_F = (k_- - k_+)z/2$ par rapport à la direction de polarisation initiale. Ainsi, pour un matériau d’épaisseur L , la polarisation de l’onde électromagnétique, après traversée du milieu, aura tourné d’un angle :

$$\theta_F = VBL \quad (\text{II.10})$$

L’angle de rotation est par conséquent directement proportionnel à la valeur du champ magnétique appliqué ainsi qu’à l’épaisseur de matériau traversé (figure II.1). La constante de proportionnalité V appelée constante de Verdet est donnée, dans ce modèle classique, par :

$$V = \frac{e}{mc} \frac{\Omega_p^2 \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2}. \quad (\text{II.11})$$

II.1.1.2. Calcul du profil d’intensité d’un vortex

Plaçons maintenant ce matériau (que nous appellerons par la suite indicateur magnéto-optique) entre deux polariseurs croisés. Pour décrire l’intensité en sortie du système, nous utilisons le formalisme de Jones qui permet de décrire l’évolution de l’état de polarisation d’une onde électromagnétique à la traversée d’un système optique donné. Dans ce

formalisme, les composantes du champ électrique incident peuvent s'écrire :

$$\begin{bmatrix} E_x(t) \\ E_y(t) \end{bmatrix} = E_0 e^{-i\omega t} \begin{bmatrix} V_x \\ V_y \end{bmatrix}, \quad (\text{II.12})$$

où V_x et V_y sont les composantes du vecteur de Jones. Ainsi, si l'on considère que l'axe passant du premier polariseur coïncide avec l'axe des x , le vecteur de Jones initial de l'onde après traversée du premier polariseur est donné par :

$$\vec{V}_{\text{in}} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{II.13})$$

L'indicateur magnéto-optique faisant tourner la direction de polarisation de l'onde incidente d'un angle θ_F , sa matrice de Jones s'écrit :

$$M_{IMO} = \begin{bmatrix} \cos \theta_F & \sin \theta_F \\ \sin \theta_F & -\cos \theta_F \end{bmatrix}. \quad (\text{II.14})$$

Enfin, le dernier polariseur faisant un angle $\pi/2 - \alpha$ (où α est un angle d'offset permettant d'optimiser le contraste) avec le premier polariseur, il a pour matrice de Jones :

$$M_{\text{pol}}(\pi/2 - \alpha) = \begin{bmatrix} \sin^2 \alpha & \sin \alpha \cos \alpha \\ \sin \alpha \cos \alpha & \cos^2 \alpha \end{bmatrix}. \quad (\text{II.15})$$

L'orientation du champ électrique en sortie du système est donnée par $\vec{V}_{\text{out}} = M_{\text{pol}}(\pi/2 - \alpha)M_{IMO}\vec{V}_{\text{in}}$, soit :

$$\vec{V}_{\text{out}} = \begin{bmatrix} \sin \alpha \sin(\alpha + \theta_F) \\ \cos \alpha \sin(\alpha + \theta_F) \end{bmatrix}. \quad (\text{II.16})$$

L'intensité lumineuse est alors donnée par :

$$I = I_0 \sin^2(\alpha + \theta_F). \quad (\text{II.17})$$

En pratique, les polariseurs ne sont jamais parfaits, et, entre deux polariseurs croisés, on aura toujours une intensité résiduelle transmise. On caractérise la qualité d'un couple de polariseurs par leur coefficient d'extinction défini comme $\varepsilon = P_{\text{out}}/P_{\text{in}}$ lorsque rien n'est placé entre les polariseurs croisés. Cela se traduit simplement sur l'équation II.17 par l'ajout d'une constante. Cette équation devient :

$$I = I_0 \sin^2(\alpha + \theta_F) + \varepsilon, \quad (\text{II.18})$$

qui peut se simplifier dans le cas de petites rotations :

$$I \approx I_0 (\alpha + \theta_F)^2 + \varepsilon. \quad (\text{II.19})$$

Pour observer des vortex d'Abrikosov, il est nécessaire d'augmenter le rapport signal à fond en procédant à une soustraction de fond. En effet, le signal d'un vortex obtenu par imagerie magnéto-optique a une faible amplitude comparé au fond de l'image. Pour augmenter le contraste, nous prenons donc une image à une température supérieure à la température critique du supraconducteur, que nous soustrayons aux images prises en dessous de la

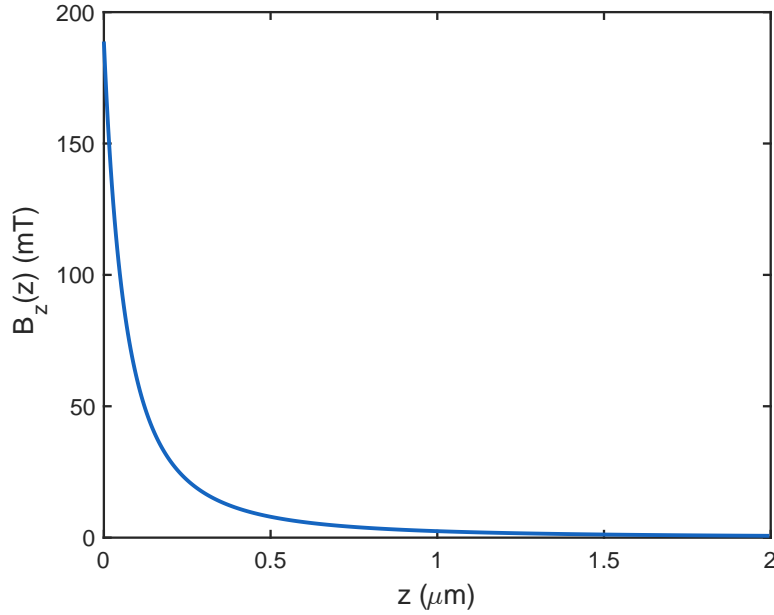


FIGURE II.2 – Évolution de la valeur du champ magnétique projeté sur l’axe z en fonction de la distance à la surface en $r = 0$ calculée pour un vortex unique.

température critique. De cette façon, le fond continu est supprimé et le contraste des vortex est augmenté.

Afin de calculer le profil d’intensité lumineuse de l’image d’un vortex, il est nécessaire de calculer l’angle de rotation de la polarisation en fonction de la position par rapport au centre du vortex. Pour cela, nous considérons le modèle du monopole magnétique dans lequel l’expression du potentiel scalaire est donnée par l’équation (I.64). Il est alors possible de déduire la dépendance radiale de la composante selon z du champ magnétique par $B_z(r) = -d\Phi_v/dz$. Considérons maintenant un indicateur magnéto-optique d’épaisseur L placé au-dessus du supraconducteur. La distance entre la surface du supraconducteur et celle du grenat est notée z_g . Afin de maximiser le signal en sortie de microscope, il faut maximiser la rotation de Faraday. Pour cela, il y a deux paramètres à considérer : la sensibilité V du grenat qui doit être aussi grande que possible et son épaisseur L qui, dans le cas d’un champ magnétique uniforme, doit elle aussi être la plus grande possible. Cependant, dans notre cas, le champ magnétique décroît très rapidement en z et la figure II.2 montre qu’il est inutile d’utiliser des grenats de plus de $2\mu\text{m}$ d’épaisseur². Dans le cas où le champ magnétique à la surface n’est pas uniforme, la rotation de Faraday est donnée par :

$$\theta_F(r) = 2V \int_{z_g+d}^{z_g} B_z(r, z) dz = 2V [\Phi_v(r, z_g) - \Phi_v(r, z_g + d)], \quad (\text{II.20})$$

où le facteur 2 est présent pour tenir compte du fait que la lumière passe une deuxième fois à travers le grenat après réflexion sur la surface du supraconducteur ou sur un film

2. De plus, les grenats ont des coefficients d’absorption relativement élevés aux longueurs d’ondes optiques. D’un point de vue pratique, il faut donc trouver un compromis entre rotation Faraday et absorption. C’est aussi pour cette raison qu’il est préférable de limiter l’épaisseur des grenats utilisés au strict nécessaire.

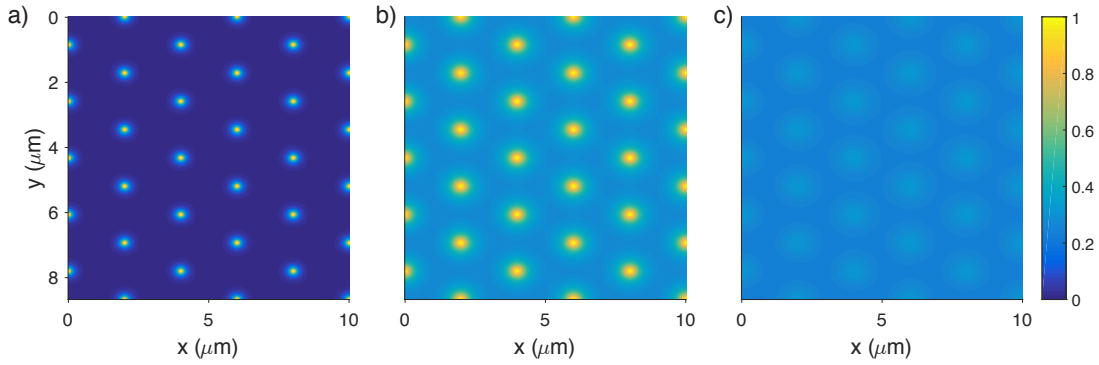


FIGURE II.3 – Calcul du signal magnéto-optique pour un réseau d’Abrikosov. a) Distribution de la composante selon z du champ magnétique sur la surface de l’échantillon. Nous avons pris $\lambda_L = 100$ nm et un pas $a = 2$ μm pour le réseau. b) Calcul du signal magnéto-optique obtenu pour la distribution de champ magnétique montrée en a) avec un grenat d’épaisseur 2.5 μm ayant une constante de Verdet $V = 0.06$ $^\circ/\text{mT}/\mu\text{m}$ et une distance entre le supraconducteur et l’indicateur de $z_g = 100$ nm. c) Même calcul que b) avec $z_g = 500$ nm. On s’aperçoit ici que le contraste est fortement diminué par l’augmentation de z_g .

d’aluminium déposé directement sur la surface de l’indicateur. Le profil d’intensité peut ensuite être calculé avec l’équation (II.18). Si on considère un arrangement triangulaire de vortex, on se rend compte (figure II.3) que l’imagerie magnéto-optique a tendance à élargir fortement le profil initial. Cela est d’autant plus vrai que le gap z_g est grand. C’est pourquoi il faut prendre soin de minimiser z_g pour que le contraste des vortex observés soit le plus important possible.

II.1.2. Propriétés des grenats magnétiques

Comme précisé dans la section précédente, l’observation du champ magnétique à la surface d’un matériau peut se faire en présence d’un milieu optiquement actif qui aura pour rôle de faire tourner la direction de polarisation d’une onde lumineuse incidente proportionnellement au champ magnétique local. Pour réaliser cet effet, nous utilisons des indicateurs magnéto-optiques. Le plus connu d’entre eux est le TGG (Terbium Gallium Garnet) qui est notamment employé dans les cavités laser afin d’augmenter leur stabilité en forçant les photons à circuler dans un seul sens (principe de la diode optique). Le principal avantage de ce type d’indicateur est leur faible coefficient d’absorption $A \approx 0.001$ cm^{-1} . En revanche leurs constantes de Verdet sont en général de l’ordre de $V = 10^{-6}$ $^\circ/\text{mT}/\mu\text{m}$. Il faudrait donc un champ de 1 kT pour obtenir une rotation de 1° sur 1 μm avec ce type d’indicateurs.

Afin d’observer les vortex avec un bon signal, il est nécessaire d’employer des matériaux avec de plus grandes constantes de Verdet. En cela, les grenats de fer dopés au Bismuth et au Lutétium (Bi :LuIG) sont de très bons candidats [75, 76]. Ces grenats ont une température de Curie élevée ~ 400 K permettant de pouvoir les utiliser sur une très grande gamme de température, notamment aux températures cryogéniques qui nous intéressent plus particulièrement pour l’observation des vortex d’Abrikosov dans les supraconducteurs de type II. L’aimantation est contenue dans le plan du grenat à champ nul mais un champ magnétique externe pourra la faire tourner, conduisant ainsi à des rotations Faraday de l’ordre de 7 à

$9^\circ \mu\text{m}^{-1}$ à $\lambda = 633 \text{ nm}$ à saturation ($H_{\text{ext}} \sim 500 \text{ Oe}$). La résolution spatiale de ces films est limitée par leur épaisseur L qui est de l'ordre du micron. Ils sont généralement fabriqués par épitaxie en phase liquide sur des substrats de GGG (Grenat de Gallium et de Gadolinium) qui sont transparents aux longueurs d'ondes optiques et qui présentent des structures cristallines similaires à celles des grenats magnéto-optiques [77]. Enfin, le contrôle du dopage en Bismuth et en Lutetium est un point clé en ce qui concerne les propriétés magnétiques de ces grenats [78, 79].

Les indicateurs magnéto-optiques que nous utilisons sont des grenats de Bi :LuIG de composition chimique $\text{Lu}_{3-x}\text{Bi}_x\text{Fe}_{5-z}\text{Ga}_z\text{O}_{12}$, avec $x \sim 0.9$ et $z \sim 1.0$. Ces films ont été fabriqués³ en utilisant pour substrat du GGG ($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$) de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur orienté selon l'axe cristallographique (100). Leur aimantation de saturation dans le plan est de l'ordre de $M_s = 4 \text{ kA/m}$.

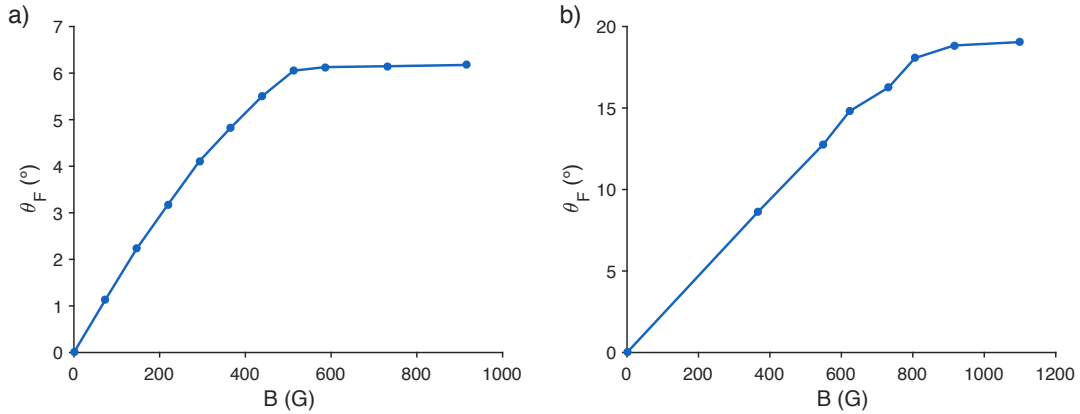


FIGURE II.4 – Comparaison des rotations de Faraday de deux indicateurs magnéto-optiques de type Bi :LuIG ayant des épaisseurs différentes. a) Indicateur d'épaisseur $2.5 \mu\text{m}$. b) Indicateur d'épaisseur $6 \mu\text{m}$.

Nous avons à notre disposition deux grenats d'épaisseurs 2.5 et $6 \mu\text{m}$ dont nous avons pu caractériser la rotation Faraday (figure II.4). Ces mesures ont été réalisées avec une diode laser de longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$. L'échantillon est placé dans l'entrefer d'un électroaimant pouvant fournir des champs magnétiques allant jusqu'à $B_{\text{max}} = 1.8 \text{ kG}$. L'ensemble est ensuite positionné entre deux polariseurs croisés ayant un coefficient d'extinction de $\varepsilon = 7.2 \times 10^{-6}$ (figure II.5). Pour chaque valeur de champ magnétique appliqué, nous mesurons l'évolution du signal mesuré par la photodiode en fonction de l'angle de l'analyseur autour du minimum. Or nous savons que cette évolution est donnée par l'équation (II.18) dans cette configuration. Ainsi, pour trouver l'angle de rotation par effet Faraday, nous ajustons cette équation à la variation d'intensité autour du minimum. Cela est ensuite répété pour chaque valeur de champ magnétique, permettant alors de reconstruire les courbes présentes en figure II.4.

Un ajustement linéaire des données sur le début de chaque courbe permet d'extraire la constante de Verdet des deux grenats. On a ainsi $V_{2.5 \mu\text{m}} = 0.06 \text{ }^\circ/\text{mT}/\mu\text{m}$ et $V_{6 \mu\text{m}} =$

3. Leur fabrication a été réalisée par V. A. Skidanov, Institute for Design Problems in Microelectronics, Russian Academy of Sciences, 124681 Moscow, Russia.

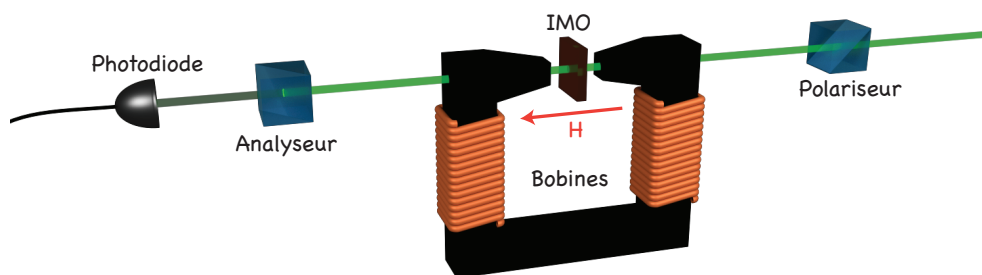


FIGURE II.5 – Schéma du montage permettant de caractériser la rotation de Faraday des indicateurs magnéto-optiques à notre disposition.

$0.04^\circ/\text{mT}/\mu\text{m}$. On constate que les valeurs des constantes de Verdet de ces deux échantillons sont similaires. Comme le champ magnétique à la surface du supraconducteur décroît très rapidement (sur quelques centaines de nanomètres), il est inutile d'utiliser un grenat épais qui aura pour autre inconvénient d'avoir un coefficient d'absorption plus élevé. Dans le but d'observer des vortex d'Abrikosov individuels, nous avons donc choisi d'utiliser l'indicateur magnéto-optique de $2.5\ \mu\text{m}$ qui est aussi celui ayant la constante de Verdet la plus élevée.

II.1.3. Montage expérimental

II.1.3.1. Le cryostat

Pour les expériences d'imagerie de vortex uniques ne nécessitant pas l'ajout de molécules uniques, nous avons utilisé un cryostat à circuit fermé. Ce cryostat permet de refroidir des échantillons jusqu'à des températures de 3 K. Malgré sa température minimale plus élevée que celle d'un cryostat à hélium liquide, ce type de cryostat présente l'avantage de pouvoir rester à basse température aussi longtemps que désiré. De plus, il présente de très bonnes caractéristiques pour la microscopie optique, en ce qui concerne les vibrations du système avec 6.6 nm pic à pic (très inférieures à la limite de diffraction). Le fonctionnement de ce cryostat est basé sur l'utilisation d'un tube réfrigérateur de type Gifford-McMahon (GM). La géométrie de ce type de réfrigérateur est présentée en figure II.6. Une des parties



FIGURE II.6 – Schéma d'un réfrigérateur de type Gifford-McMahon.

les plus importantes d'un cryostat à circuit fermé est le régénérateur. Cet élément est constitué d'un solide poreux qui, dans l'idéal, est caractérisé par une grande conductivité thermique (surtout à basse température), un excellent contact thermique avec le gaz et une faible résistance au passage de ce gaz. C'est ce régénérateur qui aura pour but de prendre de la chaleur au gaz. Les variations de pression permettant de parcourir le cycle thermodynamique du GM sont obtenues en connectant ce dernier aux côtés haute et basse

pression d'un compresseur à l'aide d'une valve tournante dont l'action est synchronisée avec les mouvements du piston contenant ce régénérateur. Le cycle thermodynamique d'un GM peut être divisé en quatre étapes schématisées en figure II.7. Au début du cycle, le piston est en position haute et la chambre est connectée à la ligne basse pression du compresseur de telle sorte que le gaz est en contact avec la partie à refroidir (étape 1). La suite du cycle peut être décrite de la façon suivante :

- de 1 à 2, le piston se déplace vers la droite. Le gaz froid est alors déplacé vers la gauche du tube à température ambiante en passant au travers du régénérateur qui est alors refroidi ;
- de 2 à 3, la valve tourne jusqu'à ce que la partie haute pression du compresseur soit connectée à la chambre. Le gaz est alors comprimé à température constante ;
- de 3 vers 4, le piston se déplace vers la gauche et le gaz à haute pression passe à travers le régénérateur. Cela conduit à un échange de chaleur entre le gaz chaud et le régénérateur froid. Le gaz est ainsi refroidi à pression constante ;
- de 4 à 1, la chambre est de nouveau connectée à la partie basse pression du compresseur. Le gaz se détend brutalement et il s'ensuit un refroidissement de ce dernier. C'est cette étape qui est responsable du refroidissement de la partie basse du tube.

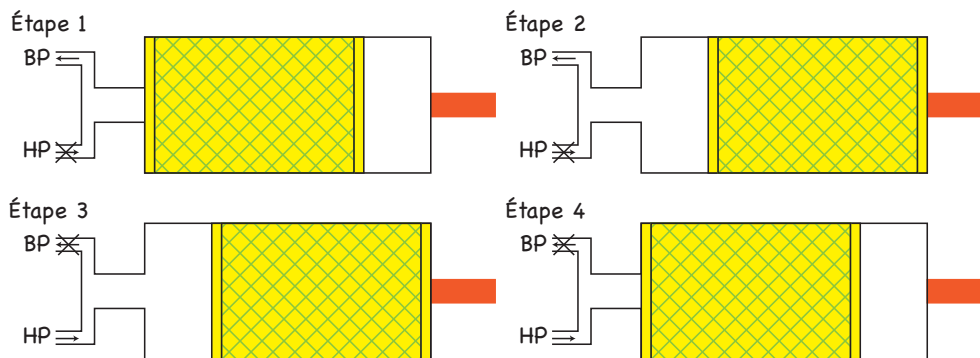


FIGURE II.7 – Configuration du réfrigérateur à chaque étape du cycle thermodynamique.

Il suffit ensuite de connecter la plateforme de l'échantillon à la partie basse du tube avec un matériau ayant la meilleure conductivité thermique possible. Notons que nous avons décrit ici un GM à un étage. Ce type de réfrigérateur permet d'atteindre des températures de quelques dizaines de K. Pour atteindre des températures plus basses, il est nécessaire de rajouter un étage. Le fonctionnement peut être décrit de la même façon que dans le cas où un seul étage est présent mais il est alors possible d'atteindre des températures de l'ordre de 3 K.

II.1.3.2. Le montage optique

Un microscope magnéto-optique nécessite une source de lumière blanche puissante et ayant une intensité la plus stable possible. Pour l'observation de vortex uniques, une intensité stable permet de procéder à une soustraction de fond de bonne qualité et de conserver un contraste élevé. Nous utilisons pour cela une source de type halogène possédant un

spectre proche de celui des lampes à mercure. De plus, elle délivre sa lumière via une fibre à cœur liquide qui permet de l'aligner avec plus de facilité que les sources n'en étant pas dotées. L'échantillon est ensuite éclairé via une illumination de Köhler : l'image de la source (ici la sortie de la fibre) est conjuguée au plan focal arrière de l'objectif de sorte que cette image soit renvoyée à l'infini dans le plan de la caméra. La caméra utilisée est basée sur un capteur CCD de 512×512 pixels de $13 \times 13 \mu\text{m}^2$ chacun avec une résolution de 16 bits et une efficacité quantique supérieure à 80 % entre 450 et 650 nm. L'utilisation d'objectifs de microscope à basse température se révèle complexe en raison des contraintes mécaniques induites dans les différents éléments optiques constituant l'objectif par la contraction des différents matériaux sous l'effet du refroidissement. De plus, il est aussi difficile de placer un objectif d'imagerie à l'extérieur du cryostat. Cela implique de trouver des objectifs avec de grandes distances de travail (dizaine de centimètres), qui ont souvent de faibles ouvertures numériques impliquant une diminution de la résolution du microscope. Il est possible de trouver des objectifs de microscope pouvant être utilisés en imagerie à basse température, mais ceux-ci ne doivent pas dépolariiser la lumière. Autrement dit, la dépolariisation induite par les contraintes mécaniques doit rester la plus faible possible. C'est en cela que l'utilisation d'une lentille asphérique s'avère être un bon choix : celle-ci permet de corriger l'aberration sphérique en n'utilisant qu'un seul élément optique, réduisant ainsi la dépolariisation à basse température (figure II.8).

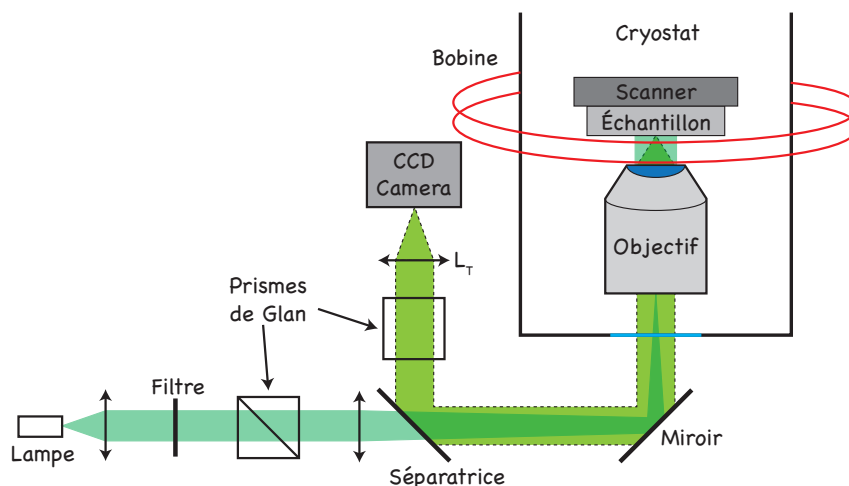


FIGURE II.8 – Schéma du montage optique permettant de réaliser les expériences d'imagerie magnéto-optique de vortex uniques.

L'image II.9.a) montre tout d'abord un film supraconducteur de type I dans lequel un champ magnétique externe fait apparaître des domaines normaux en formes de bandes au sein du supraconducteur. La figure II.9.b) montre des vortex générés dans un supraconducteur de type II en refroidissant ce dernier en présence d'un champ magnétique externe appliqué à l'aide d'une bobine. Comme chaque vortex porte un quantum de flux magnétique, l'amplitude du champ appliqué par cette bobine permet de contrôler la densité de vortex présents dans l'échantillon. Cette figure montre en particulier que l'amplitude et la distribution du champ magnétique externe sont déterminantes pour le contrôle de la densité de vortex. Lorsqu'un gradient de champ magnétique est appliqué avant que l'échantillon ne soit refroidi, la distribution des vortex présents dans l'échantillon (ici un film de niobium de

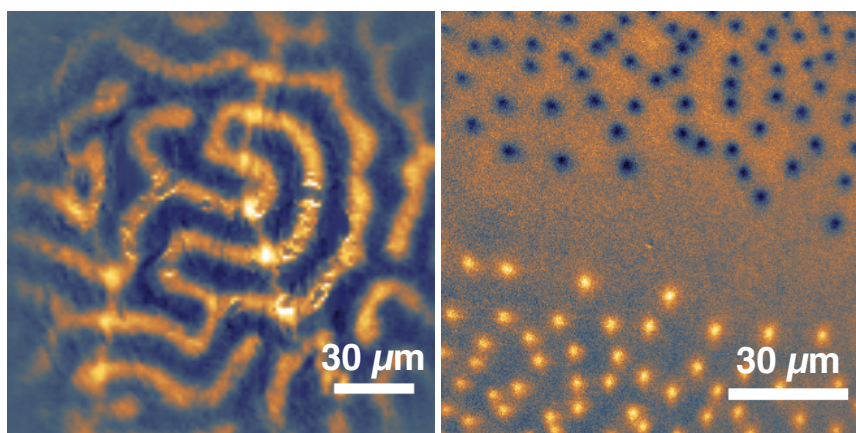


FIGURE II.9 – Images magnéto-optiques de domaines normaux dans les supraconducteurs. a) Domaines dans un supraconducteur de type I (film d’indium de $1.6 \mu\text{m}$ d’épaisseur) sous un champ magnétique appliqué de 38 Oe à une température $T = 2.7 \text{ K}$. b) Vortex d’Abrikosov dans un supraconducteur de type II (film de niobium de 100 nm d’épaisseur) sous un champ magnétique appliqué de 2.4 Oe à une température $T = 4 \text{ K}$.

100 nm d’épaisseur) est directement liée à la valeur locale du champ magnétique extérieur : nous avons donc une zone où le champ magnétique est positif avec la densité de vortex qui décroît de la même façon que le champ magnétique, une zone d’annulation du champ ne présentant aucun vortex, et une zone où le champ magnétique devient négatif et où cette fois des anti-vortex apparaissent avec une densité croissante.

Afin d’observer les vortex, il est nécessaire de soustraire une image ne contenant pas de vortex à celles prises en-dessous de T_c . Pour cela, notre première méthode consiste à prendre une image de fond avant de le refroidir en-dessous de T_c , comme nous l’avons vu précédemment. Lorsque la géométrie de l’échantillon nous le permet, nous utilisons plutôt une technique consistant à appliquer un courant supérieur au courant critique de l’échantillon. De cette manière, les vortex disparaissent tant que le courant est appliqué, nous permettant ainsi d’acquérir l’image de fond qui est alors soustraite à toutes les images prises lorsque le courant est inférieur à I_c . Cette méthode a l’avantage d’être beaucoup plus rapide que la méthode basée sur la température mais elle nécessite de pouvoir faire circuler un courant dans l’échantillon. Elle est donc limitée aux échantillons suffisamment grands pour accueillir à la fois l’indicateur et les contacts électriques.

II.2. Détection locale de champ électrique avec des molécules uniques

La spectroscopie de molécules uniques consiste à observer les raies de résonance optique de molécules aromatiques piégées dans des matrices cristallines à basse température. Cette technique permet de s’affranchir des effets d’ensemble (élargissement inhomogène des raies spectrales) et peut permettre de sonder les propriétés locales d’un milieu en tirant profit de l’extrême finesse spectrale de la raie de résonance purement électronique (dite raie sans phonon) et de sa grande sensibilité à l’environnement. En effet, celles-ci peuvent par exemple être utilisées pour détecter des champs électriques [4] ou des différences de pression [80].

La première détection de molécules uniques a été réalisée en mesurant l'absorption d'un système à l'aide d'une méthode de double modulation [65]. Un an plus tard, M. Orrit et al [66] ont montré que le fait de s'intéresser à la fluorescence était bien plus efficace d'un point de vue rapport signal à bruit que la méthode précédente. Cette technique a par la suite été employée pour diverses applications allant de l'optique quantique [81, 82] à l'imagerie biologique [83].

II.2.1. Résonances optiques à basse température

Nous allons démontrer comment il est possible d'exploiter les propriétés optiques des molécules fluorescentes à basse température pour les utiliser comme sondes locales de champ électrique par effet Stark.

II.2.1.1. Niveaux énergétiques d'une molécule fluorescente

Lorsque l'on considère une molécule unique piégée dans une matrice cristalline, ses niveaux d'énergie peuvent être représentés suivant la figure II.10. En présence d'un laser proche de la fréquence de résonance, on peut ne considérer que trois états électroniques : l'état fondamental singulet S_0 , le premier état excité singulet S_1 et le premier état excité triplet T_1 . À chacun de ces états s'ajoutent les états vibrationnels de la molécule et les états vibrationnels du réseau (phonons) couplés aux électrons de la molécule.

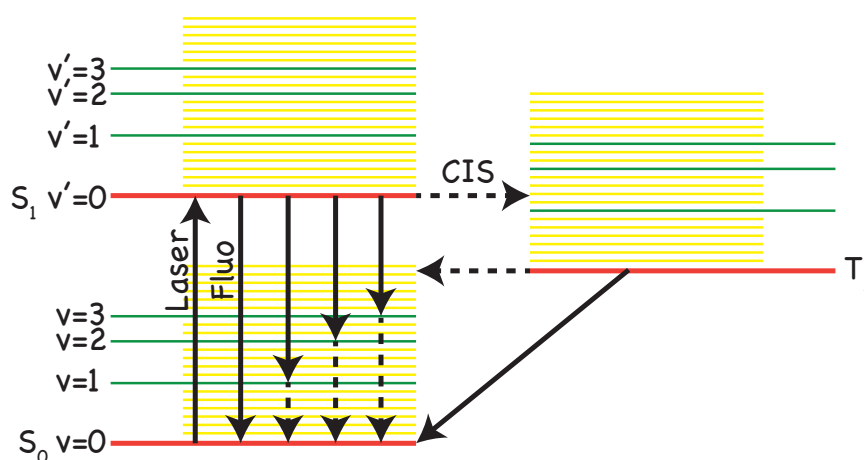


FIGURE II.10 – Diagramme de Jablonski représentant les niveaux d'énergie d'une molécule unique dans une matrice cristalline. Les lignes rouges représentent l'état vibrationnel le plus bas de chaque niveau électronique. Les lignes vertes représentent les différents états vibratoires de la molécule et les lignes jaunes représentent les états vibratoires de la matrice. Les flèches pleines indiquent les transitions radiatives tandis que les flèches en pointillés indiquent les transitions non radiatives. Enfin, le croisement intersystème est noté CIS.

Après excitation sur la transition sans phonon (S_0 - S_1), la molécule peut se désexciter vers l'état fondamental en émettant un photon. Ce photon peut être émis sur la même transition que celle du photon absorbé (raie sans phonon) mais le niveau excité peut aussi décroître vers un état vibrationnel excité du niveau électronique fondamental : le photon émis aura une énergie plus basse et la raie de fluorescence sera décalée vers le rouge

(déplacement de Stokes). La relaxation vibrationnelle vers l'état fondamental se fait alors de manière non radiative. Le spectre d'émission présente donc une raie sans phonon très intense accompagnée de répliques vibrationnelles et de bandes de phonons. Enfin, une transition de S_1 vers T_1 peut aussi avoir lieu grâce à un couplage spin-orbite entre des états vibrationnels de même énergie de ces deux états électroniques. Cet effet est appelé *croisement inter-système*. Il s'ensuit une désexcitation non radiative vers l'état vibrationnel de plus basse énergie de T_1 . La désexcitation vers l'état fondamental peut ensuite se faire radiativement par *phosphorescence* ou bien non radiativement par croisement inter-système inverse.

La durée de vie du premier état excité singulet S_1 est de l'ordre de quelques nanosecondes, bien plus longue que celle des états vibrationnels qui est de l'ordre de la picoseconde. L'état triplet est, quant à lui, un état métastable, et a donc une durée de vie beaucoup plus longue qui peut aller de la microseconde à la seconde.

Pour les systèmes molécule/matrice que nous utiliserons par la suite, le croisement inter-système est très peu probable, et donc l'état triplet n'a quasiment aucune influence sur les propriétés optiques de la molécule et ses interactions avec le champ laser. Comme, de plus, les vibrations relaxent très vite à l'échelle de la durée de vie du premier état excité, nous nous placerons dans le cas d'un système à deux niveaux [84].

II.2.1.2. Modélisation de l'interaction avec un laser

Notre molécule peut être décrite comme un système à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ séparés par une énergie $E_0 = \hbar\omega_0$. De façon générale, le système est dans l'état $|\Psi\rangle = c_a(t)|a\rangle + c_b(t)|b\rangle$ et son évolution temporelle peut s'obtenir en utilisant le formalisme de la matrice densité qui s'écrit :

$$\rho(t) = |\Psi\rangle\langle\Psi| = \begin{bmatrix} |c_a|^2 & c_a c_b^* \\ c_b c_a^* & |c_b|^2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{bmatrix}, \quad (\text{II.21})$$

où ρ_{aa} et ρ_{bb} sont respectivement les populations dans les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ et $\rho_{ab} = \rho_{ba}^*$ décrit la cohérence du système. L'évolution de la matrice densité est donnée par :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = [H, \rho(t)], \quad (\text{II.22})$$

où H est l'hamiltonien du système qui s'écrit, dans le cas d'une interaction avec un laser représenté par un champ électrique E oscillant à la fréquence ω et polarisé selon \vec{e}_p :

$$H = \hbar\omega_0 |b\rangle\langle b| - dE (|a\rangle\langle b| + |b\rangle\langle a|) \cos(\omega t), \quad (\text{II.23})$$

avec H_0 l'hamiltonien décrivant les états internes du système à deux niveaux et $\vec{d} = \langle a| \vec{D} \cdot \vec{e}_p |b\rangle$ traduisant la force du couplage entre le dipôle \vec{D} et le champ électrique \vec{E} .

L'évolution du système s'obtient en résolvant les équations de Bloch optiques qui sont données par :

$$\dot{\sigma}_{ba} = i\delta\sigma_{ba} + i\frac{\Omega_L}{2} (\sigma_{bb} - \sigma_{aa}), \quad (\text{II.24})$$

$$\dot{\sigma}_{bb} = i\frac{\Omega_L}{2} (\sigma_{ba} - \sigma_{ab}) = -\dot{\sigma}_{aa}, \quad (\text{II.25})$$

où σ_{ba} , σ_{aa} et σ_{bb} décrivent respectivement la cohérence et les différentes populations du système. $\delta = \omega - \omega_0$ est le désaccord du laser et $\Omega_L = -dE/\hbar$ est la fréquence de Rabi du

ystème.

En présence d'un réservoir, correspondant ici aux phonons de la matrice et aux photons du vide, il faut ajouter des termes de relaxation prenant en compte l'émission spontanée, la relaxation non radiative éventuelle des états excités et le déphasage pur du dipôle. Les expressions de ces termes sont données par : $\dot{\sigma}_{bb} = -\gamma_p \sigma_{bb}$ et $\dot{\sigma}_{ba} = -\gamma_d \sigma_{ba}$. Où γ_p est le taux de relaxation des populations et γ_d le taux de relaxation de la cohérence. Dans le cas général, on peut écrire :

$$\gamma_d = \frac{\gamma_p}{2} + \frac{1}{T_2^*}, \quad (\text{II.26})$$

où $1/T_2^*$ est un terme de déphasage. Si la relaxation ne se fait que par émission spontanée, ce qui est le cas lorsque les molécules uniques sont placées à la température de l'hélium liquide, alors on peut écrire :

$$\gamma_d = \frac{\gamma_p}{2}. \quad (\text{II.27})$$

Réaliser une expérience de spectroscopie de molécules uniques à basse température revient à mesurer la valeur moyenne de la population de l'état excité dans l'état stationnaire en prenant $\gamma_d = \frac{\gamma_p}{2}$. Lorsque toutes les relaxations sont introduites dans les équations de Bloch optiques, cette quantité s'écrit :

$$\sigma_{bb}^{\text{st}} = \frac{1}{2} \frac{\Omega_L^2}{2\delta^2 + \Omega_L^2 + \frac{\gamma_p^2}{2}} = \frac{1}{2} \frac{s}{1 + s}, \quad (\text{II.28})$$

avec :

$$s = \frac{\Omega_L^2}{2\delta^2 + \frac{\gamma_p^2}{2}} = \frac{I}{I_{\text{sat}}} \quad (\text{II.29})$$

le paramètre de saturation où I est l'intensité du laser et I_{sat} l'intensité de saturation de la molécule. Cette intensité est définie comme l'intensité à résonance pour laquelle la population du niveau excité est égale à la moitié de sa valeur de saturation qui vaut $1/2$. Elle est donnée par :

$$I_{\text{sat}} = \frac{\varepsilon_0 c \hbar^2 \gamma_p \gamma_d}{2 d^2}. \quad (\text{II.30})$$

L'évolution de la population en fonction du paramètre δ est lorentzienne et sa largeur à mi-hauteur est donnée par :

$$\Delta\nu = \Delta\nu_{\text{hom}} \sqrt{1 + \frac{I}{I_{\text{sat}}}}, \quad (\text{II.31})$$

où $\Delta\nu_{\text{hom}}$ est la largeur homogène de la molécule qui s'écrit, dans le domaine fréquentiel :

$$\Delta\nu_{\text{hom}} = \frac{1}{2\pi T_1}, \quad (\text{II.32})$$

où T_1 est la durée de vie du premier état électronique excité. La largeur de la raie d'excitation est alors limitée par la durée de vie de l'état excité. Celle-ci est de l'ordre de 20 MHz pour une durée de vie de 10 ns. On peut alors distinguer deux régimes selon l'intensité d'excitation de la molécule. Si cette intensité est très inférieure à l'intensité de saturation, alors on a :

$$\sigma_{bb}^{\text{st}} = \frac{1}{2} \frac{\Omega_L^2}{2\delta^2 + \frac{\gamma_p^2}{2}}, \quad (\text{II.33})$$

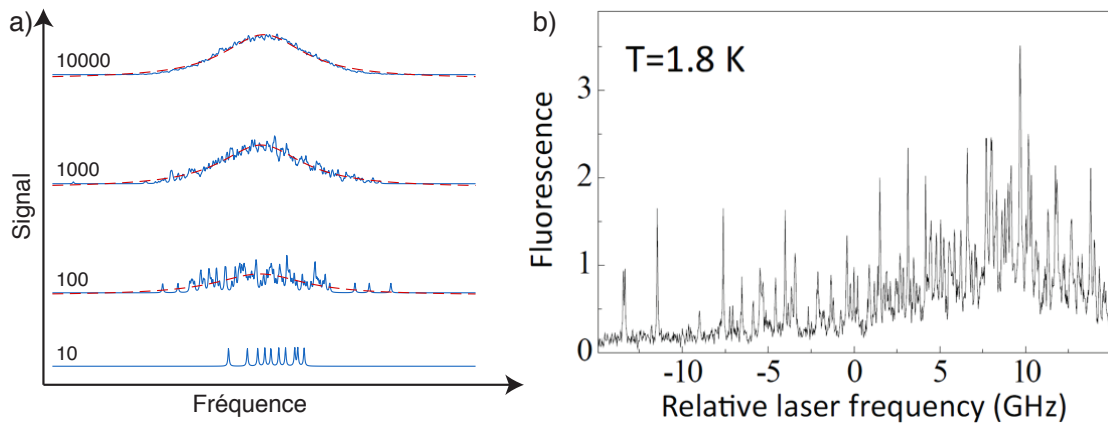


FIGURE II.11 – Illustration de la largeur inhomogène d'un échantillon. a) Simulation d'une bande d'absorption inhomogène pour différents nombres de molécules. Chaque molécule présente une raie homogène fine. Le régime de molécule unique est atteint dans le spectre le plus bas ou dans les ailes des autres spectres. b) Spectre d'excitation d'un échantillon composé de molécules de terrylène piégées dans un cristal de paraterphényle à 1.8 K dans la région spectrale située autour de $\lambda = 578.5$ nm. On se rend bien compte que le régime de molécules uniques est plus facile à atteindre dans les ailes de la raie inhomogène. D'après [85].

et la largeur à mi-hauteur de cette lorentzienne est constante et donnée par $\Delta\nu = \Delta\nu_{\text{hom}}$. En revanche, lorsque l'intensité est grande devant l'intensité de saturation, le signal sature et la largeur à mi-hauteur n'est plus constante et augmente avec l'intensité. Il faudra donc se placer dans le régime des faibles excitations pour avoir accès aux raies les plus étroites dans le but d'obtenir des facteurs de qualité élevés pour la résonance, de l'ordre de $\nu/\Delta\nu_{\text{hom}} \sim 10^7$.

À cause des défauts présents dans la matrice cristalline, toutes les molécules de l'échantillon n'ont pas la même fréquence de résonance et celles-ci sont réparties sur une large bande de fréquence appelée bande inhomogène de largeur γ_{inh} bien plus grande que la largeur homogène d'une molécule. Ainsi, pour une faible concentration de molécules, on s'aperçoit qu'il est très peu probable que les raies d'absorption homogènes de deux molécules se chevauchent. Il devient donc aisé d'exciter une molécule unique : en plus de la sélection spatiale imposée par le volume d'excitation du laser focalisé, il existe à basse température une sélection spectrale qui permet de différencier deux molécules ayant des fréquences de résonance différentes contenues dans le volume d'excitation du laser (figure II.11).

II.2.2. Détection d'un champ électrique local par effet Stark

Il peut être intéressant de trouver une nanosonde optique sensible au champ électrique local. En effet, nous avons pu voir que la détection du champ électrique d'un vortex d'Abrikosov pourrait être réalisée à l'aide d'un tel outil. Cependant, ces nanosondes doivent rester insensibles au champ magnétique. Étant donné la finesse de la transition S_0 - S_1 d'une molécule unique, il est possible de détecter des changements de leur fréquence de résonance aussi faibles que quelques dizaines de MHz.

