



HAL
open science

Une nouvelle génération d'étalons quantiques fondée sur l'effet Hall quantique

Jérémy Brun-Picard

► **To cite this version:**

Jérémy Brun-Picard. Une nouvelle génération d'étalons quantiques fondée sur l'effet Hall quantique. Systèmes mésoscopiques et effet Hall quantique [cond-mat.mes-hall]. Université Paris Saclay (COMUE), 2018. Français. NNT : 2018SACLS549 . tel-01973021

HAL Id: tel-01973021

<https://theses.hal.science/tel-01973021>

Submitted on 8 Jan 2019

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.

Une nouvelle génération d'étalons quantiques fondée sur l'effet Hall quantique

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

École doctorale n°564 Ecole Doctorale de Physique en Ile de France
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 07/12/2018, par

Jérémy Brun-Picard

Composition du Jury :

Sophie Guéron Directrice de Recherche, LPS, Orsay	Présidente
Christophe Chaubet Professeur, L2C, Montpellier	Rapporteur
Walter Escoffier Maître de conférences, LCNMI Toulouse	Rapporteur
Pierre Gournay Physicien principal, BIPM, Sèvres	Examineur
Dominique Mailly Directeur de Recherche, C2N, Palaiseau	Directeur de thèse
Wilfrid Poirier Ingénieur de Recherche, LNE, Trappes	Invité
Félicien Schopfer Ingénieur de Recherche, LNE, Trappes	Invité

Remerciements

Durant ces années de Doctorat j'ai beaucoup appris. Cette thèse a été une leçon de vie, ces presque quatre ans ont été très instructifs, tant d'un point de vue humain que professionnel. Elle m'a donné l'occasion d'interagir avec beaucoup de personnes que j'aimerais remercier ici, à la fois pour l'aide et pour le soutien qu'ils ont pu m'apporter.

Tout d'abord merci à Dominique, tu m'as permis de me faire découvrir la salle blanche et le plaisir de réaliser ses propres échantillons. Malgré toutes tes responsabilités, tu as toujours été concerné par les problèmes que j'ai pu rencontrer.

Viennent ensuite Wilfrid et Félicien, avec qui j'ai passé le plus clair de mon temps. Merci Wilfrid pour ta disponibilité et ta bonne humeur. Je ne compte pas ces nombreuses heures que tu as passées à m'expliquer les notions de physique et de métrologie. Merci Félicien pour ta patience et ta bienveillance. Cela a permis de travailler dans un cadre convivial. Tes nombreux conseils m'ont permis d'apprendre à organiser et structurer mon travail. Merci à tous les deux d'avoir passé autant de temps afin de résoudre les différents problèmes que j'ai pu avoir en salle de manip, d'avoir corrigé et recorrigé ce manuscrit. Vous m'avez également appris à être rigoureux dans mon travail, à toujours chercher à faire mieux, et cela dans la bonne humeur. Je garderai en mémoire les bons moments passés à vos côtés.

Je souhaite également remercier chaleureusement chacun des membres du jury, Sophie Guéron, Christophe Chaubet, Walter Escoffier et Pierre Gournay pour leurs commentaires précieux, qui ont permis d'améliorer la qualité de ce manuscrit.

Merci aux deux techniciens qui se sont succédés, Dominique puis Mohamed, qui ont su résoudre les différents problèmes techniques, passant de la réparation de câbles à la maintenance des cryostats en un temps record.

Merci à Rebeca qui, au début de ma thèse, a pris le temps de m'expliquer et de me montrer le fonctionnement des différents appareils de mesure. Merci pour ces moments passés au travail et en dehors remplis de rires et de légèreté.

Je tiens également à remercier les personnes du bâtiment Maxwell du LNE où j'ai passé la plus grande partie de mon temps. Un grand merci à Sophie qui a été très concernée par les problèmes que je pouvais rencontrer, ce qui a rendu agréable le fait de venir te demander conseil. Merci à François qui a toujours eu un peu de

temps pour m'aider à trouver des solutions. Merci également aux deux Olivier, Gaël, Alexandra, Sébastien, Saïf, Ralph, Laurent, Nicolas... et plus généralement toutes les personnes qui n'ont pas directement eu d'impact sur les résultats, mais qui ont toujours pris le temps de discuter, de rigoler et qui ont ainsi rendu cette thèse très agréable.