Le déplacement énergétique résultant de l'action de ce champ électrique peut être mesuré par spectroscopie de molécule unique : le champ électrique aura pour effet de modifier la fréquence de résonance de la molécule. Ce déplacement fréquentiel peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\Delta\nu = -\frac{1}{\hbar} \left(\delta\vec{d} \cdot \vec{E}_{\text{loc}} + \frac{1}{2} \vec{E}_{\text{loc}} \cdot \delta\underline{\underline{\alpha}} \cdot \vec{E}_{\text{loc}} \right), \quad (\text{II.34})$$

où $\delta\vec{d}$ est la différence entre les vecteurs moment dipolaire statique et $\delta\underline{\underline{\alpha}}$ la différence de tenseurs de polarisabilité électrique entre les états fondamental et excité de la molécule. Les molécules aromatiques centrosymétriques comme le terrylène ou le dibenzo-anthanthrene (DBATT) ont un effet Stark essentiellement quadratique. Cependant, lorsqu'elles sont placées dans des matrices polycristallines (alcane) ou amorphes (polymère), elles peuvent acquérir un moment dipolaire permanent dû aux déformations par la matrice. Cela conduit à une contribution linéaire à l'effet Stark qui est généralement plus importante que la composante quadratique. Si on considère par exemple la molécule de DBATT piégée dans une matrice d'hexadécane⁴, la différence de moment dipolaire induite entre les états fondamental et excité est de l'ordre de 0.3 D, correspondant à un déplacement fréquentiel de l'ordre de 2 MHz/(kV/m) [4]. Si on prend l'exemple d'un vortex d'Abrikosov dans un supraconducteur de type II, il a été prédit [86] que son champ électrique doit être de l'ordre de 10 kV/m. Or, une molécule soumise à un tel champ électrique devrait voir sa fréquence de résonance se déplacer de l'ordre d'une largeur de raie, ce qui est détectable par spectroscopie de molécules uniques.

II.2.3. Montage expérimental

Afin d'observer les molécules organiques individuelles piégées dans une matrice cristalline, il est nécessaire de commencer par bien choisir les caractéristiques du laser d'excitation. Nous utiliserons ici un laser monomode accordable sur toute la bande inhomogène avec une largeur de raie de 1 MHz inférieure à la largeur de raie des molécules étudiées. Les photons de fluorescence sont ensuite séparés des photons laser avec un filtre interférentiel adapté avant de les envoyer vers le détecteur.

Nous serons amenés à utiliser deux méthodes différentes pour observer les molécules uniques.

La première, appelée *microscopie d'épifluorescence*, consiste à exciter l'échantillon en champ large : la surface de l'échantillon illuminée est très supérieure à la limite de diffraction. Le plan de l'échantillon est ensuite conjugué au plan d'une caméra CCD (Charged Coupled Device) à l'aide d'un objectif de microscope et d'une lentille tube dont le rapport des focales détermine le grandissement du système. Cette technique permet d'observer plusieurs molécules en même temps et de corrélérer leurs positions avec des objets présents sur la surface de l'échantillon et pouvant être détectés sur cette même caméra. Cela permet par exemple, dans le cas de la détection du champ électrique d'un objet quelconque, de voir si la molécule est suffisamment proche de cet objet pour effectivement ressentir ce champ électrique.

La seconde méthode, appelée *microscopie confocale*, utilise un laser focalisé à la limite de diffraction sur la surface de l'échantillon pour exciter ce dernier. De cette manière, le volume d'excitation est limité par la longueur d'onde du laser et les caractéristiques de

4. C'est le couple molécule matrice que nous utiliserons par la suite.

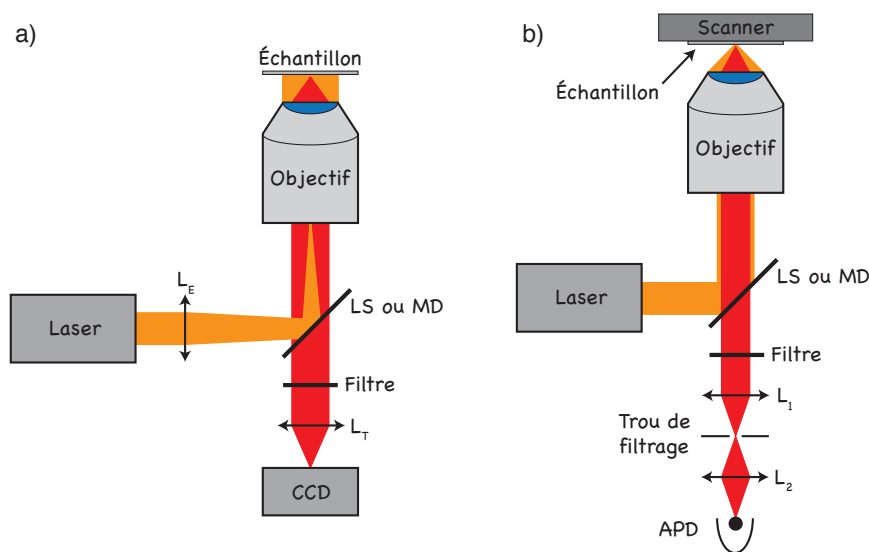


FIGURE II.12 – Comparaison des deux types de montage permettant de détecter des objets individuels. a) La microscopie d'épifluorescence consiste à focaliser le laser d'excitation dans le plan focal arrière de l'objectif à l'aide d'une lentille d'épifluorescence L_E . Le plan de l'échantillon est ensuite conjugué au plan de la caméra CCD à l'aide d'un télescope constitué d'un objectif de microscope et d'une lentille tube L_T . Le filtre interférentiel placé sur le chemin de détection permet de rejeter les photons d'excitation. b) La microscopie confocale consiste à focaliser le laser d'excitation dans le plan de l'échantillon. La fluorescence est ensuite collectée point par point en déplaçant l'échantillon dans le plan objet de l'objectif avec un système de scanners piézoélectriques. Le plan de l'échantillon est ensuite conjugué à un trou de filtrage dans le but de rejeter toute la fluorescence ne provenant pas du volume d'excitation et d'augmenter le rapport signal sur fond avant d'être focalisée sur une photodiode à avalanche (APD) permettant de compter les photons de fluorescence. Dans les deux configurations, la séparation de l'excitation et de l'émission se fait avec une lame séparatrice (LS) ou un miroir dichroïque (MD).

l'objectif utilisé pour la focalisation. Le signal de fluorescence est ensuite envoyé vers une photodiode à avalanche. Cette technique permet de mesurer les spectres d'excitation des molécules avec une plus grande précision, comparée à la microscopie en champ large.

Nous utiliserons ici un montage permettant de combiner ces deux méthodes, adapté pour une utilisation dans un cryostat pouvant atteindre la température de l'hélium liquide.

II.2.3.1. Le cryostat

Afin d'étudier les spectres d'excitation de fluorescence des molécules individuelles, il est crucial de les refroidir à des températures inférieures à 3 K pour éliminer les processus de déphasage et avoir des raies dont la largeur est limitée par la durée de vie de l'état excité. Le cryostat utilisé ici est un cryostat constitué d'un réservoir d'hélium liquide de 4 litres permettant une autonomie d'une dizaine d'heures une fois refroidi à 4 K. La particularité de ce cryostat est que l'écran froid protégeant l'échantillon des radiations thermiques infrarouges n'est pas refroidi avec un réservoir d'azote mais directement avec l'hélium gazeux : cela permet de supprimer les vibrations introduites par l'azote en ébullition (figure II.13).

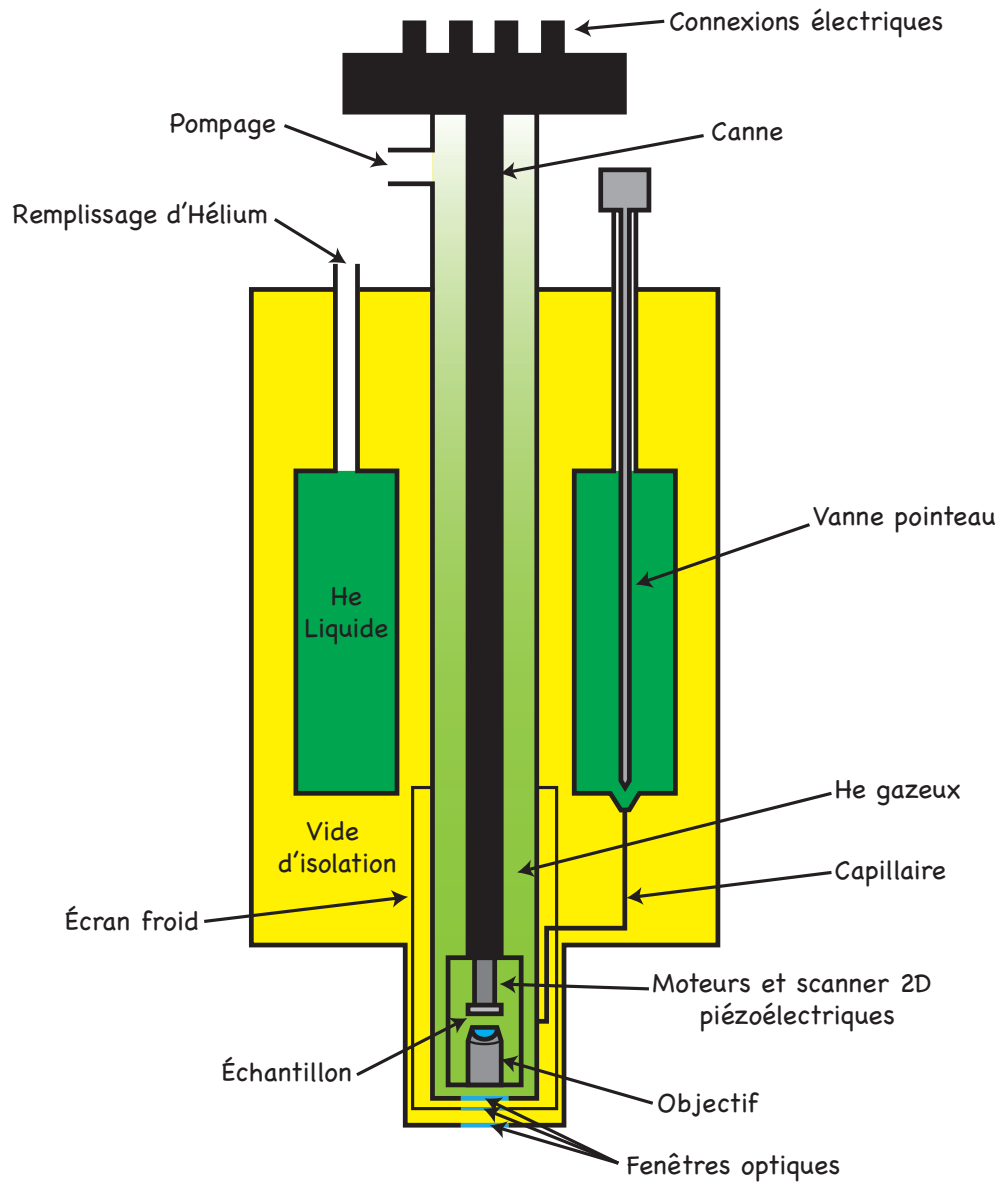


FIGURE II.13 – Vue d'ensemble du cryostat avec un microscope intégré.

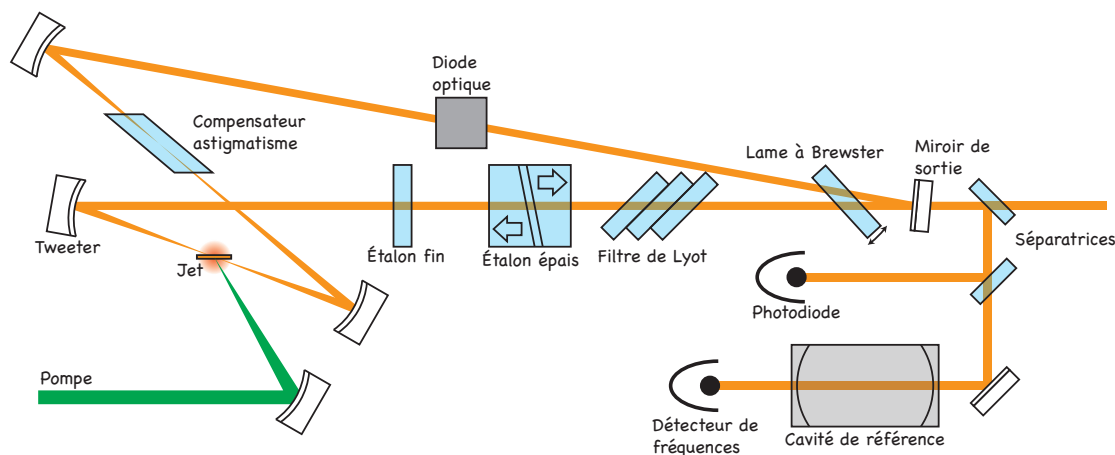


FIGURE II.14 – Illustration de la configuration de la cavité laser utilisée.

La température de la chambre à température variable dans laquelle est placée la canne contenant l'échantillon est ensuite contrôlée à l'aide d'un PID pilotant une résistance de puissance pour dissiper de la chaleur dans le système et la vanne pointeau qui régule le flux d'hélium liquide allant vers l'échantillon. Enfin, pour descendre à des températures inférieures à 4 K, il est possible de pomper la chambre à température variable : cela permet de descendre jusqu'à des températures de l'ordre de 1.6 K.

II.2.3.2. La source laser

La mesure de spectres d'excitation de fluorescence de molécules individuelles requiert une source cohérente monomode ayant une largeur de raie inférieure à celle de la molécule. De plus, cette source doit être accordable en fréquence sur toute la largeur inhomogène de l'échantillon (quelques dizaines à quelques centaines de GHz). Nous utiliserons ici un laser à colorant en anneau pompé par un laser YAG doublé en fréquence de puissance 10 W. Étant donnée la longueur d'onde d'excitation des molécules que nous allons étudier, nous utiliserons comme colorant la Rhodamine 6G qui permet d'utiliser des longueurs d'onde allant de 560 à 625 nm. Une puissance de pompe de 5 W permet d'obtenir une puissance laser en sortie de 1 W au maximum de la bande de gain du colorant.

La géométrie du laser utilisé est décrite en figure II.14. Le milieu amplificateur est formé par un jet aplati de colorant incliné à l'angle de Brewster avec le faisceau de pompe pour réduire les pertes. La pompe est focalisée dans ce milieu amplificateur à l'aide d'un miroir sphérique. Ces miroirs étant fortement stigmatiques lorsqu'ils sont utilisés hors axe, il est nécessaire de compenser l'astigmatisme introduit en utilisant un barreau de verre taillé à Brewster. De plus, afin d'augmenter la stabilité de la cavité, il est préférable de favoriser un unique sens de propagation des photons dans cette dernière. Pour cela, on utilise une diode optique constituée d'un rotateur de Faraday introduisant une rotation de la polarisation de la même quantité et dans la même direction pour les deux sens de propagation. Cet élément est combiné avec une lame de quartz permettant de compenser la rotation introduite par le rotateur de Faraday pour les photons se déplaçant dans un sens et de l'accentuer pour les photons se déplaçant dans le sens opposé, induisant des pertes par réflexions sur les éléments à Brewster pour ces derniers. La cavité est ensuite rendue

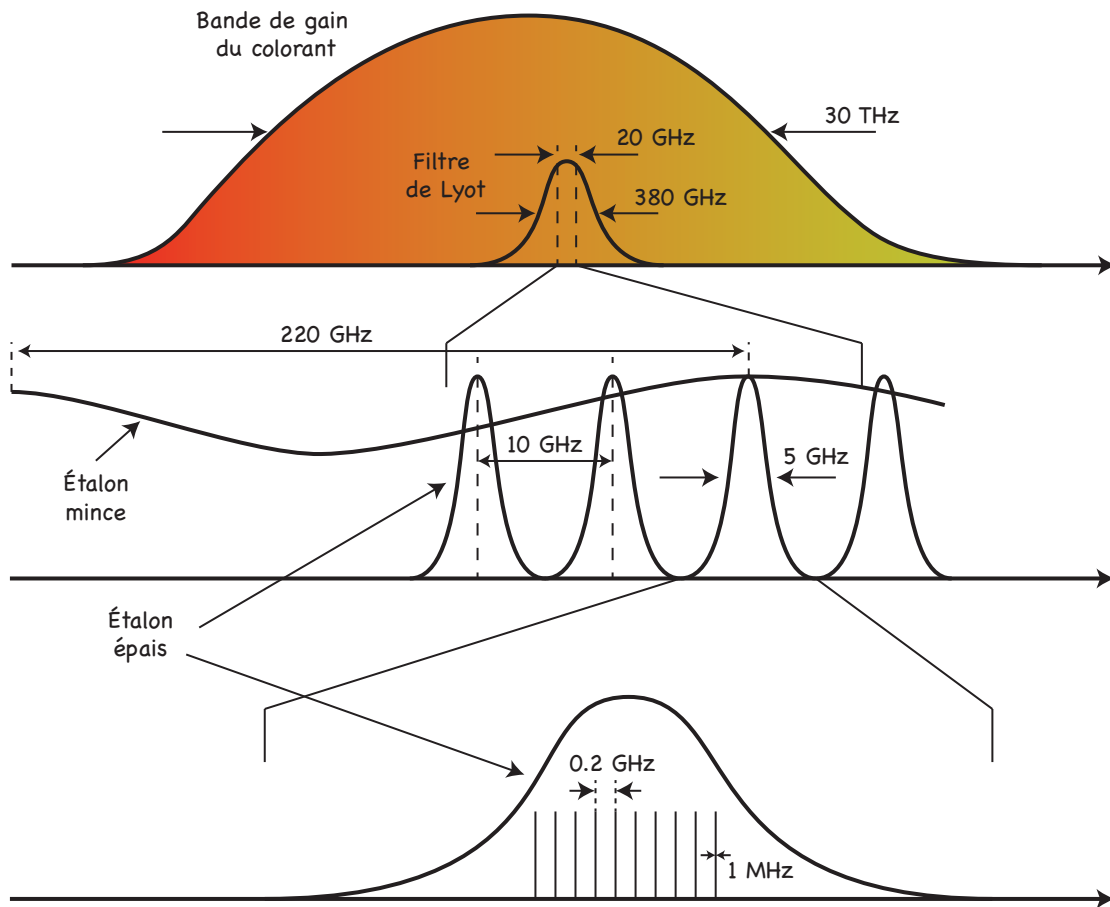


FIGURE II.15 – Sélection d'un mode longitudinal du laser à colorant grâce aux différents filtres et étalons.

monomode (figure II.15) à l'aide d'un filtre de Lyot associé à différents filtres étalons (un fin et un épais). Dans cette configuration, il est possible d'obtenir des largeurs de raie de l'ordre du MHz. Une partie du faisceau laser sortant est ensuite prélevée et envoyée vers une cavité Fabry-Pérot thermostatée. Le signal d'erreur est alors amplifié puis utilisé pour ajuster la longueur de la cavité en modifiant la position d'un miroir monté sur un scanner piézoélectrique et en changeant l'angle d'une lame galvanométrique initialement orientée à un angle proche de l'angle de Brewster. La rotation de cette lame est aussi utilisée pour faire varier la longueur de la cavité dans le but de balayer la fréquence du laser de manière continue sur 30 GHz au maximum à des vitesses pouvant aller jusqu'à 120 GHz/s.

II.2.3.3. Le montage optique

Nous allons décrire dans cette partie le montage optique utilisé permettant de combiner microscopie confocale et en champ large. Celui-ci est décrit en figure II.16.

En premier lieu, le faisceau laser passe à travers un filtre d'excitation permettant d'enlever la fluorescence résiduelle du colorant qui aurait pour effet de diminuer le rapport signal à fond de nos mesures. Il est ensuite envoyé vers un modulateur électro-optique permettant d'atténuer les variations de puissance. Un objectif de focale $f = 5$ mm et d'ouverture

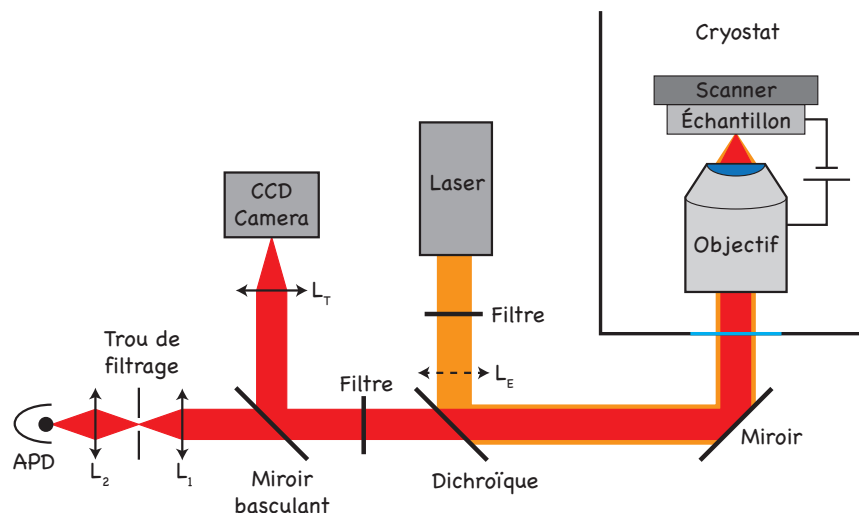


FIGURE II.16 – Schéma du montage permettant d’alterner entre la microscopie confocale et la microscopie en champ large. La lentille L_E est montée sur un support amovible et permet de passer facilement de l’imagerie en champ large à la spectroscopie de molécules uniques.

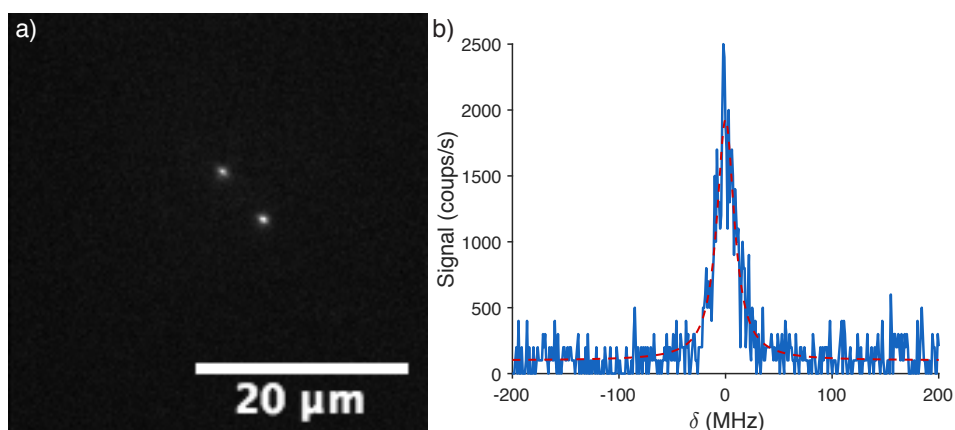


FIGURE II.17 – Observation de molécules de DBATT dispersées dans une matrice d’hexadécane. a) Deux molécules imagées sur la caméra CCD en microscopie d’épifluorescence à $T = 2.7$ K. b) Spectre d’excitation de fluorescence d’une molécule unique à $T = 2$ K. La forme lorentzienne du spectre de fluorescence est soulignée par un ajustement des données sur l’équation (II.33) avec $\Delta\nu_{\text{hom}} = 20$ MHz.

numérique 0.5 permet de focaliser la lumière excitatrice sur l'échantillon monté sur un ensemble de scanners XY et de moteurs XYZ piézoélectriques. Le signal de fluorescence est collecté par le même objectif, puis séparé de l'excitation par un miroir dichroïque suivi d'un filtre interférentiel. Le signal est filtré spatialement par conjugaison d'un trou de filtrage au plan focal image de l'objectif supprimant ainsi toute la lumière hors foyer pour augmenter fortement le rapport signal à fond. Enfin, les photons de fluorescence sont focalisés sur une photodiode à avalanche qui possède un bon rendement quantique de détection ($\eta_q \sim 0.6$ dans le domaine visible).

Afin de pouvoir corrélérer la position des molécules individuelles avec la position des objets à étudier détectés par imagerie magnéto-optique, il est nécessaire de pouvoir imager les molécules en champ large sur une caméra. Pour cela, nous avons placé sur des supports amovibles, une lentille d'épi-illumination focalisant le faisceau laser dans le plan focal arrière de l'objectif ainsi qu'un miroir permettant d'envoyer le signal de fluorescence vers une caméra basée sur un capteur CCD de 512×512 pixels de $13 \times 13 \mu\text{m}^2$ chacun avec une résolution de 16 bits et une efficacité quantique supérieure à 80 % entre 450 et 650 nm.

La procédure que nous utilisons pour l'observation de spectres de fluorescence de molécules

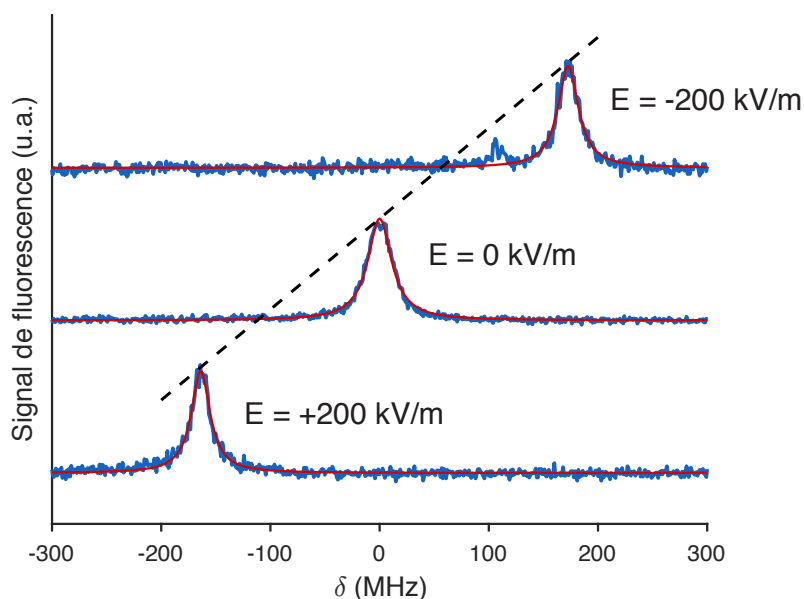


FIGURE II.18 – Exemple de mesure du coefficient de déplacement Stark linéaire par application d'une tension de $\pm 100 \text{ V}$ entre le corps de l'objectif et le support de l'échantillon ($E = 200 \text{ kV/m}$). Pour cette molécule, on trouve $840 \text{ MHz}/(\text{kV/m})$.

uniques est la suivante : tout d'abord, nous observons les molécules en champ large sur la caméra en balayant la fréquence du laser. Cela permet de sélectionner rapidement une molécule proche d'un objet d'intérêt dont on souhaite sonder le champ électrique. L'échantillon est ensuite déplacé en utilisant les moteurs piézoélectriques pour que la molécule puisse être excitée par le faisceau laser confocal. Nous utilisons ensuite la microscopie confocale pour étudier le spectre d'excitation de la molécule avec la photodiode à avalanche. Cette technique permet ensuite de mesurer le coefficient de déplacement Stark

linéaire avec précision en mesurant le déplacement induit par application d'un champ électrique connu entre l'échantillon métallique et le support d'objectif (figure II.18).

II.3. Conclusion

Dans cette partie, nous avons décrit les différentes méthodes expérimentales dont nous aurons besoin dans les chapitres suivants pour réaliser toutes les expériences. La méthode d'imagerie magnéto-optique sera utilisée pour observer des domaines normaux dans les supraconducteurs de type I ou des vortex d'Abrikosov dans les supraconducteurs de type II. Dans le premier cas, cette méthode sera combinée à un montage permettant de réaliser de la spectroscopie de molécules uniques à basse température afin de mesurer les champs électriques induits par le grenat suite à l'apparition d'une aimantation inhomogène dans ce dernier. Nous utiliserons pour cela le cryostat à hélium liquide qui permet d'atteindre des températures pour lesquelles les spectres d'excitation de fluorescence ont des largeurs limitées par la durée de vie de l'état excité. Dans le second cas, nous utiliserons un montage d'imagerie magnéto-optique seul et l'échantillon sera placé dans un cryostat à circuit fermé qui est plus confortable à utiliser et qui permet d'atteindre des températures suffisamment basses pour les échantillons supraconducteurs que nous étudierons.

Chapitre III

Mise en évidence expérimentale de l'effet flexomagnétoélectrique

Avec la quantité toujours croissante de données à traiter, la recherche de nouvelles technologies permettant de stocker des quantités d'informations plus importantes dans des espaces plus réduits s'est fortement développée. De nos jours, la méthode la plus utilisée est celle du stockage magnétique. Cependant, il semble que cette technologie ait atteint ses limites en termes de miniaturisation et de consommation d'énergie.

En 1894, Pierre Curie écrivait [87] :

“Les conditions de symétrie nous montrent qu'il pourrait se faire qu'un corps à molécules dissymétriques se polarisât diélectriquement lorsqu'on le place dans un champ magnétique.”

Ce fut alors le premier à prédire l'existence de matériaux dont la polarisation peut être contrôlée à l'aide d'un champ magnétique. Suite à cette prédiction, la découverte des matériaux multiferroïques (matériaux à la fois ferromagnétiques et ferroélectriques) a fait l'objet d'un intérêt croissant. Ces matériaux offrent en effet la possibilité de contrôler l'aimantation par simple application d'un champ électrique, et par conséquent sans la nécessité d'appliquer un courant électrique, ouvrant la voie au développement de nouveaux éléments de mémoire à faible consommation électrique comparée à celle des disques durs actuellement utilisés.

Dans ce chapitre, nous montrerons comment nous avons pu détecter pour la première fois l'effet flexomagnétoélectrique, correspondant à la création d'une polarisation électrique par une paroi de domaine dans des grenats de fer montrant un couplage magnéto-électrique. Cette étude apporte la première preuve directe de l'existence de cet effet dans ce type de matériaux.

III.1. Présentation des matériaux multiferroïques

Afin de comprendre ce qu'est un matériau multiferroïque, commençons par définir ce qu'est un matériau ferroïque. C'est un matériau qui présente un arrangement local d'un paramètre physique (aimantation, polarisation, ...) en une structure régulière. Cela résulte en l'apparition de domaines au sein desquels l'orientation de ce paramètre physique est uniforme. Entre deux domaines, la condition de continuité impose la création de parois de domaine. Il s'agit d'une rotation du paramètre physique considéré faisant ainsi la transition entre les orientations propres à ces deux domaines. Ce paramètre physique peut être contrôlé par l'application d'un champ dit moteur : par exemple, un matériau ferromagnétique verra son aimantation modifiée sous l'action d'un champ magnétique et un champ électrique pourra agir sur la polarisation électrique d'un matériau ferroélectrique.

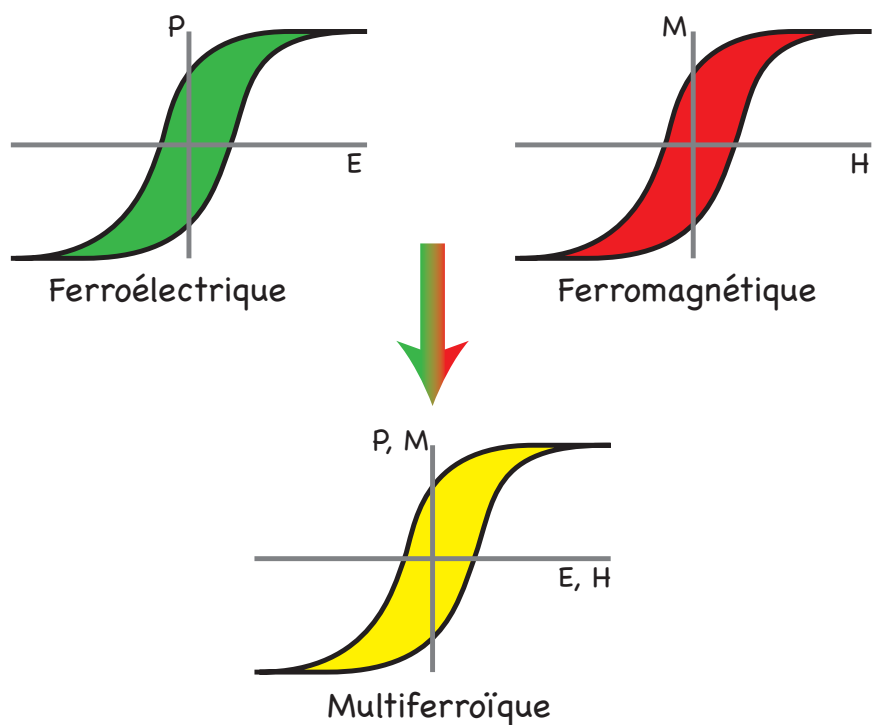


FIGURE III.1 – Illustration d’un matériau multiferroïque, c’est-à-dire un matériau présentant à la fois les caractères ferroélectrique et ferromagnétique.

Un matériau montrant au moins deux comportements de type ferroïque (par exemple un matériau montrant à la fois un ordre ferroélectrique et un ordre ferromagnétique) est dit multiferroïque. Il apparaît alors un couplage entre magnétisme et électricité au sein de ce matériau et il devient possible d’agir sur un paramètre en modifiant le champ moteur de l’autre paramètre. Par exemple, il est possible d’agir sur l’aimantation du matériau par application d’un champ électrique et inversement (figure III.1). Cet effet de couplage entre ces deux ordres est appelé effet magnétoélectrique.

Les matériaux montrant ces deux types d’ordre sont très rares [88]. En effet, il est possible de montrer, à partir des équations de Maxwell, que les caractéristiques électriques (P et E) d’un matériau changent de signe par inversion des coordonnées spatiales tout en restant invariantes par inversion du temps, alors que les caractéristiques magnétiques se transforment de manière totalement opposée : elles sont invariantes par inversion des coordonnées spatiales mais changent de signe lorsque le temps est inversé [89]. Bien que ces conditions paraissent a priori contradictoires, cet effet peut cependant apparaître dans certains matériaux ayant un arrangement de spins particulier.

On peut distinguer deux groupes de matériaux multiferroïques. Le premier groupe, appelé groupe de type I, concerne les matériaux dans lesquels les caractères ferromagnétique et ferroélectrique apparaissent indépendamment. Ce type de matériau est généralement constitué de deux phases distinctes : l’une contribuant au caractère ferromagnétique et l’autre au caractère ferroélectrique. Ainsi, un couplage entre ces deux phases permet de faire apparaître un effet magnétoélectrique. Cet effet est généralement faible dans ce premier type

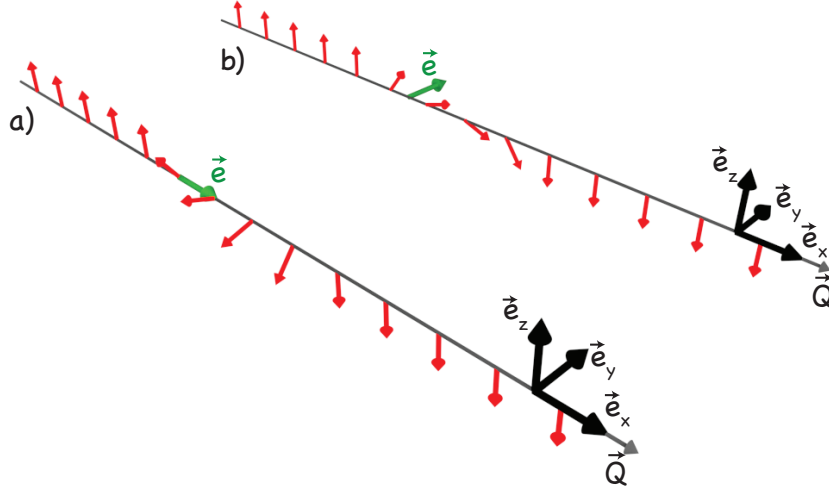


FIGURE III.2 – Comparaison des deux types de parois de domaines. a) Paroi de Bloch : l'axe de rotation de l'aimantation \vec{e} est colinéaire au vecteur d'onde $\vec{Q} = Q\vec{e}_x$. b) Paroi de Néel : l'axe de rotation de l'aimantation $\vec{e} \propto \vec{e}_y$ est perpendiculaire au vecteur d'onde $\vec{Q} = Q\vec{e}_x$. C'est ce dernier type de paroi de domaine qui permet d'obtenir une polarisation non nulle par effet magnétoélectrique.

de matériau à cause du couplage faible entre ces deux phases résultant de leur séparation spatiale au sein du matériau. Parmi ces matériaux, les plus connus sont des perovskites comme le BiFeO_3 et le YMnO_3 pour lesquels le caractère ferroélectrique apparaît à des températures relativement élevées de l'ordre de 1000 K [90]. Le second groupe dit de type II se distingue du premier groupe par le fait que la polarisation électrique est créée directement par le magnétisme du matériau donnant lieu à des couplages magnétoélectriques beaucoup plus importants comparés aux multiferroïques appartenant au premier groupe. Par exemple, si on considère le cas simple d'une chaîne de spins $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$, l'interaction magnétique sera attractive entre les sites voisins dont les spins sont orientés dans des sens opposés ($\uparrow\downarrow$ ou $\downarrow\uparrow$) et répulsive entre les sites voisins portant des spins orientés dans le même sens ($\uparrow\uparrow$ ou $\downarrow\downarrow$). Cette interaction a pour effet de briser l'arrangement centrosymétrique des ions et il apparaît alors une polarisation électrique. Cela est rendu possible dans certains oxydes de manganèse contenant des terres rares comme le TbMnO_3 qui présente des domaines magnétiques possédant chacun une aimantation dont le sens est opposé aux domaines voisins. Au sein des parois de domaines, l'aimantation s'arrange alors en spirales qui peuvent être de différents types selon les matériaux. Selon le type de spirale, il est possible de voir apparaître une polarisation électrique non nulle dans la paroi de domaine par effet magnétoélectrique selon la formule [91] :

$$\vec{P} = \gamma\chi_e \left[(\vec{M} \cdot \vec{\nabla}) \vec{M} - \vec{M} (\vec{\nabla} \cdot \vec{M}) \right], \quad (\text{III.1})$$

où γ est une constante de couplage magnétoélectrique, χ_e la susceptibilité diélectrique du matériau considéré et \vec{M} est l'aimantation locale.

Considérons maintenant deux types d'arrangements de spin pouvant être à l'origine de la création de ces parois de domaine décrites en figure III.2. Pour cela, nous réécrivons

l'équation (III.1) de la façon suivante [92, 93] :

$$\vec{P} = \gamma\chi_e\vec{Q} \wedge \vec{e}, \quad (\text{III.2})$$

où \vec{e} est l'axe de rotation de l'onde de spin et \vec{Q} est son vecteur d'onde. Si on considère une paroi de Bloch pour laquelle $\vec{e} \parallel \vec{Q}$, alors cette polarisation est nulle. Cependant, si l'on est en présence d'une paroi de domaine de type Néel, alors $\vec{e} \perp \vec{Q}$ et une polarisation non nulle apparaît dans le plan de cette rotation, perpendiculaire au vecteur d'onde. Ce phénomène est très similaire à celui de la flexoélectricité caractérisé par le fait qu'une déformation du matériau puisse engendrer l'apparition d'une polarisation électrique non nulle. Dans le cas de la flexoélectricité, seule une déformation de flexion (cycloïdale) peut créer une polarisation électrique de la même façon qu'une compression polarise un matériau piezoélectrique, alors qu'une torsion (déformation hélicoïdale) n'a pas d'effet sur la polarisation électrique du matériau. Dans notre situation, il est possible de faire l'analogie entre les parois de Bloch d'un matériau magnétoélectrique et la torsion d'un flexoélectrique [92]. Il en est de même en ce qui concerne les parois de Néel et la flexion. On parle alors d'effet flexomagnétoélectrique où le préfixe *flexo* montre que l'effet magnétoélectrique est créé par les parois de domaines de Néel. Cet effet a été prédit dans les années 80 [94] mais les preuves expérimentales de son existence restent ambiguës.

Il a été montré que des grenats de fer similaires à ceux que nous utilisons en tant qu'indicateurs magnéto-optiques peuvent présenter des effets magnétoélectriques mis en évidence en observant la rotation de la direction de polarisation par effet Faraday suite à l'application d'un champ électrique (effet électromagnéto-optique) [95, 96, 97]. De plus, il a été prédit [98] que si on place une paroi de domaine de type Néel dans un gradient de champ électrique, alors celle-ci pourra être déplacée via l'interaction entre le dipôle électrique qui lui est associé et le champ électrique appliqué, dans une direction dépendant de l'orientation respective entre ce dipôle et le gradient de champ électrique appliqué. Ce phénomène a pu être observé sur des grenats similaires à ceux que nous utilisons pour l'imagerie magnéto-optique en déplaçant une paroi de domaine à l'aide d'une pointe chargée électriquement. Mais ces résultats sont considérés comme des preuves indirectes de l'existence de l'effet flexomagnétoélectrique dans des grenats de fer et restent controversés. En effet, le déplacement de ces parois peut aussi être dû à une inhomogénéité de l'aimantation créée par les forts gradients de champ électrique à proximité de la pointe [99].

Nous proposons ici de mettre en évidence de façon directe l'effet flexomagnétoélectrique dans un grenat de fer dopé au bismuth à l'aide de la spectroscopie de molécules uniques. Pour cela, nous utiliserons la forte inhomogénéité de champ magnétique générée par une paroi de domaine séparant les régions normales et supraconductrices d'un supraconducteur de type I pour induire une aimantation non uniforme dans un indicateur magnéto-optique. Cette non uniformité prenant la forme d'une paroi de type Néel, il devient alors possible qu'une polarisation électrique non nulle apparaisse. Cette polarisation est sondée par des molécules fluorescentes piégées dans une matrice solide de quelques centaines de nanomètres d'épaisseur intercalée entre le supraconducteur et le grenat. Ainsi, le champ électrique créé par effet flexomagnétoélectrique doit induire un déplacement Stark des résonances optiques pour les molécules uniques présentes à proximité d'une paroi de domaine.

III.2. Combinaison de l'imagerie magnéto-optique et de la spectroscopie de molécules uniques

Nous avons mis en œuvre une expérience nous permettant à la fois d'observer des parois de domaines dans un supraconducteur de type I à l'aide de la technique d'imagerie magnéto-optique décrite dans le chapitre II et de faire de la spectroscopie de fluorescence sur des molécules uniques. Pour cela, nous avons dû concevoir un échantillon et un montage expérimental permettant de combiner ces deux méthodes pour la première fois.

III.2.1. Conception de l'échantillon

L'échantillon que nous utilisons doit être constitué de trois éléments principaux : un supraconducteur de type I, des molécules fluorescentes piégées dans une matrice solide et un grenat de fer permettant à la fois de générer une polarisation électrique par effet flexomagnétoélectrique et d'observer les domaines normaux dans le film supraconducteur de type I. Nous avons choisi comme supraconducteur un film d'indium de $1.6 \mu\text{m}$ d'épaisseur déposé par évaporation thermique sur un substrat de silicium.

Afin de s'assurer que l'effet flexomagnétoélectrique observé provienne bien des inhomogénéités de champ magnétique présentes sur les parois de domaines N/S, nous avons besoin de pouvoir effectuer les mêmes expériences en dessous de T_c (lorsque le champ magnétique est inhomogène) et au-dessus de T_c (lorsque le champ magnétique est uniforme). Pour cela, il est donc préférable que les raies des molécules soient fines de part et d'autre de la température critique du supraconducteur. Or la température critique de l'indium de 3.4 K , se situant dans la plage de températures auxquelles les molécules uniques montrent des raies de résonance dont la largeur est limitée par la durée de vie de l'état excité. Cela en fait donc un bon candidat pour l'observation de l'effet flexomagnétoélectrique par cette méthode.

Le grenat utilisé est un grenat de fer et de lutétium dopé au bismuth (Bi :LuIG) de composition chimique $\text{Lu}_{3-x}\text{Bi}_x\text{Fe}_{5-z}\text{Ga}_z\text{O}_{12}$, avec $x \sim 0.9$ et $z \sim 1.0$ et d'épaisseur $d_i = 2.5 \mu\text{m}$, ayant une aimantation de saturation dans le plan de $M_s = 50 \text{ G} = 4 \text{ kA/m}$. Cet indicateur a été déposé par épitaxie en phase liquide sur un grenat de galium et de gadolinium (GGG), de composition $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur et orienté selon l'axe cristallographique (100). Sa sensibilité au champ magnétique extérieur est caractérisée par sa constante de Verdet qui vaut $V = 0.06 \text{ }^\circ/\text{mT}/\mu\text{m}$ pour une longueur d'onde $\lambda = 532 \text{ nm}$.

Afin de réaliser la spectroscopie de molécules uniques, nous utilisons un film d'hexadécane dans lequel sont piégées des molécules fluorescentes de dibenzanthanthrene (DBATT) [100] avec une concentration de l'ordre de 10^{-6} mol/l . Ces molécules piégées dans cette matrice ont la propriété de posséder des largeurs de raie de l'ordre de 20 MHz à la température de l'hélium liquide. Certaines d'entre elles peuvent montrer un coefficient Stark linéaire de l'ordre du $\text{GHz}/(\text{MV/m})$.