J'aimerais remercier le directeur de l'école doctorale de physique, Claude Pasquier, qui a su se rendre disponible pour répondre à chacune de mes questions administratives.

Merci également à mes amis, Marie pour sa gentillesse extrême, Mouang toujours prêt à rendre service, Nicolas pour ses questions intéressantes à propos de la physique, Morgane pour ta foi dans les prédictions "infaillibles" du pendule qui aura animé quelques soirées. On verra dans quelques années si tu auras bien 3 enfants : un garçon, une fille puis un garçon. Merci Capichef Cécilia d'arriver à gérer la présidence du club tout en ayant toujours le sourire! Merci également à Pierre, ultra motivé et de bonne humeur, tous ceux de l'équipe 3 et plus généralement à tous ceux du bad! Merci à Marc et Magali qui, bien qu'habitant à quelques centaines de kilomètres, sont toujours présents et qui m'encouragent depuis le début! Je vous remercie tous pour votre soutien sans faille tout au long de ma thèse.

Merci à Sarah qui a toujours été là pour moi durant ces dernières années. Tu as eu la patience de me supporter durant tout ce temps. Tu m'as toujours soutenue et été conciliante pour que tout se passe au mieux. Merci pour tout. #SML

Merci à ma famille pour leur rôle important. Tout d'abord mes grands-parents qui ont su m'encourager avec leur chaleur habituelle. Laura, ma soeur, avec qui le temps passé a toujours été agréable et qui m'a permis de décompresser en de nombreuses occasions. Enfin merci à mon père et ma mère pour m'avoir apporté leur soutien et amour indéfectibles.

Table des matières

Introduction	i
1 La métrologie électrique	1
1.1 L'histoire des systèmes de mesure et du SI	1
1.1.1 Le SI actuel	1
1.2 Les unités électriques	2
1.2.1 L'ampère	3
1.2.2 Le volt	6
1.2.3 L'ohm	9
1.2.4 Le kilogramme	9
1.3 Le nouveau SI	12
2 Le graphène	15
2.1 La structure cristallographique du graphène	16
2.2 Les liaisons fortes	16
2.3 La limite continue	18
2.4 La densité d'états	20
3 L'effet Hall quantique	23
3.1 Du transport classique au transport quantique	23
3.1.1 Longueurs caractéristiques du transport	23
3.1.2 Le modèle de Drude	24
3.1.3 La théorie du transport semi-classique de fermions	25
3.2 Le transport quantique cohérent	26
3.2.1 Le formalisme de Landauer-Büttiker	26
3.2.2 La mesure de conductance à quatre terminaux	28
3.3 Particule chargée dans un champ magnétique	28
3.4 L'effet Hall quantique entier	30
3.4.1 Les niveaux de Landau	30
3.4.2 Le facteur de remplissage	34
3.4.3 L'impact du désordre	35
3.4.4 Différences entre les effets Hall quantiques du GaAs/AlGaAs et du graphène	36
3.4.5 Les canaux de bord	37
3.5 Les mécanismes de dissipation	40
3.5.1 L'activation thermique	40
3.5.2 Le saut à portée variable	42