Dans le but d'avoir la meilleure résolution d'imagerie magnéto-optique possible, nous avons montré dans le chapitre II la nécessité de réduire la distance entre le film supraconducteur dans lequel nous voulons observer les structures magnétiques et l'indicateur magnéto-optique. Or l'ajout d'un film moléculaire entre le grenat et le supraconducteur a pour effet d'augmenter la distance entre ces deux éléments. Afin de s'assurer que cette distance soit la plus petite possible, le film moléculaire est déposé en très faible quantité

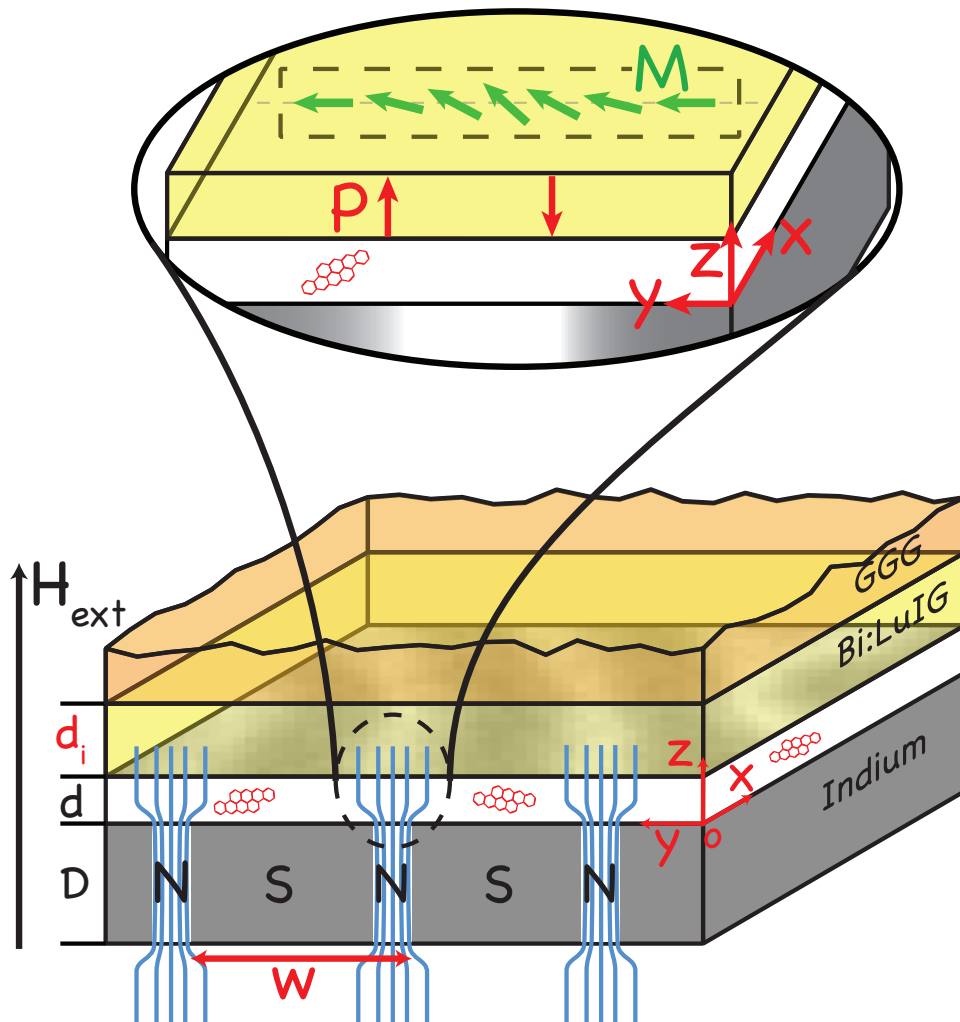


FIGURE III.3 – Schéma de l'échantillon. La couche de molécules d'épaisseur d est pressée entre le film supraconducteur d'indium dans lequel sont présents des domaines normaux (créés par application d'un champ magnétique externe) et l'indicateur magnéto-optique lui-même composé d'une couche de Bi :LuIG déposée sur un substrat de GGG. L'encart montre comment le champ magnétique non uniforme issu du film supraconducteur influence l'aimantation dans l'indicateur magnéto-optique. Celle-ci tourne hors du plan de l'échantillon créant ainsi une rotation de type cycloïde étant supposée induire une polarisation électrique dans le matériau.

(quelques μl) sur le supraconducteur. Cela nous permet d'obtenir des couches ayant des épaisseurs de l'ordre de $d = 0.1 \mu\text{m}$. Cette épaisseur est estimée sur une zone de l'échantillon donnée en balayant la fréquence du laser d'excitation sur toute la bande inhomogène de l'échantillon¹. Enfin, lorsque nous mettons en place l'indicateur, nous utilisons un système de presse pour minimiser la distance entre la couche de molécules et l'indicateur afin de réduire de nouveau la distance globale entre ce dernier et le film d'indium. Cette distance est contrôlée par l'observation des anneaux de Newton apparaissant lorsque celle-ci est faible comparée à la longueur d'onde utilisée [50]. Son réglage se fait manuellement en agissant sur 4 vis permettant de contrôler la pression à chaque angle de l'échantillon de manière indépendante. Afin que cette pression soit la plus efficacement répartie, nous plaçons entre l'indicateur et notre presse une rondelle de Belleville qui agit comme un ressort et permet ainsi d'augmenter la pression appliquée.

La figure III.3 montre comment sont arrangés les différents éléments de l'échantillon. On peut aussi voir sur ce schéma comment le champ magnétique créé par une paroi de domaine N/S dans le supraconducteur après application d'un champ magnétique externe modifie la distribution de l'aimantation dans l'indicateur magnéto-optique. Étant à l'origine contenue dans le plan du grenat, l'aimantation tourne pour créer une spirale de type cycloïde comme celle montrée en figure III.2.b). Ce type de rotation devrait induire une polarisation électrique perpendiculaire au plan de l'échantillon détectable par spectroscopie de molécules uniques.

III.2.2. Images des parois de domaines et des molécules fluorescentes

Pour ces expériences, nous avons utilisé un cryostat à Hélium liquide décrit au chapitre II. Ce cryostat permet d'atteindre des températures de quelques kelvins qui sont appropriées à la fois pour la spectroscopie de molécules uniques et le passage de l'indium dans l'état supraconducteur.

L'échantillon décrit dans la partie précédente est monté sur des moteurs piezoélectriques permettant de choisir la zone à étudier. Pour toutes ces expériences, nous utilisons un objectif de microscope de focale $f = 5 \text{ mm}$, de distance de travail $700 \mu\text{m}$ et d'ouverture numérique 0.5. Lorsqu'il est refroidi à la température de l'hélium liquide, cet objectif dégrade le coefficient d'extinction du système qui passe de 10^{-4} à température ambiante à 10^{-2} à basse température. On se rend compte ici que pour un tel objectif constitué de plusieurs éléments optiques, le refroidissement induit des contraintes mécaniques faisant apparaître de la dépolarisation. C'est cette dépolarisation induite à basse température qui est responsable de cette perte de 2 ordres de grandeur sur le coefficient d'extinction. Malgré cette perte importante, le coefficient d'extinction à basse température reste suffisamment grand pour observer des domaines normaux dans un supraconducteur de type I.

Afin de faire disparaître les domaines magnétiques déjà présents dans le grenat et ainsi orienter l'aimantation du grenat uniformément dans son plan, nous appliquons un champ magnétique de 16 Oe dans le plan de l'échantillon avec un aimant permanent. Le contraste magnéto-optique est amélioré en utilisant une procédure de soustraction de fond qui supprime la contribution des défauts présents sur la surface de l'échantillon ainsi que la contri-

1. La connaissance de la concentration de la solution ainsi que de la surface de la zone illuminée permet, en comptant le nombre de molécules présentes dans cette zone lors du balayage de la fréquence du laser, de remonter à l'épaisseur de la couche déposée [101].

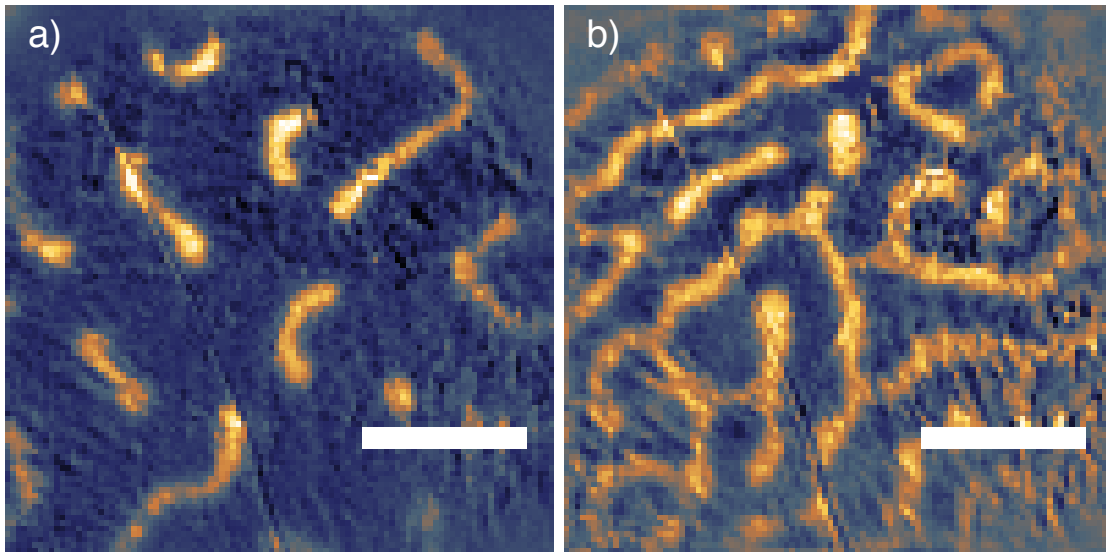


FIGURE III.4 – Comparaison de la distribution des domaines normaux dans un film d'indium de $1.6 \mu\text{m}$ d'épaisseur à une température de 2.6 K sous un champ magnétique externe de a) 11 Oe et b) 30 Oe . Les barres d'échelle représentent $20 \mu\text{m}$.

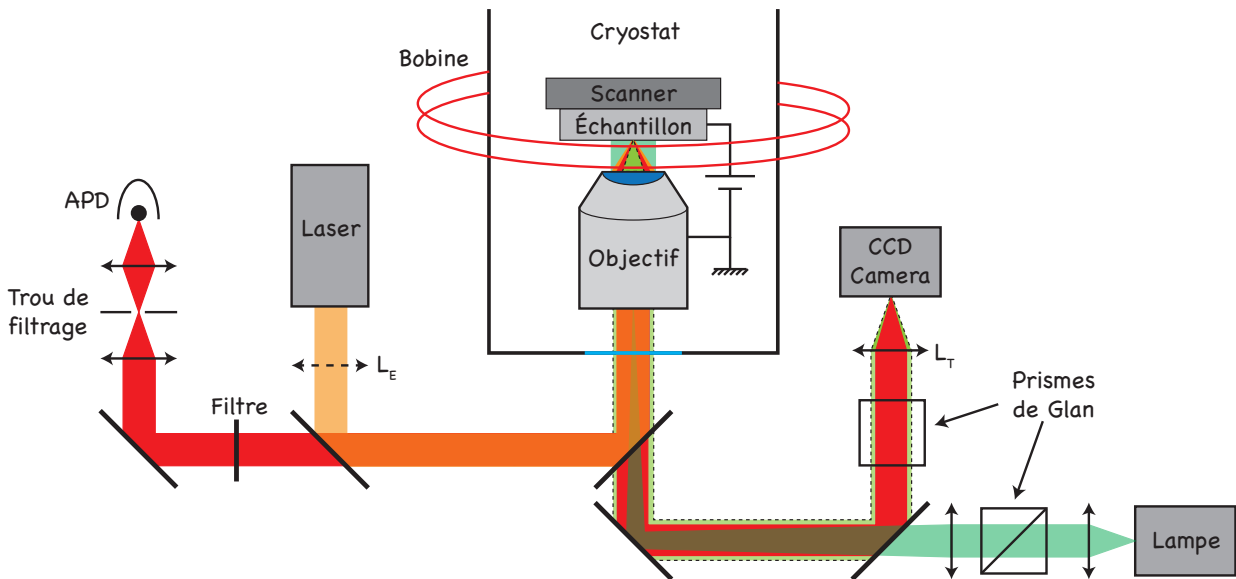


FIGURE III.5 – Schéma du montage combinant l'imagerie magnéto-optique et la spectroscopie de molécules uniques. L'excitation laser peut être appliquée en mode confocal ou en champ large (en ajoutant une lentille d'épifluorescence L_E) et l'image de la surface de l'échantillon est formée sur la caméra via la lentille tube L_T . Le signal de fluorescence peut être collecté sur une photodiode à avalanche (APD) ou sur la caméra CCD au choix. Enfin, il est possible d'appliquer une différence de potentiel entre l'objectif et l'échantillon pour mesurer le coefficient de déplacement Stark linéaire des molécules. Il est possible d'appliquer un champ magnétique externe perpendiculaire au plan de l'échantillon afin de placer le film d'indium dans l'état intermédiaire. Pour cela, nous utilisons une bobine placée à l'extérieur du cryostat nous permettant d'atteindre un champ magnétique maximal de 260 Oe .

bution d'une éventuelle illumination non uniforme. Lorsque le champ magnétique extérieur est appliqué, les domaines normaux apparaissent dans le supraconducteur et la soustraction de l'image de fond prise en l'absence de domaines permet d'augmenter le contraste. Les images magnéto-optiques ainsi formées présentent une structure labyrinthique dans laquelle les zones jaunes correspondent aux zones normales et le reste correspond à une phase supraconductrice (figure III.4).

Le montage optique que nous utilisons est décrit en figure III.5. La lumière provenant de la lampe est polarisée par un prisme de Glan puis focalisée dans le plan focal arrière de l'objectif pour une illumination en champ large. Ici, le film d'indium sert de miroir pour réfléchir la lumière incidente et ainsi doubler l'effet magnéto-optique. Au retour, une partie de la lumière est dirigée vers la caméra à l'aide d'un cube séparateur non polarisant. Elle est ensuite filtrée par un filtre 535/30 et passe par une lame quart d'onde pour compenser la biréfringence de l'objectif apparaissant à basse température, puis elle est analysée par un second prisme de Glan, dont l'axe passant est orthogonal, à un angle d'offset près, avec l'axe passant du premier prisme polarisant pour enfin être focalisée sur la caméra CCD par une lentille tube de focale $f = 100$ mm.

La spectroscopie de molécules uniques est réalisée en excitant les molécules à l'aide du laser à colorant décrit au chapitre II, en utilisant une longueur d'onde de l'ordre de 589 nm située au centre de la bande inhomogène du DBATT dans l'hexadécane. La fluorescence est ensuite collectée par l'objectif de microscope (le même que celui servant à imager l'indium dans l'état mixte) puis envoyée au choix vers la photodiode à avalanche ou vers la caméra CCD. La caméra permet ainsi d'imager à la fois les molécules et les domaines normaux de l'indium sur la même image. Cela rend plus facile la procédure de sélection de la molécule à étudier (spectralement stable, fort effet Stark linéaire et proche d'une paroi de domaine N/S). La photodiode, quant à elle, permet d'acquérir des spectres d'excitation de la fluorescence afin de sonder les déplacements spectraux des molécules (effet Stark).

Afin d'estimer la différence de champ électrique ressentie par la molécule lors du déplacement de la paroi de domaine, il est nécessaire de connaître la valeur du coefficient Stark linéaire. Pour cela, nous utilisons l'indium comme électrode que nous polarisons de façon à appliquer une tension entre ce dernier et l'objectif qui est à la masse. Ainsi, le déplacement de la résonance observé nous permet de calculer le coefficient Stark linéaire qui, par exemple, pour la molécule étudiée sur la figure III.6, est de 0.45 MHz/(kV/m) quand on prend en compte le facteur de champ local (1.5 dans le cas de l'hexadécane [4]).

Le champ électrique d'une paroi de domaine dans le grenat induit par effet flexomagnétoélectrique est calculé en estimant le déplacement fréquentiel de la molécule. Pour cela, il suffit de reporter les valeurs minimale et maximale des oscillations du signal de fluorescence de la molécule en fonction du temps sur le profil lorentzien de cette même molécule.

III.3. Observation du champ électrique créé dans le grenat par effet flexomagnétoélectrique

Dans cette partie nous allons présenter les résultats obtenus nous permettant de mesurer le champ électrique induit par une paroi de domaine N/S de l'indium dans le Bi :LuIG. Nous comparerons ensuite les résultats obtenus à la théorie afin de conclure sur l'origine

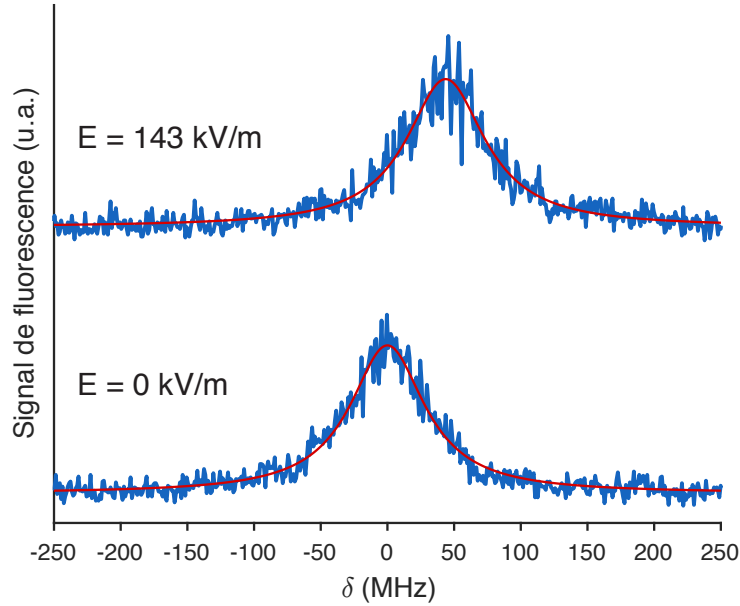


FIGURE III.6 – Mesure du coefficient Stark linéaire de la molécule étudiée. L’application d’un champ électrique de 143 kV/m permet de déplacer la fréquence de la raie sans phonons de 40 MHz, conduisant à un coefficient de 0.45 MHz/(kV/m) en prenant en compte un facteur de Lorentz de 1.5.

de cet effet.

III.3.1. Modulation du signal de fluorescence

Afin de réaliser la mesure du champ électrique induit par une paroi de domaine N/S du supraconducteur dans le grenat de Bi :LuIG par effet flexomagnétoélectrique, il est nécessaire de trouver une molécule qui soit spectralement stable (absence de diffusion spectrale), sensible à l’effet Stark linéaire et proche d’une paroi de domaine. La figure III.4 montre que le champ magnétique appliqué permet d’avoir un contrôle suffisant de la position des parois de domaines par rapport aux molécules. En effet, en augmentant la densité des domaines normaux, nous augmentons la probabilité de trouver une molécule à proximité d’une paroi de domaine.

De plus, dans le but de rendre notre détection plus sensible, nous modulons l’amplitude du champ magnétique dans le temps. De cette façon, certains domaines sont soumis à un déplacement oscillant dans le plan de l’échantillon. Une molécule individuelle située à proximité d’un de ces domaines pourra ainsi ressentir une variation de l’intensité du champ électrique créé par effet flexomagnétoélectrique.

Pour résumer, la réalisation de cette expérience nécessite de trouver une molécule spectralement fine et stable présentant un fort effet Stark linéaire. Cette molécule doit impérativement se trouver à proximité d’une paroi de domaine dont la position est modulée dans le temps sous l’action d’un champ magnétique oscillant.

Le champ magnétique finalement appliqué hors du plan de l’échantillon est donné par la somme d’un champ magnétique statique H_{ext} permettant d’obtenir la densité de do-

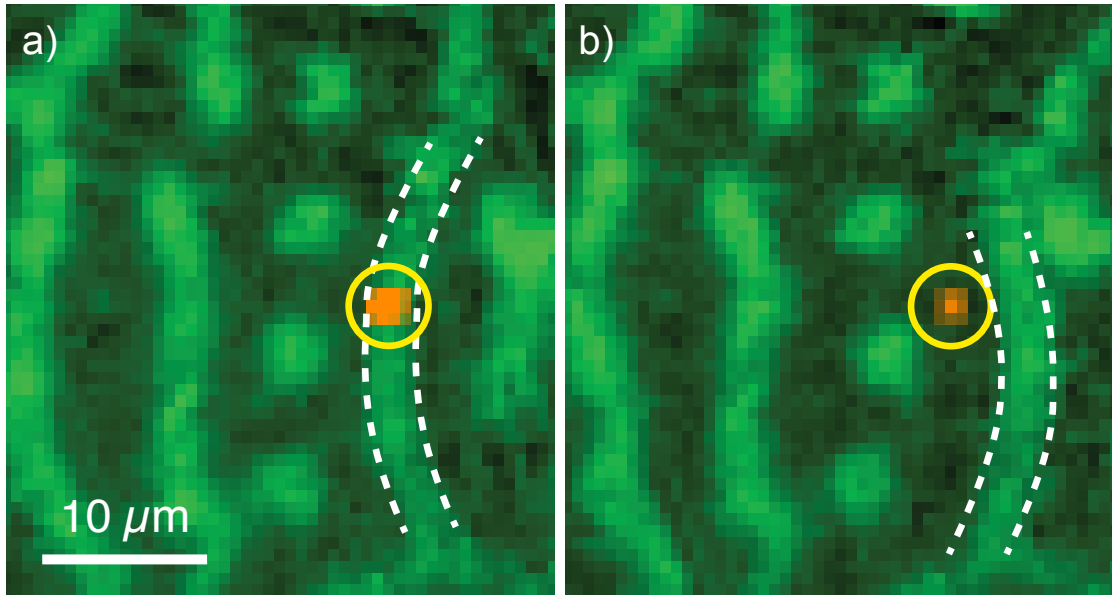


FIGURE III.7 – Image magnéto-optique de domaines normaux dans l’indium, superposée avec l’image d’une molécule unique pendant la modulation du champ magnétique appliqué avec une amplitude de 2 Oe autour de 30 Oe à une fréquence de 1 Hz. a) Le champ magnétique est de 29 Oe. La molécule est située à proximité d’une paroi de domaine. b) Image de la même zone pour une valeur du champ magnétique de 31 Oe. Sur cette image, la paroi de domaine s’est éloignée de la molécule sous l’action du champ magnétique et le signal de fluorescence de cette dernière est plus faible.

maines normaux désirée et d’un champ oscillant H_{mod} d’amplitude ΔH et de fréquence f_{mod} permettant de faire osciller la position des domaines normaux créés par H_{ext} .

On peut voir par exemple en figure III.7 que les parois de domaines créés par un champ statique de $H_{\text{ext}} = 30$ Oe sont déplacées sur une distance de l’ordre de quelques micromètres lorsque le champ magnétique extérieur est modulé à une fréquence $f_{\text{mod}} = 1$ Hz avec une amplitude de $\Delta H = 1.6$ Oe.

Après avoir sélectionné une molécule fluorescente sensible à l’effet Stark linéaire et située à proximité d’une paroi de domaine N/S, nous fixons la fréquence du laser sur le flanc de sa raie puis nous observons les variations d’intensité du signal de fluorescence de cette molécule. On voit en figure III.8 que, lorsque le champ magnétique extérieur est modulé, le signal de fluorescence collecté est lui aussi modulé à la fréquence du champ magnétique oscillant. Ce constat devient plus évident lorsque l’on observe la transformée de Fourier de ce signal (figure III.9) qui montre bien une variation du signal observé à une fréquence de 1 Hz correspondant à la fréquence d’oscillation du champ magnétique externe. À la fin de la mesure, nous décalons la fréquence du laser de 1 GHz pour que celui-ci ne soit plus résonnant avec la molécule étudiée. Cela permet d’obtenir la valeur du signal de fond qui nous sera utile pour la détermination du déplacement spectral de la molécule induit par l’effet flexomagnétoélectrique.

Cette molécule possède une largeur de raie de 50 MHz et un coefficient Stark linéaire de

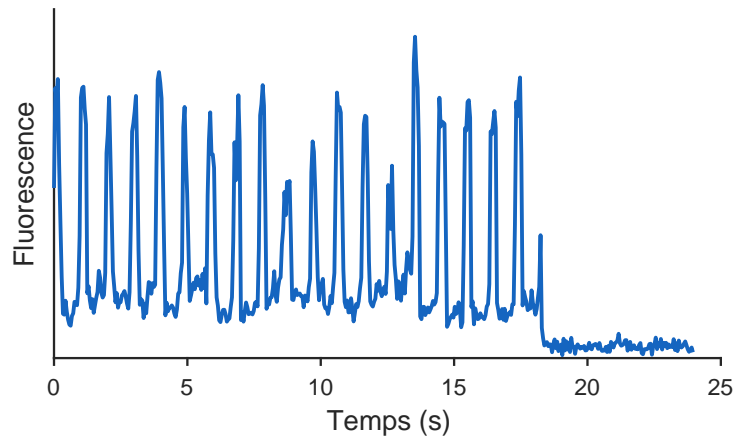


FIGURE III.8 – Trace temporelle du signal de fluorescence observée sur la caméra lorsque le champ magnétique externe est modulé à une fréquence de 1 Hz avec une amplitude de 1.6 Oe. La fin de la courbe correspond à l’instant où la fréquence du laser a été fixée hors résonance. Cela permet de trouver le niveau du signal de fond pour la future détermination du déplacement de la résonance par effet Stark.

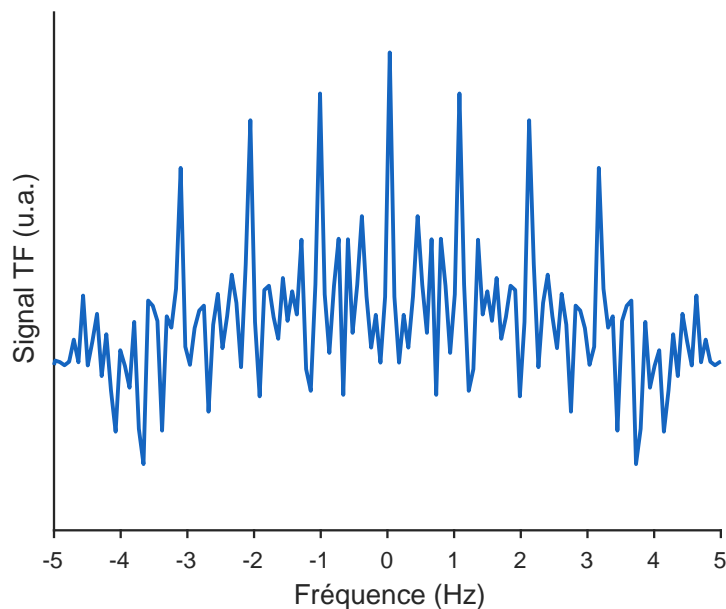


FIGURE III.9 – Transformée de Fourier du signal temporel montré en figure III.8. Les pics apparaissant à des fréquences supérieures à 1 Hz sont caractéristiques de ce genre de modulation.

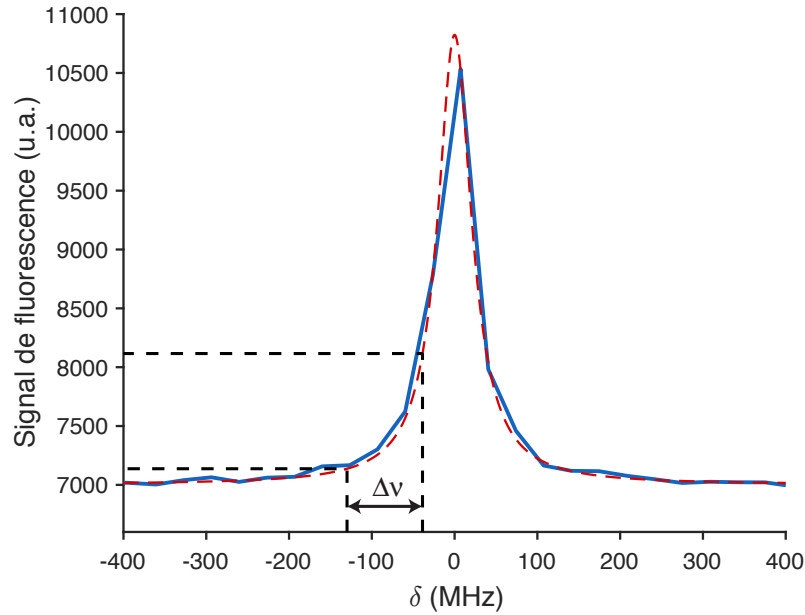


FIGURE III.10 – Profil spectral de la molécule étudiée. Sa largeur de raie est ici de 50 MHz. Le report des valeurs minimale et maximale de la trace temporelle montrée en figure III.8 nous permet de déterminer la valeur du déplacement spectral correspondant qui est ici de 91 MHz.

0.9 MHz/(kV/m). De plus, en reportant les valeurs minimale et maximale des oscillations de la figure III.8 sur la figure III.10, il est possible d'estimer ce déplacement qui est ici de 91 MHz. Cela permet finalement de calculer le champ électrique ayant engendré ce déplacement qui est, pour cette molécule, égal à :

$$E = 100 \text{ kV/m.} \quad (\text{III.3})$$

Cet effet a pu être observé sur plus de 20 molécules situées dans différentes zones de l'échantillon. Cependant, l'étude quantitative n'a été réalisée que sur 8 d'entre elles. L'estimation du champ électrique détecté par ces 8 molécules est résumée dans le tableau III.1.

La large distribution des valeurs de champ électrique mesurées peut être attribuée au fait que l'orientation entre la paroi de domaine N/S et l'aimantation dans le plan du grenat varie d'une molécule étudiée à l'autre. De plus, le champ électrique mesuré est une projection du vecteur champ électrique local sur le dipôle de la molécule dont nous ne connaissons pas l'orientation. Il est donc difficile de réaliser une mesure quantitative précise avec cette méthode.

III.3.2. Preuve du déplacement spectral des molécules

Dans le but de s'assurer que les variations de signal observées en figure III.8 sont bien dues à un déplacement spectral périodique de la fréquence de résonance de la molécule, nous l'avons soumise à une double modulation. Celle-ci consiste à ajouter à la modulation du champ magnétique appliqué une modulation de la fréquence du laser d'excitation, ces deux modulations se faisant à la même fréquence f_{mod} . Si les variations de la fréquence de résonance de la molécule sont liées à la variation de champ électrique créé par effet

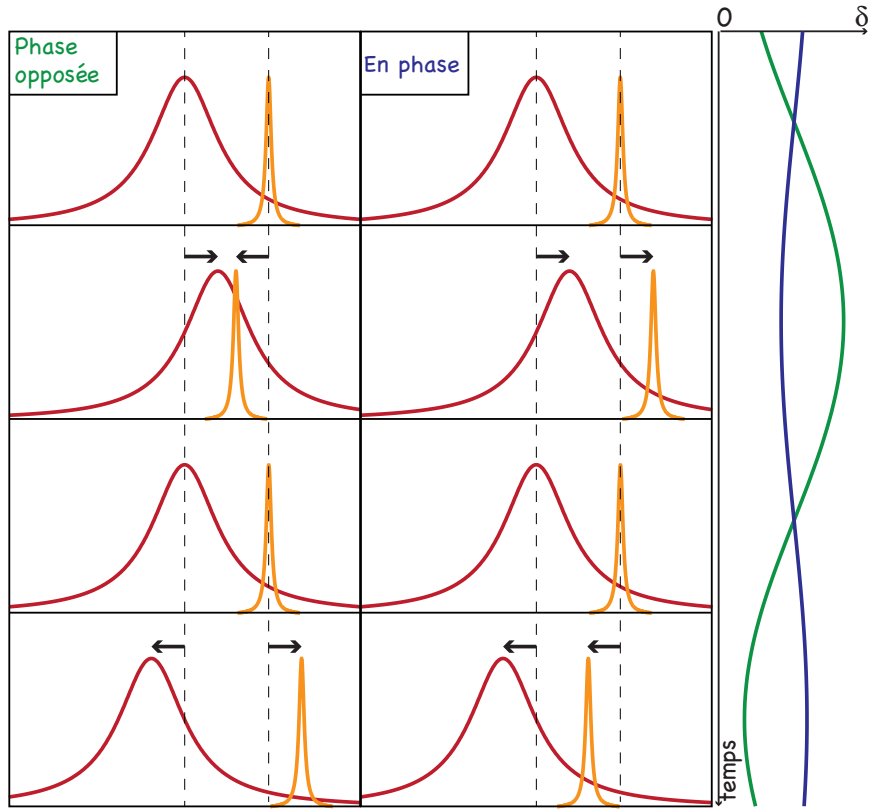


FIGURE III.11 – Schéma illustrant la modulation simultanée de la fréquence de résonance de la molécule (en rouge) et de la fréquence du laser (en orange) à des fréquences identiques, dans le cas où ces deux modulations se font avec une opposition de phase (en vert) ou en phase (en bleu). Dans le cas où les deux modulations sont en opposition de phase, le désaccord varie au cours du temps, entraînant une variation temporelle du signal de fluorescence à une fréquence identique. En revanche, si ces deux modulations se font avec une phase relative nulle, et que les amplitudes de modulations sont bien choisies, alors le désaccord est maintenu constant au cours du temps et le signal de fluorescence ne varie pas.

flexomagnétoélectrique, alors leur amplitude devrait fortement dépendre de la phase relative entre ces deux modulations.

La figure III.11 montre schématiquement comment varie l'amplitude du signal de fluorescence en fonction de la phase relative entre ces deux modulations. On voit que les variations temporelles de ce signal sont directement liées au désaccord $\delta = \omega - \omega_L$ où ω est la fréquence de résonance de la molécule et ω_L est la fréquence du laser d'excitation. L'expression du désaccord est alors donnée par :

$$\delta(t) = \delta_0 + A_L \cos(2\pi f_{\text{mod}}t + \Theta) - A_M \cos(2\pi f_{\text{mod}}t), \quad (\text{III.4})$$

où δ_0 est le désaccord à $t = 0$ en l'absence de modulation, Θ est la phase relative entre les deux modulations, A_L est l'amplitude de la modulation de la fréquence du laser et A_M est l'amplitude de la variation de la fréquence de résonance de la molécule par effet Stark. Ainsi, lorsque $\Theta = \pi$, il s'ensuit une forte modulation du désaccord, d'amplitude $A_L + A_M$, et par conséquent le signal de fluorescence varie avec une amplitude maximale. En revanche,

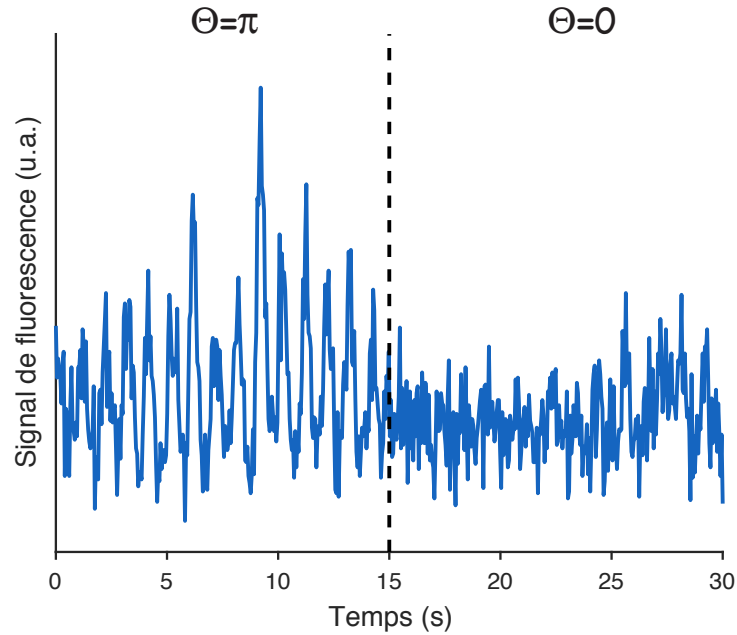


FIGURE III.12 – Trace temporelle du signal de fluorescence d’une molécule unique située à proximité d’une paroi de domaine oscillante dans le cas où une double modulation est appliquée. Entre 0 et 15 secondes, la phase relative entre les deux modulations est égale à π . Elle devient ensuite nulle pendant la seconde moitié de l’expérience.

si cette différence de phase est nulle, la modulation du désaccord est faible (son amplitude est alors égale à $|A_M - A_L|$), conduisant à des variations faibles du signal de fluorescence au cours du temps. La figure III.12 montre la variation du signal de fluorescence au cours du temps pour une molécule soumise à cette double modulation. Lorsque la phase relative passe de π à 0, l’amplitude des variations de signal devient faible, ce qui permet de confirmer l’origine de la variation temporelle du signal de fluorescence. Cette méthode permet aussi de déterminer le déplacement de la fréquence de résonance de la molécule induit par effet Stark. En effet, lorsqu’on a $A_L = A_M$ et que les deux modulations sont en phase, alors le désaccord est constant au cours du temps, conduisant à une variation temporelle du signal de fluorescence nulle. Cette méthode offre aussi un moyen très simple et direct de mesurer l’amplitude de modulation de la fréquence de résonance de la molécule. Pour cela, il suffit de chercher l’amplitude de la modulation de la fréquence du laser d’excitation nécessaire à la minimisation des variations du signal de fluorescence. Pour cette molécule, cela se produit pour $A_L = 80$ MHz. Connaissant son coefficient de déplacement Stark linéaire qui est égal à 1 MHz/(kV/m), on en déduit que l’amplitude de la modulation de champ électrique ressentie par la molécule est de $E = 80$ kV/m.

III.3.3. Comparaison des mesures aux estimations théoriques

Nous avons pu voir dans le chapitre I que le champ magnétique ne pouvait pas pénétrer (même partiellement) dans un supraconducteur de type I. Or ceci n’est vrai que si l’on considère un supraconducteur de forme cylindrique avec un champ magnétique appliqué le long de l’axe du cylindre. Dans ce cas-là, le champ ne pourra pénétrer que lorsque $H_{\text{ext}} > H_c$, brisant ainsi la supraconductivité. Si le supraconducteur est un film mince,

Molécule	Largeur à mi-hauteur (MHz)	Estimation du déplacement de la fréquence de résonance (MHz)	Coefficient Stark MHz/(kV/m)	Estimation du champ électrique sondé kV/m
1 (fig. III.8)	50	91	0.9	100
2 (fig. III.12)	48	80	1	80
3	66	20	0.5	40
4	36	11	2.1	5
5	40	40	0.8	50
6	60	66	0.8	80
7	70	24	0.5	50
8	45	30	1.1	30

TABLE III.1 – Estimations du champ électrique local induit par effet flexomagnétique détecté par 8 molécules différentes.

alors la situation est différente. Suite à l'application d'un champ magnétique modéré, une accumulation des lignes de champ se produit aux bords de l'échantillon. Lorsque l'amplitude de ce champ magnétique augmente, il est possible qu'à certains endroits, il puisse excéder le champ critique. Cela conduit à une pénétration partielle des lignes de champ sous la forme de bandes normales dont l'interaction répulsive fait que l'alternance des zones normales et supraconductrices sont réparties de façon périodique. Si on considère une période w et une taille de domaine normal égale à $d_N = w (H_{\text{ext}}/H_c)$ [102], alors la taille du domaine supraconducteur sera $d_S = w - d_N$. De plus, le champ magnétique piégé dans un domaine normal est égal à H_c , de telle sorte que, pour un supraconducteur de longueur L , le flux piégé par ce domaine sera $\Phi_N = B_c d_N L$.

Nous allons maintenant calculer l'amplitude du champ créé par effet flexomagnéto-électrique lorsque la paroi de domaine magnétique dans le grenat est créée par une inhomogénéité magnétique provenant d'une paroi de domaine N/S dans un supraconducteur de type I. Supposons tout d'abord que les domaines normaux et supraconducteurs sont infiniment longs, alignés selon l'axe x et forment une structure périodique de période w dans la direction de l'axe y (figure III.3). Les courants d'écrantage circulant à la frontière entre les domaines normaux et supraconducteurs induisent un champ magnétique $\vec{H} = H_y(y, z) \vec{e}_y + H_z(y, z) \vec{e}_z$. Pour calculer l'aimantation présente dans le grenat magnéto-optique, il est nécessaire de prendre en compte deux contributions. La première est l'aimantation de saturation du grenat qui est contenue dans le plan faisant un angle θ avec la direction des x . Celle-ci peut s'écrire :

$$\vec{M}_s = M_s (\cos \theta \vec{e}_x + \sin \theta \vec{e}_y). \quad (\text{III.5})$$

La seconde contribution à prendre en compte, plus faible que la première, résulte de l'aimantation induite dans le grenat par le champ magnétique \vec{H} . Son expression est donnée par $\vec{M}_G = \chi_m \vec{H}$, où χ_m est la susceptibilité magnétique du grenat. En considérant l'équation (III.1), l'expression de la polarisation électrique induite dans ce grenat est :

$$\vec{P}(y, z) = \gamma \chi_e \chi_m M_s \sin \theta \frac{\partial}{\partial y} \vec{H}(y, z). \quad (\text{III.6})$$

On remarque alors que cette polarisation dépend de l'angle entre l'aimantation de saturation dans le plan et la paroi de domaine. Pour nos calculs, nous choisirons un angle de $\theta = \pi/2$ pour lequel cette polarisation est maximale. De plus, il est utile d'introduire le potentiel scalaire φ défini à partir du champ magnétique \vec{H} par $\vec{H} = -\vec{\nabla}\varphi$. L'équation de Maxwell-flux, combinée à l'expression de l'induction magnétique $\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M})$ permet ensuite d'obtenir l'expression de l'aimantation induite dans le supraconducteur par les supercourants circulant à proximité des parois de domaines N/S :

$$\vec{\nabla}^2\varphi = \vec{\nabla} \cdot \vec{M}. \quad (\text{III.7})$$

La distribution spatiale de cette aimantation est obtenue en se rappelant que l'induction magnétique est nulle à l'intérieur d'une zone supraconductrice et égale au champ critique du supraconducteur au sein d'une région normale.

Les principales caractéristiques du champ électrique dans le film moléculaire peuvent être obtenues en utilisant un modèle approprié pour la distribution de l'aimantation dans le supraconducteur. Par souci de simplicité, nous considérerons que les parois de domaines N/S dans l'indium sont plates et que les supercourants circulants autour de ces parois créent un champ magnétique \vec{H} n'ayant qu'une composante perpendiculaire au plan du film supraconducteur. Ainsi, cette aimantation peut s'écrire de la façon suivante :

$$M_z = \begin{cases} -H_{\text{ext}} & \text{Dans les régions supraconductrices.} \\ H_c \frac{d_S}{w} & \text{Dans les régions normales.} \end{cases} \quad (\text{III.8})$$

Considérons un supraconducteur d'épaisseur D . Si le plan de coordonnée $y = 0$ est situé au centre d'un domaine supraconducteur, alors l'expansion en séries de Fourier de l'aimantation s'écrit :

$$M_z(z) = -\sum_{n=1}^{\infty} \frac{4H_{\text{ext}}}{q_n d_N} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y) \Pi\left(\frac{z}{D} - 1/2\right), \quad (\text{III.9})$$

où $q_n = 2\pi n/w$ et $\Pi\left(\frac{z}{D} - 1/2\right)$ est une fonction porte de largeur D centrée en $D/2$ représentant ici le fait que le supraconducteur occupe l'espace $-D < z < 0$. La dérivation de cette fonction par rapport à z permet d'obtenir :

$$\frac{\partial M_z}{\partial z} = -\sum_{n=1}^{\infty} \frac{4H_{\text{ext}}}{q_n d_N} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y) [\delta(z+D) - \delta(z)]. \quad (\text{III.10})$$

L'équation (III.7) rappelle l'équation de Poisson permettant de calculer le potentiel électrostatique créé par une densité de charges de surface $\sigma = \vec{\nabla} \cdot \vec{M}$. La solution à ce problème peut donc s'écrire comme la superposition de deux solutions correspondant à deux plans chargés localisés en $z = 0$ et $z = -D$. Pour $z > 0$, on a $\vec{M} = 0$ et l'équation (III.7) devient $\vec{\nabla}^2\varphi = 0$. Si on considère une expansion en séries de Fourier identique à celle de l'aimantation, on peut écrire :

$$\varphi = \sum_{n=1}^{\infty} c_n(z) \cos(q_n y). \quad (\text{III.11})$$

L'expression des coefficients c_n est donnée par :

$$c_n(z) = a_n e^{q_n z} + b_n e^{-q_n z}, \quad (\text{III.12})$$

où $a_n = 0$ car $\varphi = 0$ pour $z \rightarrow \infty$. L'obtention de b_n se fait à l'aide de la condition de continuité en $z = 0$:

$$\left. \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} \right|_{z=0_-} - \left. \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} \right|_{z=0_+} = \sigma. \quad (\text{III.13})$$

L'expression finale du potentiel, après avoir répété la même procédure pour la surface située en $z = -D$, est donc :

$$\varphi = - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2H_{\text{ext}}}{q_n^2 d_N} (1 - e^{-q_n D}) e^{-q_n z} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y). \quad (\text{III.14})$$

La définition $\vec{H} = -\vec{\nabla}\varphi$ permet ensuite d'obtenir l'expression des deux composantes non nulles du champ magnétique :

$$H_y = - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2H_{\text{ext}}}{q_n d_N} (1 - e^{-q_n D}) e^{-q_n z} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \sin(q_n y). \quad (\text{III.15})$$

$$H_z = - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2H_{\text{ext}}}{q_n d_N} (1 - e^{-q_n D}) e^{-q_n z} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y) + H_{\text{ext}}. \quad (\text{III.16})$$

Les composantes de la polarisation dans l'indicateur magnéto-optique sont ensuite calculées d'après l'équation (III.6) :

$$P_y = -\gamma \chi_e \chi_m M_s \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2H_{\text{ext}}}{d_N} (1 - e^{-q_n D}) e^{-q_n z} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y). \quad (\text{III.17})$$

$$P_z = \gamma \chi_e \chi_m M_s \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2H_{\text{ext}}}{d_N} (1 - e^{-q_n D}) e^{-q_n z} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \sin(q_n y). \quad (\text{III.18})$$

Finalement, si l'on prend en compte l'épaisseur finie d_i du grenat, le champ électrique $\vec{E}(y, z)$ dans le film moléculaire occupant l'espace ($0 < z < d$) se calcule avec la formule suivante :

$$\vec{E}(y, z) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_d^{d+d_i} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\frac{3(\vec{P}' \cdot \vec{r}')}{r'^5} \vec{r}' - \frac{\vec{P}'}{r'^3} \right] dx' dy' dz', \quad (\text{III.19})$$

où $\vec{P}' = \vec{P}(y', z')$, et $\vec{r}' = x'\vec{e}_x + (y' - y)\vec{e}_y + (z' - z)\vec{e}_z$ est le vecteur représentant la distance entre le point où le champ électrique est calculé (y, z) et le point du grenat (x', y', z') contribuant à ce champ électrique. Pour des raisons de symétrie, la composante du champ électrique selon l'axe x est nulle. Les autres composantes s'écrivent :

$$E_y(y, z) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_d^{d+d_i} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left[3 \frac{(y' - y)^2 P'_y + (z' - z)(y' - y) P'_z}{r'^5} - \frac{P'_y}{r'^3} \right] dx' dy' dz'. \quad (\text{III.20})$$

$$E_z(y, z) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_d^{d+d_i} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left[3 \frac{(z' - z)(y' - y) P'_y + (z' - z) P'_z}{r'^5} - \frac{P'_z}{r'^3} \right] dx' dy' dz'. \quad (\text{III.21})$$

L'intégration selon x' donne :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx'}{r'^3} = \frac{2}{(y' - y)^2 + (z' - z)^2} \quad \text{et} \quad \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx'}{r'^5} = \frac{4}{3} \frac{1}{[(y' - y)^2 + (z' - z)^2]^2}. \quad (\text{III.22})$$

L'expression du champ électrique devient donc :

$$E_y(y, z) = - \sum_{n=1}^{\infty} K_n \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_d^{d+d_i} dz' e^{-q_n z'} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{[(y' - y)^2 - (z' - z)^2] \cos(q_n y') - 2(z' - z)(y' - y) \sin(q_n y')}{[(y' - y)^2 + (z' - z)^2]^2} dy', \quad (\text{III.23})$$

$$E_z(y, z) = - \sum_{n=1}^{\infty} K_n \int_d^{d+d_i} dz' e^{-q_n z'} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{[(y' - y)^2 - (z' - z)^2] \sin(q_n y') + 2(z' - z)(y' - y) \cos(q_n y')}{[(y' - y)^2 + (z' - z)^2]^2} dy', \quad (\text{III.24})$$

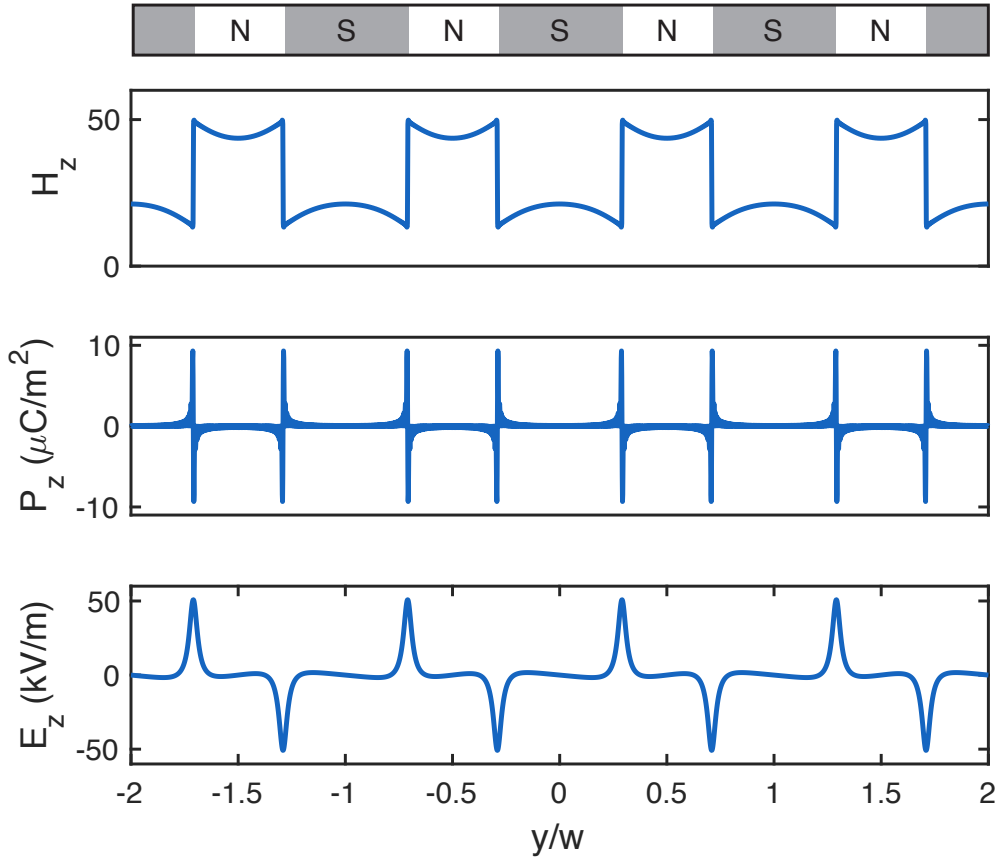


FIGURE III.13 – Profils des composantes selon l'axe z du champ magnétique, de la polarisation et du champ électrique calculés le long de l'axe y . Ces profils sont obtenus en considérant une organisation périodique de période w des domaines N/S au sein du film d'indium et pour $\gamma = 5 \times 10^{-15}$ m.s/A.

où :

$$K_n = \frac{\gamma \chi_e \chi_m M_s H_{\text{ext}}}{\pi \epsilon_0 d_N} (1 - e^{-q_n D}) \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right). \quad (\text{III.25})$$

Les fonctions trigonométriques pouvant être réécrites en termes d'exponentielles complexes, les composantes du champ deviennent :

$$E_y(y, z) = - \sum_{n=1}^{\infty} K_n \int_d^{d+d_i} dz' e^{-q_n z'} \frac{1}{2} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{iq_n y'}}{[y' - (y + \imath z' - \imath z)]^2} dy' + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-iq_n y'}}{[y' - (y - \imath z' + \imath z)]^2} dy' \right\}. \quad (\text{III.26})$$

$$E_y(y, z) = - \sum_{n=1}^{\infty} K_n \int_d^{d+d_i} dz' e^{-q_n z'} \frac{1}{2\imath} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{iq_n y'}}{[y' - (y + \imath z' - \imath z)]^2} dy' + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-iq_n y'}}{[y' - (y - \imath z' + \imath z)]^2} dy' \right\}. \quad (\text{III.27})$$

L'intégration sur y' donne :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{iq_n y'}}{[y' - (y + \imath z' - \imath z)]^2} = -2\pi q_n e^{\imath q_n (y + \imath z' - \imath z)}. \quad (\text{III.28})$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-iq_n y'}}{[y' - (y - \imath z' + \imath z)]^2} = -2\pi q_n e^{-\imath q_n (y - \imath z' + \imath z)}. \quad (\text{III.29})$$

Finalement, en intégrant sur z' et en utilisant $d_N = w (H_{\text{ext}}/H_c)$, nous obtenons :

$$E_y(y, z) = \frac{\gamma \chi_e \chi_m M_s H_c}{\varepsilon_0 w} \sum_{n=1}^{\infty} (1 - e^{-q_n D}) (1 - e^{-2q_n d_i}) e^{-q_n (2d-z)} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \cos(q_n y). \quad (\text{III.30})$$

$$E_z(y, z) = \frac{\gamma \chi_e \chi_m M_s H_c}{\varepsilon_0 w} \sum_{n=1}^{\infty} (1 - e^{-q_n D}) (1 - e^{-2q_n d_i}) e^{-q_n (2d-z)} \sin\left(\frac{q_n d_S}{2}\right) \sin(q_n y). \quad (\text{III.31})$$

Les composantes verticales des champs magnétique et électrique calculées dans le film moléculaire le long de l'axe y sont présentées en figure III.13. Il est utile de noter que l'approximation de parois de domaines plates que nous utilisons n'est exacte que pour $d \gg w$. Dans notre cas ($d \ll w$), le calcul précis du champ magnétique à l'extérieur du supraconducteur ne peut être réalisé qu'en prenant en compte la structure réelle des parois de domaines. Cependant, ces parois étant en réalité courbes avec une courbure locale L_y de l'ordre de $\min\{d_N, D\}$, cela n'affecte pas les harmoniques de Fourier du champ électrique pour lesquelles on a $q_n < 1/L_y$. En ce qui concerne les harmoniques avec $q_n > 1/L_y$, leur calcul requiert une connaissance précise de la structure des domaines. Ici, leur contribution est négligeable en raison du facteur $e^{-q_n (2d-z)}$ présent dans l'expression du champ électrique. C'est pourquoi nous n'avons pas besoin de modéliser avec précision la structure des domaines N/S dans le supraconducteur pour notre modèle simple.

Afin de calculer ce champ électrique, nous avons utilisé les valeurs $w = 8.6 \mu\text{m}$, $d_S = 5 \mu\text{m}$, $D = 1.6 \mu\text{m}$, $d_i = 2.5 \mu\text{m}$, $M_s = 4 \text{ kA/m}$, $\chi_e = 4$ [99], $\chi_m = 1.38$ correspondant à nos conditions expérimentales. Le champ magnétique critique est estimé en supposant une dépendance en température de type BCS telle que $H_c(T) = H_c(0) [1 - (T/T_c)^2]$. Ainsi, connaissant $H_c(T = 0 \text{ K}) = 28.2 \text{ mT}$, nous pouvons en déduire $H_c(T = 2.6 \text{ K}) = 11.2 \text{ mT}$. Finalement, pour obtenir une valeur de champ électrique correspondant à nos observations expérimentales, la constante de couplage magnétoélectrique doit être de l'ordre de $\gamma = 10^{-15} \text{ m.s/A}$. Or une étude antérieure consistant à déplacer des parois de domaines dans

un grenat du même type a montré que si l'on interprétait ce déplacement comme provenant de l'effet flexomagnétoélectrique, alors cette constante était de l'ordre de $\gamma = 10^{-17}$ m.s/A [103]. Cependant, les observations présentées dans cet article ne peuvent pas être attribuées avec certitude à cet effet. Un champ électrique non uniforme aura pour effet d'entraîner une variation locale de l'anisotropie magnétique du matériau, pouvant expliquer ce déplacement. Il est donc difficile de comparer notre estimation de γ avec la leur.

III.4. Conclusion

Nous avons pu mesurer le champ électrique généré par l'effet flexomagnétoélectrique dans un film de Bi :LuIG par spectroscopie de molécules uniques [104]. Pour cela, nous avons utilisé le champ magnétique non uniforme créé par une paroi de domaine N/S dans un film d'indium supraconducteur. Cet effet a pu être observé sur plusieurs molécules différentes situées dans plusieurs zones de l'échantillon. Les disparités des mesures de champ électrique s'expliquent par le fait que le couplage entre le champ magnétique créé par le supraconducteur et l'aimantation du grenat dépend fortement de l'angle θ que fait la direction de l'aimantation avec les parois de domaines N/S de l'indium. De plus, les molécules ont elles-même des orientations différentes au sein de l'échantillon. Cela affecte le couplage de leur dipôle avec le champ électrique créé par effet flexomagnétoélectrique. Une estimation plus précise du champ électrique nécessiterait de connaître l'orientation de la molécule dans l'espace ainsi que son coefficient Stark selon la direction du champ électrique. Les calculs théoriques effectués en modélisant le champ magnétique au sein du supraconducteur comme une structure périodique permettent de confirmer les ordres de grandeur de champs électriques obtenus expérimentalement. Cette observation ouvre la voie vers l'utilisation des molécules uniques comme sondes de champs électriques locaux et plus particulièrement pour sonder le déplacement nanomécanique d'oscillateurs chargés [80] ou pour la détection du champ électrique d'un vortex d'Abrikosov [63]. Nous avons vu que pour augmenter la sensibilité de notre mesure lors de ces expériences, nous avons choisi de moduler la position des parois de domaines N/S dans le temps. Nous avons estimé que le champ électrique d'un vortex d'Abrikosov se situait à la limite de sensibilité de la méthode de la spectroscopie de molécules uniques. Afin d'observer ce champ électrique, il nous faut donc trouver une méthode permettant de moduler la position d'un vortex situé à proximité d'une molécule fluorescente. Le chapitre suivant est précisément consacré à une nouvelle méthode de déplacement et manipulation de vortex individuels.

Chapitre IV

Manipulation optique de vortex d'Abrikosov

Dans les supraconducteurs de type II, le champ magnétique peut pénétrer sous la forme de vortex d'Abrikosov (voir chapitre I). Ces vortex jouent un rôle important en ce qui concerne les applications des supraconducteurs au transport de courant et à l'électronique supraconductrice. En effet, le courant maximal que peut supporter un supraconducteur sans apparition de tension (le courant critique) est aujourd'hui principalement limité par le déplacement des vortex qui se produit lorsque la force de Lorentz exercée par le courant appliqué devient supérieure à la force de piégeage de ces derniers. Dans le but d'étendre les courants critiques des supraconducteurs de type II, il devient important d'étudier ces forces de piégeage, idéalement à l'échelle du vortex unique pour mieux appréhender la diversité des phénomènes physiques à leur origine. Il est depuis longtemps possible de contrôler des ensembles de vortex à l'aide de courants électriques [105], de gradients de température [106] ou encore de champs magnétiques [107]. Les méthodes permettant de contrôler un à un la distribution de vortex reposent quant à elles sur l'utilisation de microscopes à force atomique [53, 54], de SQUIDs [51, 52, 108] ou encore sur l'application de contraintes mécaniques locales [55]. Cependant, ces méthodes sont intrinsèquement lentes, limitées à de petites surfaces de l'échantillon et complexes du point de vue de leur implémentation dans un environnement cryogénique. Il n'existe donc pas, à ce jour, de méthode combinant rapidité, précision et grande zone d'exploration.

Nous proposons ici une nouvelle méthode optique rapide, précise et pouvant être appliquée à de larges zones de l'ordre du mm. Cette méthode est basée sur l'utilisation d'un faisceau laser focalisé à la limite de diffraction pour chauffer localement le supraconducteur, de façon similaire aux pinces optiques permettant de piéger et de contrôler des objets biologiques ou des particules microscopiques.

IV.1. Vortex dans un gradient thermique

Le fait que la distribution de vortex puisse être affectée par un gradient thermique est connu depuis plus de 50 ans [109, 110]. Les interprétations de ces résultats sont basées sur le fait qu'un vortex, que l'on représentera ici comme un cœur normal autour duquel circulent des supercourants, transporte une entropie non nulle et obéit aux lois de diffusion thermique en se déplaçant vers les zones les plus froides du supraconducteur.

IV.1.1. Transport d'entropie

Il a été suggéré dans le cadre de travaux théoriques en lien avec le transport d'entropie dans les supraconducteurs [111], que les supercourants, pouvant être considérés comme des superfluides, ne peuvent pas transporter d'entropie. Or, dans le cas où le rapport $\kappa = \lambda_L/\xi$

est très supérieur à 1, il est possible de négliger la contribution du cœur dans le calcul de l'énergie d'un vortex et seuls les supercourants circulant autour du vortex ont une contribution non nulle au calcul de l'énergie [102]. Ainsi, la force ressentie par un vortex isolé est placée dans un gradient thermique est attractive : le vortex se déplace vers les zones les plus chaudes afin de minimiser son énergie.

Les expériences pionnières montrant qu'un gradient thermique repousse les vortex vers les zones les plus froides s'expliquent par le fait que la densité de vortex est importante et la distance inter-vortex est de l'ordre de la longueur de pénétration de London. Ainsi, aux endroits les plus chauds, λ_L est plus grand et la répulsion entre les vortex est plus importante, résultant en un déplacement des vortex vers les zones froides de l'échantillon dans lesquelles les interactions sont moins importantes. Ici, les vortex sont donc déplacés par le biais de leurs interactions mutuelles et non pas directement par une force thermique. De plus, le nombre de vortex varie constamment : lorsque ceux-ci arrivent à l'extrémité la plus froide, ils sont poussés à l'extérieur de l'échantillon pendant que d'autres rentrent dans l'échantillon du côté le plus chaud. De ce fait, les équations thermodynamiques ne sont plus les mêmes que dans notre cas où le flux est conservé. Nous pouvons donc utiliser l'interprétation de Sergeev dans nos expériences et utiliser *a priori* une force attractive d'origine thermique à condition de travailler avec une faible densité de vortex¹.

IV.1.2. Concept de force thermique attractive

Nous allons maintenant calculer la force attractive agissant sur un vortex isolé lorsque celui-ci est soumis à un gradient thermique $\vec{\nabla}T$. Nous nous placerons ici dans le cas où la longueur de pénétration de London λ_L est très supérieure à la longueur de cohérence ξ de ce vortex. Cela permet de négliger la contribution du cœur à l'énergie libre par unité de longueur d'un vortex qui s'écrit alors :

$$\varepsilon_l [T(r)] = \frac{\Phi_0^2}{4\pi\mu_0 (\lambda_L [T(r)])^2} \ln \kappa, \quad (\text{IV.1})$$

où $\lambda_L [T(r)] = \lambda_{L,0}/\sqrt{1 - T(r)/T_c}$. Étant donné que la température n'est pas uniforme, la longueur de pénétration de London λ_L devient elle aussi dépendante de la position. Il en résulte une dépendance de l'énergie libre par unité de longueur du vortex avec la position. Comme l'équation (IV.1) n'est valable que pour une température uniforme, il faut la réexprimer en tenant compte de la redistribution des supercourants qui survient lorsque le vortex est placé dans un gradient thermique. Cependant, nous montrerons par la suite que si le profil de température $T(\vec{r})$ est tel que $\lambda_L |\vec{\nabla}T| \ll T$, alors cette redistribution des supercourants peut être considérée comme négligeable lorsque $\kappa \gg 1$. L'expression de la force d'origine thermique est alors donnée par :

$$\vec{F} = -\vec{\nabla}\varepsilon_l = \frac{\vec{\nabla}T}{T_c} \frac{\Phi_0^2}{4\pi\mu_0\lambda_{L,0}^2} \ln \kappa. \quad (\text{IV.2})$$

On déduit de cette équation que le vortex est déplacé vers les régions les plus chaudes de l'échantillon. Dans le but de justifier le fait que l'on puisse négliger la redistribution

1. Cela signifie ici que la distance entre deux vortex doit être grande comparée à la longueur de pénétration de London. Cela sera toujours vérifié car pour l'échantillon étudié, où $\lambda_L \approx 100$ nm, la résolution de notre système d'imagerie est de l'ordre du micron. Ainsi, si la distance inter-vortex est inférieure à notre résolution, il nous sera impossible de résoudre les vortex individuels.

des supercourants, nous allons recalculer l'équation (IV.1) dans le cadre de la théorie de Ginzburg-Landau. Nous considérons un problème à une dimension dans lequel le gradient de température est dirigé selon l'axe x . La longueur de pénétration de London peut donc s'écrire à l'ordre 1 comme :

$$\lambda_L^2 = (\lambda_L [T_0])^2 [1 + \alpha x], \quad (\text{IV.3})$$

avec $\alpha = \vec{\nabla}T/[T_c - T_0]$ et T_0 la température au centre du vortex. Le champ magnétique $\vec{B} = B\vec{e}_z$ créé par les supercourants du vortex obéit à l'équation de London :

$$\vec{\nabla} \wedge (\lambda_L^2 \vec{\nabla} \wedge \vec{H}) + \vec{H} = \frac{\Phi_0}{\mu_0} \delta(\vec{r} - \vec{r}_v) \vec{e}_z, \quad (\text{IV.4})$$

où \vec{r} est le vecteur position dans le plan xy et $\vec{r}_v = x_v \vec{e}_x$ est la position du centre du vortex.

Si on considère une variation de température lente telle que $\alpha \lambda_L \ll 1$, alors la solution de l'équation (IV.4) peut se mettre sous la forme $H = H_0 + H_1$ avec $H_1 \propto \alpha \lambda_L$. À l'ordre zéro, on retrouve l'équation (I.60) :

$$H_0(\vec{r} - \vec{r}_v) = \frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\lambda_{L,0}^2} K_0 \left[\frac{|\vec{r} - \vec{r}_v|}{\lambda_{L,0}} \right], \quad (\text{IV.5})$$

où K_0 est une fonction de Bessel modifiée de deuxième espèce d'ordre 0. À l'ordre 1, on peut écrire :

$$-\vec{\nabla}^2 H_1 + \frac{1}{\lambda_{L,0}^2} H_1 = \alpha \left(\frac{\partial H_0}{\partial x} + x_v \vec{\nabla}^2 H_0 \right), \quad (\text{IV.6})$$

dont la solution est donnée par :

$$H_1(\vec{r}) = \frac{\alpha \lambda_{L,0}^2}{\Phi_0} \int H_0(\vec{r} - \vec{R}) \left(\frac{\partial}{\partial R_x} + x_v \vec{\nabla}_R^2 \right) H_0(\vec{R} - \vec{r}_v) d^2 \vec{R}. \quad (\text{IV.7})$$

Ces solutions obtenues à l'ordre 0 et à l'ordre 1 permettent ensuite de calculer l'énergie par unité de longueur d'un vortex isolé :

$$\varepsilon_l(x_v) = \frac{1}{2} \int \left[H^2 + \lambda_L^2 (\vec{\nabla} \wedge \vec{H})^2 \right] d^2 \vec{r} \quad (\text{IV.8})$$

$$= \varepsilon_{l,0} + \frac{\lambda_{L,0}^2}{2} \int \left[\frac{2}{\lambda_{L,0}^2} H_0 H_1 + 2 (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0) \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_1) + \alpha x (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0)^2 \right] d^2 \vec{r}, \quad (\text{IV.9})$$

où $\varepsilon_{l,0}$ est une constante décrivant l'énergie d'un vortex lorsque la température est uniforme. En utilisant $(\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0) \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_1) = \vec{\nabla} \cdot [\vec{H}_0 \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_1)] - \vec{H}_0 \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_1)$ et en prenant en compte l'équation (IV.6), on obtient :

$$\varepsilon_l(x_v) = \varepsilon_{l,0} + \frac{\alpha \lambda_{L,0}^2}{2} \int \left[\frac{\partial H_0^2}{\partial x} + 2(x - x_v) (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0)^2 \right] d^2 \vec{r}. \quad (\text{IV.10})$$

En remarquant que $(\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0)^2$ est une fonction paire de $x - x_v$, contrairement à $\partial_x (H_0^2)$, on trouve :

$$\varepsilon_l(x_v) = \varepsilon_{l,0} - \frac{\alpha x_v \lambda_L(0)^2}{2} \int (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0)^2 d^2 \vec{r}. \quad (\text{IV.11})$$

Étant donné que cette intégrale ne dépend pas de x_v , la force par unité de longueur dérivant de cette énergie s'écrit :

$$F_x = \frac{\alpha \lambda_{L,0}^2}{2} \int (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_0)^2 d^2 \vec{r} = \frac{\alpha}{2} \left[\Phi_0 H_0(0) - \int H_0^2 d^2 \vec{r} \right], \quad (\text{IV.12})$$

avec $H_0(0) = \left[\Phi_0 / (2\pi\mu_0\lambda_{L,0}^2) \right] \ln(\kappa)$ le champ au centre du vortex calculé à l'ordre 0.

On remarque alors que le premier terme de l'équation (IV.12) correspond à la force thermique de l'équation (IV.2). Le second terme est une correction apportée à cette force lorsque l'on prend en compte la redistribution de supercourants en présence d'un gradient thermique. Afin de calculer cette correction nous posons $\rho = |\vec{r} - \vec{r}_v| / \lambda_{L,0}$:

$$\int H_0^2 d^2 \vec{r} = \frac{\Phi_0^2}{2\pi\mu_0\lambda_{L,0}^2} \int_{\kappa^{-1}}^{\infty} \rho K_0^2(\rho) d\rho = -\frac{\Phi_0^2}{4\pi\mu_0\lambda_{L,0}^2\kappa^2} \left[K_0^2(\kappa^{-1}) + K_1^2(\kappa^{-1}) \right]. \quad (\text{IV.13})$$

Pour $\lambda_L \gg \xi$, nous avons $K_0^2(\kappa^{-1}) \propto \ln(\kappa)^2$ et $K_1^2(\kappa^{-1}) \propto \kappa^2$. Il apparaît donc que cette correction est très faible comparée à l'expression de la force thermique (IV.2) lorsque κ est grand devant 1.

IV.2. Manipulation de vortex uniques

Dans cette partie, nous allons détailler le montage expérimental permettant de mettre cette force thermique en œuvre puis nous présenterons les résultats obtenus sur le déplacement de vortex uniques.

IV.2.1. Principe de l'expérience

La méthode que nous allons utiliser est résumée en figure IV.1. Elle consiste à focaliser à la limite de diffraction un faisceau laser dans le but d'induire un gradient thermique au sein du supraconducteur. Le laser focalisé chauffe la surface du supraconducteur et crée une élévation de température de l'ordre de 1 K répartie sur une zone ayant un diamètre de l'ordre du micron. Ce gradient thermique peut ainsi être modifié facilement en changeant la puissance laser absorbée par le supraconducteur pour faire en sorte que la force thermique ainsi créée soit supérieure à la force de piégeage du vortex et le fasse se déplacer en direction du centre de la tache laser. On peut ainsi considérer ce faisceau laser comme une pince optique agissant sur des vortex d'Abrikosov pour les déplacer à volonté. Cette technique de déplacement reposant sur une méthode optique en champ lointain, il est possible de déplacer les vortex sur des distances limitées seulement par le champ de l'objectif utilisé (quelques centaines de microns).

L'échantillon utilisé est composé de deux éléments : un film de Niobium de 90 nm d'épaisseur et un indicateur magnéto-optique de 2.5 μm d'épaisseur. Afin de maximiser le contraste magnéto-optique, la distance z_g entre l'indicateur et le supraconducteur est minimisée à l'aide d'un système de presse identique à celui utilisé pour les expériences décrites dans le chapitre précédent. Ainsi, en observant les anneaux de Newton [50], nous sommes capables d'ajuster z_g pour atteindre des distances de l'ordre de 100 nm. Pour refroidir le niobium en dessous de sa température critique de $T_c = 8.6$ K, l'échantillon est placé dans

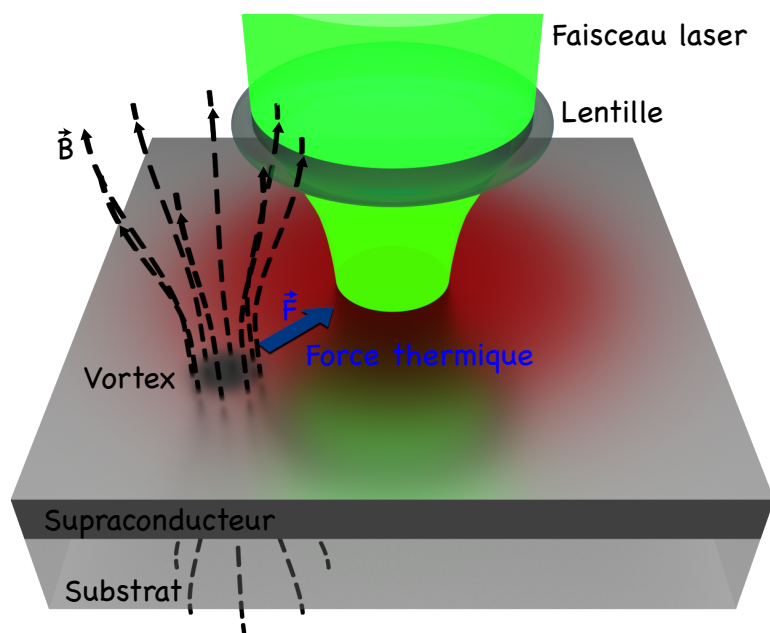


FIGURE IV.1 – Principe de la méthode consistant à déplacer des vortex d’Abrikosov individuels à l’aide d’un gradient thermique créé par un faisceau laser focalisé sur le supraconducteur.

un cryostat à circuit fermé décrit au chapitre III. La densité de vortex est ensuite contrôlée par une bobine pouvant délivrer un champ magnétique de 20 Oe.

Le système d’imagerie magnéto-optique est lui aussi identique à celui décrit dans le chapitre II. Cependant, nous n’utilisons pas ici le même objectif en raison de sa forte dépolarisation à basse température. En effet, le signal magnéto-optique d’un vortex d’Abrikosov est plus faible que celui d’un domaine normal dans un supraconducteur de type I. Il faut donc apporter un plus grand soin au choix des éléments optiques utilisés, et plus particulièrement à ceux qui seront soumis aux basses températures. Afin de minimiser au maximum cette dépolarisation, nous utilisons une lentille asphérique de focale $f = 10$ mm et d’ouverture numérique $N.A. = 0.5$. De plus, nous avons construit le microscope de telle sorte que les contraintes mécaniques appliquées sur cette lentille à basse température soient les plus faibles possibles. Dans ce but, la lentille n’est pas montée dans une monture métallique mais elle est posée sur un support en téflon dont le diamètre interne est plus grand que celui de la lentille. N’étant pas fixée, nous la maintenons en place à l’aide d’un système de ressorts. De cette manière, les seules contraintes ressenties par la lentille à basse température sont celles provenant de sa propre contraction : la contraction du support n’a aucun effet. Ainsi, le coefficient d’extinction n’est que faiblement dégradé : celui-ci étant de 6×10^{-4} à température ambiante, il passe à 10^{-3} à basse température. Ces paramètres permettent d’atteindre des cadences d’imagerie de l’ordre d’une image par seconde avec un contraste de 0.9.

La longueur d’onde du laser utilisé n’a pas de réelle importance. En effet, le but ici est de créer une élévation de température localisée sur une zone de quelques μm^2 . Pour cela, l’absorption du niobium à la longueur d’onde utilisée doit être suffisamment importante. Or

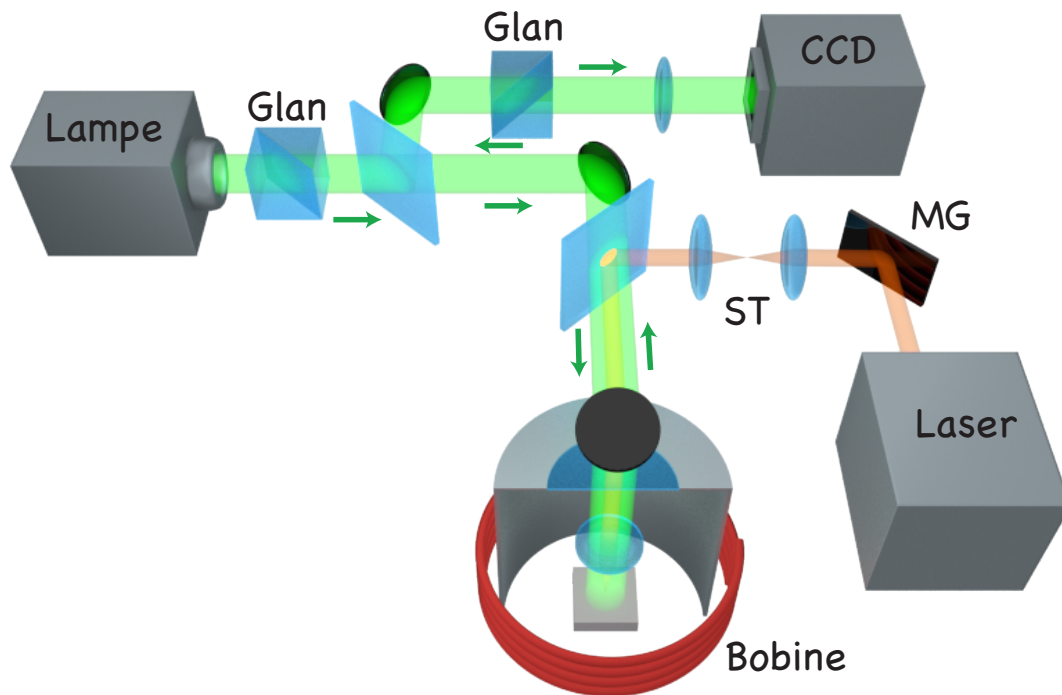


FIGURE IV.2 – Schéma du montage expérimental permettant le déplacement et la manipulation de vortex d'Abrikosov individuels. Les vortex sont détectés à l'aide d'un système d'imagerie magnéto-optique qui fait l'image sur une caméra de l'échantillon placé dans un cryostat entre deux prismes de Glan croisés. Le faisceau laser permettant de déplacer les vortex est ensuite balayé sur la surface à l'aide de miroirs galvanométriques (MG) conjugués au plan focal arrière de la lentille asphérique via un système télécentrique (ST).

celle-ci est de l'ordre de 40% pour les longueurs d'ondes visibles [112], ce qui est suffisant. La principale contrainte concernant le choix du laser de chauffage provient de la lentille utilisée pour l'imagerie magnéto-optique. La lentille asphérique (étant une lentille simple) n'est pas corrigée des aberrations chromatiques. Par conséquent, plus la longueur d'onde utilisée pour déplacer les vortex est éloignée de la longueur d'onde utilisée pour l'imagerie ($\lambda = 532 \text{ nm}$), plus il sera difficile de focaliser le laser dans le plan conjugué avec le capteur de la caméra. Nous utilisons donc principalement deux lasers : une diode laser de longueur d'onde 532 nm et le laser à colorant à une longueur d'onde de 580 nm. L'utilisation de la diode laser permet de s'affranchir du problème de chromatisme de la lentille asphérique tandis que le laser à colorant permet de sélectionner une longueur d'onde qui puisse être éliminée à l'aide d'un filtre adéquat placé devant la caméra, afin d'éviter la saturation de la caméra lorsqu'on observe les vortex.

Afin de balayer le focus laser à la surface du supraconducteur tout en maintenant une intensité constante quelle que soit la position du laser sur l'image, nous conjuguons les miroirs galvanométriques au plan focal arrière de la lentille asphérique via un système télécentrique.

La figure IV.3.a) montre une distribution spontanée de vortex formée après refroidissement à 4.6 K du supraconducteur sous un champ magnétique extérieur de $H_{\text{ext}} = 0.024 \text{ Oe}$. Vortex après vortex, le laser les déplace puis les repositionne pour créer une distribution finale artificielle formant les lettres "A V" pour *Abrikosov Vortices* (figure IV.3.b)). Ce

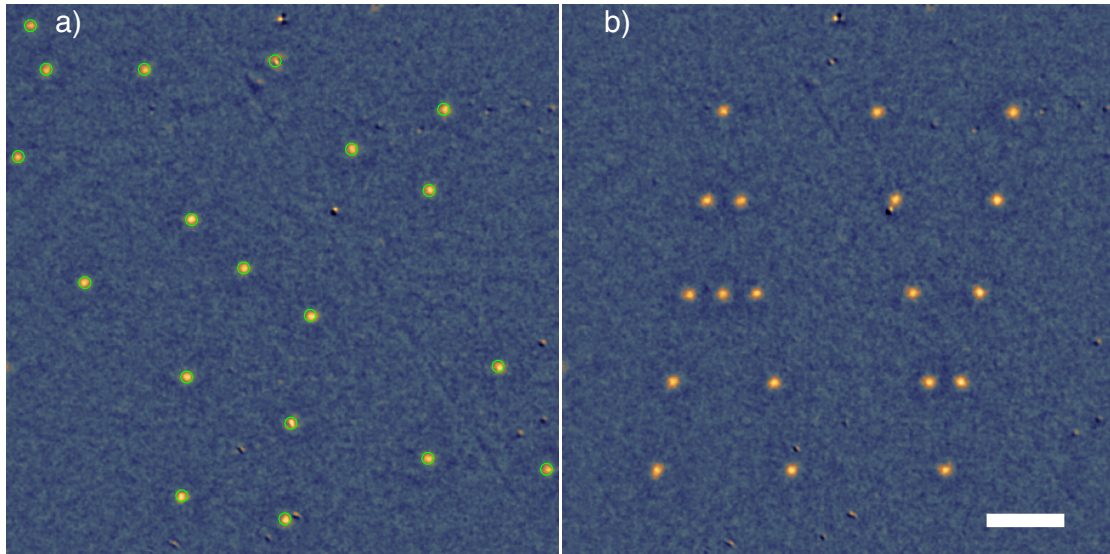


FIGURE IV.3 – Repositionnement de vortex uniques. a) Distribution de vortex initiale créée avec un champ magnétique appliqué de $H_{\text{ext}} = 0.024$ Oe et une température de $T = 4.6$ K. Les cercles verts représentent les positions des vortex détectées grâce à notre programme. b) Distribution de vortex après réarrangement par le faisceau laser. Le laser est focalisé sur le supraconducteur avec une largeur à mi-hauteur de $r_0 = 1.1 \mu\text{m}$ et une puissance absorbée par le niobium de $17 \mu\text{W}$. La barre d'échelle représente $20 \mu\text{m}$.

déplacement est réalisé de façon automatique à l'aide d'un programme informatique qui a pour but de définir la trajectoire du faisceau laser de façon à éviter une rencontre éventuelle avec un autre vortex durant son trajet. Cela aurait pour effet de créer des agrégats de vortex.

Son fonctionnement est basé sur l'utilisation d'un algorithme permettant de localiser et de déplacer les vortex uniques vers des positions prédéfinies. Les images sont tout d'abord filtrées à l'aide d'un filtre passe-bande pour réduire à la fois l'impact du bruit de détection haute fréquence et les variations basse fréquence du signal de fond. Les positions du centre de chaque vortex présent dans l'image sont déterminées par identification des maxima locaux puis par un calcul du centroïde de la répartition de l'intensité lumineuse autour de ces maxima. Les trajectoires permettant de repositionner tous les vortex de leurs positions initiales vers leurs nouvelles positions sont générées de manière automatique. Pour chaque trajectoire, l'image est divisée en cellules de Voronoï en utilisant comme points sources les positions des vortex ainsi que la nouvelle position du vortex à déplacer. Par construction, chaque cellule contient un seul vortex et les polygones de Voronoï ne se superposent pas aux vortex. Chaque segment de Voronoï se voit ensuite attribuer un poids qui est fonction de l'inverse de la distance entre ce segment et le vortex (point source) le plus proche. La trajectoire du vortex devant être déplacé est ensuite construite en connectant trois chemins (figure IV.4) :

- (i) le chemin le plus court allant de la position initiale du vortex vers le nœud le plus proche de la cellule de Voronoï contenant ce vortex ;
- (ii) la trajectoire composée de segments de Voronoï permettant d'atteindre le nœud le plus proche du point de destination et qui minimise la somme des poids associée à

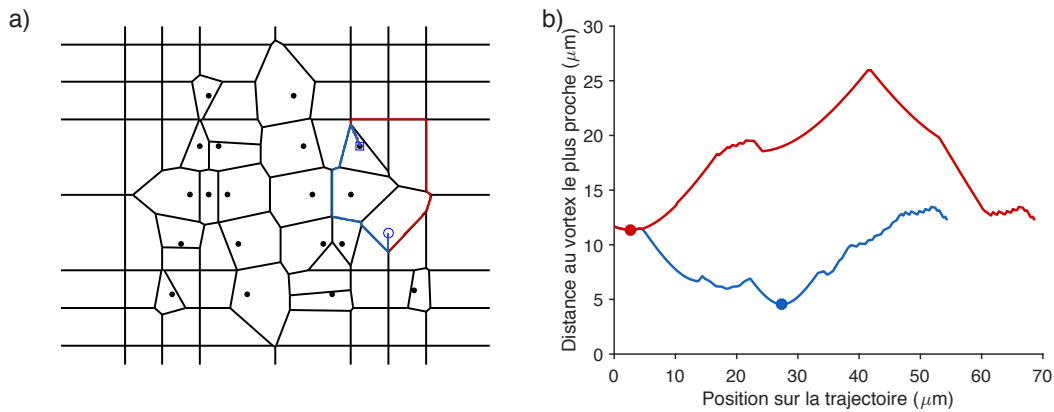


FIGURE IV.4 – Calcul de la meilleure trajectoire par notre algorithme. a) Chaque vortex (point noir) est le point source d’une cellule de Voronoï (traits noirs). L’algorithme calcule ensuite la meilleure trajectoire (au sens du poids) qui est représentée en rouge. La trajectoire bleue est la trajectoire la plus directe. b) Cette figure représente, pour chaque point de chacune des deux trajectoires montrées en a), la distance au vortex le plus proche.

chaque segment ;

- (iii) le chemin le plus court permettant d’aller du dernier noeud de la trajectoire précédente vers la position finale du vortex.

Ce processus est ensuite répété pour chaque vortex en actualisant les points sources pour chaque itération jusqu’à ce que toutes les trajectoires aient été calculées. Les résultats des calculs sont ensuite interprétés par un programme qui synchronise les miroirs galvanométriques permettant de déplacer le laser à la surface du supraconducteur et un shutter utilisé pour éteindre le laser lorsque celui-ci se repositionne entre deux trajectoires consécutives.

Les vortex étant des sources de bruit dans les appareils supraconducteurs, leur présence limite le fonctionnement et la précision de ces appareils. En effet, lorsqu’on refroidit un SQUID sous un champ magnétique externe, il est d’usage d’observer une augmentation du bruit aux basses fréquences, provenant du déplacement des vortex dans le SQUID. Des méthodes comme l’effet cliquet peuvent être utilisées pour réduire la densité de vortex d’un échantillon en appliquant un courant oscillant [113]. Il est aussi possible d’ajouter des impuretés volontairement dans le supraconducteur [40] afin d’augmenter les forces de piégeage et de réduire le déplacement des vortex à proximité d’un SQUID, réduisant ainsi le bruit [114, 115]. Notre méthode a l’avantage de ne pas nécessiter de structuration du matériau ou d’incorporation de défauts lors de la création de l’échantillon. La figure IV.5 montre qu’il est en effet possible de débarrasser une zone de tous ses vortex. Cela se fait simplement en balayant la position du laser sur cette zone. Ce dernier “ramasse” alors tous les vortex qu’il rencontre et les dépose à l’endroit marqué d’une croix sur la figure IV.5.b). Du fait de leur répulsion mutuelle, les vortex ne peuvent pas tous s’accumuler à la position finale du laser et l’amas de vortex ainsi créé dans le coin inférieur gauche de l’image prend une forme allongée, faisant penser à une comète avec une densité de vortex maximale située à la position finale du faisceau laser.

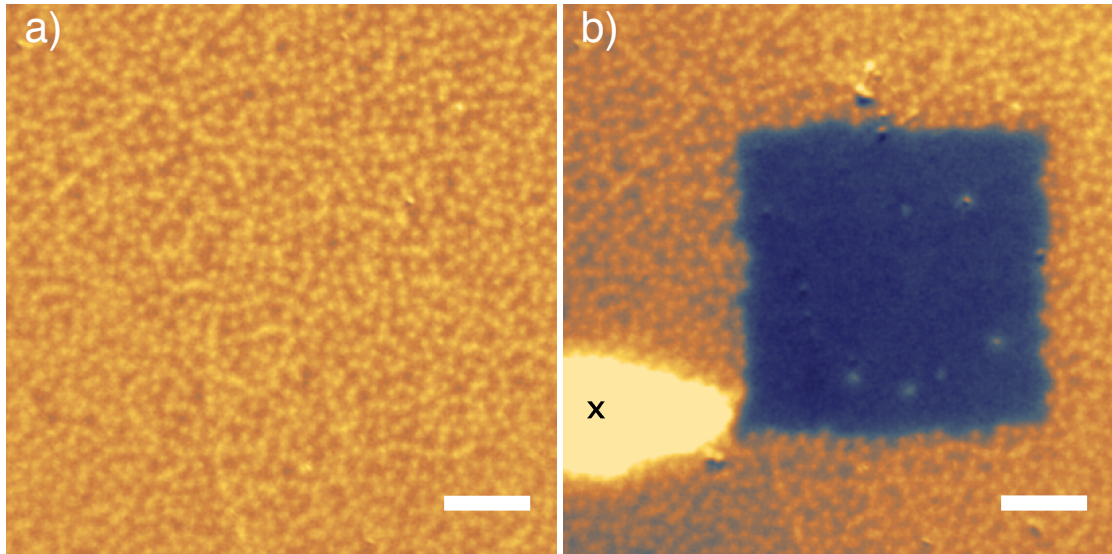


FIGURE IV.5 – Effacement de vortex d’une zone supraconductrice. a) Distribution initiale de vortex obtenue en refroidissant l’échantillon sous un champ magnétique de $H_{\text{ext}} = 1.64$ Oe à une température de $T = 4.6$ K. b) Création d’une zone sans vortex par balayage du faisceau laser au centre de l’image. La position finale du faisceau laser est marquée avec une croix noire. Les barres d’échelle représentent $20 \mu\text{m}$.

En ce qui concerne le temps d’exécution de la séquence, nous avons pu “nettoyer” la zone de $70 \times 70 \mu\text{m}^2$ montrée en figure IV.5 en 350 ms. Ce temps d’exécution correspond à des vitesses de déplacement vortex de l’ordre de 7 mm/s. Celui-ci est pour l’instant limité par le temps de réponse des miroirs galvanométriques que nous utilisons. Le temps d’exécution pourrait être amélioré en focalisant le laser avec une lentille cylindrique. De cette façon, un seul balayage vertical serait nécessaire, diminuant le temps de nettoyage de la zone à quelques dizaines de millisecondes. De plus, il serait possible de descendre en dessous de la milliseconde en utilisant des modulateurs acousto-optiques à la place des miroirs galvanométriques, En effet, ces derniers ont des temps de réponse qui sont typiquement de l’ordre de la nanoseconde. Il est à noter que la vitesse maximale de déplacement d’un vortex est très élevée. Elle est donnée par le rapport entre le rayon de la tache focale ($\sim 1 \mu\text{m}$) et le temps de réponse thermique du supraconducteur (~ 1 ns), soit une vitesse limite de l’ordre du km/s.

IV.2.2. Efficacité de la méthode

Dans le but de réaliser une manipulation de vortex efficace, il est nécessaire de choisir une puissance du laser suffisamment basse pour maintenir la température locale inférieure à la température critique et suffisamment importante pour que la force thermique soit supérieure à la force de piégeage maximale de la zone étudiée.

Dans le but d’estimer la puissance minimale permettant de déplacer tous les vortex d’une zone d’intérêt, nous commençons par sélectionner cette zone, qui dans le cas de la figure IV.6 représente une surface de $30 \times 30 \mu\text{m}^2$. L’échantillon est ensuite refroidi sous un champ magnétique de $H_{\text{ext}} = 0.22$ Oe, ce qui permet d’obtenir une dizaine de vortex dans cette zone. Le faisceau laser est ensuite focalisé à une distance de $1.1 \mu\text{m}$ de chaque

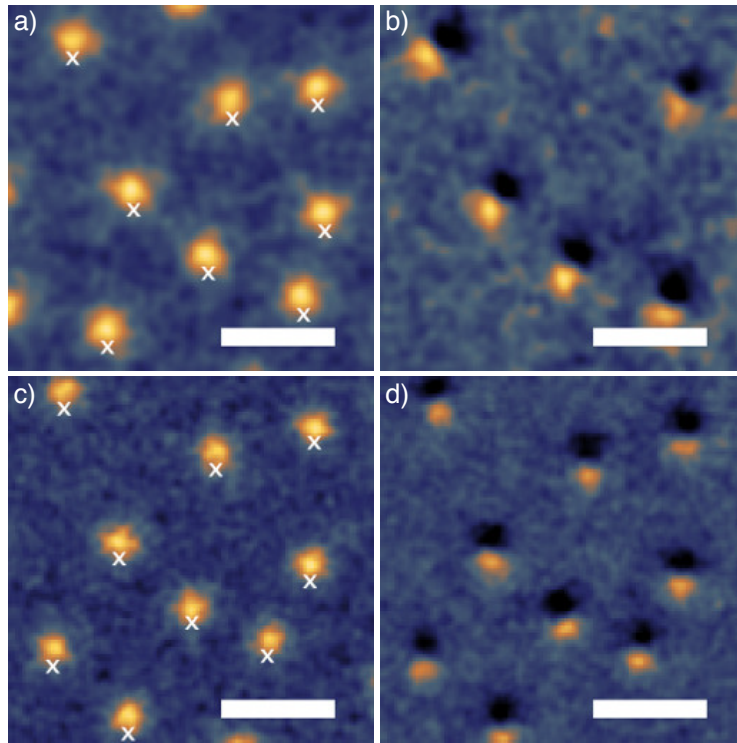


FIGURE IV.6 – Démonstration de l'efficacité du dépiégeage des vortex. a) Distribution initiale de vortex créée en refroidissant l'échantillon sous un champ magnétique appliqué de $H_{\text{ext}} = 0.22$ Oe. Le faisceau laser est ensuite focalisé à une distance de $1.1 \mu\text{m}$ de chaque vortex. Ces positions sont représentées par les croix blanches. b) Image de la même zone après chauffage avec une puissance laser absorbée de $9.2 \mu\text{W}$. La soustraction des images avant/après chauffage permet de voir que cette puissance n'a permis de déplacer que 5 des 8 vortex initialement présents dans la zone. c) Distribution initiale de vortex réinitialisée par chauffage au dessus de T_c puis refroidissement avec les mêmes paramètres que a). d) Image de la même zone correspondant à la soustraction des images prises avant et après application du laser avec une puissance absorbée de $13 \mu\text{W}$. Pour cette puissance, 100% des vortex ont été déplacés. Les barres d'échelle représentent $10 \mu\text{m}$.

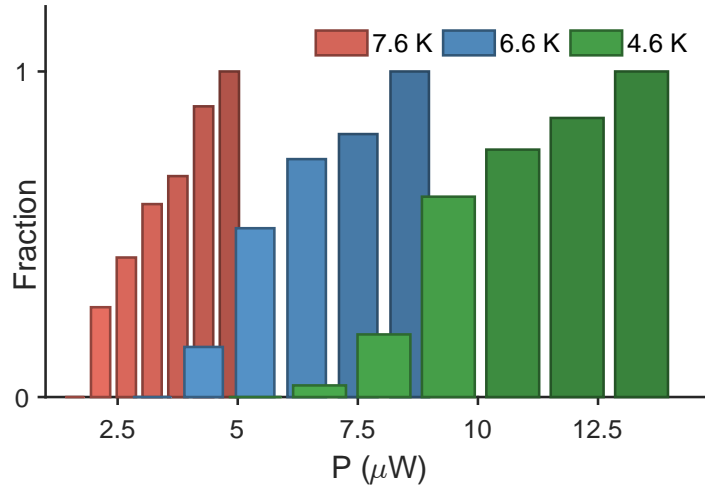


FIGURE IV.7 – Histogramme de la fraction de vortex déplacés en fonction de la puissance laser absorbée par l'échantillon lorsque le faisceau laser est focalisé à une distance de $1.1 \mu\text{m}$ de chaque vortex et pour trois températures différentes. La statistique a été réalisée en répétant l'expérience sur une trentaine de vortex pour chaque point.

vortex de manière successive (figure IV.6), puis il suffit de compter le nombre de vortex déplacés en fonction de la puissance du laser utilisée. Ce résultat est représenté sous forme d'histogramme dans la figure IV.7. Pour construire cet histogramme, nous avons répété plusieurs fois l'expérience de déplacement des vortex en fonction de la puissance du laser sur la même zone, en prenant soin entre chaque itération de réinitialiser les positions des vortex à leur position d'origine. Ceci est effectué en réchauffant l'échantillon au dessus de T_c puis en le refroidissant à la même température. Cela nous permet d'augmenter la statistique à une trentaine de vortex pour chaque valeur de puissance. Afin de mieux détecter les vortex qui se sont déplacés sous l'effet du chauffage laser local, nous employons une méthode de soustraction : l'image obtenue après chauffage consécutif à proximité de chaque vortex est soustraite à celle enregistrée avant. Il devient donc très facile de compter le nombre de vortex ayant été déplacés sous l'action du laser. La largeur de ce type d'histogramme reflète la grande distribution des forces de piégeage dans l'échantillon. On remarque également que des puissances lasers plus importantes sont nécessaires pour dépiéger les vortex quand la température initiale de l'échantillon décroît, ce qui traduit un potentiel de piégeage plus profond à faible température. Enfin, on peut également voir que l'augmentation de la température initiale a pour effet d'élargir la distribution des forces de piégeage.

Le résultat le plus important tiré de ces mesures est qu'il est possible de trouver une puissance laser pour laquelle 100% des vortex présents dans la zone sont déplacés, et ce, quelle que soit la température initiale de l'échantillon.

IV.3. Survie d'un vortex en présence du laser

Il reste maintenant à prouver que les vortex "survivent" en présence du laser. En effet, si la température locale excède la température critique du niobium sous l'action du laser, alors il serait impossible d'interpréter nos résultats en utilisant la force thermique décrite

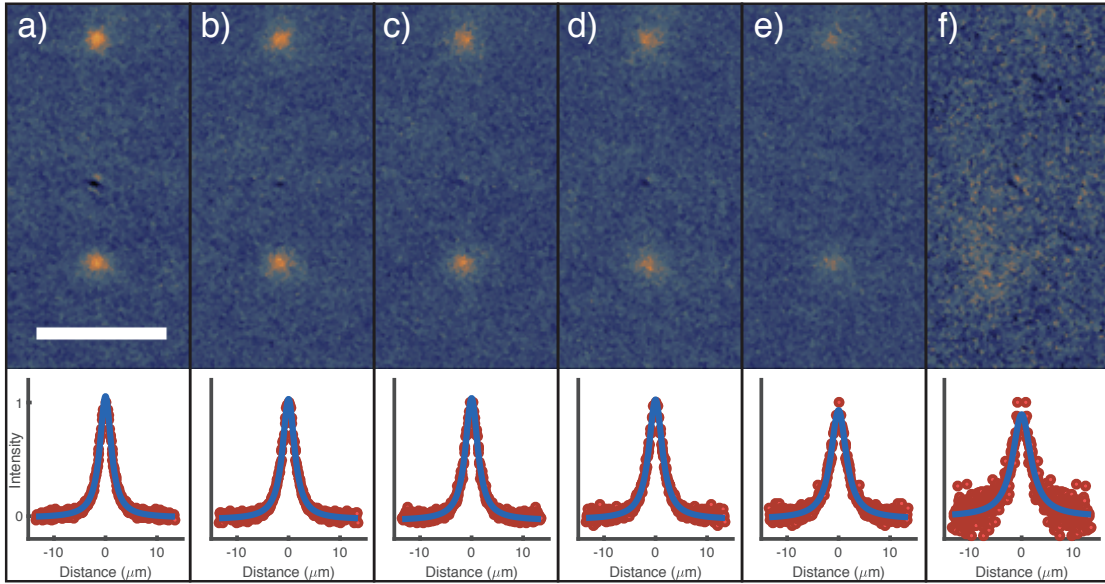


FIGURE IV.8 – Images de vortex à différentes températures. Pour chaque image, le champ magnétique appliqué est de $H_{\text{ext}} = 0.03$ Oe. a) $T = 4.1$ K. b) $T = 6.6$ K. c) $T = 7.1$ K. d) $T = 7.6$ K. e) $T = 8.1$ K. f) $T = 8.4$ K. En dessous de chaque image sont présentés les profils radiaux normalisés des vortex moyennés sur plusieurs vortex de la même image. Chaque profil est ensuite approximé par une lorentzienne pour obtenir la largeur à mi-hauteur du signal. La barre d'échelle représente $20 \mu\text{m}$.

au début de ce chapitre. Bien entendu, l'effet serait le même (le vortex se déplace) mais il serait alors impossible de mesurer les forces de piégeage de l'échantillon dans ces conditions.

Pour cela, nous avons d'abord étudié le profil magnéto-optique d'un vortex en fonction de la température de l'échantillon (figure IV.8). Pour chaque température, nous moyennons le profil radial sur tous les vortex présents dans l'image. Ainsi, au fur et à mesure que la température se rapproche de T_c , la largeur à mi-hauteur du signal augmente et son amplitude diminue (figure IV.9). Ces observations sont cohérentes avec la conservation du flux. On se rend compte par ailleurs que le contraste magnéto-optique ne se dégrade vraiment que lorsque la température est proche de la température critique²

Ces résultats sont à comparer à l'évolution du signal magnéto-optique d'un vortex lors de son déplacement par laser, présenté en figure IV.10. L'échantillon est d'abord refroidi à $T = 4.6$ K, puis nous focalisons le laser à une distance de $1 \mu\text{m}$ de la position du vortex marqué d'un A avec une puissance absorbée de $17 \mu\text{W}$, supérieure à la puissance seuil de $13 \mu\text{W}$ pour cette température. Le vortex B se trouvant loin de la tache focale laser, sert de témoin. Sous illumination (figure IV.10.b)), le vortex se déplace et on remarque une légère baisse de signal qui n'affecte que faiblement la visibilité du vortex. Cela signifie que

2. Cette figure permet aussi de montrer qu'à 4.1 K, la largeur à mi-hauteur du signal magnéto-optique créé par un vortex unique (liée à notre résolution) est de l'ordre de $2.5 \mu\text{m}$, ce qui est bien supérieur à la limite de diffraction optique à cette longueur d'onde ($\sim 0.65 \mu\text{m}$). Cela est dû au fait que la rotation de Faraday, intégrée dans toute l'épaisseur du grenat, est affectée par la divergence du champ magnétique au-dessus du supraconducteur.

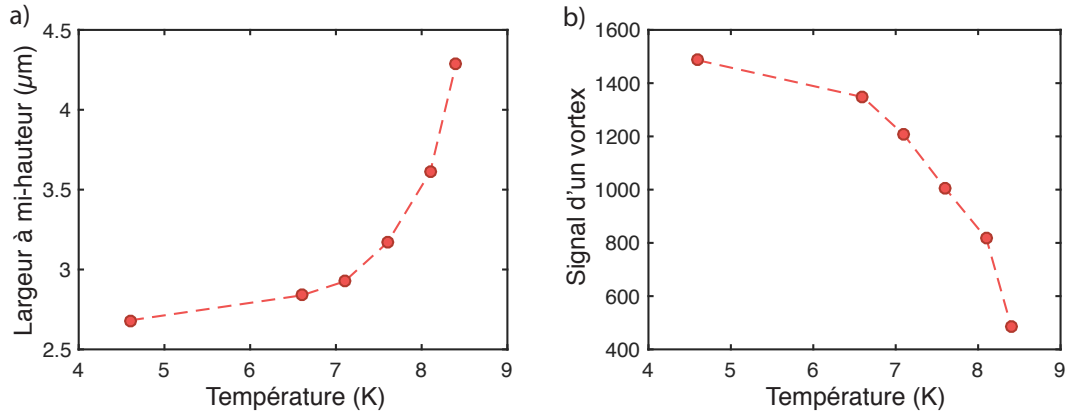


FIGURE IV.9 – Évolution des caractéristiques du signal magnéto-optique d'un vortex en fonction de la température. a) Largeur à mi-hauteur. b) Amplitude du signal.

pendant cette manipulation, la température au niveau du vortex A reste bien en dessous de la température critique. Une fois le laser éteint, on retrouve, pour les deux vortex A et B, des intensités comparables.

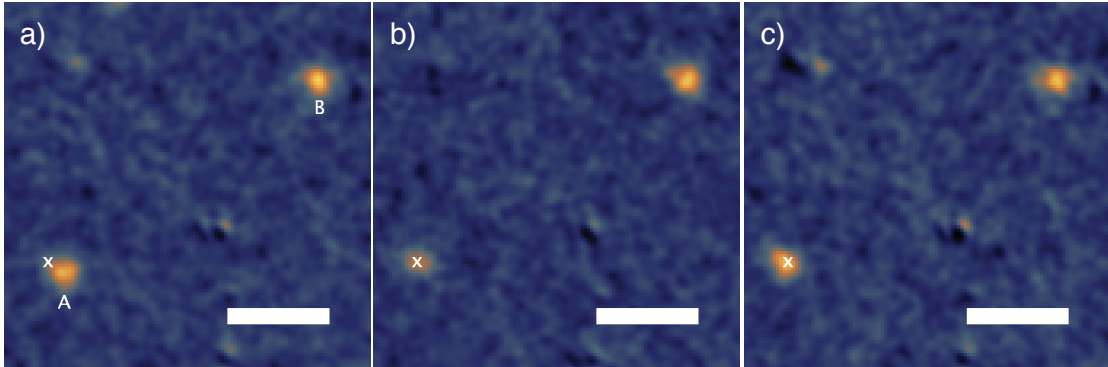


FIGURE IV.10 – Survie d'un vortex pendant son déplacement par laser. a) Image de deux vortex à $T = 4.6$ K. Le vortex A sera déplacé par laser et le vortex B est un vortex de référence. b) Image de la même zone prise après le déplacement du laser A avec le laser toujours allumé à la position marquée par une croix. La puissance laser absorbée est de $17 \mu\text{W}$. Sous l'effet du laser, le signal magnéto-optique du vortex A baisse légèrement. Le vortex B reste inchangé. c) Image de la même zone après chauffage. Le vortex A retrouve son signal initial. Les barres d'échelle représentent $10 \mu\text{m}$.

IV.3.1. Estimation numérique de l'élévation de température

Dans le but de mesurer les forces de piégeage des vortex, nous devons d'abord estimer le gradient de température créé par le laser à la position du vortex. Pour cela, nous résolvons l'équation de la chaleur en régime stationnaire à l'aide de COMSOL, logiciel qui permet de résoudre ce type d'équation en utilisant la méthode des éléments finis :

$$-\vec{\nabla} \cdot [K(T) \vec{\nabla} T] = Q(r), \quad (\text{IV.14})$$

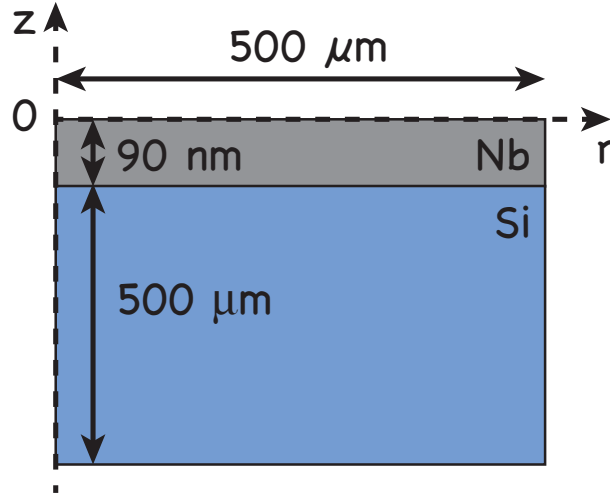


FIGURE IV.11 – Géométrie de l'échantillon utilisé. L'indicateur magnéto-optique n'est pas représenté car il ne contribue pas à l'élévation de température du supraconducteur.

où $K(T)$ est la conductivité thermique du matériau et $Q(r)$ est la source de chaleur. En effet, dans nos expériences, le temps de chauffage est de 1 seconde, soit bien supérieur au temps de réponse du système qui est ici de l'ordre de la nanoseconde. Outre le fait que les équations soient plus simples à résoudre en régime stationnaire, il est intéressant de remarquer que le fait de se placer dans ce régime permet de s'affranchir de plusieurs paramètres thermiques liés au matériau comme la capacité calorifique et la densité. Le problème de ce genre d'équations est que le résultat dépend fortement du modèle utilisé et des conditions aux limites, mais aussi des paramètres employés. Or, n'étant pas équipés pour mesurer ces paramètres, nous sommes contraints d'utiliser des valeurs tabulées qui ne correspondent pas strictement aux conditions dans lesquelles les expériences ont été menées. Ainsi, le fait de réduire le nombre de paramètres utilisés permet de réduire l'erreur sur le résultat obtenu. Malgré tout, ces calculs ne permettent que d'estimer l'élévation de température. La meilleure façon de connaître le profil de température serait de le mesurer en utilisant par exemple une méthode de thermoréfectance [116].

La source de chaleur est produite par l'absorption d'un faisceau laser qui peut être modélisée comme une source surfacique gaussienne ayant pour expression :

$$Q(r) = \frac{P_{\text{abs}}}{2\pi r_0^2} \exp\left[-\frac{r^2}{2r_0^2}\right], \quad (\text{IV.15})$$

où P_{abs} est la puissance absorbée par le supraconducteur et r_0 est la taille de la gaussienne, liée à la largeur à mi-hauteur par $FWHM = 2\sqrt{2\ln 2}r_0$. En tenant compte de la symétrie cylindrique de notre source, il est possible de ramener ce problème à un problème à deux dimensions.

Dans nos simulations, nous considérons la géométrie montrée en figure IV.11. En effet, l'indicateur magnéto-optique est séparé du supraconducteur par une couche de vide d'épaisseur z_g . Ainsi, la chaleur créée par les 40% de lumière absorbée par le grenat à une longueur d'onde de 532 nm n'est pas transmise au supraconducteur. Nous utiliserons donc

un modèle composé d'une couche de niobium de 90 nm d'épaisseur déposée sur une couche de silicium de 500 μm d'épaisseur.

L'échantillon étant fixé sur la plateforme du cryostat, nous utiliserons comme condition aux limites une température T_0 fixe sur les parois qui est aussi la température initiale du système.

Pour résoudre cette équation, nous n'avons besoin que de la conductivité thermique des différents matériaux présents en fonction de la température. Pour le silicium, nous utilisons les données déjà tabulées dans la base de données de COMSOL entre 0 et 1685 K (figure IV.12.a)).

La conductivité thermique du niobium n'étant pas contenue dans la base de données de COMSOL pour les températures auxquelles nous travaillons, nous utilisons le modèle décrit par Koechlin et Bonin [117]. Dans l'état supraconducteur, la conductivité thermique $K_s(T)$ est la somme des contributions électronique $K_{es}(T)$ et du réseau $K_{rs}(T)$. La conductivité thermique électronique dans l'état supraconducteur est calculée à partir de la conductivité thermique électronique dans l'état normal $K_{en}(T)$. En effet, le ratio de ces deux grandeurs est donné par :

$$\frac{K_{es}}{K_{en}} = R(y) = \frac{f(-y) + y \ln [1 + \exp(-y)] + \frac{y^2}{2[1 + \exp(y)]}}{f(0)}, \quad (\text{IV.16})$$

avec

$$y = \frac{\Delta(T)}{k_B T}, \quad f(-y) = \int_0^\infty \frac{z}{1 + \exp(z + y)} dz, \quad (\text{IV.17})$$

$f(0) = \pi^2/12$, $T_c = 8.6$ K la température critique du niobium et $\Delta(T)$ le gap supraconducteur dont l'expression est donnée par :

$$\Delta(T) = \Delta_0 \left(1.74 \sqrt{\frac{T_c}{T} - 1} \right), \quad (\text{IV.18})$$

avec $\Delta_0 = k_B T_c = 0.74$ meV.

La contribution du réseau dans l'état supraconducteur est donnée par :

$$K_{rs}(T) = \left(\frac{1}{\exp(y) D T^2} + \frac{1}{B l T^3} \right)^{-1} \quad (\text{IV.19})$$

où D et B sont des constantes du matériau et l est le libre parcours moyen des phonons. Dans l'état normal, la conductivité thermique est donnée par :

$$K_{en}(T) = \left(\frac{\rho_{295 \text{ K}}}{L_0 RRR T} + a T^2 \right)^{-1}, \quad (\text{IV.20})$$

où $\rho_{295 \text{ K}}$ est la résistivité du niobium à $T = 295$ K, RRR est le ratio des résistivités à $T = 295$ K et $T = T_c$, L_0 est la constante de Lorentz ($L_0 = 2.45 \times 10^{-8}$ W/K²) et a une constante du matériau. On obtient finalement :

$$K_s(T) = R(y) \left[\frac{\rho_{295 \text{ K}}}{L_0 RRR T} + a T^2 \right]^{-1} + \left[\frac{1}{\exp(y) D T^2} + \frac{1}{B l T^3} \right]^{-1}. \quad (\text{IV.21})$$

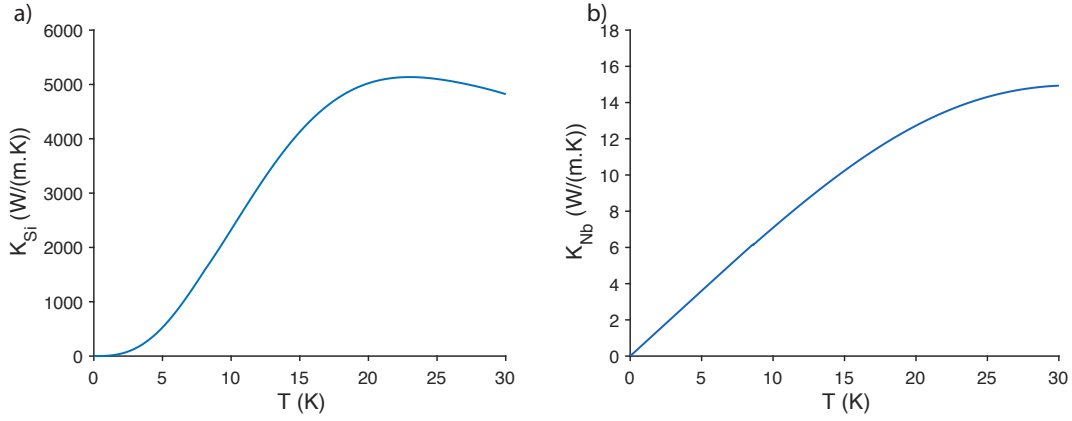


FIGURE IV.12 – Conductivités thermiques utilisées dans notre modèle en fonction de la température. a) Silicium. b) Niobium.

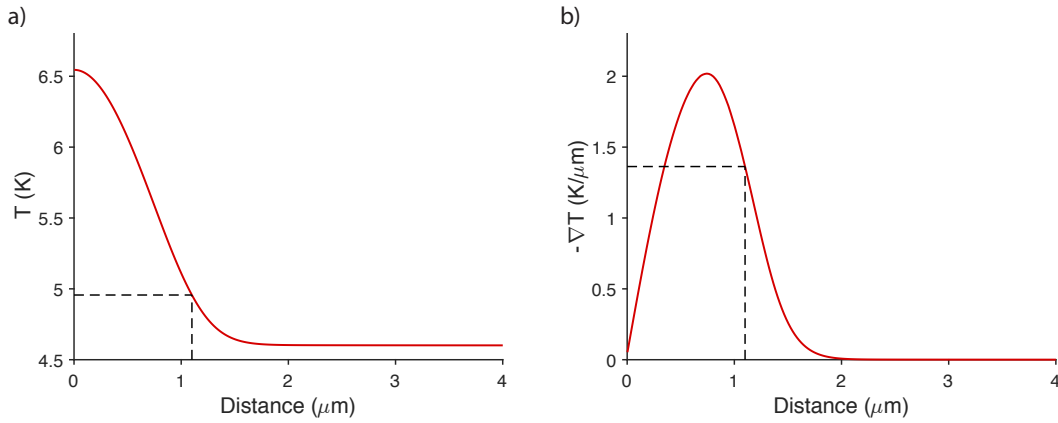


FIGURE IV.13 – Profil de température à la surface du film du niobium lors du chauffage par laser. a) Température. b) Gradient de température.

Connaissant $RRR = 2.56$ et $\rho_{295\text{ K}} = 11.3 \times 10^{-8} \Omega\text{m}$ pour notre échantillon et en prenant des valeurs typiques pour les autres paramètres : $l = 2.9 \text{ nm}$, $a = 2.3 \times 10^{-5} \text{ m}/(\text{WK})$, $B = 7 \times 10^3 \text{ W}/(\text{m}^2\text{K}^4)$ et $1/D = 300 \text{ mK}^3/\text{W}$, la variation de la conductivité thermique du niobium en fonction de la température est présentée en figure IV.12.b).

Nous avons ensuite calculé le profil de température pour les conditions expérimentales (figure IV.6), soit $P = 13 \mu\text{W}$, $r_0 = 0.5 \mu\text{m}$ et $T_0 = 4.6 \text{ K}$. La figure IV.13 montre le résultat de ces simulations. On en déduit que la température maximale est toujours en dessous de T_c .

IV.3.2. Mesure des forces de piégeage

Dans la section précédente, nous avons pu estimer le profil de température généré par le chauffage du laser lors du déplacement d'un vortex. Ces simulations nous permettent non seulement de calculer l'élévation de température mais aussi le gradient thermique dont nous avons besoin pour calculer la force correspondante. Par exemple, à $T = 4.6 \text{ K}$, la force thermique dépiège tous les vortex présents dans la zone pour une puissance absorbée

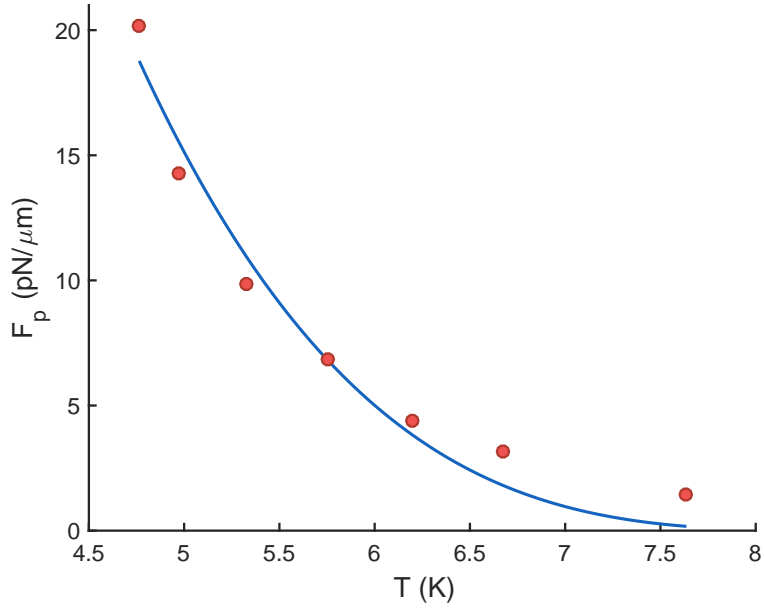


FIGURE IV.14 – Évolution de la force de piégeage d’un vortex unique en fonction de la température. Ce comportement est modélisé avec une loi de puissance empirique donnée par : $F_p \propto (1 - T/T_c)^\gamma$.

de $13 \mu\text{W}$. Cette puissance correspond à un gradient thermique à la position du vortex de $1.4 \text{ K}/\mu\text{m}$ (figure IV.13.b)), permettant ainsi de calculer une force thermique de $14 \text{ pN}/\mu\text{m}$ à l’aide de l’équation (IV.2), en ayant considéré les paramètres de notre échantillon de niobium ($\xi_0 = 10 \text{ nm}$ et $\lambda_0 = 90 \text{ nm}$). Cette valeur estimée à partir de notre modèle est en accord avec les mesures de force réalisées avec d’autres techniques sur des échantillons similaires [36, 35, 118, 119].

Cette méthode donne une estimation simple de la force de piégeage de n’importe quel vortex quelle que soit la température. Ainsi, nous avons pu estimer l’évolution de la force de piégeage d’un vortex unique fortement piégé, c’est-à-dire un vortex dont la position est toujours la même après de multiples cycles de refroidissement en dessous de T_c et en présence d’un champ magnétique. D’après ce critère, le piège sur lequel ce vortex est créé possède un fort potentiel de piégeage, ce qui nous permet de toujours sonder le même piège. En effet, pour mesurer la force de piégeage en fonction de la température, nous devons piéger à nouveau le vortex sur le même défaut pour chaque température étudiée. Pour cela, après chaque déplacement, nous effaçons la distribution de vortex en réchauffant l’échantillon au-dessus de T_c , puis nous le refroidissons à la nouvelle température en conservant le même champ magnétique appliqué.

La figure IV.14 montre la dépendance en fonction de la température de la force de piégeage de ce vortex. Cette dépendance est modélisée en utilisant une loi de puissance empirique :

$$F_p \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^\gamma, \quad (\text{IV.22})$$

avec $\gamma = 3.4$. Ici la température choisie pour tracer la courbe n’est pas la température

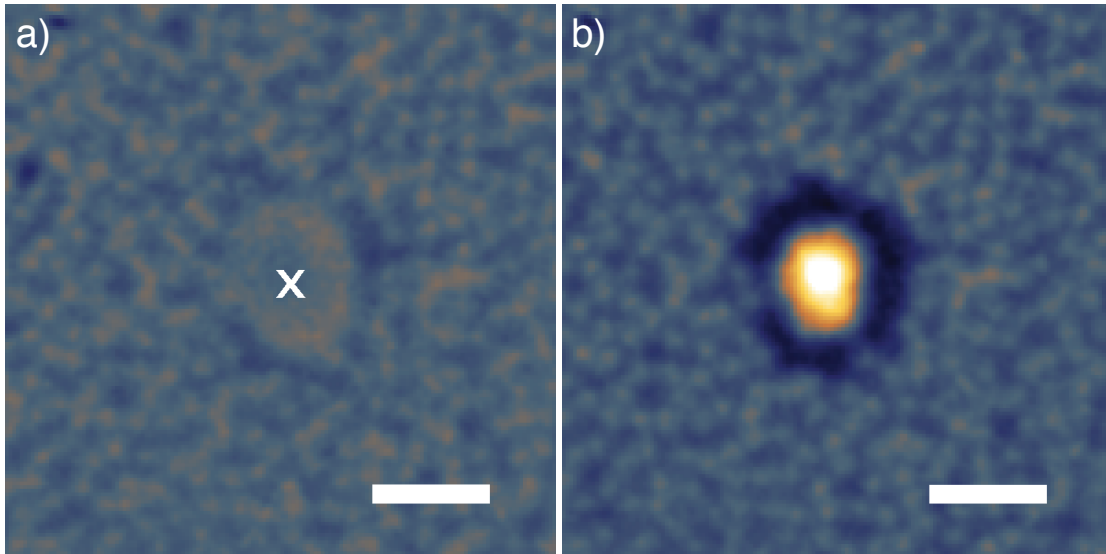


FIGURE IV.15 – Création d’un agrégat de vortex par chauffage d’un film de Niobium au dessus de sa température critique avec un laser dont la puissance absorbée par l’échantillon est de $450 \mu\text{W}$. a) Image magnéto-optique de la surface du supraconducteur pendant le chauffage laser, avec $H_{\text{ext}} = 3 \text{ Oe}$ et une température initiale de $T = 4.6 \text{ K}$. La position centrale du faisceau laser est marquée par une croix blanche. b) Image magnéto-optique de la même surface après chauffage. On remarque l’apparition d’un agrégat de vortex dense ayant un rayon inférieur à celui de la zone normale observée pendant le chauffage. Les barres d’échelle représentent $10 \mu\text{m}$.

de l’échantillon. En effet, afin de pouvoir modéliser correctement l’évolution de la force de piégeage en fonction de la température, il est nécessaire de considérer la température locale. Pour cela, nous utilisons notre modèle thermique qui nous permet d’estimer l’élévation de température à la position du vortex. La valeur de cet exposant est en accord avec des mesures d’ensemble réalisées sur des vortex dans des films de niobium [36, 37], à partir de mesures de transport.

IV.4. Sculpter le flux magnétique par chauffage laser

La méthode de chauffage laser permet de générer dans le supraconducteur des gradients thermiques suffisamment forts pour dominer les forces de piégeage tout en maintenant la température inférieure à la température critique.

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au cas où les températures dépassent la température critique du supraconducteur. Cela nous permet de créer des zones normales contenues dans un environnement supraconducteur, permettant ainsi d’étudier la pénétration de vortex à proximité d’une paroi de domaine N/S.

IV.4.1. Observation d’agrégats de vortex après chauffage laser

L’expérience consiste ici à chauffer fortement une zone supraconductrice initialement refroidie sous un champ magnétique extérieur non nul. Cela a pour effet de créer une zone normale de rayon R_0 au sein du supraconducteur. Des vortex étant présents dans cette zone

avant chauffage, la zone normale, lors de sa création, porte un flux $\Phi = \pi R_0^2 H_{\text{ext}}$ égal à la somme des flux des vortex détruits sous l'action de ce chauffage. Après extinction du laser et refroidissement de la zone, un agrégat de vortex apparaît avec un rayon R^* inférieur au rayon de la zone normale initialement créée (figure IV.15).

Lorsque le laser est éteint, la température locale commence à diminuer vers sa valeur initiale. Cela s'accompagne d'une diminution de la taille de la zone normale dans laquelle la température est toujours supérieure à la température critique. Le champ magnétique des vortex initialement présents dans cette zone y reste piégé en raison de l'existence d'une barrière géométrique empêchant les vortex de pénétrer dans la zone supraconductrice. En raison de la conservation du flux magnétique, le champ magnétique à l'intérieur de la zone normale augmente au fur et à mesure que la température diminue. Lorsque le champ piégé devient supérieur au champ de pénétration H_p , les vortex pénètrent dans la zone supraconductrice et se retrouvent piégés sur les défauts les plus proches. Cela se produit lorsque le rayon de la zone normale devient égal à :

$$R^* = R_0 \sqrt{\frac{H_{\text{ext}}}{H_p}}. \quad (\text{IV.23})$$

C'est ce que l'on observe sur la figure IV.15.b). On remarque ici l'apparition d'une zone de rayon $R^* = 5.5 \mu\text{m}$ où la densité de vortex est plus importante qu'initialement, à tel point que nous ne pouvons pas résoudre les vortex individuels présents dans cette zone. Cet agrégat est entouré d'une zone supraconductrice dans laquelle aucun vortex n'est présent, ayant pour rayon externe $R_0 = 6.5 \mu\text{m}$.

IV.4.2. Calcul du paramètre d'ordre à la frontière Normal/Supra

Dans le but d'étudier l'évolution de la distribution de vortex après chauffage du supraconducteur au-dessus de sa température critique à l'aide d'un faisceau laser focalisé, nous résolvons l'équation de Ginzburg-Landau. Cela nous permet de calculer la distribution spatiale du paramètre d'ordre pour différents profils de température pendant la relaxation thermique.

Le temps caractéristique de la diffusion de la chaleur $\tau_c = \rho C_p d^2 / K$ dans le supraconducteur étant de quelques nanosecondes, il est bien supérieur au temps de réponse du paramètre d'ordre dans le supraconducteur $\tau_s = h / k_B T_c$ qui est de l'ordre de la picoseconde. L'évolution du paramètre d'ordre est donc adiabatique et il devient possible de résoudre l'équation de Ginzburg-Landau indépendante du temps. De plus, la distance sur laquelle varie le paramètre d'ordre est beaucoup plus faible que celle caractérisant la variation du profil de température. On peut donc négliger le terme faisant intervenir la première dérivée du paramètre d'ordre dans cette équation. On écrit alors :

$$-\frac{\hbar^2}{4m} \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \alpha [T(r) - T_c] \psi + b\psi^3 = 0. \quad (\text{IV.24})$$

Loin du faisceau laser, la température T_0 du supraconducteur est uniforme et inférieure à T_c . Par conséquent, le paramètre d'ordre est lui aussi uniforme et vaut :

$$\psi_\infty = \sqrt{\frac{\alpha}{b} (T_c - T_0)}. \quad (\text{IV.25})$$

En posant $f = \psi / \psi_\infty$ que l'on remplace dans l'équation de Ginzburg-Landau, on obtient :

$$-\frac{\hbar^2}{4m} \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} + \alpha [T(r) - T_c] f + \alpha (T_c - T_0) f^3 = 0. \quad (\text{IV.26})$$

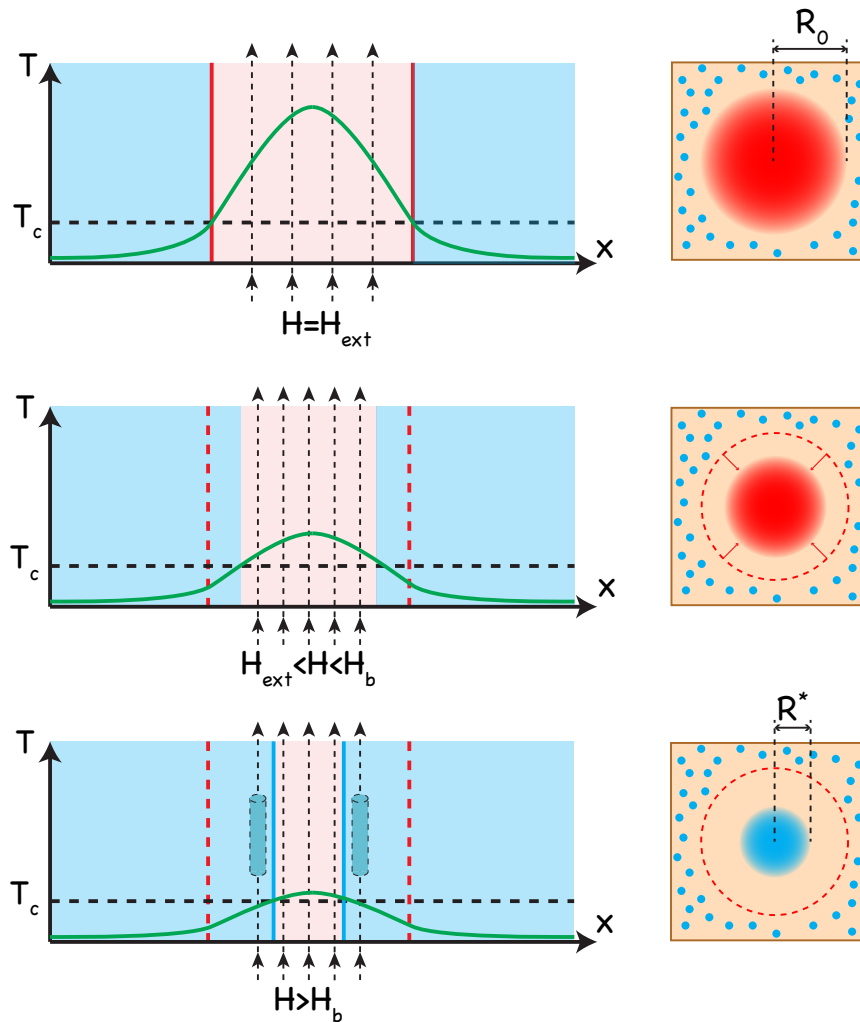


FIGURE IV.16 – Illustration qualitative de la création d'un agrégat de vortex par chauffage laser local d'un supraconducteur au dessus de sa température critique. Initialement, une zone normale de rayon R_0 est créée et piège un champ magnétique égal au champ magnétique extérieur appliqué. Après extinction du laser, la température au sein de cette zone normale décroît, réduisant la taille de cette zone et augmentant le champ magnétique piégé. Lorsque le champ magnétique piégé excède le champ de pénétration H_p , les vortex pénètrent en formant un agrégat de rayon R^* .

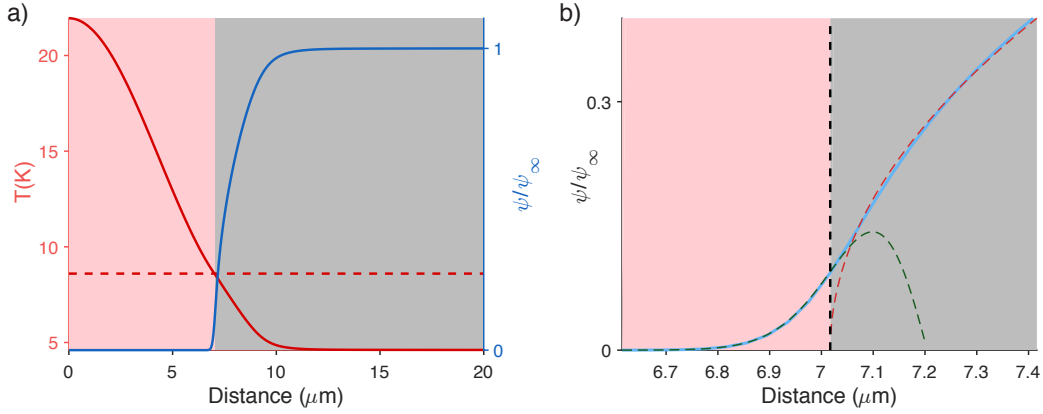


FIGURE IV.17 – Variation du paramètre d'ordre en présence d'un profil de température non uniforme excédant la température critique du supraconducteur. a) Courbe rouge : profil de température calculé juste après l'extinction du laser. La ligne en pointillés représente la température critique du Niobium utilisé. Celle-ci est atteinte pour un diamètre $R = 7 \mu\text{m}$. Courbe bleue : solution numérique de l'équation de Ginzburg-Landau. b) Courbe bleue : zoom sur la solution numérique de l'équation de Ginzburg-Landau à proximité de la limite normal/supraconducteur. Les courbes en pointillés représentent des solutions analytiques de cette équation pour les cas limites $r - R \lesssim \xi_0$ (en vert) et $r - R > \xi_0$ (en rouge).

En divisant cette équation par $\alpha(T_c - T_0)$ et en introduisant la longueur de cohérence ξ_0 définie par $\xi_0^2 = \hbar^2 / (4m\alpha T_c)$, l'équation devient :

$$-\frac{\xi_0^2}{1 - T_0/T_c} \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} + \frac{T(r) - T_c}{T_c - T_0} f + f^3 = 0. \quad (\text{IV.27})$$

Au centre du faisceau laser, la température est au-dessus de la température critique et on a donc forcément $f(r=0) = 0$. De plus, la condition en $r \rightarrow \infty$ est connue et égale à $f(r \rightarrow \infty) = 1$.

En utilisant les variables sans dimensions suivantes :

$$\rho = \frac{r}{\xi_0} \sqrt{1 - \frac{T_0}{T_c}} \quad \text{et} \quad \tau(\rho) = \frac{T(\rho) - T_c}{T_c - T_0}, \quad (\text{IV.28})$$

il est possible d'écrire une forme sans dimensions de l'équation de Ginzburg-Landau :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \rho^2} = \tau(\rho) f + f^3. \quad (\text{IV.29})$$

La solution numérique de cette équation pour un profil de température modélisé avec COMSOL est montrée en figure IV.17.a) (courbe bleue).

Il est possible de trouver des solutions analytiques de cette équation à proximité de la limite entre les zones normale et supraconductrice se situant à un rayon R . Dans cette région, la température est proche de la température critique et on peut utiliser le développement limité suivant :

$$T(r) \approx T_c \left[1 - \frac{|\vec{\nabla} T|_{r=R}}{T_c} (r - R) \right]. \quad (\text{IV.30})$$

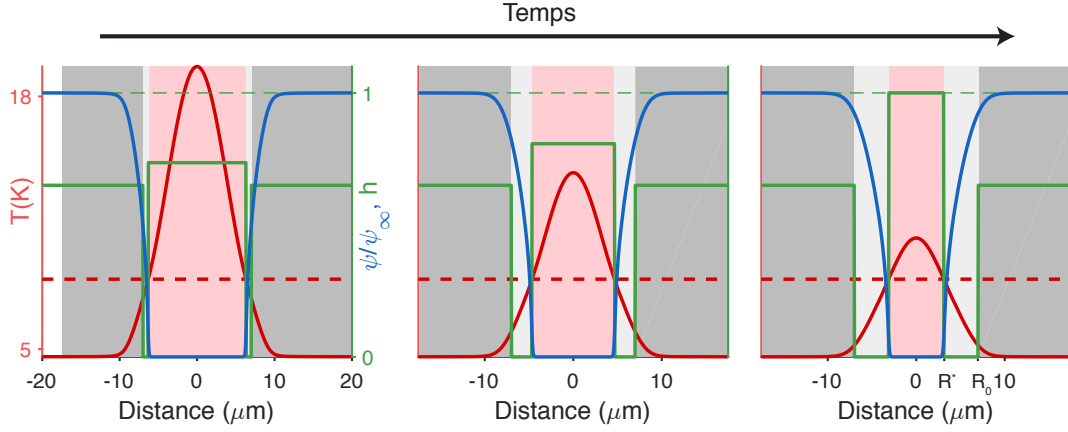


FIGURE IV.18 – Modélisation de l'évolution temporelle de la pénétration du champ magnétique dans le supraconducteur après extinction du laser. Alors que la température (courbe rouge) diminue au cours du temps, le profil de paramètre d'ordre (courbe bleue) se rétrécit et le champ magnétique h (normalisé par le champ de pénétration) piégé dans la région normale augmente (courbe verte). Ce dernier ne pénètre dans la région supraconductrice que lorsqu'il sera supérieur au champ de pénétration.

On remarque alors qu'en définissant la longueur thermique $L_T = T_c / |\vec{\nabla}T|_{r=R}$, l'équation de Ginzburg-Landau se réécrit de la façon suivante :

$$-\xi_0^2 \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} - \frac{r-R}{L_T} f + \left(1 - \frac{T_0}{T_c}\right) f^3 = 0. \quad (\text{IV.31})$$

Pour $\rho - R \lesssim \xi_0$, on a $f \ll 1$ et, par conséquent, on peut négliger le terme non linéaire devant le terme linéaire dans l'équation de Ginzburg-Landau qui devient alors :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \rho^2} + \frac{r-R}{L_T \xi_0^2} f = 0. \quad (\text{IV.32})$$

Ce type d'équation admet pour solution une fonction d'Airy $\text{Ai}[-(r-R)/L_\psi]$ où $L_\psi = (\xi_0^2 L_T)^{1/3}$ est l'épaisseur caractéristique de la variation du paramètre d'ordre.

D'autre part, lorsque $r - R > \xi_0$, la distance caractéristique sur laquelle varie le paramètre d'ordre est très supérieure à ξ_0 et il devient possible de négliger le terme $\xi_0^2 \partial^2 f / \partial r^2$ dans l'équation de Ginzburg-Landau. Le paramètre d'ordre évolue donc selon l'équation suivante :

$$f(r) = \sqrt{\frac{r-R}{L_T}}. \quad (\text{IV.33})$$

La figure IV.17.b) montre que le profil de paramètre d'ordre calculé numériquement est bien approximé par ces deux fonctions analytiques dans leurs domaines de validité respectifs.

Nous pouvons ensuite simuler l'évolution du paramètre d'ordre en fonction du temps lorsque le laser est éteint. Pour cela, nous résolvons d'abord l'équation de la chaleur pour obtenir l'évolution temporelle de la température au sein de l'échantillon. À chaque instant, nous calculons ensuite la distribution spatiale du paramètre d'ordre correspondante. Cela permet de montrer comment évolue le champ magnétique piégé au sein de la zone normale pendant le refroidissement de l'échantillon (figure IV.18).

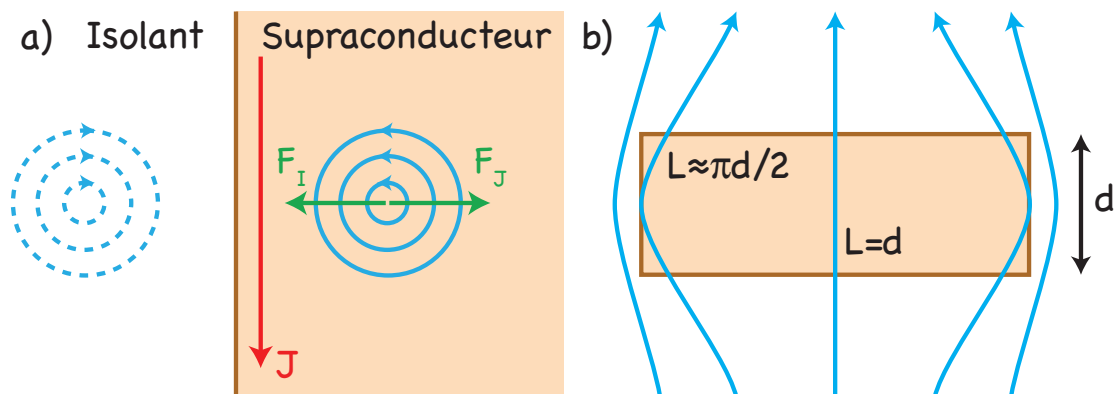


FIGURE IV.19 – Illustration de l'origine des différentes barrières possibles. a) Barrière de Bean-Livingston. b) Barrière géométrique.

IV.4.3. Le concept de barrière géométrique

Plusieurs phénomènes physiques peuvent donner lieu à l'apparition d'un champ de pénétration empêchant les vortex de rentrer dans le supraconducteur. Le premier d'entre eux est la barrière de Bean-Livingston [120] dont l'origine provient du fait que lorsqu'un vortex pénètre dans le supraconducteur, il est soumis à deux forces opposées : une force l'attirant vers l'intérieur du supraconducteur, générée par l'interaction du vortex avec les supercourants circulant sur les bords du matériau, et une force l'expulsant vers l'extérieur de l'échantillon, qui provient de l'interaction attractive entre le vortex et son image (inversée) située à l'extérieur de l'échantillon. Ainsi, le vortex ne pénètre dans l'échantillon que lorsque le champ magnétique extérieur est suffisamment important pour que la force de Lorentz créée par les supercourants sur le vortex soit supérieure à la force poussant le vortex vers l'extérieur qui ne dépend pas du champ magnétique externe. Cependant cette barrière est fortement réduite en présence d'une interface normal/supraconducteur, comme celle que nous étudions. De plus, la présence d'un gradient thermique a aussi pour effet de réduire fortement son effet.

Pour cette raison, nous allons interpréter nos résultats en terme de barrière géométrique [121, 122]. La hauteur de cette barrière dépend essentiellement de la géométrie de l'échantillon. Lorsqu'un supraconducteur est placé dans un champ magnétique extérieur, ce dernier est expulsé et, par conséquent, la concentration de lignes de champ aux bords de l'échantillon est très importante. C'est donc par les bords que les vortex commenceront par entrer dans le supraconducteur. Cependant, aux bords de l'échantillon, ces lignes de champ sont déformées et la longueur d'un vortex qui pénètre à cet endroit est plus grande d'environ $d/2$ (où d est l'épaisseur de l'échantillon) par rapport à celle d'un vortex situé au centre de l'échantillon où les lignes de champ traversent le supraconducteur avec une longueur minimale. Cette augmentation de la longueur des lignes de champ aux bords a pour effet d'augmenter le coût énergétique de la pénétration d'un vortex, créant ainsi une barrière.

Puisque l'épaisseur d de notre échantillon est plus petite que sa longueur de pénétration de London λ_L , il est nécessaire de considérer ici une longueur effective, appelée *longueur de Pearl* et donnée par [102] :

$$\Lambda = \frac{\lambda_L^2}{d}. \quad (\text{IV.34})$$

Un vortex étant situé à une distance inférieure à Λ du bord de l'échantillon aura donc une énergie trop grande et ne pourra pas se former. Dans notre cas, cette valeur varie fortement avec la distance en raison de la présence d'un gradient thermique, il faudra donc estimer la distance caractéristique ζ à laquelle le vortex pourra se former en écrivant $\zeta = \Lambda(T)$. Au niveau de la paroi séparant les zones normale et supraconductrice, la température est égale à la température critique. Il est donc possible de développer l'expression de la température à l'ordre 1 en r :

$$T(r) = T_c \left[1 + \frac{|\vec{\nabla}T|}{T_c} r \right]. \quad (\text{IV.35})$$

Si l'on remplace cette expression dans l'expression de la longueur de pénétration de London, on obtient :

$$\lambda_L^2(r) = \frac{\lambda_{L,0}^2}{1 - \frac{T(r)}{T_c}} = \lambda_{L,0}^2 \frac{L_T}{r}, \quad (\text{IV.36})$$

où L_T est la longueur thermique définie dans la partie précédente. La distance ζ à laquelle le vortex pourra se former est donc donnée par :

$$\zeta = \lambda_{L,0} \sqrt{\frac{L_T}{d}}. \quad (\text{IV.37})$$

Comme décrit par Zeldov [121], la pénétration du vortex apparaît lorsque la force de Lorentz $J\Phi_0$ associée à la densité de supercourants J atteint la valeur de la force $2\varepsilon_{l,0}/\zeta$ poussant le vortex vers la zone normale, où :

$$\varepsilon_{l,0} = \frac{\Phi_0 H_{c1}(0) \zeta}{4\pi L_T} \quad (\text{IV.38})$$

est l'énergie d'un vortex par unité de longueur. Cela conduit à :

$$J\Phi_0 = \frac{\Phi_0 H_{c1}(T=0)}{2\pi L_T}. \quad (\text{IV.39})$$

En adaptant l'expression des supercourants Meissner J de la référence [121] à notre ruban circulaire de largeur $R_0 - R^*$, valide dans la limite $|R_0 - R^*| \ll R_0$, nous obtenons, à proximité de la paroi de domaine N/S et quand le champ local est égal au champ de pénétration H_p :

$$J(R^* + \zeta) \simeq \frac{H_p}{4\pi d} \sqrt{\frac{R_0 - R^*}{\zeta}}. \quad (\text{IV.40})$$

Ceci conduit à l'expression suivante pour H_p :

$$H_p = 2H_{c1}(T=0) \sqrt{\frac{\zeta}{(R_0 - R^*)}} \frac{d}{L_T} = 2H_{c1}(T=0) \sqrt{\frac{d}{(R_0 - R^*)}} \left(\frac{\lambda_{L,0}^2 d}{L_T^3} \right)^{1/4}. \quad (\text{IV.41})$$

La résolution de l'équation de la chaleur nous permet d'estimer $L_T = 5.3 \mu\text{m}$. De plus, en prenant $R_0 = 6.5 \mu\text{m}$ et $R^* = 5.5 \mu\text{m}$ correspondant à nos résultats expérimentaux montrés en figure IV.16, nous obtenons un champ de pénétration $H_p \sim 6 \text{ Oe}$, qui est en accord avec la valeur calculée directement à partir des données expérimentales $H_p = H_{\text{ext}} (R_0/R^*)^2 = 4.3 \text{ Oe}$.

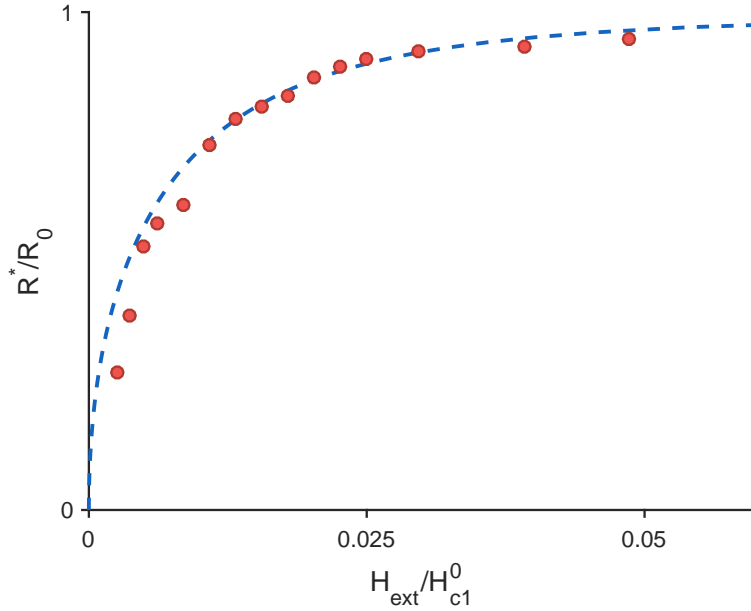


FIGURE IV.20 – Évolution du rapport R^*/R_0 en fonction du champ magnétique externe normalisé par le champ critique à température nulle H_{ext}/H_{c1}^0 . La courbe bleue est déduite du modèle théorique de la barrière géométrique.

Afin de vérifier la validité de cette interprétation, nous avons réalisé une expérience consistant à mesurer le rapport R^*/R_0 en fonction du champ magnétique extérieur appliqué en gardant constante la puissance laser utilisée pour chauffer l'échantillon. En effet, le champ magnétique extérieur peut être exprimé en fonction des paramètres géométriques de l'agrégat avec la formule suivante :

$$H_{\text{ext}} = 2H_{c1}(0) \frac{R^*}{R_0} \sqrt{d}(R_0 - R^*) \left(\frac{\lambda_{L,0}^2 d}{L_T^3} \right)^{1/4}. \quad (\text{IV.42})$$

Il est donc possible d'ajuster les données expérimentales en utilisant la formule :

$$\frac{H_{\text{ext}}}{H_{c1}(0)} = \frac{x^2}{\sqrt{1-x}} \left(\frac{16\lambda_{L,0}^2 d^3}{R_0^2 L_T^3} \right)^{1/4} \simeq 0.01 \frac{x^2}{\sqrt{1-x}}, \quad (\text{IV.43})$$

avec $x = R^*/R_0$. On peut alors voir en figure IV.20 que les données expérimentales sont très bien représentées par l'équation précédente sans utiliser de paramètre d'ajustement. Cela montre bien que nous observons ici un effet de la barrière géométrique empêchant les vortex de pénétrer dans le supraconducteur tant que le champ piégé dans la zone normale n'est pas supérieur au champ de pénétration H_p .

IV.4.4. Modélisation du profil de champ magnétique dans l'agrégat

En traçant les profils d'intensité avant et après chauffage laser, il est possible de remonter au profil de champ magnétique correspondant. La relation reliant le champ magnétique local à l'intensité n'est pas linéaire mais il est tout de même possible de calibrer notre système d'imagerie pour mesurer le champ magnétique local. Cependant, l'illumination n'étant pas

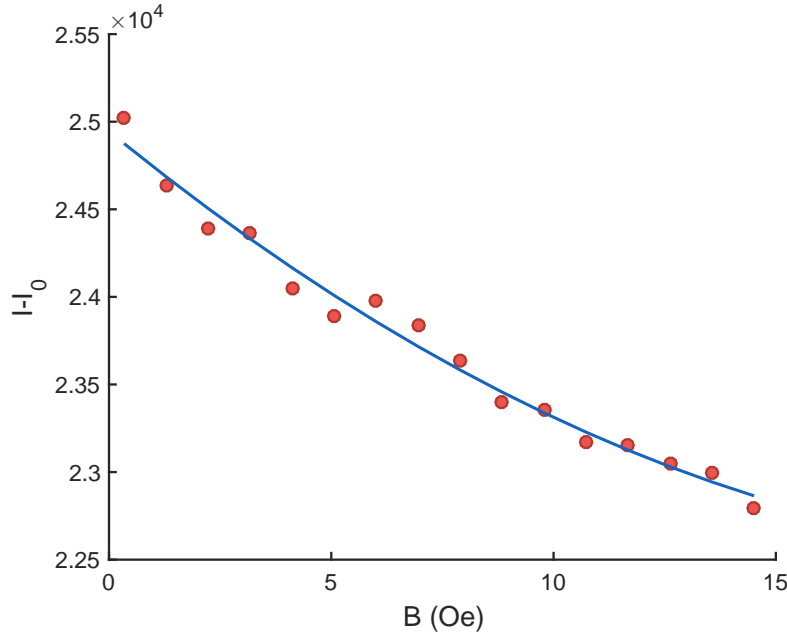


FIGURE IV.21 – Courbe de calibration de l'intensité en fonction du champ magnétique pour un pixel.

uniforme sur l'image, il est nécessaire de calculer une courbe de calibration par pixel (figure IV.21). Pour cela, nous prenons une image pour plusieurs valeurs de champ magnétique appliqué au dessus de T_c avec les mêmes paramètres d'acquisition que les images prises en dessous de la température critique. Un programme nous permet ensuite de calibrer chaque pixel indépendamment par la formule :

$$I = I_0 + \alpha B + \beta B^2, \quad (\text{IV.44})$$

où I_0 est l'intensité à champ nul, B le champ magnétique appliqué, et α et β les paramètres de l'ajustement polynomial.

Une fois cette calibration réalisée sur chaque pixel, il devient possible de tracer les profils de champ magnétique pendant et après chauffage laser. La figure IV.22 montre les profils correspondant aux distributions de champ magnétique montrées en figure IV.16. On remarque alors que la distribution de champ magnétique pendant le chauffage laser (figure IV.22.a)) est similaire à celle créée par une boucle de courant. Le champ magnétique créé par une boucle de courant de rayon a parcourue par un courant J est donné par l'équation suivante :

$$H(r, z) = \frac{J}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{(a+r)^2 + z^2}} \left[K \left(\frac{4ar}{(a+r) + z^2} \right) + \frac{a^2 - r^2 - z^2}{(a+r) + z^2} E \left(\frac{4ar}{(a+r) + z^2} \right) \right], \quad (\text{IV.45})$$

où K et E sont des intégrales de Bessel elliptiques du premier et du second ordre respectivement. De plus, dans le but de prendre en compte la contribution des vortex imagés à $r > R_0$, nous ajoutons le champ H_v que nous avons pris égal à :

$$H_v = \frac{H_{av}}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{r - R_0}{\delta} \right) \right], \quad (\text{IV.46})$$

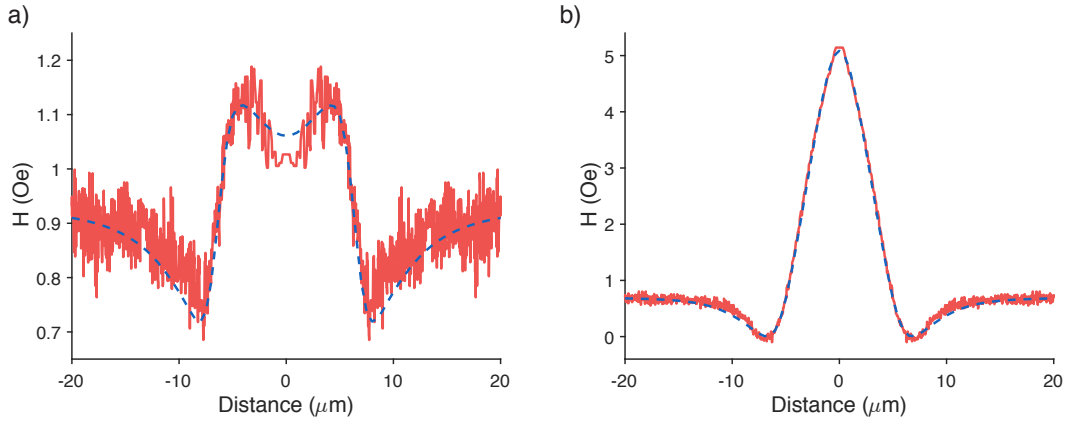


FIGURE IV.22 – Profil radial de champ magnétique moyenné. a) Profil de champ magnétique pendant le chauffage laser. b) Profil de champ magnétique du cluster de vortex final. Les traits pointillés représentent le profil calculé à partir de notre modèle.

où H_{av} est l'amplitude du champ moyen dans la zone $r > R_0$ et δ est la distance caractéristique sur laquelle le champ décroît en $r = R_0$, qui est typiquement de l'ordre de la taille apparente d'un vortex, c'est-à-dire quelques microns. En effet, la fonction erf est présente dans ce modèle pour représenter au mieux la décroissance du champ magnétique en $r = R_0$ et pour ne pas avoir une marche de champ magnétique qui ne correspondrait pas à nos observations expérimentales.

La courbe en pointillés sur la figure IV.22.a) correspond à un ajustement par le modèle numérique décrit précédemment. Il reproduit la distribution de champ magnétique observée en prenant $R_0 = 7 \mu\text{m}$, $H_{av} = 0.9 \text{ Oe}$ et $\delta = 2 \mu\text{m}$.

En utilisant le modèle de Bean, il est possible de calculer la distribution de champ magnétique au sein de l'agrégat après chauffage laser. Dans ce modèle, la distribution de vortex est déterminée par la condition d'équilibre des forces de piégeage et de Lorentz $J_c \Phi_0$ poussant les vortex vers la région supraconductrice, où J_c est la densité de courant critique de l'échantillon [18]. On peut alors montrer que dans un supraconducteur épais, pour lequel on a $J_c = C^{\text{te}}$, le profil radial de champ magnétique, que l'on détermine par $\partial H_z / \partial r = -J_c$, est linéaire. Dans le but de modéliser ce comportement pour notre géométrie, nous considérons ici un supraconducteur d'épaisseur d occupant l'espace $-d < z < 0$. La distribution de courant dans l'agrégat est donnée par :

$$J_\theta = \begin{cases} J_c & \text{pour } r < R^* \\ 0 & \text{pour } r > R^* \end{cases}. \quad (\text{IV.47})$$

La distribution de champ magnétique au sein de l'agrégat est donc calculée en adaptant la formule (IV.45) à notre géométrie :

$$H(r, z) = \frac{J_\theta}{2\pi} \int_z^{z+d} dz_0 \int_0^{R^*} \frac{1}{\sqrt{(a+r)^2 + z_0^2}} \left[K \left(\frac{4ar}{(a+r) + z_0^2} \right) + \frac{a^2 - r^2 - z_0^2}{(a+r) + z_0^2} E \left(\frac{4ar}{(a+r) + z_0^2} \right) \right] da. \quad (\text{IV.48})$$

Ainsi, en prenant les paramètres correspondant à nos mesures expérimentales, et en ajoutant

le champ moyen créé par les vortex situés en $r > R^*$, nous sommes capables de reproduire le profil de champ magnétique mesuré après chauffage (figure IV.22.b)).

IV.5. Conclusion

Nous avons pu mettre au point une nouvelle méthode permettant de déplacer des vortex d'Abrikosov individuels dans un supraconducteur de type II. Cette méthode repose sur l'utilisation d'un faisceau laser focalisé à la limite de diffraction sur la surface du supraconducteur qui crée une élévation de température locale. Le gradient thermique résultant de cette élévation de température agit sur un vortex situé à proximité comme une force attractive qui, si elle est suffisamment élevée, peut surpasser la force de piégeage de ce vortex et entraîner un déplacement de ce dernier vers le centre du faisceau laser, agissant alors comme une pince optique. Nous nous sommes par ailleurs assurés que la puissance laser utilisée était suffisamment basse pour que la température locale n'excède pas la température critique de l'échantillon.

Nous avons ainsi pu montrer que cette méthode permet de déplacer les vortex présents dans un film de Niobium sur de grandes distances uniquement limitées par le champ de l'objectif utilisé, avec un taux de réussite de 100%, à condition que les paramètres du laser soient bien choisis. De plus, nous avons pu atteindre différents régimes de manipulation, allant du repositionnement de vortex uniques, jusqu'à la création d'agrégats de vortex nous permettant d'observer et d'étudier la barrière géométrique.

Les travaux présentés ici se concentrent sur la démonstration du principe et la mise en place du montage expérimental permettant à la fois d'imager et de manipuler les vortex. En effet, afin de pouvoir observer le déplacement des vortex en temps réel, nous avons utilisé des temps de manipulation lents. Par exemple, le nettoyage de la zone supraconductrice présenté en figure IV.5 a été réalisé en 420 s. Cependant, en poussant notre montage expérimental à ses limites, qui sont ici fixées par le temps de réponse des miroirs galvanométriques utilisés, nous avons atteint un temps de nettoyage minimal de 350 ms correspondant à une vitesse de vortex de l'ordre de 6 mm/s. Bien qu'élevée, cette vitesse reste inférieure à la vitesse maximale qu'un vortex peut atteindre qui est de l'ordre du km/s. En effet, celle-ci est donnée par le rapport de la taille du point chaud induit par le laser ($\sim 1 \mu\text{m}$) au temps de réponse thermique de l'échantillon ($\sim 1 \text{ ns}$).

Enfin, comme un vortex unique peut induire un déphasage dans une jonction Josephson [8, 9], cette nouvelle technique fournit un outil très prometteur pour le contrôle optique rapide de jonctions Josephson pour une utilisation dans des circuits électroniques supraconducteurs.

Chapitre V

Création et contrôle d'une jonction Josephson par laser

Une jonction Josephson consiste en deux supraconducteurs séparés par un lien faible pouvant être, par exemple, un matériau non supraconducteur ou une constriction située sur un fil supraconducteur. Ces jonctions sont les éléments de base de l'électronique supraconductrice moderne [123], de systèmes de calcul quantique [124, 125], ou encore de détecteurs de champ magnétique ultrasensibles [126].

Le supercourant j circulant dans la jonction est couplé à la différence de phase φ qui existe entre les deux supraconducteurs. La relation courant-phase $j(\varphi)$ résultant de ce couplage fixe les caractéristiques, qu'elles soient statiques ou dynamiques, de la jonction [14, 13]. Durant ces dernières années, la plupart des recherches dans ce domaine visaient à concevoir des systèmes électroniques basés sur l'utilisation de jonctions Josephson les plus compactes possibles dans lesquelles les caractéristiques courant-phase pouvaient être contrôlées à l'aide de paramètres extérieurs. En ce qui concerne les jonctions Josephson classiques dans lesquelles le lien faible est un isolant ou un métal normal, cette relation courant-phase peut être facilement contrôlée par la température et/ou le champ magnétique externe : le fait de refroidir la jonction modifie fortement la forme de la relation courant-phase en la faisant s'éloigner de la relation sinusoïdale qui existe entre ces deux paramètres à proximité de la température critique ; tandis que l'application d'un champ magnétique externe a pour effet d'abaisser la valeur du courant critique et induit des oscillations dites de Fraunhofer dans la relation entre le courant critique de la jonction et le champ magnétique appliqué [14]. Enfin, lorsque les électrodes sont séparées par une couche ferromagnétique, il est possible de modifier la valeur de la différence de phase dans l'état fondamental de la jonction [127]. En effet, dans les systèmes classiques, la différence de phase dans l'état fondamental est nulle ($\varphi = 0$). Cependant, si l'on introduit des éléments ferromagnétiques dans la couche constituant le lien faible entre les deux électrodes supraconductrices, il devient possible de créer des jonctions- π qui ont la particularité d'avoir une différence de phase $\varphi = \pi$ dans l'état fondamental [128, 129] ou même des jonctions- φ_0 pour lesquelles cette différence de phase dans l'état fondamental est donnée par $\varphi = \varphi_0 \neq 0, \pi$. Ce dernier type de jonction requiert cependant un fort couplage spin-orbite [130, 131], ou une large séparation des bandes d'énergie électroniques [132, 133]. Il devient alors possible de contrôler la valeur de φ_0 en appliquant un champ magnétique externe, ouvrant ainsi de nouvelles possibilités en ce qui concerne les applications pour la logique rapide à quanta de flux uniques (RSFQ) [123, 134, 135]. Cependant, dans tous les types de circuits électroniques supraconducteurs basés sur l'utilisation de jonctions Josephson, les inhomogénéités entre les différentes jonctions constituant le circuit apparaissant lors de la fabrication peuvent être importantes et doivent être prises en compte avant ce processus. Il devient alors compliqué de contrôler les jonctions individuellement dans des systèmes complexes en utilisant la température ou le champ magnétique.

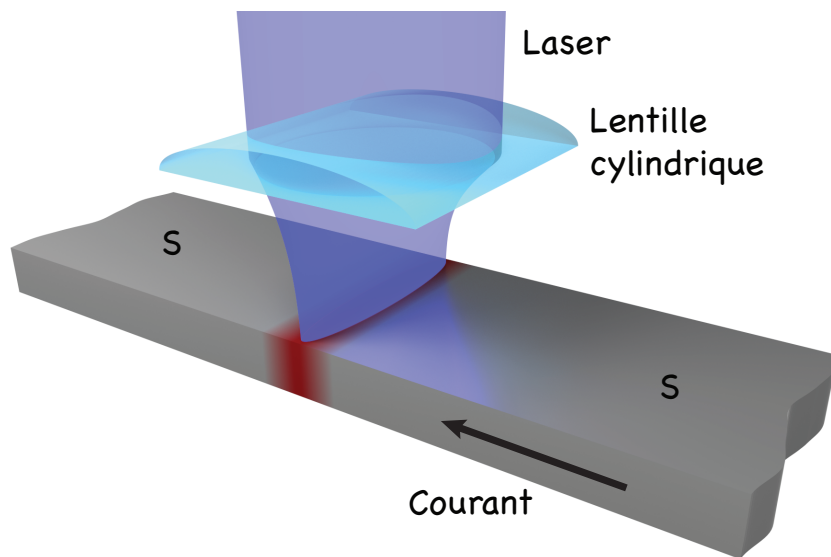


FIGURE V.1 – Schéma de principe de la création d’une jonction Josephson par irradiation laser.

Nous proposons ici de générer optiquement une jonction Josephson en partant d’un fil supraconducteur de niobium. Le lien faible entre les deux côtés du fil serait créé par la focalisation d’un faisceau laser sur le fil. Cela aurait pour effet d’augmenter la température localement et ainsi de créer une zone normale ou faiblement supraconductrice située entre deux électrodes supraconductrices. L’atout de cette méthode réside dans le fait que l’utilisation de l’optique permettrait un contrôle précis et rapide des propriétés de la jonction en temps réel, rendant ainsi le système complètement versatile. De plus, cette méthode pourrait être parallélisée dans le but de créer et contrôler de multiples jonctions Josephson indépendamment les unes des autres.

V.1. Résolution des équations de GL à 1D dans le cas d’une distribution de température non-uniforme

Nous allons maintenant calculer l’effet que provoque le chauffage local d’un fil supraconducteur sur son courant critique et sur l’éventuelle différence de phase introduite entre les deux électrodes ainsi créées. Pour cela, il est nécessaire de résoudre les équations de Ginzburg-Landau en l’absence de champ magnétique dans le cas où la température le long du fil n’est pas uniforme. Nous choisirons ici un modèle à une dimension qui nous permettra de simplifier les calculs numériques.

V.1.1. Équations de Ginzburg-Landau

Il a déjà été montré expérimentalement [136] qu’une irradiation lumineuse pouvait induire une modification du courant critique d’un fil supraconducteur par effet Josephson. Cependant, dans ces travaux, le lien faible est créé en illuminant en champ large un fil supraconducteur recouvert d’un masque qui permet de ne chauffer ce dernier que sur un ruban de quelques centaines nanomètres de large. Nous souhaitons ici utiliser une nouvelle

méthode ne demandant pas de lithographie autre que celle nécessaire pour déposer le fil supraconducteur sur son substrat. Nous proposons d'irradier ce fil avec un faisceau laser focalisé à la limite de diffraction pour créer une élévation de température la plus localisée possible, ce qui aura pour effet d'affaiblir le caractère supraconducteur du fil pour créer un lien faible entre les deux parties supraconductrices (figure V.1). L'avantage d'utiliser un laser pour créer une jonction Josephson est que ce dernier permet un contrôle rapide et précis du profil de température et donc du lien faible, permettant ainsi de manipuler les propriétés de la jonction Josephson en temps réel.

Des travaux théoriques montrent comment une perturbation locale pouvant agir sur la température critique ou la longueur de cohérence peut affaiblir la supraconductivité localement et donner lieu à l'apparition d'une relation courant-phase telle qu'attendue dans le cas d'une jonction Josephson [137, 138, 139]. Cependant, il nous faut ici considérer une température non uniforme pouvant avoir une distribution spatiale quelconque. Pour cela, il nous faut résoudre ce problème numériquement. Afin de simplifier les calculs, nous nous placerons dans le cas d'un supraconducteur unidimensionnel en supposant une épaisseur inférieure au rayon R de la tache focale du laser et à la longueur de cohérence ξ du supraconducteur. L'intensité laser ayant une distribution gaussienne à la surface du fil, nous supposerons dans un premier temps que la distribution de température est elle aussi gaussienne et est décrite par l'équation suivante :

$$T(x) = T_\infty + \Delta T \exp\left(-\frac{x^2}{2x_0^2}\right), \quad (\text{V.1})$$

où T_∞ est la température de l'échantillon lorsque $x \rightarrow \infty$, ΔT est l'élévation de température maximale créée par le laser et x_0 est la taille du point chaud liée à sa largeur à mi-hauteur par $FWHM = 2\sqrt{2 \ln 2}x_0$.

Dans le cas où le couplage entre les deux côtés électrodes est faible, la relation courant-phase peut s'écrire :

$$I(\varphi) = I_c \sin(\varphi). \quad (\text{V.2})$$

Si on se place dans cette situation, il est possible de calculer le courant critique de la jonction en calculant son énergie pour deux valeurs de différence de phase : 0 et π . On a alors :

$$E(\pi) - E(0) = \frac{\hbar I_c}{e}. \quad (\text{V.3})$$

Cependant, la relation (V.2) n'est valable que lorsque la température est proche de la température critique. Or nous voulons être capables de calculer le courant critique quelles que soient l'élévation de température et la température initiale. Dans cette situation, la relation courant-phase se déforme et il est nécessaire de considérer des termes d'ordre supérieur en φ .

Pour cela, nous allons donc résoudre l'équation de Ginzburg-Landau dans le cas où le paramètre d'ordre est complexe et a pour expression $\Psi = \psi e^{i\varphi}$. L'énergie libre du supraconducteur étant donnée par :

$$F = \alpha(T(x) - T_c)|\Psi|^2 + \frac{\hbar^2}{4m}|\nabla\Psi|^2 + \frac{b}{2}|\Psi|^4, \quad (\text{V.4})$$

sa minimisation par rapport à Ψ permet d'obtenir :

$$\alpha(T(x) - T_c)\Psi - \frac{\hbar^2}{4m}\Psi'' + b\Psi^3 = 0, \quad (\text{V.5})$$

qui devient, après avoir remplacé Ψ par son expression en fonction de ψ et φ :

$$\alpha(T(x) - T_c)\psi - \frac{\hbar^2}{4m}[\psi'' + 2i\varphi'\psi' + i\varphi''\psi - \varphi'^2\psi] + b\psi^3 = 0. \quad (\text{V.6})$$

On peut alors séparer les parties réelle et imaginaire pour obtenir :

$$\alpha(T(x) - T_c)\psi - \frac{\hbar^2}{4m}[\psi'' - \varphi'^2\psi] + b\psi^3 = 0, \quad (\text{V.7})$$

et

$$2\varphi'\psi' + \varphi''\psi = 0. \quad (\text{V.8})$$

La seconde équation de Ginzburg-Landau (I.13) permet d'obtenir le courant circulant dans le fil :

$$j = -\frac{ie\hbar}{2m}[\Psi^*\nabla\Psi - \Psi\nabla\Psi^*]. \quad (\text{V.9})$$

En remplaçant Ψ par son expression, le courant s'écrit :

$$j = \frac{e\hbar}{m}\psi^2\varphi'. \quad (\text{V.10})$$

On déduit de l'équation (V.8) la condition de conservation du courant $\vec{\nabla} \cdot j = 0$. En remplaçant $\varphi' = mj/(e\hbar\psi^2)$ dans l'équation (V.7), on a :

$$\alpha(T(x) - T_c)\psi - \frac{\hbar^2}{4m}\left[\psi'' - \frac{m^2}{e^2\hbar^2}\frac{j^2}{\psi^3}\right] + b\psi^3 = 0. \quad (\text{V.11})$$

On pose maintenant $f = \psi/\psi_\infty$ où ψ_∞ est la valeur de ψ quand $x \rightarrow \infty$ en l'absence de courant appliqué. Cela conduit à :

$$\psi_\infty^2 = \frac{\alpha}{b}(T_c - T_\infty) = n_{s,0}\frac{T_c - T_\infty}{T_c}, \quad (\text{V.12})$$

avec $n_{s,0} = m/(\mu_0 e^2 \lambda_0^2)$ la densité de paires de Cooper à l'intérieur du supraconducteur à température nulle. Il devient alors possible de remplacer ψ par le paramètre d'ordre normalisé dans l'équation (V.7) :

$$\tau(x)f - \frac{\hbar^2}{4m\alpha(T_c - T_\infty)}f'' + \frac{m}{4e^2\alpha(T_c - T_\infty)}\frac{j^2}{f^3\psi_\infty^4} + f^3 = 0. \quad (\text{V.13})$$

Finalement, en introduisant les variables sans dimension :

$$\tilde{x} = \frac{x}{\xi_0}\sqrt{\frac{T_c - T_\infty}{T_c}}, \quad \tau(\tilde{x}) = \frac{T(\tilde{x}) - T_c}{T_c - T_\infty}, \quad J = \xi_0 \frac{m}{e\hbar n_{s,0}} \left(\frac{T_c}{T_c - T_\infty}\right)^{3/2} j, \quad (\text{V.14})$$

$$\tilde{x}_0 = \frac{x_0}{\xi_0}\sqrt{\frac{T_c - T_\infty}{T_c}}, \quad (\text{V.15})$$

avec $\xi_0 = \hbar/\sqrt{4m\alpha T_c}$, on obtient l'équation de Ginzburg-Landau sans dimension :

$$\tau(\tilde{x})f - \frac{d^2f}{d\tilde{x}^2} + \frac{J^2}{f^3} + f^3 = 0. \quad (\text{V.16})$$

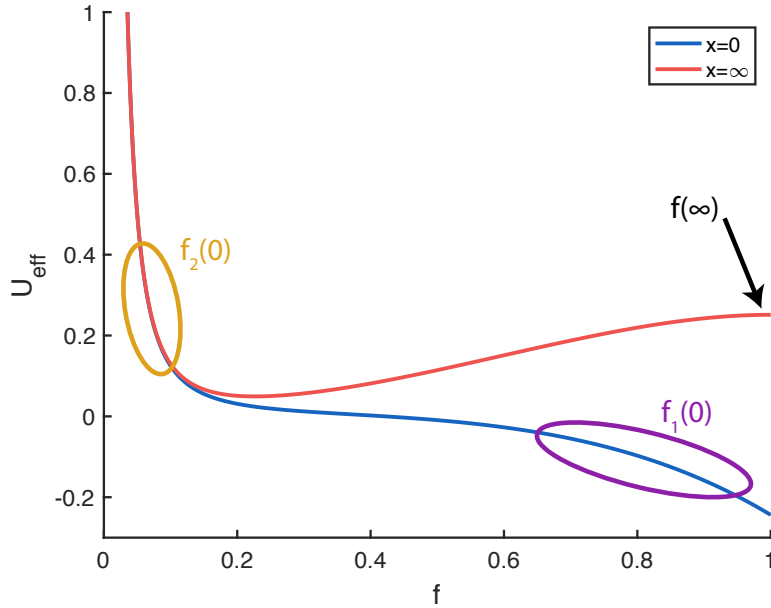


FIGURE V.2 – Évolution du potentiel effectif en fonction de f représentée en $\tilde{x} = 0$ et $\tilde{x} \rightarrow \infty$. En effet, le profil de température dépendant de \tilde{x} , le potentiel en dépend lui aussi. Ce cas est analogue à un potentiel central dépendant du temps en mécanique classique. Les zones encadrées correspondent aux zones dans lesquelles nous chercherons les conditions aux limites pour les deux solutions $f_1(0)$ et $f_2(0)$ de l'équation différentielle (V.16) (deux branches de la relation courant-phase).

V.1.2. Calcul du paramètre d'ordre

Il s'agit maintenant de déterminer $f(\tilde{x})$ pour un courant appliqué donné en résolvant cette équation différentielle. Cela permet ensuite, en utilisant $J = f^2(d\varphi/d\tilde{x})$, de déterminer le profil de phase de la jonction. La différence de phase Josephson φ est finalement obtenue en intégrant cette équation. La phase augmentant linéairement avec la distance \tilde{x} dans les électrodes, les bornes d'intégration doivent se situer dans cette zone. De plus, le profil de température (et par conséquent le paramètre d'ordre) étant symétrique, nous pouvons écrire :

$$\varphi = 2J \left[\int_0^\infty \frac{d\tilde{x}}{f(\tilde{x})^2} - \int_0^\infty \frac{d\tilde{x}}{f_\infty^2} \right]. \quad (\text{V.17})$$

Dans le but de visualiser la physique du problème, l'équation (V.16) peut être réécrite de la façon suivante :

$$\frac{d^2 f}{d\tilde{x}^2} - f \left(\frac{d\varphi}{d\tilde{x}} \right)^2 - f^3 - \tau(\tilde{x})f = 0. \quad (\text{V.18})$$

Cela permet de raisonner par analogie avec le mouvement d'une particule classique dans un potentiel central [140]. Si l'on considère f et φ comme étant les coordonnées radiale et angulaire d'une particule de masse unité et que \tilde{x} représente le temps, alors les deux premiers termes de l'équation (V.18) représentent l'accélération radiale de cette particule. L'équation (V.8) est équivalente au principe de conservation du moment angulaire. Si l'on

utilise $J = f^2(d\varphi/d\tilde{x})$ pour éliminer $d\varphi/d\tilde{x}$, alors l'équation (V.18) peut s'écrire :

$$\frac{d^2 f}{d\tilde{x}^2} = -\frac{d}{df} \left[-\frac{f^4}{4} - \tau \frac{f^2}{2} + \left(\frac{T_c}{T_c - T_\infty} \right)^2 \frac{J^2}{2f^2} \right] \quad (\text{V.19})$$

$$= -\frac{dU_{eff}}{df}, \quad (\text{V.20})$$

où U_{eff} est le potentiel effectif radial dans lequel se déplace la particule. La forme de ce potentiel est représentée en figure V.2.

Les conditions aux limites adaptées à notre problème sont $f'(\tilde{x} = 0) = 0$ et $f'(\tilde{x} \rightarrow \infty) = 0$. De plus, lorsque \tilde{x} tend vers l'infini, la température est uniforme et le paramètre d'ordre f tend vers sa valeur stationnaire qui est égale à 1 en l'absence de courant appliqué. Ces conditions aux limites permettent de réaliser, en regardant la figure V.2, que l'équation (V.16) comporte deux solutions $f_1(\tilde{x})$ et $f_2(\tilde{x})$ se distinguant par des conditions initiales $f_1(\tilde{x} = 0)$ et $f_2(\tilde{x} = 0)$ différentes. Il est possible de montrer que la solution minimisant l'énergie libre du système correspond à la solution mécaniquement instable du potentiel présenté en figure V.2, rendant la solution plus compliquée à résoudre numériquement. Nous procéderons donc ici par dichotomie : pour une branche donnée, nous convergeons vers la bonne valeur initiale du paramètre d'ordre en observant son comportement à l'infini. Si le paramètre d'ordre oscille, alors la valeur initiale est trop faible pour la première branche, tandis que si le paramètre d'ordre diverge, la valeur initiale est trop grande. Le comportement est opposé pour la seconde branche (figure V.2).

Nous sommes ainsi capables d'évaluer $f_1(\tilde{x} = 0)$ et $f_2(\tilde{x} = 0)$ avec précision pour différentes valeurs de courant appliqué. Cela permet de calculer les deux solutions $f_{1,2}(\tilde{x})$ de l'équation (V.18) pour des valeurs de τ et J données. Par exemple, si on considère $\tilde{x}_0 = 1$ et $J = 0.15$, il est possible d'obtenir l'évolution du paramètre d'ordre et de la phase le long de l'axe de la jonction pour différents profils de température (figure V.3).

V.1.3. Calcul de la relation courant-phase

Il est ensuite possible de résoudre cette équation pour différentes valeurs de J et de $\delta\tau$ (où $\delta\tau = (\Delta T - T_c)/(T_c - T_\infty)$) afin d'obtenir l'évolution de la relation courant-phase en fonction de la température (figure V.4.a)). Pour cela, nous utilisons tout d'abord $\tilde{x}_0 = 1$. On remarque alors qu'au fur et à mesure que la température maximale augmente, la forme de la relation courant-phase se rapproche d'un sinus. Cela se comprend facilement en considérant le couplage entre les deux électrodes. En effet, pour une température initiale donnée, lorsque la température locale augmente, le couplage entre les deux électrodes devient de plus en plus faible. Cela correspond au cas d'une jonction Josephson classique portée à une température proche de sa température critique. L'expression de la relation courant-phase d'une telle jonction est donnée par l'équation (V.2).

De plus, le courant critique est ici défini comme étant la valeur du courant appliqué pour laquelle l'équation (V.18) n'admet plus qu'une unique solution. Cela correspond au maximum de la relation courant-phase. Le calcul de la relation courant-phase permet donc aussi d'obtenir une valeur de courant critique pour un profil de température donné. La figure V.4.b) montre comment évolue le courant critique de la jonction en fonction de

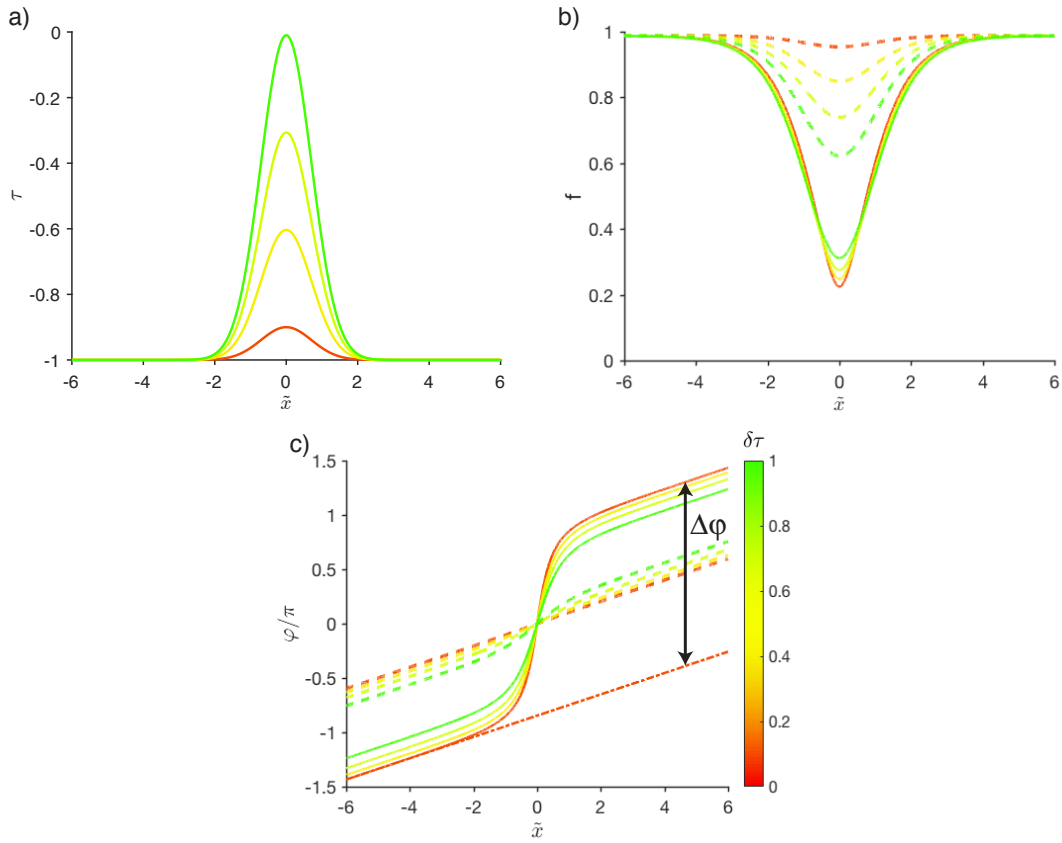


FIGURE V.3 – Évolution des différentes variables le long de l’axe de la jonction pour différents profils de température avec $\tilde{x}_0 = 1$ et $J = 0.15$. a) Profils de température. b) Profils du paramètre d’ordre correspondant aux profils de température de la figure a). c) Évolutions de la phase le long de l’axe de la jonction correspondant aux profils de température de la figure a). Les traits pleins et les pointillés des figures b) et c) représentent les deux solutions de l’équation (V.18) pour un profil de température donné.

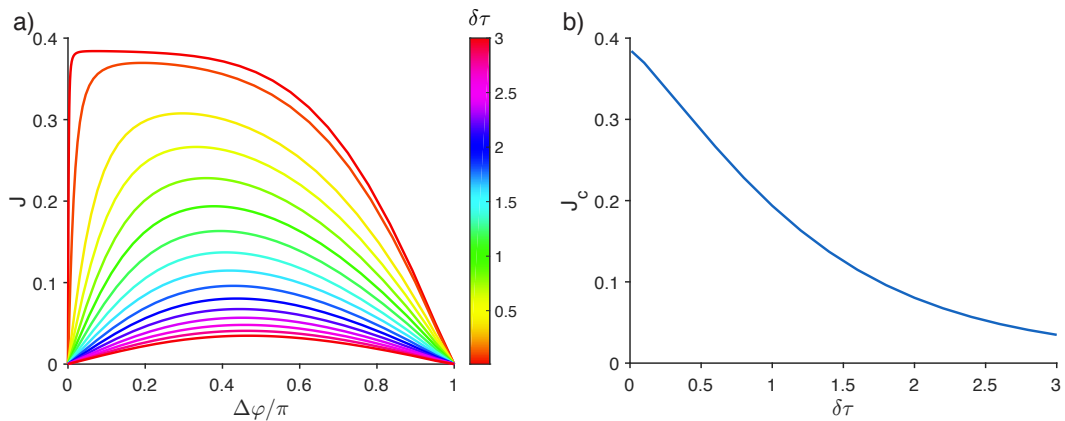


FIGURE V.4 – Propriétés de la jonction créée par laser. a) Relation courant-phase pour différentes valeurs du température maximale du profil de température. b) Évolution du courant critique en fonction de l’élévation de température maximale du profil de température.

$\delta\tau$. On remarque alors qu'il est possible de réduire le courant critique de la jonction en augmentant simplement la température maximale du profil de température, ce qui se traduit en pratique par l'augmentation de la puissance du laser. Sur cette figure, pour $\delta\tau = 3$, le courant critique est réduit de plus de 75 %.

V.1.4. Marches de Shapiro

Nous avons vu dans le chapitre I que lorsqu'une onde électromagnétique de pulsation ω_r est envoyée sur une jonction Josephson, celle-ci a pour effet de provoquer des oscillations de tension à ses bornes. Cela se traduit sur la caractéristique courant-tension de la jonction par l'apparition de marches de courant lorsque la tension aux bornes de la jonction est égale à :

$$V_n = \frac{\hbar}{2e}\omega_r n, \quad (\text{V.21})$$

où n est un entier positif.

Sachant cela, il est possible d'imaginer une jonction Josephson créée par laser, irradiée par une onde électromagnétique radio-fréquence de pulsation ω_r . Si l'intensité du laser est modulée à la pulsation ω_L et que la période des oscillations correspondante est supérieure au temps de réponse thermique du système, cela résulte en une modulation du courant critique de la jonction à la même pulsation. Si on se place maintenant dans le cas où le chauffage laser est suffisamment important pour que la relation courant-phase soit sinusoidale, alors on peut écrire :

$$j(t) = [j_{c,0} + j_{c,1} \sin(\omega_L t)] \times \sin \left[\omega_f t + \frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \sin(\omega_r t) + \varphi_0 \right], \quad (\text{V.22})$$

avec $\omega_f = 2eV_0/\hbar$. En suivant le même raisonnement que pour les marches classiques, on obtient finalement :

$$\begin{aligned} j(t) = & j_{c,0} \left[J_0 \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) \sin(\omega_f t + \varphi_0) \right. \\ & \left. + \sum_{n=1}^{\infty} J_n \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) \{ \sin[(n\omega_r + \omega_f)t + \varphi_0] - (-1)^n \sin[(n\omega_r - \omega_f)t + \varphi_0] \} \right] \\ & + \frac{j_{c,1}}{2} \left[J_0 \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) \{ \cos[(\omega_f - \omega_L)t + \varphi_0] - \cos[(\omega_f + \omega_L)t + \varphi_0] \} \right. \\ & \left. + \sum_{n=1}^{\infty} J_n \left(\frac{\omega_f V_1}{\omega_r V_0} \right) [\{ \cos[(n\omega_r - \omega_L + \omega_f)t + \varphi_0] - \cos[(n\omega_r + \omega_L + \omega_f)t + \varphi_0] \} \right. \\ & \left. - (-1)^n \{ \cos[(n\omega_r - \omega_L - \omega_f)t + \varphi_0] - \cos[(n\omega_r + \omega_L - \omega_f)t + \varphi_0] \}] \right]. \end{aligned} \quad (\text{V.23})$$

On en déduit alors que le résultat est la somme d'un terme proportionnel à $j_{c,0}$ donnant lieu aux marches de Shapiro usuelles (cf. équation (I.44)) et d'un terme proportionnel à $j_{c,1}$ qui fait apparaître des marches supplémentaires pour :

$$\omega_f = n\omega_r \pm \omega_L. \quad (\text{V.24})$$

L'amplitude de ces marches satellites situées de part et d'autres des marches de Shapiro usuelles dépend de la puissance laser et est égale à :

$$\delta j_n = j_{c,1} |J_n(nV_1/V_0)| / 2. \quad (\text{V.25})$$

On remarque alors que la radiation permet non seulement de créer une jonction Josephson et de contrôler ses propriétés de transport, mais aussi de contrôler activement les propriétés dynamiques de cette jonction.

V.2. Estimation du courant critique pour une structure réelle

Nous allons maintenant calculer le courant critique correspondant à un profil de température simulé pour une structure réelle. Dans un premier temps nous verrons quelles doivent être les caractéristiques de l'échantillon pour que le profil de température soit le plus étroit possible. De plus, l'échantillon ayant une épaisseur finie, nous devons faire en sorte que le profil de température soit le plus uniforme possible dans l'épaisseur du supraconducteur (axe z).

V.2.1. Description du modèle utilisé

Afin d'optimiser les paramètres de l'échantillon, nous allons résoudre l'équation de la chaleur pour un échantillon de longueur l et de largeur w ayant la géométrie montrée en figure V.5. En ce qui concerne la source laser, nous considérerons un pinceau de lumière focalisé à la limite de diffraction dans la direction x que nous modéliserons par une source de chaleur volumique ayant l'expression suivante :

$$Q(x, z) = \frac{P_{\text{in}}}{\sqrt{2\pi}x_0w\delta \left[1 - \exp\left(-\frac{t_{SC}}{\delta}\right)\right]} \exp\left(-\frac{x^2}{2x_0^2}\right) \exp\left(\frac{z}{\delta}\right), \quad (\text{V.26})$$

où P_{in} est la puissance laser incidente sur l'échantillon, x_0 la taille de la tache focale du laser, δ l'épaisseur de peau du niobium et t_{SC} l'épaisseur de la couche de niobium. En effet, nous allons utiliser des épaisseurs de niobium pouvant être comparables à l'épaisseur de peau de ce dernier ($\delta = 15$ nm). C'est pourquoi nous prenons en compte le chauffage dans le volume. Ce modèle simplifié ne tient pas compte du chauffage des couches situées en dessous de la couche supraconductrice (nous considérerons que tous les photons sont absorbés par le supraconducteur uniquement). De plus, la réflexion du laser à l'interface entre le niobium et la couche sur laquelle il est déposé n'est pas non plus prise en compte.

V.2.2. Optimisation de la géométrie de l'échantillon

Le matériau supraconducteur que nous utiliserons ici est le Niobium. Nous considérerons un fil de longueur l et de largeur w composé de deux couches : un substrat d'épaisseur t_{SUB} et de conductivité thermique k_{SUB} sur lequel est déposé un matériau supraconducteur d'épaisseur t_{SC} et de conductivité thermique k_{SC} . Pour le niobium, nous utiliserons les mêmes caractéristiques thermiques que celles employées pour la simulation des profils de température au chapitre IV. En ce qui concerne la conductivité thermique du substrat, celle-ci doit être choisie de telle sorte que le profil de température dans le supraconducteur soit le plus étroit possible. Or, pour cela, il semble logique de choisir un substrat ayant une conductivité thermique bien supérieure à celle du supraconducteur. En effet, si le substrat possède une conductivité inférieure ou comparable à celle du supraconducteur, alors la chaleur ne pourra être évacuée de l'échantillon et elle restera "stockée" dans la couche supraconductrice. Il s'en suivra donc un élargissement du profil de température. En re-

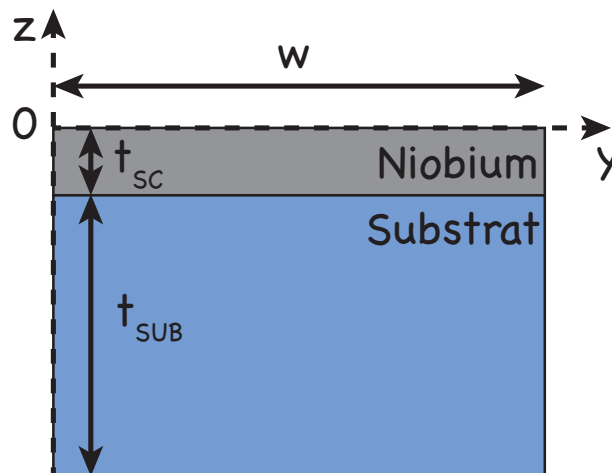


FIGURE V.5 – Géométrie de base de l'échantillon.

vanche, un substrat ayant une conductivité thermique la plus élevée possible agira comme un siphon et évacuera la chaleur de la couche supraconductrice très efficacement, évitant ainsi un élargissement du profil de température. Le supraconducteur sera donc déposé sur du saphir ou du silicium possédant une conductivité thermique relativement importante aux températures considérées par rapport au niobium.

Il s'agit maintenant de choisir les épaisseurs des différentes couches. Nos simulations numériques permettant de résoudre l'équation de la chaleur montrent que si l'épaisseur du substrat est supérieure à 100 nm, la forme du profil de température à la surface de la couche supraconductrice n'est plus dépendante de cette épaisseur. Nous choisirons donc un substrat de 500 nm d'épaisseur pour effectuer nos calculs. En fait, les substrats sont généralement plus épais mais augmenter l'épaisseur de ce dernier augmenterait considérablement le nombre de points du maillage et donc le temps de calcul.

La figure V.6 montre l'évolution de la largeur du profil de température lorsque l'épaisseur de la couche supraconductrice varie. On remarque alors que cette évolution comporte un minimum local entre 15 et 20nm. Nous choisirons donc une épaisseur de 15 nm qui permet d'obtenir une largeur à mi-hauteur du profil de température de l'ordre de 470 nm.

Les paramètres pour minimiser la taille du profil de température à la surface de la couche supraconductrice étant optimisés, nous devons faire en sorte que ce profil de température soit le plus uniforme possible selon la profondeur du matériau. Le fait de déposer le matériau supraconducteur sur un substrat ayant une forte conductivité thermique induit l'apparition d'un flux de chaleur important allant du supraconducteur vers le substrat. Cela se traduit par un fort gradient thermique dans le supraconducteur orienté selon l'axe z , rendant le profil de température très peu uniforme dans cette direction. Afin de résoudre ce problème, une solution consiste à ajouter un matériau isolant comme du SiO_2 entre le substrat et le supraconducteur. Cela aura pour effet de réduire le gradient thermique au détriment de la taille du profil de température et de la température maximale qui augmenteront. Même si l'augmentation de la température maximale n'est pas un problème en soi (il suffit de réduire la puissance du laser en compensation), l'augmentation de la taille du profil de température peut être réduite en choisissant l'épaisseur adéquate pour cette couche isolante.

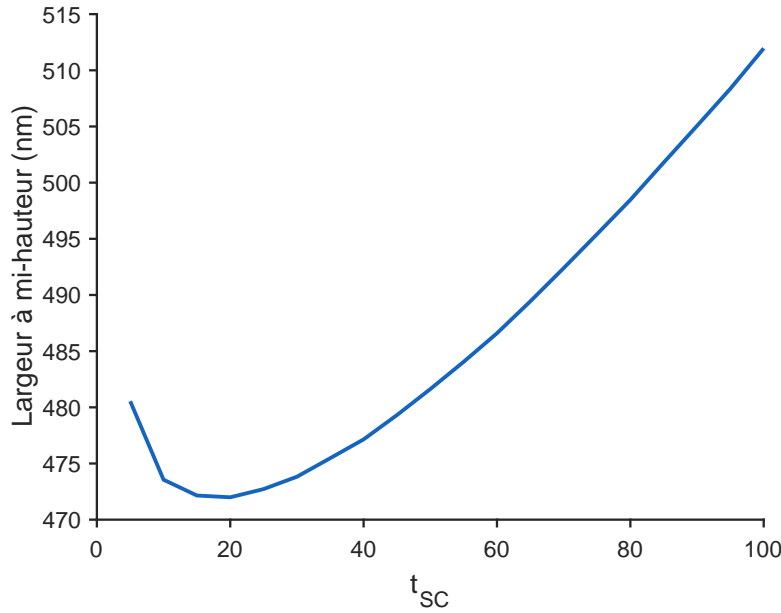


FIGURE V.6 – Évolution de la largeur à mi-hauteur du profil de température en fonction de l'épaisseur de la couche supraconductrice pour un laser de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm et de puissance $P_{in} = 20 \mu\text{W}$ focalisé avec une taille de $x_0 = 200$ nm sur notre échantillon initialement refroidi à 4 K.

On remarque alors sur la figure V.7.a) que la couche de SiO_2 augmente la largeur à mi-hauteur du profil de température. Afin de limiter cet élargissement, il faut faire en sorte que l'épaisseur de cette couche soit la plus fine possible. Les figures V.7.b) et c) permettent de comparer les profils de température des faces supérieure et inférieure de la couche de niobium. On voit ici que le rapport des largeurs à mi-hauteur est très proche de 1 et n'est quasiment pas affecté par l'épaisseur de la couche isolante. En revanche, le rapport des températures maximales de ces deux profils n'est pas insensible à des changements d'épaisseur de SiO_2 . Ce rapport augmente lorsque l'épaisseur de la couche tend vers 0. Cependant, nous pouvons voir que les variations relatives de ce rapport restent faibles. Nous choisirons donc une épaisseur de 15 nm qui permet de limiter l'élargissement du profil de température tout en maintenant une bonne homogénéité du profil de température selon l'axe z . Finalement, la figure V.8 permet de comparer l'homogénéité du profil de température selon l'axe z avec et sans cette couche isolante. Finalement, nous avons pu calculer le temps de réponse thermique de cet échantillon (figure V.9). Cette géométrie permet d'atteindre un temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde. Rendant ainsi possible l'utilisation de dispositifs supraconducteurs dont le fonctionnement est basé sur de telles jonctions à des cadences de l'ordre du GHz, ce qui est très intéressant du point de vue des applications potentielles en électronique supraconductrice.

V.2.3. Calcul des propriétés de la jonction Josephson

La connaissance des paramètres de l'échantillon nous permet maintenant de calculer un profil de température pour une puissance laser absorbée donnée. Comme nous avons pris soin de choisir les paramètres de l'échantillon de sorte que le profil de température

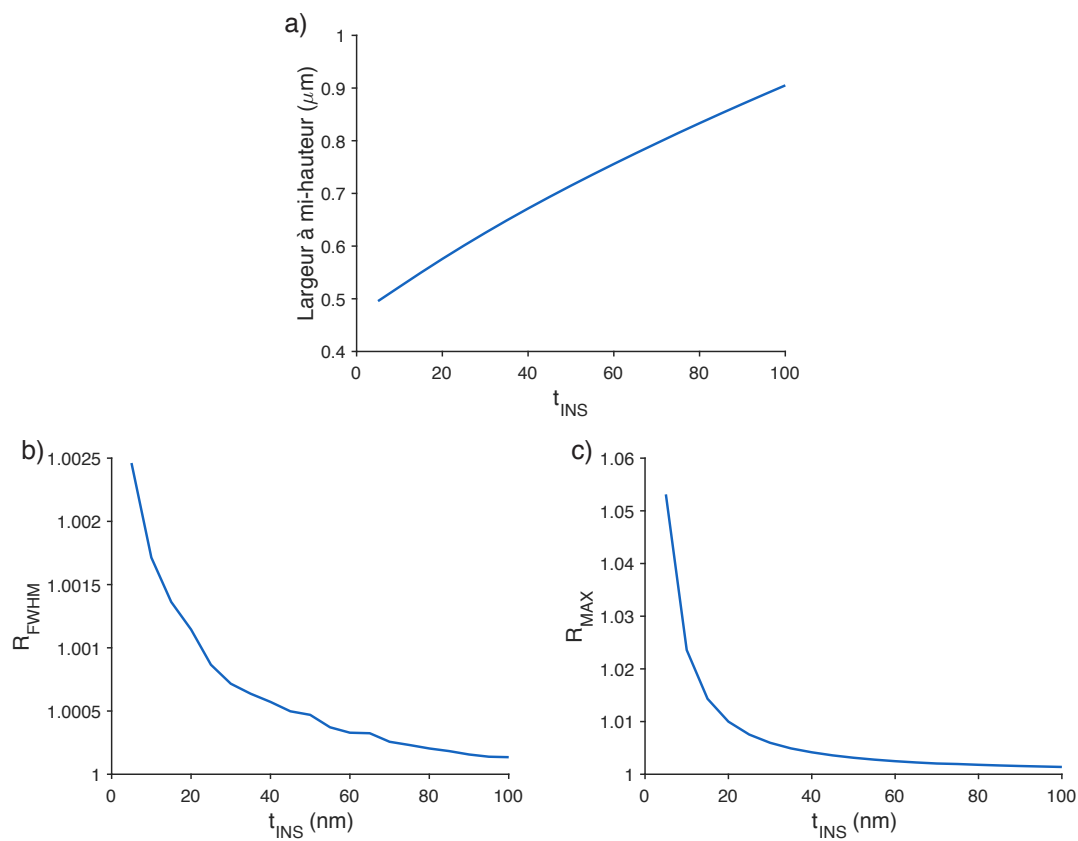


FIGURE V.7 – Influence de l'épaisseur d'une couche de SiO₂ intercalée entre le substrat et le supraconducteur sur différents aspects du profil de température. a) Évolution de la largeur à mi-hauteur du profil de température à la surface de l'échantillon. b) Évolution du rapport entre le maximum de température à la surface de l'échantillon et celui à l'interface entre le niobium et le SiO₂. c) Évolution du rapport entre la largeur à mi-hauteur du profil de température à la surface de l'échantillon et celui à l'interface entre le niobium et le SiO₂.

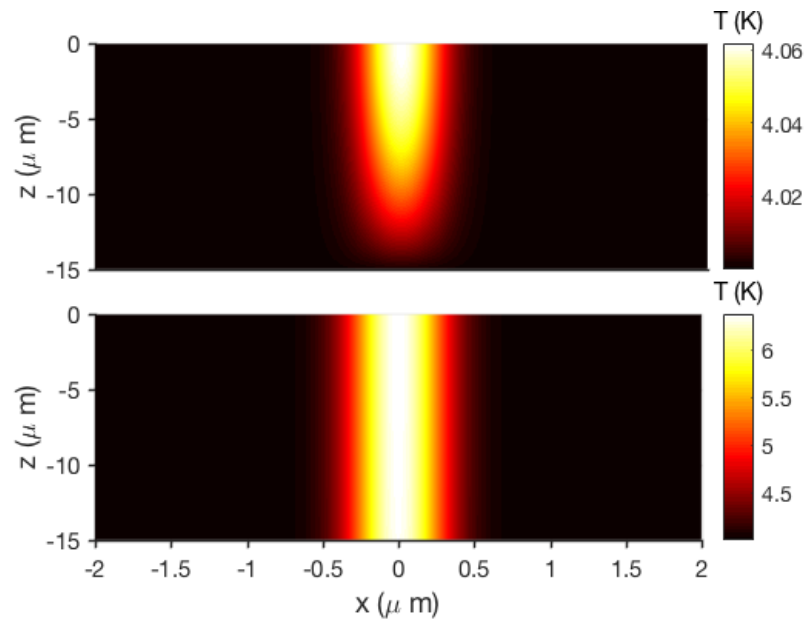


FIGURE V.8 – Coupe 2D dans le plan xz montrant la répartition de la température pour un laser de $20 \mu\text{W}$ focalisé sur l'échantillon de niobium à la limite de diffraction à travers un objectif d'ouverture numérique $N.A. = 0.8$. a) Sans couche de SiO_2 . b) Avec une couche de SiO_2 de 15 nm d'épaisseur.

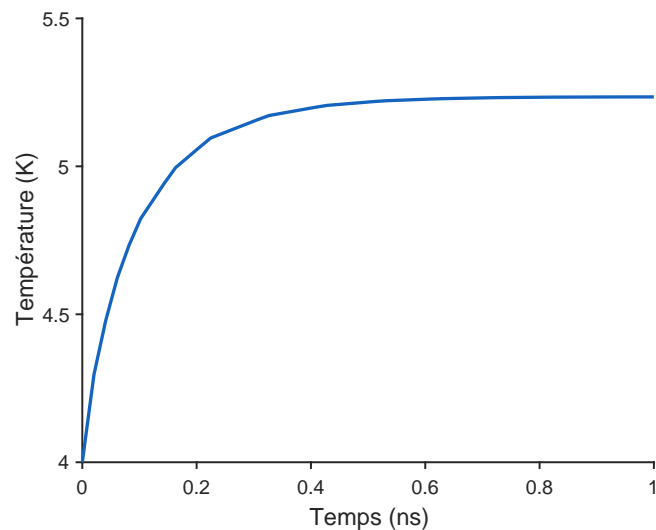


FIGURE V.9 – Évolution temporelle de la température au centre de l'échantillon suite à la focalisation d'un faisceau laser de longueur d'onde $\lambda = 405 \text{ nm}$ et de puissance $P_{\text{in}} = 5 \mu\text{W}$ avec travers un objectif d'ouverture numérique 0.8 .

selon l'axe z soit le plus uniforme possible, nous n'allons considérer par la suite que le profil de température à la surface de l'échantillon. Ce profil sera calculé numériquement puis remplacera le profil gaussien utilisé pour effectuer les premiers calculs.

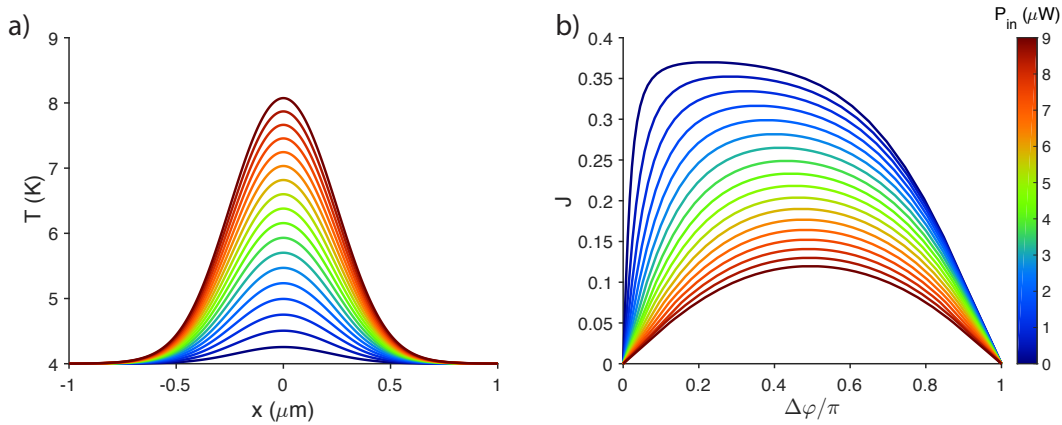


FIGURE V.10 – Évolution du profil de température et de la relation courant-phase en fonction de la puissance laser incidente pour un supraconducteur avec $\xi_0 = 100$ nm et $T_c = 9$ K. a) Profils de température à la surface du fil. b) Relations courant-phase du fil.

La figure V.10.a) montre l'évolution du profil de température avec la puissance laser incidente. En calculant la relation courant-phase pour chacun de ces profils, il est alors possible de calculer l'évolution de la relation courant-phase en fonction de la puissance laser incidente (figure V.10.b)). Nous avons choisi ici un supraconducteur avec $\xi_0 = 100$ nm et $T_c = 9$ K. En examinant chacun des profils de température, on remarque que ces derniers ont des formes se rapprochant fortement de gaussiennes. Ainsi, il devient possible de se contenter d'extraire l'élévation de température et la taille de chaque profil et de les reporter dans les calculs initiaux basés sur un profil gaussien.

Nous venons de voir qu'il est théoriquement possible de créer une jonction Josephson et de contrôler ses propriétés en temps réel en utilisant notre méthode. Nous allons maintenant présenter les premiers résultats expérimentaux que nous avons obtenus.

V.3. Résultats expérimentaux préliminaires

Nous venons de démontrer qu'il est théoriquement possible de réaliser des jonctions Josephson en focalisant un faisceau laser à la surface d'un fil supraconducteur. Dans cette partie, nous allons réaliser l'expérience correspondante. Pour cela, nous utiliserons un échantillon fourni dans le cadre d'une collaboration avec l'équipe de H. Courtois à l'Institut Néel de Grenoble.

V.3.1. Description du montage expérimental

L'expérience consiste à utiliser un faisceau laser de longueur d'onde $\lambda = 405$ nm focalisé sur un fil de niobium. L'échantillon utilisé comporte une multitude de fils supraconducteurs ayant des géométries différentes (en largeur et en longueur) avec une épaisseur de 20 nm V.11. L'échantillon est ensuite placé dans un cryostat à circuit fermé (voir chapitre II) afin

d'être refroidi en dessous de sa température critique.

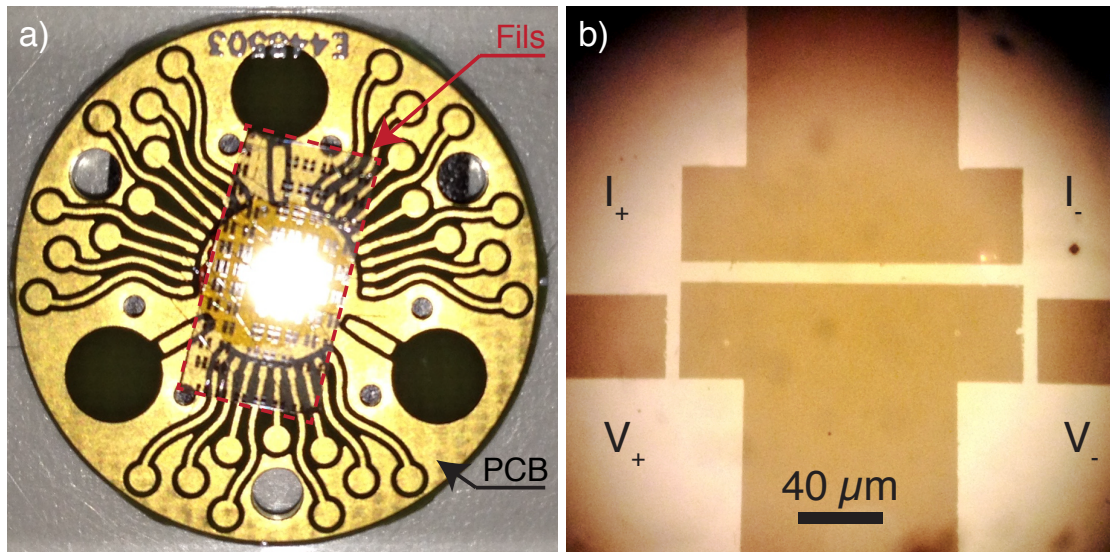


FIGURE V.11 – Photos de l'échantillon. a) Les fils sont connectés au PCB par micro-soudure en géométrie 4 fils. Les mesures de transport sont ensuite réalisées en connectant les contacts du PCB à notre appareil de mesure via les connexions présentes dans le cryostat. b) Zoom sur un fil d'épaisseur 20 nm, de largeur $8 \mu\text{m}$ et de longueur $160 \mu\text{m}$ observé au microscope optique.

Nous avons choisi un fil de largeur $W = 8 \mu\text{m}$ et de longueur $l = 160 \mu\text{m}$. Les fils sont connectés à un circuit imprimé par micro-soudure en géométrie 4 fils afin de s'affranchir de la contribution des contacts électriques à la résistance mesurée (nous ne mesurons que la résistance du fil) lors des mesures de transport. Afin de mesurer les caractéristiques $I(V)$ de ces fils, les contacts correspondant sont reliés à nos appareils de mesure via les connexions du cryostat. En raison des possibilités de connexions électriques limitées de notre cryostat, parmi tous les fils présents sur l'échantillon (plus de 60 fils au total sur chaque échantillon), nous n'avons pu en connecter qu'un seul à notre système de mesures électriques. Il nous a donc fallu choisir ce fil avec soin en les observant au microscope (figure V.11.b)). Pour cela, nous avons essentiellement prêté attention à la régularité de la largeur ainsi qu'à l'absence de trous et de coupures.

Le montage optique associé à cette expérience est relativement simple (figure V.13). Celui-ci est composé d'un laser de longueur d'onde $\lambda = 405 \text{ nm}$ qui est focalisé dans le plan focal arrière d'une lentille asphérique de distance focale $f = 4.5 \text{ mm}$ et d'ouverture numérique 0.5 à l'aide d'une lentille cylindrique de focale $f = 200 \text{ mm}$. Cette dernière lentille permet de focaliser le faisceau laser initialement gaussien selon une unique direction, créant un trait de lumière dans son plan focal qui est confondu avec le plan focal arrière de la lentille asphérique placée dans le cryostat. Cela permet d'utiliser la lentille asphérique à la fois pour focaliser le laser et pour observer la surface de l'échantillon. De plus, la lentille cylindrique peut tourner selon l'axe optique du montage de telle sorte que l'on puisse choisir l'orientation du trait lumineux pour qu'il soit orthogonal à la direction du fil supraconducteur (figure V.12). Cela nous permet de focaliser le faisceau dans la direction du fil avec une largeur à mi-hauteur de $FWHM = 1.03 \mu\text{m}$. Il faut noter que cette taille

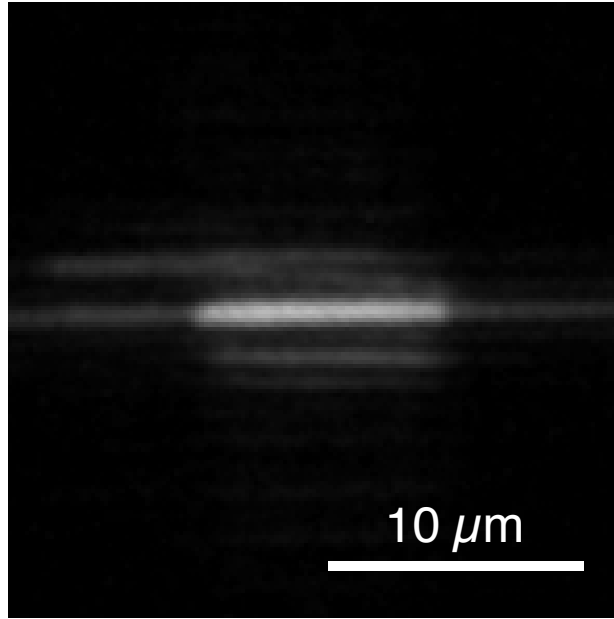


FIGURE V.12 – Image du faisceau laser focalisé sur l'échantillon. La partie la plus brillante correspond à l'intersection du faisceau laser focalisé et du ruban de niobium.

est loin de la limite de diffraction donnée par $1.22\lambda/2NA = 0.49 \mu\text{m}$. Cela est dû aux aberrations sphériques de la lentille placée dans le cryostat pour la longueur d'onde du laser utilisé. Le montage optique utilisé pour réaliser ces expériences est schématisé en figure V.13.

V.3.2. Caractérisation du fil supraconducteur utilisé

Dans cette partie, nous allons détailler toutes les mesures de transport permettant de caractériser le fil de niobium en l'absence de faisceau laser.

V.3.2.1. Résistance à température ambiante

Dans le but de vérifier la qualité des contacts et du fil, nous avons commencé par mesurer la résistance de notre échantillon à température ambiante. Pour cela, nous mesurons la caractéristique courant-tension du fil nous permettant de s'assurer que les soudures sont de bonne qualité et d'en déduire la résistance électrique du fil. Nous obtenons ainsi une résistance à température ambiante de $R_{293 \text{ K}} = 247.83 \Omega$, soit une résistivité de $\rho_{293 \text{ K}} = 2.48 \times 10^{-7} \Omega\cdot\text{m}$ qui est en accord avec les valeurs tabulées dans la littérature [141].

V.3.2.2. Résistance à basse température

Afin de caractériser les propriétés supraconductrices de notre échantillon, nous avons mesuré sa température de transition supraconductrice T_c ainsi que sa résistance dans l'état normal R_N (figure V.15).

Il est difficile d'en déduire T_c avec une précision suffisante (meilleure que 0.1 K). En effet, nous ne pouvons pas imposer de rampe de température à notre cryostat. Nous avons aussi mesuré la caractéristique courant-tension à une température supérieure à la température critique (ici, $T = 10 \text{ K}$), grâce à laquelle nous mesurons la résistance normale du fil $R_N = 79.75 \Omega$. Cela nous permet de calculer $\rho_{10 \text{ K}} = 7.98 \times 10^{-8} \Omega\cdot\text{m}$, soit un rapport

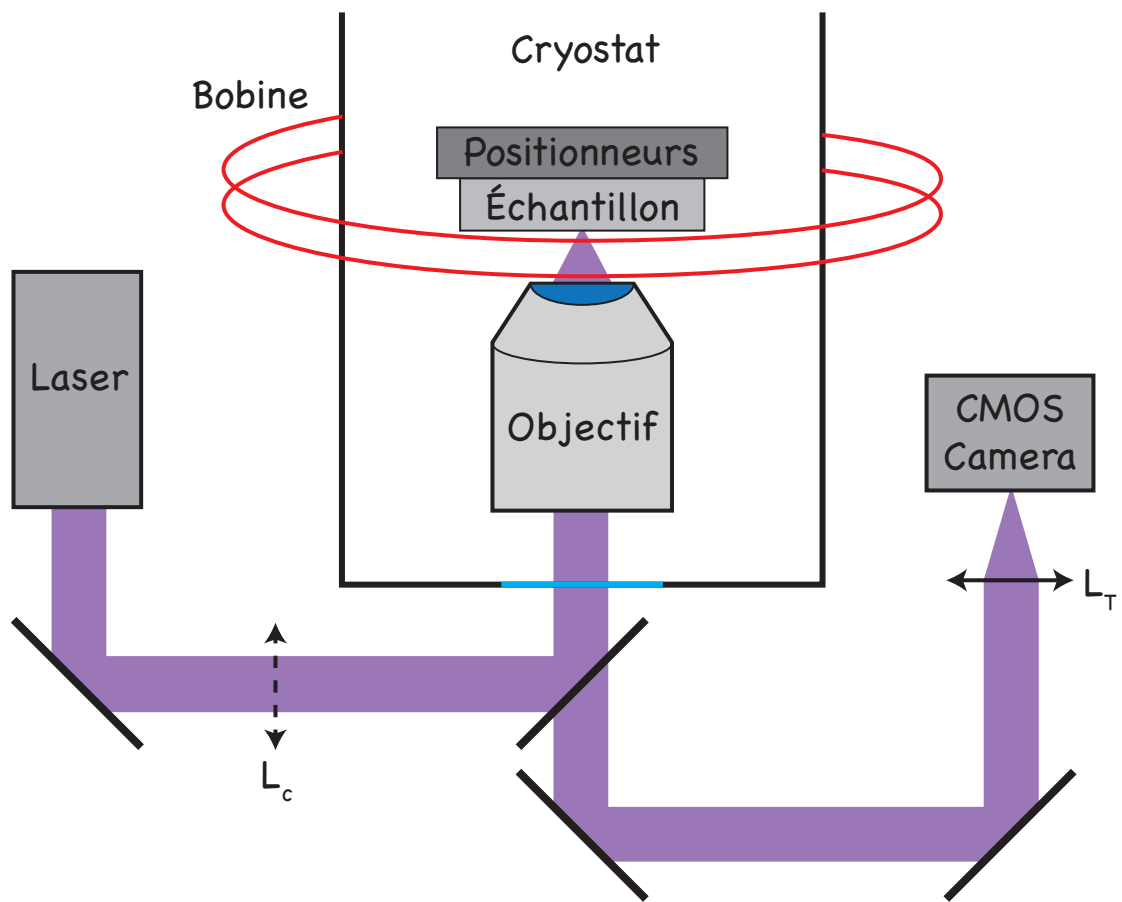


FIGURE V.13 – Schéma du montage optique utilisé pour générer une jonction Josephson optiquement à partir d'un fil de niobium.

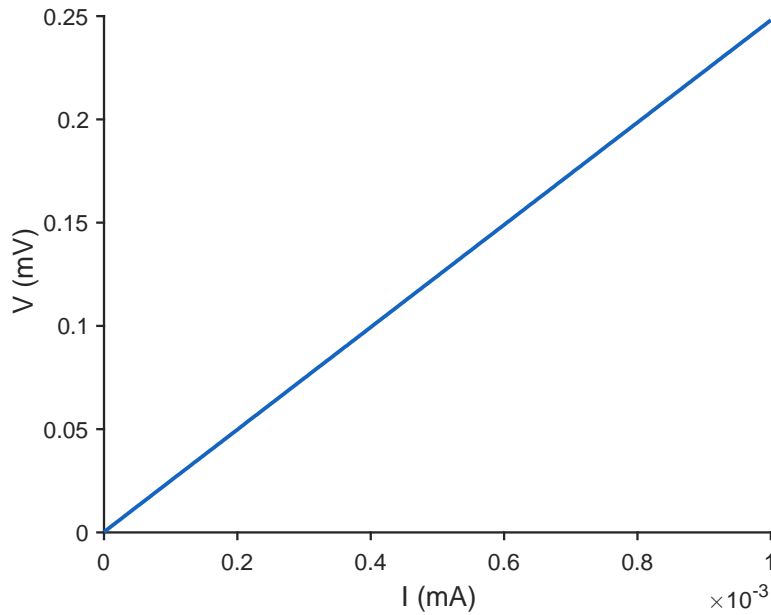


FIGURE V.14 – Variation de la tension aux bornes du fil en fonction du courant appliqué à une température de $T = 293$ K.

des résistivités résiduelles de $RRR = \frac{\rho_{298\text{ K}}}{\rho_{10\text{ K}}} = 3.1$. Cette valeur relativement faible peut s'expliquer par le fait que notre échantillon n'est pas très pur et contient une quantité importante de défauts.

V.3.2.3. Caractéristiques courant-tension pour $T < T_c$

Nous avons ensuite mesuré les caractéristiques $I(V)$ de notre échantillon dans l'état supraconducteur à différentes températures (figure V.16.a)). Ces mesures ont pour but de déterminer l'évolution du courant critique de notre fil en fonction de la température (figure V.16.b)).

Cela nous permet aussi d'en déduire la température critique de l'échantillon avec plus de précision en observant la température à partir de laquelle la caractéristique courant-tension devient linéaire. Dans notre cas, nous avons pu mesurer $T_c = 7.4$ K. Cette valeur est relativement basse pour du niobium qui est supposé avoir une température critique de 9 K. Cependant, cette température critique basse est cohérente avec la valeur de RRR très basse que nous avons trouvée.

La figure V.16.a) montre aussi qu'un phénomène d'hystérésis apparaît dans les caractéristiques courant-tension du fil étudié. En effet, les valeurs de courant critique sont différentes pour des valeurs de courant croissantes ou décroissantes. De plus, l'écart entre ces deux valeurs n'est pas constant et tend à décroître lorsque la température s'approche de la température critique. L'origine de cet effet est thermique [142, 143, 144] : lorsque le fil passe dans l'état normal ($I > I_c$), le chauffage par effet Joule entraîne une température électronique supérieure à celle des phonons. On a donc un bain d'électrons plus chauds que le bain de phonons. Le repiégeage des électrons en paires de Cooper ne se produit que lorsque la température électronique est égale à la température critique, c'est-à-dire lorsque le courant appliqué est de l'ordre du courant critique à la température électronique du fil,

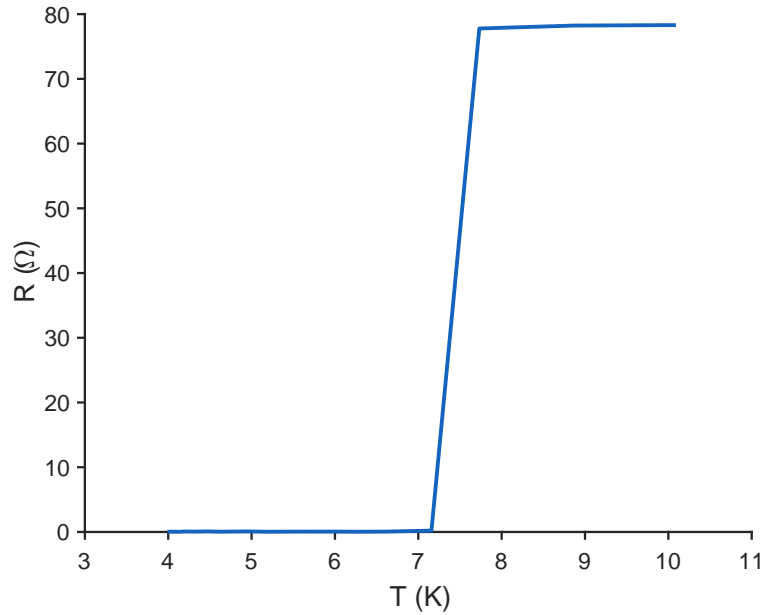


FIGURE V.15 – Variation de la résistance aux bornes du fil en fonction de la température pour un courant appliqué $I_{\text{bias}} = 1 \mu\text{A}$.

soit $I_r \approx I_c(T_e) < I_c(T)$ car $T > T_e$. Il en résulte une diminution du courant critique, créant ainsi une hystérésis dans la caractéristique courant-tension. Au-delà d'une certaine température T_h dite température de mélange (crossover temperature [144]), l'hystérésis n'est plus observée. Dans notre cas, nous avons mesuré $T_h = 7 \text{ K}$.

V.3.2.4. Caractéristiques courant-tension en présence du laser

Nous avons ensuite mesuré l'évolution du courant critique de notre fil en fonction de la puissance laser à 6 K pour différents régimes de puissance.

On peut remarquer sur la figure V.17 que l'application du faisceau laser a pour effet de réduire le courant critique de la jonction, confirmant nos attentes. Pour une puissance incidente de $P_{\text{in}} = 300 \mu\text{W}$, on observe une réduction de 30%. De plus, la forme de la courbe ressemble fortement au début de la courbe montrée en figure V.16. Cependant, réduire le courant critique est aussi possible en chauffant simplement le fil, sans besoin d'utiliser de faisceau laser (figure V.16). Cette courbe ne représente donc pas une signature de l'effet Josephson. Afin de s'assurer que l'effet observé est bien un effet Josephson, il est nécessaire d'obtenir une preuve directe. Pour cela, deux méthodes existent : l'observation de la figure de Fraunhofer dans la caractéristique courant critique-champ magnétique et l'observation de marches de Shapiro.

Pour nous, la méthode la plus simple est celle de l'observation de la figure d'interférence qui apparaît lorsqu'un champ magnétique est appliqué dans une direction perpendiculaire à la jonction et que l'on mesure le courant critique de la jonction en fonction de ce champ magnétique (voir chapitre I).

Cependant, si l'on veut pouvoir observer cette figure de Fraunhofer, il faut se placer dans le cas d'une jonction courte, c'est-à-dire pour laquelle $W \gg L, \xi$, où L est la longueur

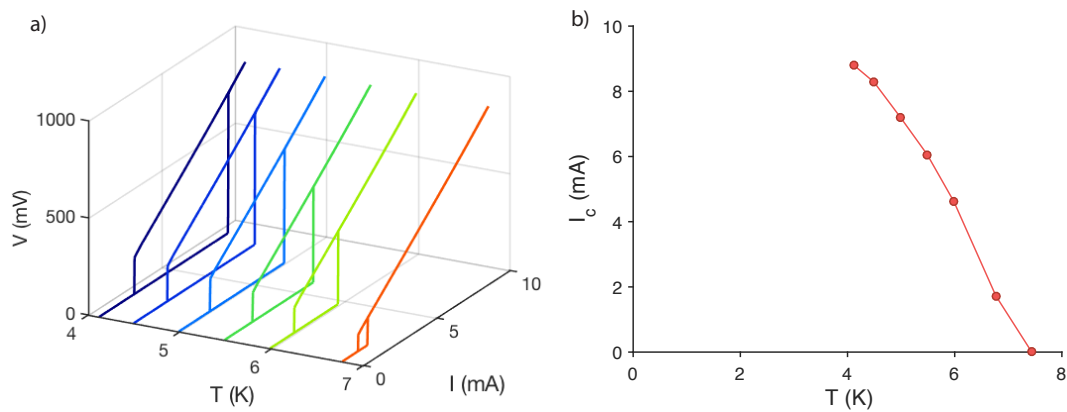


FIGURE V.16 – Caractéristiques courant-tension en fonction de la température du fil. a) Représentation des courbes $I(V)$ en fonction de la température. b) Évolution du courant critique du fil en fonction de la température.

du lien faible (figure I.5). De plus, il faut aussi avoir une épaisseur $d > \lambda_L$. Or l'échantillon que nous possédons ne comporte que des fils de 20 nm d'épaisseur, ce qui est inférieur à la longueur de pénétration de London. De plus, la longueur de la jonction dans notre cas étant donnée par la largeur du faisceau laser, nous avons $L \approx 1 \mu\text{m}$, ce qui est très grand devant $\xi \sim 10 \text{ nm}$. Or, si L est très supérieur à ξ , alors le recouvrement entre les parties droite et gauche du paramètre d'ordre dans la zone normale sera très faible et par conséquent, le taux de passage des paires de Cooper sera lui aussi très faible.

Nous avons tout de même essayé d'observer cette figure d'interférence. Pour faire cette mesure, nous nous plaçons à une température de $T = 4 \text{ K}$. Le laser est focalisé au centre du fil avec une puissance de $P_{\text{in}} = 1.7 \mu\text{W}$. Notre montage nous permet d'appliquer un champ magnétique extérieur à l'aide de deux bobines en configuration Helmholtz qui permettent d'atteindre des champs magnétiques de 40 G. Si on considère la géométrie actuelle de notre jonction, la première annulation du courant critique est supposée apparaître pour $B = 2.5 \text{ G}$.

La figure V.18 montre l'évolution du courant critique à puissance laser constante lorsque le champ magnétique appliqué varie. On remarque ici que même si le courant critique diminue faiblement lorsque le champ magnétique augmente, aucune annulation n'apparaît pour la fourchette de champ magnétique que nous avons balayée. Cela peut s'expliquer par au moins deux hypothèses simples :

- nous ne parvenons pas à créer de jonction Josephson avec le laser ;
- la géométrie de la jonction Josephson créée ne permet pas l'observation de la figure d'interférence.

Afin de conclure sur la possibilité ou non de créer une jonction Josephson par laser, une solution serait de créer cette dernière dans un circuit supraconducteur en configuration SQUID. En effet, un SQUID permet de mesurer la relation courant-phase d'une jonction inconnue. Pour cela, il suffit de focaliser notre laser sur une branche d'un anneau supraconducteur. La mesure du courant circulant dans le SQUID ainsi créé en fonction du flux

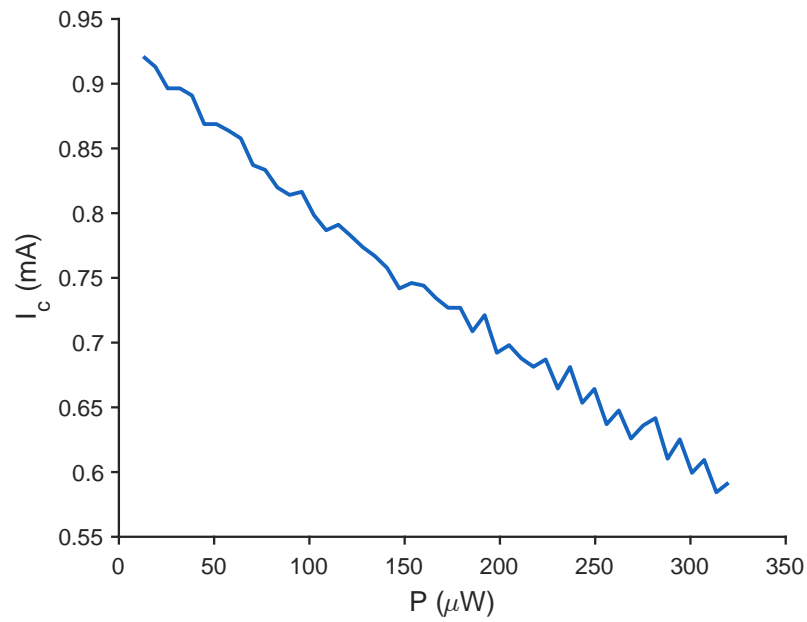


FIGURE V.17 – Évolution du courant critique du fil en fonction de la puissance laser mesurée à l'entrée du cryostat pour $T = 6$ K.

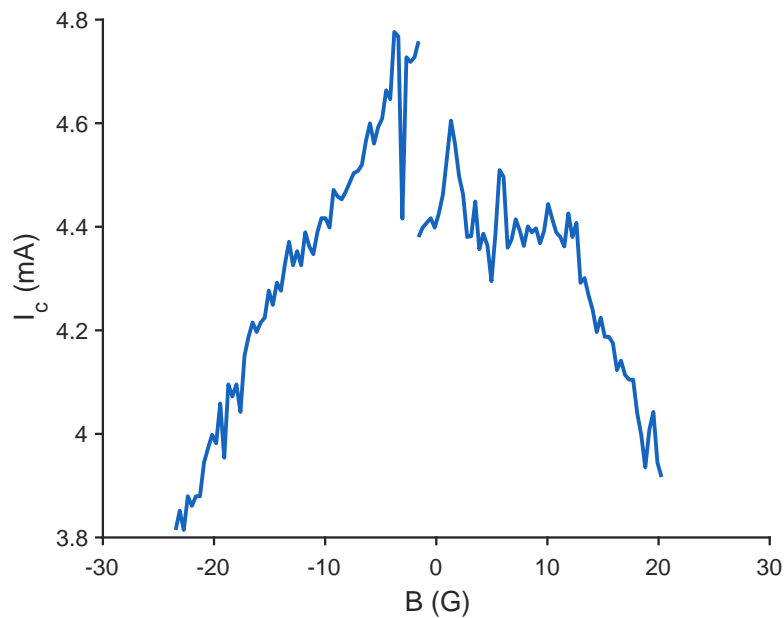


FIGURE V.18 – Variation du courant critique de la jonction en fonction du champ magnétique appliqué pour $T = 4$ K et $P_{\text{in}} = 1.7 \mu\text{W}$. Les deux courbes correspondent à deux sens opposés de l'application du champ magnétique.

magnétique piégé dans le SQUID permet d'avoir accès à la relation courant-phase de la jonction [145].

V.4. Conclusion

Nous avons pu résoudre l'équation de Ginzburg-Landau à une dimension en présence d'un profil de température non uniforme. Nous avons montré que si un laser est fortement focalisé sur un fil supraconducteur, l'élévation de température locale résultant de l'absorption du laser par le supraconducteur peut créer un lien faible entre les deux côtés du fil créant ainsi une jonction Josephson. Nos simulations nous permettent de calculer la relation courant-phase d'un tel dispositif, montrant ainsi qu'il est possible de contrôler le courant critique de la jonction en modifiant la puissance du laser. Nous avons aussi montré que le fait de moduler cette puissance laser en présence d'une onde radio-fréquences doit permettre de reproduire les marches de Shapiro. Les calculs ont révélé l'apparition de marches satellites provenant de la modulation rapide du courant critique.

Nous avons aussi pu réaliser les premières mesures expérimentales montrant qu'il est possible de contrôler le courant critique d'un fil supraconducteur à l'aide d'un faisceau laser. Cependant, ces résultats n'apportent pas de preuve directe de la création d'une jonction Josephson par cette méthode. Pour cela, nous avons prévu d'utiliser une configuration en SQUID, ce qui nous permettrait d'observer plus facilement la figure d'interférence de Fraunhofer dans la courbe montrant la variation du courant critique en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la jonction. Afin d'augmenter nos chances d'observer cet effet, il serait préférable de réduire la taille de la tache focale sur le ruban supraconducteur pour que celle-ci soit limitée par la diffraction, ce qui nécessitera l'utilisation d'un objectif de microscope ayant une grande ouverture numérique. Cependant, les objectifs de microscope ayant de fortes ouvertures numériques ($N.A. > 0.8$) possèdent souvent des distances de travail de l'ordre de la centaine de microns, demandant alors que les micro-soudures soient réalisées de sorte que le fil passe le plus près possible de la surface de l'échantillon ou que l'échantillon ait une conception différente.

Au regard des technologies actuelles, cette nouvelle méthode de création de jonctions Josephson peut permettre un bien meilleur contrôle du courant critique des jonctions Josephson dans des circuits supraconducteurs complexes, ce qui est aujourd'hui une forte limitation de cette technologie. De plus, en utilisant une technique d'illumination structurée, il serait possible d'imprimer un masque de phase sur un film supraconducteur pour créer des circuits supraconducteurs complexes. L'avantage de cette méthode est qu'il deviendrait alors possible de créer et de contrôler temporellement et rapidement les propriétés de ces circuits supraconducteurs avec des vitesses limitées uniquement par le temps de réponse du film supraconducteur utilisé, qui peut être de l'ordre de la nanoseconde.

Conclusion

Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'étude de supraconducteurs de types I et II à l'aide de diverses méthodes optiques. L'originalité des travaux menés dans cette thèse consiste en la combinaison de diverses méthodes optiques telles que l'imagerie magnéto-optique, la spectroscopie de molécules uniques, et le développement d'une nouvelle, celle des pinces optiques de vortex uniques, pour l'étude de la supraconductivité et des matériaux multiferroïques.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la détection et à la mesure du champ électrique créé par une rotation de l'aimantation hors du plan d'un grenat de fer pour apporter la première preuve expérimentale directe de l'existence de l'effet flexomagnétoélectrique. Pour détecter la polarisation électrique créée par le grenat, nous avons employé la spectroscopie de molécules uniques qui permet de détecter des déplacements de la fréquence de résonance par effet Stark des molécules utilisées de l'ordre d'une largeur de raie, soit une sensibilité à des champs électriques de l'ordre de 10^4 V/m. Cette méthode optique étant compatible avec l'imagerie magnéto-optique, nous avons mis au point un montage entièrement optique permettant à la fois de localiser les parois de domaines et les molécules uniques pour ensuite effectuer des mesures spectroscopiques sur ces molécules. Nous avons ainsi pu mesurer, à l'aide d'une méthode de modulation de la position des parois de domaines, le champ électrique créé par ces dernières. Les valeurs de champs électriques obtenues restent des estimations. En effet, pendant nos mesures, nous ignorions l'orientation du dipôle des molécules dans la matrice cristalline, qui joue un rôle important dans le déplacement fréquentiel par effet Stark. Il serait cependant possible d'utiliser une technique de super-résolution optique $3D$ mise au point par notre groupe pour déterminer avec précision l'orientation du dipôle ainsi que sa distance par rapport au grenat, permettant ainsi de rendre plus précises les estimations obtenues. Cette étude ouvre la voie vers de nouvelles possibilités pour l'utilisation de molécules uniques en tant que sondes locales de leur environnement, notamment pour la détection de déplacements d'oscillateurs nanomécaniques chargés électriquement. Il devient aussi envisageable de sonder le champ électrique d'un vortex d'Abrikosov qui, selon les études théoriques, est suffisamment élevé pour être mesuré à l'aide de cette technique.

Nous avons ensuite développé une nouvelle méthode optique rapide et précise pour l'étude du déplacement de vortex d'Abrikosov individuels dans les supraconducteurs de type II. Cette technique fait intervenir la force thermique mise en jeu lorsqu'un vortex d'Abrikosov est placé dans un gradient thermique. Notre nouvelle méthode combine un microscope magnéto-optique pouvant résoudre les vortex à l'échelle du vortex unique avec un système permettant de déplacer le point focal d'un faisceau laser à la surface de l'échantillon supraconducteur. Jusqu'à présent la manipulation de vortex uniques n'avait été rendue possible qu'en utilisant des techniques à sondes locales telles que l'interaction magnétique avec une pointe de MFM, l'utilisation d'une bobine magnétique placée sur un SQUID ou encore une pression exercée sur le supraconducteur avec un SQUID. Ces méthodes sont efficaces mais ne permettent pas de déplacer des vortex à des vitesses importantes et les zones d'exploration permises sont limitées. Nous avons ainsi pu montrer que cette force est at-

tractive et permet de déplacer les vortex uniques avec un taux de succès de 100% tout en préservant la supraconductivité. Pour cela, il suffit de choisir une puissance laser suffisante pour que la force thermique créée dépasse la force de piégeage de tous les vortex étudiés en veillant à ce que la température maximale au centre du faisceau laser reste inférieure à la température critique du supraconducteur. Ainsi, nous pouvons repositionner à volonté des vortex individuels sur de larges échelles. Nous avons aussi pu débarasser une grande zone ($\sim 70 \times 70 \mu\text{m}^2$), montrant alors qu'il est possible de réduire fortement la densité de vortex dans les circuits électroniques supraconducteurs, ce qui permet de diminuer le bruit interne généré par les vortex. La méthode n'est pas seulement précise, mais elle est aussi rapide. En effet, le temps nécessaire pour déplacer les vortex est, dans notre cas, uniquement limité par le temps de réponse des miroirs galvanométriques utilisés pour déplacer le faisceau laser. En utilisant des modulateurs acousto-optiques, il serait possible de gagner deux, voire trois, ordres de grandeur sur ce temps d'exécution. En effet, même si les vitesses de déplacement de vortex de l'ordre de 6 mm/s que nous avons pu atteindre sont élevées, elles restent très inférieures à la limite théorique qui est donnée par le rapport entre le rayon de la tâche focale ($\sim 1 \mu\text{m}$) et le temps de réponse thermique du supraconducteur ($\sim 1 \text{ ns}$), soit une vitesse limite de l'ordre du km/s. Cette technique permet aussi de mesurer les forces de piégeage d'un échantillon, que ce soit leur distribution dans une zone donnée, ou bien celle d'un site de piégeage en particulier, tout cela en fonction de la température. Nous avons alors trouvé des résultats similaires à ceux obtenus par des mesures d'ensemble sur le même type d'échantillons, confirmant l'efficacité de notre méthode. Ces résultats représentent une étape importante en ce qui concerne la mesure de la charge électrique d'un vortex ou l'étude des interactions entre les vortex.

Enfin, nous avons pu sculpter le flux magnétique à la surface du supraconducteur. Pour cela, nous avons créé une zone normale en augmentant la puissance du laser de telle sorte que, localement, la température soit supérieure à la température critique de l'échantillon. Cela nous a permis d'étudier la pénétration du flux à travers une interface normal/supraconducteur et ainsi mettre en évidence l'existence de la barrière géométrique.

Une application possible de cette méthode de manipulation optique de vortex d'Abrikosov individuels est le contrôle de jonctions Josephson. En effet, il a été montré qu'un vortex d'Abrikosov placé à proximité d'une jonction Josephson modifie fortement sa relation courant-phase et qu'il est possible de transformer une jonction classique en une jonction- π en créant un vortex à proximité de cette dernière. Ainsi, notre système pouvant possiblement opérer à des cadences de l'ordre du GHz, il serait possible de contrôler l'état d'une jonction Josephson à ces cadences en utilisant notre méthode optique.

Finalement, nous avons effectué des travaux plus théoriques en nous intéressant à la création de jonctions Josephson par laser. Ce procédé repose sur la focalisation d'un faisceau laser à la limite de diffraction sur un fil supraconducteur de niobium. L'élévation de température locale entraînée par l'absorption des photons par le niobium a pour effet de créer un lien faible au centre du fil supraconducteur qui peut s'apparenter à une jonction Josephson. Nous avons construit un modèle en partant de l'équation de Ginzburg-Landau à une dimension en présence d'un profil de température non uniforme et en l'absence de champ magnétique extérieur. Nous avons ainsi pu calculer la relation courant-phase de la jonction Josephson créée. Cette méthode permet essentiellement de pouvoir contrôler le courant critique de la jonction Josephson, simplement par une modification de la puissance laser utilisée, fournissant ainsi un contrôle actif sur les propriétés tant statiques que dy-

namiques de la jonction avec des fréquences de l'ordre du GHz. Nous avons notamment montré qu'en modulant rapidement la puissance laser en présence d'une radiation micro-onde, il est possible d'agir sur les marches de Shapiro observées classiquement. Cela se fait par l'ajout de marches satellites situées de part et d'autre de chaque marche classique. Nous avons aussi commencé à réaliser des expériences sur un fil de niobium ayant pour but de créer une telle jonction Josephson. Nous avons observé une diminution du courant critique avec l'augmentation de la puissance laser, mais il nous manque une preuve directe telle que l'observation de la figure d'interférence caractéristique apparaissant lorsqu'un champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la jonction. Pour cela, nous sommes en train de mettre au point un nouvel échantillon ayant la configuration d'un SQUID avec nos collaborateurs qui nous permettrait d'observer cette signature plus facilement, voire de remonter directement à la relation courant-phase de la jonction créée.

Cette nouvelle méthode a des applications potentielles dans la création de circuits électroniques supraconducteurs. En effet, en utilisant une illumination structurée, il est possible de concevoir et de créer des ensembles de jonctions Josephson qui forment alors un circuit supraconducteur dans lequel les propriétés de chaque jonction seraient contrôlables en temps réel dans le but d'uniformiser leurs propriétés au sein du circuit.

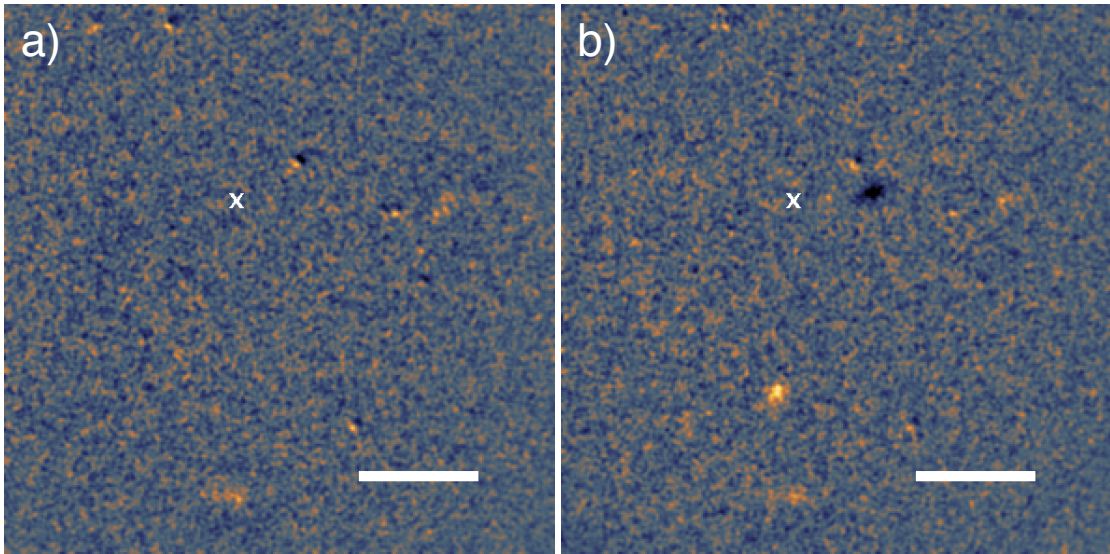


FIGURE 1 – Génération d'une paire de vortex/anti-vortex unique par focalisation d'une impulsion laser unique de durée $\Delta t \sim 450$ ps et de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm avec une puissance crête de $P_c = 7$ W sur un film de niobium de 100 nm d'épaisseur refroidi à 4 K. L'emplacement du faisceau laser est marqué par une croix blanche. a) Image magnéto-optique de la surface du supraconducteur avant chauffage laser. b) Image de la même zone après chauffage. Les barres d'échelle représentent $20 \mu\text{m}$.

Les résultats obtenus dans cette thèse permettent de démontrer que la combinaison de l'optique et de la supraconductivité est un domaine de recherche prometteur. Ainsi, il est déjà envisageable de contrôler des dispositifs supraconducteurs comme des jonctions Josephson dont l'état est contrôlable par le positionnement d'un vortex [18], ou encore des éléments de RSFQ [1] à l'aide de méthodes optiques similaires à celles présentées tout au long de cette thèse. Pour aller plus loin, il est intéressant de trouver des méthodes optiques

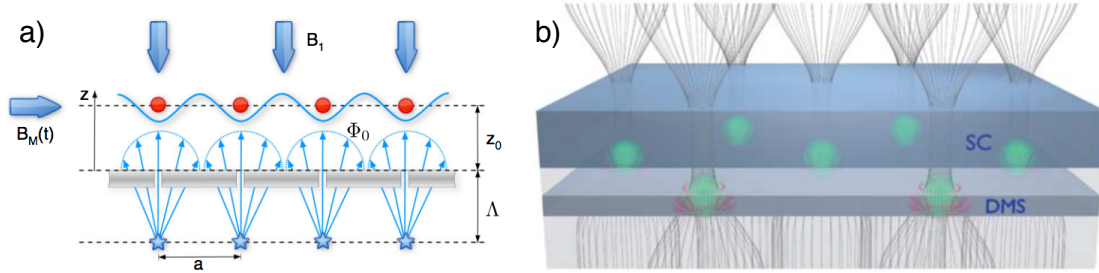


FIGURE 2 – Applications possibles de notre méthode à des domaines de recherche autres que celui de la supraconductivité. a) Création de réseaux d’atomes avec une périodicité sub-longueur d’onde dans les simulateurs quantiques. D’après [153]. b) Manipulation de spins avec des vortex d’Abrikosov dans un semiconducteur magnétique. D’après [154].

pour créer les vortex d’Abrikosov. Pour cela, nous envisageons deux approches distinctes. La première consiste à utiliser l’effet Faraday inverse [146, 147] : lorsqu’un champ électrique polarisé circulairement se propage dans un matériau possédant une constante de Verdet non nulle, alors un champ magnétique dirigé selon la direction de propagation du champ électrique incident est créé. Si le champ magnétique ainsi créé est suffisamment important (ce qui nécessite une forte intensité crête du laser incident), alors il doit être possible de créer un vortex au sein du supraconducteur. La seconde approche tire un avantage de l’effet Kibble-Zurek [148, 149, 150, 151]. Si un supraconducteur est chauffé puis refroidi en dessous de sa température critique très rapidement, alors les fluctuations du paramètre d’ordre existantes lorsque la température est proche de T_c peuvent se retrouver “piégées”, donnant lieu à la création de multiples paires de vortex/antivortex. Il a récemment été montré que l’injection d’un courant normal via une pointe STM pouvait induire une création de paire vortex/antivortex [152]. En ce qui nous concerne, la figure 1 montre que nous sommes déjà capables de générer des paires de vortex/anti-vortex dans un échantillon de niobium à l’aide d’impulsions laser de quelques centaines de picosecondes et quelques nanojoules via cet effet.

Notre méthode pourra trouver des applications s’étendant au-delà du champ de la supraconductivité, comme le montre la figure 2. En effet, la création et la manipulation de vortex d’Abrikosov pourront être utilisées pour contrôler des spins uniques dans le domaine de la spintronique [154] ou encore dans les simulateurs quantiques, pour former des réseaux d’atomes sub-longueur d’onde [153].

Bibliographie

- [1] Rogalla, H. et Kes, P.H. *100 years of superconductivity*. Taylor and Francis, Hoboken, NJ, 2011.
- [2] Khomskii, D.I. et Freimuth, A. *Physical Review Letters*, 75(7) :1384–1386, 1995.
- [3] Tamarat, P. et al. *The Journal of Physical Chemistry A*, 104(1) :1–16, 1999.
- [4] Brunel, C. et al. *The Journal of Physical Chemistry A*, 103(14) :2429–2434, 1999.
- [5] Goa, P.E. *Magneto-Optical Imaging of Superconductors with Single Vortex Resolution*. Thèse de doctorat, University of Oslo, 2002.
- [6] Ruggiero, S.T. et Rudman, D.A. *Superconducting devices*. Academic Press, Boston, 1990.
- [7] Golod, T., Iovan, A. et Krasnov, V.M. *Nature Communications*, 6 :8628, 2015.
- [8] Golod, T., Rydh, A. et Krasnov, V.M. *Physical Review Letters*, 104(22) :227003, 2010.
- [9] Clem, J.R. *Physical Review B*, 84(13) :134502, 2011.
- [10] Tolpygo, S.K. *Low Temperature Physics*, 42(5) :361–379, 2016.
- [11] Van Duzer, T. *Proceedings of the IEEE*, 100(11) :2993–2995, 2012.
- [12] Ortlepp, T. et Van Duzer, T. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 24(4) :1–7, 2014.
- [13] Likharev, K.K. “Dynamics of Josephson junctions and circuits”. Gordon and Breach, New York, 1986.
- [14] Barone, A. et Paternò, G. *Physics And Applications Of The Josephson Effect*. Wiley, 2013.
- [15] Kamerlingh Onnes, H. *Communication Physical Laboratory Leiden*, 122 :1–4, 1911.
- [16] Meissner, W. et Ochsenfeld, R. *Naturwissenschaften*, 21(44) :787–788, 1933.
- [17] Bardeen, J., Cooper, L.N. et Schrieffer, J.R. *Physical Review*, 108(5) :1175–1204, 1957.
- [18] Tinkham, M. *Introduction to Superconductivity; 2nd ed.* Dover books on physics. Dover, Mineola, NY, 2004.
- [19] Ginzburg, V.L. et Landau, L.D. *Zhurnal Éksperimental’noï i Teoreticheskoi Fiziki*, 20, 1950.

- [20] Fossheim, K. et Sudbø, A. *Superconductivity : physics and applications*. Wiley, New York, NY, 2004.
- [21] Abrikosov, A.A. *Soviet Physics JETP*, 5 :1174–1182, 1957.
- [22] Josephson, B.D. *Physics Letters*, 251-253, 1962.
- [23] Hund, F. *Zeitschrift für Physik*, 40(10) :742–764, 1927.
- [24] Shapiro, S. *Physical Review Letters*, 11(2) :80–82, 1963.
- [25] Clarke, J. et Braginski, A.I. *The SQUID Handbook*, volume 1. Wiley-VCH, 2004.
- [26] Mounce, A.M. et al. *Nature Physics*, 7(2) :125–128, 2010.
- [27] Carneiro, G. et Brandt, E.H. *Physical Review B*, 61(9) :6370–6376, 2000.
- [28] Essmann, U. et Träuble, H. *Physics Letters A*, 24(10) :526–527, 1967.
- [29] Hess, H.F. et al. *Physical Review Letters*, 62(2) :214–216, 1989.
- [30] Volodin, A. et al. *Europhysics Letters*, 58(4) :582, 2002.
- [31] Goa, P.E. et al. *Superconductor Science and Technology*, 14 :729, 2001.
- [32] Josephson, B.D. *Physics Letters*, 16(3) :242–243, 1965.
- [33] Poole, C.P., Creswick, R.J. et Farach, H.A. *Superconductivity*. Academic Press, San Diego, CA, 2^e édition, 2007.
- [34] Hyun, O.B. et al. *Physical Review Letters*, 58(6) :599–601, 1987.
- [35] Park, G.S. et al. *Physical Review Letters*, 68(12) :1920–1922, 1992.
- [36] Allen, L.H. et Claassen, J.H. *Physical Review B*, 39(4) :2054–2059, 1989.
- [37] Goldstein, M.J. et Moulton, W.G. *Physical Review B*, 40(13) :8714–8719, 1989.
- [38] Jha, A.K. et Khare, N. *Physica C : Superconductivity*, 469(14) :810–813, 2009.
- [39] Feng, Y. et al. *Superconductor Science and Technology*, 14 :224–228, 2001.
- [40] Vélez, M. et al. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 320(21) :2547–2562, 2008.
- [41] Martín, J.I. et al. *Physical Review Letters*, 79(10) :1929–1932, 1997.
- [42] Jaccard, Y. et al. *Physical Review B*, 58(13) :8232–8235, 1998.
- [43] Trastoy, J. et al. *Physical Review Applied*, 4(5) :054003, 2015.
- [44] Dobrovolskiy, O.V. et al. *New Journal of Physics*, 14(11) :113027, 2012.
- [45] Matsumoto, K. et al. *Physica C : Superconductivity*, 412-414 :1267–1271, 2004.

- [46] Kuriki, S., Takahashi, K. et Kawaguchi, Y. *Superconductor Science and Technology*, 15 :1693–1697, 2002.
- [47] Huebener, R.P., Ustinov, A.V. et Kaplunenko, V.K. *Physical Review B*, 42(7) :4831–4833, 1990.
- [48] Samoilov, A.V., Yurgens, A.A. et Zavaritsky, N.V. *Physical Review B*, 46(10) :6643–6646, 1992.
- [49] Goa, P.E. et al. *Applied Physics Letters*, 82(1) :79–81, 2003.
- [50] Goa, P.E. et al. *Review of Scientific Instruments*, 74(1) :141–146, 2003.
- [51] Gardner, B.W. et al. *Applied Physics Letters*, 80(6) :1010–1012, 2002.
- [52] Kalisky, B. et al. *Physical Review B*, 83(6) :064511, 2011.
- [53] Straver, E.W.J. et al. *Applied Physics Letters*, 93(17) :172514, 2008.
- [54] Auslaender, O.M. et al. *Nature Physics*, 5 :35–39, 2009.
- [55] Kremen, A. et al. *Nano Letters*, 16(3) :1626–1630, 2016.
- [56] Blatter, G. et al. *Physical Review Letters*, 77(3) :566–569, 1996.
- [57] Lipavský, P. et al. *Physical Review B*, 65(14) :144511, 2002.
- [58] Machida, M. et Koyama, T. *Physical Review Letters*, 90(7) :077003, 2003.
- [59] Hagen, S.J. et al. *Physical Review B*, 43(7) :6246–6248, 1991.
- [60] Kumagai, K.i., Nozaki, K. et Matsuda, Y. *Physical Review B*, 63(14) :144502, 2001.
- [61] Romero-Salazar, C., Jooss, C. et Hernández-Flores, O.A. *Physical Review B*, 81(14) :144506, 2010.
- [62] Zhao, H.W. et al. *Physical Review B*, 78(6) :064505, 2008.
- [63] Fauré, M. et Buzdin, A.I. *Physical Review Letters*, 94(18) :187202, 2005.
- [64] Basché, T. et al. *Single-molecule optical detection, imaging and spectroscopy*. Wiley-VCH, Munich, 1997.
- [65] Basché, T. et Kador, L. *Physical Review Letters*, 1989.
- [66] Moerner, W.E. et Bernard, J. *Physical Review Letters*, 65(21) :2716–2719, 1990.
- [67] Bauer, M. et Kador, L. *Chemical Physics Letters*, 407(4–6) :450–453, 2005.
- [68] Moser, A. et al. *Physical Review Letters*, 74(10) :1847–1850, 1995.
- [69] Oral, A., Bending, S.J. et Henini, M. *Applied Physics Letters*, 69(9) :1324–1326, 1996.
- [70] Kirtley, J.R. et al. *Applied Physics Letters*, 66(9) :1138–1140, 1998.

- [71] Jooss, C. et al. *Reports on Progress in Physics*, 65 :651–788, 2002.
- [72] Zvezdin, A.K. et Kotov, V.A. “Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials”. IOP Publishing, Bristol, 1997.
- [73] Alers, P.B. *Physical Review*, 105(1) :104–108, 1957.
- [74] DeSorbo, W. *Physical Review Letters*, 4(8) :406–408, 1960.
- [75] Grechishkin, R.M. et al. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 157-158 :305–306, 1996.
- [76] Wallenhorst, M. et al. *Journal of Applied Physics*, 77(7) :2902–2905, 1995.
- [77] Ubizskii, S.B., Matkowskii, A.O. et Kuzma, M. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 157-158 :279–280, 1996.
- [78] Fratello, V.J., Slusky, S. et Brandle, C.D. *Journal of Applied Physics*, 1986.
- [79] Helseth, L.E. et al. *Physical Review B*, 66(6) :064405, 2002.
- [80] Puller, V., Lounis, B. et Pistolesi, F. *Physical Review Letters*, 110(12) :125501, 2013.
- [81] Lounis, B. et Basché, T. *Nature*, 407(6803) :491–493, 2000.
- [82] Lounis, B. et Moerner, W.E. *Reports on Progress in Physics*, 68 :1129–1179, 2005.
- [83] Huang, B., Bates, M. et Zhuang, X. *Annual Review of Biochemistry*, 78 :993–1016, 2009.
- [84] Basché, T. *Science*, 283(5408) :1670–1676, 1999.
- [85] Tamarat, P. *Spectroscopie à une molécule en phase condensée : dispersion de la fluorescence, recherche de nouveaux systèmes et optique non linéaire*. Thèse de doctorat, Bordeaux, 1996.
- [86] Fauré, M., Lounis, B. et Buzdin, A.I. *Europhysics Letters*, 77(1) :17005, 2007.
- [87] Curie, P. *Journal de Physique Théorique et Appliquée*, 3(1) :393–415, 1894.
- [88] Hill, N.A. *The Journal of Physical Chemistry B*, 104(29) :6694–6709, 2000.
- [89] Eerenstein, W., Mathur, N.D. et Scott, J.F. *Nature*, 442(7104) :759–765, 2006.
- [90] Khomskii, D. *Physics-Uspekhi*, 2(20), 2009.
- [91] Mostovoy, M. *Physical Review Letters*, 96(6) :067601, 2006.
- [92] Pyatakov, A.P., Meshkov, G.A. et Zvezdin, A.K. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 324(21) :3551–3554, 2012.
- [93] Pyatakov, A.P. et Zvezdin, A.K. *Physics-Uspekhi*, 55 :557–581, 2012.
- [94] Bar'yakhtar, V.G., L'vov, V.A. et Yablonskii, D.A. *Zhurnal Éksperimental'noi i Teoreticheskoi Fiziki*, 87 :1863–1876, 1984.

- [95] Krichevtsov, B.B. et al. *Ferroelectrics*, 161(1) :65–71, 1994.
- [96] Koronovskyy, V.E., Ryabchenko, S.M. et Kovalenko, V.F. *Physical Review B*, 71(17) :172402, 2005.
- [97] Koronovskyy, V.E. *Journal of Modern Physics*, 02(08) :908–912, 2011.
- [98] Dzyaloshinskii, I. *Europhysics Letters*, 83(6) :67001, 2008.
- [99] Kabychenkov, A.F., Lisovskii, F.V. et Mansvetova, E.G. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 97(5) :265–269, 2013.
- [100] Boiron, A.M. et al. *Chemical Physics*, 247(1) :119–132, 1999.
- [101] Labeau, O. et al. *Physical Review Letters*, 98(14) :143003, 2007.
- [102] De Gennes, P.G. “Superconductivity of Metals and Alloys”. Westview Press, New York, NY, 1999.
- [103] Logginov, A.S. et al. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 86(2) :115–118, 2007.
- [104] Pyatakov, A.P., Sergeev, A.S. et Nikolaeva, E.P. *Physics-Uspekhi*, 58 :981–992, 2015.
- [105] Huebener, R.P. *Magnetic Flux Structures in Superconductors*. Springer, Berlin, 2001.
- [106] Huebener, R.P. et al. *Physica C : Superconductivity*, 185–189, Part 1 :349–354, 1991.
- [107] Brandt, E.H. In “100 years of superconductivity”, Taylor and Francis, Hoboken, NJ, 2011.
- [108] Embon, L. et al. *Scientific Reports*, 2015.
- [109] Huebener, R.P. et Seher, A. *Physical Review*, 181(2) :701–709, 1969.
- [110] Otter Jr, F.A. et Solomon, P.R. *Physical Review Letters*, 16 :681–683, 1966.
- [111] Sergeev, A., Reizer, M. et Mitin, V. *Europhysics Letters*, 92(2) :27003, 2010.
- [112] Weaver, J.H., Lynch, D.W. et Olson, C.G. *Physical Review B*, 7(10) :4311–4318, 1973.
- [113] Lee, C.S. et al. *Nature*, 400(6742) :337–340, 1999.
- [114] Dantsker, E., Tanaka, S. et Clarke, J. *Applied Physics Letters*, 70(15) :2037–2039, 1997.
- [115] Wördenweber, R., Castellanos, A.M. et Selders, P. *Physica C : Superconductivity*, 332(1-4) :27–34, 2000.
- [116] Dilhaire, S. et al. *Journal of Applied Physics*, 110(11) :114314, 2011.
- [117] Koechlin, F. et Bonin, B. *Superconductor Science and Technology*, 9(6) :453, 1996.

- [118] Stoddart, S.T. et al. *Superconductor Science and Technology*, 8(6) :459, 1995.
- [119] Breitwisch, M. et Finnemore, D.K. *Physical Review B*, 62(1) :671–677, 2000.
- [120] Bean, C.P. et Livingston, J.D. *Physical Review Letters*, 12(1) :14–16, 1964.
- [121] Zeldov, E. et al. *Physical Review Letters*, 73(10) :1428–1431, 1994.
- [122] Segev, Y. et al. *Physical Review B*, 83(10) :104520, 2011.
- [123] Likharev, K.K. et Semenov, V.K. *IEEE transactions on applied . . .*, 1991.
- [124] Makhlin, Y., Schön, G. et Shnirman, A. *Reviews of Modern Physics*, 73(2) :357–400, 2001.
- [125] Wendin, G. et Shumeiko, V.S. *Low Temperature Physics*, 33(9) :724–744, 2007.
- [126] Fagaly, R.L. *Review of Scientific Instruments*, 77(10) :101101, 2006.
- [127] Buzdin, A.I. *Reviews of Modern Physics*, 77(3) :935–976, 2005.
- [128] Buzdin, A.I., Bulaevskii, L.N. et Panyukov, S.V. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 56 :430–440, 1982.
- [129] Ryazanov, V.V. et al. *Physical Review Letters*, 86(11) :2427–2430, 2001.
- [130] Buzdin, A. *Physical Review Letters*, 101(10) :107005, 2008.
- [131] Szombati, D.B. et al. *Nature Physics*, 12(6) :568–572, 2016.
- [132] Eschrig, M. et al. *J Low Temp Phys*, 147 :457–476, 2007.
- [133] Yokoyama, T., Eto, M. et Nazarov, Y.V. *Physical Review B*, 89(19) :195407, 2014.
- [134] Terzioglu, E. et Beasley, M.R. *IEEE transactions on applied . . .*, 8 :48–53, 1998.
- [135] Ustinov, A.V. et Kaplunenko, V.K. *Journal of Applied Physics*, 2003.
- [136] Yeh, J. et Langenberg, D.N. *Appl Phys Lett*, 1978.
- [137] Baratoff, A., Blackburn, J.A. et Schwartz, B.B. *Physical Review Letters*, 25(16) :1096–1099, 1970.
- [138] Volkov, A.F. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 66 :366–369, 1974.
- [139] Jacobson, D.A. *Physical Review*, 138(4A) :A1066–A1070, 1965.
- [140] Ambegaokar, V. et Baratoff, A. *Physical Review Letters*, 10(11) :486–489, 1963.
- [141] Lide, D.R. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, 90^e édition, 2010.
- [142] Courtois, H. et al. *Physical Review Letters*, 101(6) :067002, 2008.
- [143] Samaddar, S. et al. *Nanotechnology*, 24(37) :375304, 2013.

- [144] Kumar, N. et al. *Physical Review Letters*, 114(15) :157003, 2015.
- [145] de Wolff, E. et al. *Physica B : Condensed Matter*, 179(4) :295–308, 1992.
- [146] Kirilyuk, A., Kimel, A.V. et Rasing, T. *Reviews of Modern Physics*, 82(3) :2731–2784, 2010.
- [147] Deb, M. et al. *Applied Physics Letters*, 107(25) :252404, 2015.
- [148] Kibble, T.W.B. *Journal of Physics A : Mathematical and General*, 9(8) :1387–1398, 1976.
- [149] Zurek, W.H. *Nature*, 317(6037) :505–508, 1985.
- [150] Zurek, W.H. *Physics Reports*, 276(4) :177–221, 1996.
- [151] Maniv, A. et al. *Physical Review Letters*, 94(24) :247005, 2005.
- [152] Ge, J.Y. et al. *Nano Letters*, 17(8) :5003–5007, 2017.
- [153] Romero-Isart, O. et al. *Physical Review Letters*, 111(14) :145304, 2013.
- [154] Berciu, M., Rappoport, T.G. et Jankó, B. *Nature*, 435(7038) :71–75, 2005.

Résumé :

Ce travail de thèse est principalement axé sur le développement d'une nouvelle méthode de manipulation de vortex d'Abrikosov individuels dans les supraconducteurs de type II. Cette méthode, rapide, efficace et précise, est basée sur l'optique en champ lointain et repose sur l'échauffement local du supraconducteur sous l'action d'un faisceau laser focalisé. Elle apporte une excellente alternative aux techniques existantes de manipulation de vortex, toutes basées sur l'utilisation de sondes locales, et donc intrinsèquement lentes et difficiles à mettre en oeuvre dans un environnement cryogénique. La combinaison de cette méthode à une technique d'imagerie magnéto-optique performante permet de déplacer des vortex individuels avec un taux de réussite de 100% et sur de grandes échelles limitées uniquement par le champ de l'objectif de microscope. Les vitesses de manipulation atteintes sont élevées, de l'ordre de 10 mm.s⁻¹, mais encore limitées par l'instrumentation utilisée et loin des limites fondamentales offertes par cette méthode, estimées au km.s⁻¹. La méthode de manipulation optique permet aussi de mesurer la distribution des forces de piégeage de chaque vortex d'un échantillon. En utilisant des puissances de chauffage laser permettant de dépasser localement la température critique, nous avons également pu étudier la pénétration des vortex à l'interface entre une zone normale et une zone supraconductrice.

Durant ces travaux, nous avons aussi eu l'opportunité de mettre en évidence, par spectroscopie de molécules uniques, l'effet flexomagnétoélectrique dans un matériau multiferroïque, en employant un supraconducteur de type I comme générateur de champ magnétique inhomogène. Enfin, nous proposons à la fin de ce mémoire un concept de jonction Josephson créée tout optiquement, et dont les propriétés seraient contrôlables en temps réel par laser.

Mots-clés : vortex d'Abrikosov, pinces optiques, matériaux multiferroïques, molécules individuelles, jonctions Josephson.

Abstract :

This thesis focuses on the development of a new manipulation technique to handle single Abrikosov vortices in type II superconductors. This fast, efficient and precise method is based on far field optics and rests on the local temperature elevation produced by a focused laser beam. It brings an excellent alternative to the existing techniques which are all based on local probes and thus heavy to implement in a cryogenic environment. The combination of this method with an efficient magneto-optical imaging system allows us to manipulate single vortices with a 100% rate of success on a large scale only limited by the field of view of the microscope objective. Manipulation speeds are high, of the order of 10 mm.s⁻¹, but still limited by our setup and far from the fundamental limits offered by this technique, estimated to the km.s⁻¹. This manipulation technique also allows to measure the pinning force of any single vortex in a superconducting sample. By using a high enough laser power which locally pushes the temperature above the critical temperature, we could also study the vortex penetration at the interface between normal and superconducting areas.

In the course of this work, we also evidenced, with single molecule spectroscopy, the flexomagnetolectric effect in a multiferroic material, by using a type I superconductor as a source of inhomogeneous magnetic field. Finally, we propose at the end of the manuscript the new concept of an optically created Josephson junctions, whose properties could be controlled in real time just with a laser beam.

Keywords : Abrikosov vortices, optical tweezers, multiferroic materials, single molecules, Josephson junctions.

Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences (UMR 5298).