3.5.3	La rupture de l'effet Hall quantique	45
4	La métrologie de l'ohm	47
4.1	L'étalon de résistance en GaAs/AlGaAs	47
4.1.1	Résultats métrologiques du GaAs/AlGaAs	50
4.2	La métrologie de la résistance dans le graphène	51
4.2.1	La fabrication du graphène	51
4.2.2	Résultats métrologiques	55
4.3	Conclusion	65
5	Le dispositif expérimental	67
5.1	Les systèmes cryo-magnétiques	67
5.1.1	Les cryostats	67
5.1.2	Les cannes de mesure	68
5.2	Les techniques de mesure métrologiques des résistances	70
5.2.1	Le Comparateur Cryogénique de Courant	70
5.2.2	La mesure de la résistance longitudinale	73
5.2.3	La mesure de la résistance de Hall	75
6	Le graphène CVD sur SiC comme étalon de résistance électrique	81
6.1	La croissance CVD de graphène sur SiC	81
6.2	La fabrication de barres de Hall	83
6.3	La plaquette 13051-b	85
6.3.1	Les propriétés métrologiques de la barre de Hall 13051-b	87
6.3.2	L'homogénéité de la barre de Hall 13051-b	91
6.4	L'influence des cyclages thermiques et du temps sur les barres de Hall	92
6.5	Contrôle de la densité de porteurs de charge et étude du transport électronique à densité de porteurs variable	94
6.5.1	La modulation de la densité électronique par la décharge corona	94
6.5.2	Les courbes de magnéto-résistance	96
6.5.3	La mobilité électronique	97
6.5.4	La résistance de Hall à champ nul	99
6.5.5	Étude de la quantification de R_H en fonction de la densité électronique	100
6.6	La théorie du transfert de charges	104
6.6.1	Le transfert de charges appliqué à la barre de Hall 13051-b	105
6.6.2	Le transfert de charges appliqué aux barres de Hall de la plaquette 12159-3	107
6.6.3	L'importance des paramètres de croissance	111
6.7	Le modèle de saut à portée variable dans les barres de Hall 12159-3	113
6.7.1	Effet de la température sur la conductivité	113
6.7.2	Effet du courant sur la conductivité	117
6.7.3	Effet combiné de la température et du courant sur la conductivité	120
6.8	Le modèle de saut à portée variable dans la barre de Hall 13051-b	121
6.8.1	Analyse de la conductivité dans le modèle VRH E-S	121
6.8.2	Dépendance en champ magnétique de la longueur de localisation	123
6.8.3	Analyse de la conductivité dans le modèle VRH Mott	125

6.9	Le facteur de couplage entre ΔR_H et R_{xx}	127
6.9.1	Le facteur de couplage dans la plaquette 13051-b	129
6.9.2	Le facteur de couplage dans la plaquette 12159-3	133
6.10	Conclusion	136
7	L'étalon quantique de courant programmable	139
7.1	La nouvelle définition	139
7.2	Le principe de fonctionnement	143
7.2.1	Le circuit primaire	144
7.2.2	Le circuit secondaire	149
7.2.3	Stabilité, bruit et exactitude	149
7.3	Résultats expérimentaux	152
7.3.1	Les mesures d'exactitude	152
7.3.2	Le PQCG pour la traçabilité du courant	157
7.4	Conclusion et perspectives	161
	Conclusion et perspectives	163

Introduction

L'effet Hall quantique (EHQ), découvert par Klaus von Klitzing en 1980, a révolutionné la métrologie de la résistance. Cet effet quantique apparaît lorsque des conducteurs bi-dimensionnels sont refroidis à très basse température et plongés dans un fort champ magnétique. Dans ces conditions, il est possible d'observer l'émergence de plateaux de résistance dont la valeur est uniquement liée à la charge élémentaire et à la constante de Planck. Dix années après cette découverte, le Bureau International des Poids et Mesures a recommandé l'utilisation de l'effet Hall quantique pour la conservation de la résistance électrique.

Une nouvelle révolution est apparue en 2005, avec l'observation de l'effet Hall quantique dans une mono-couche de carbone : le graphène. La physique de l'effet Hall quantique est bien différente de celle présente dans les autres matériaux semi-conducteurs bi-dimensionnels. En effet, les électrons se propageant dans le graphène répondent à l'équation de Dirac ultra-relativiste, qui décrit également la dynamique des particules sans masse de très hautes énergies. Les propriétés de l'effet Hall quantique dans le graphène permettent d'envisager la réalisation d'un étalon quantique de résistance fonctionnant à faible champ magnétique et plus haute température, rendant sa mise en œuvre plus simple.

Dans le chapitre 1, j'introduirai le Système International d'unités et notamment les unités électriques. Nous verrons que la physique quantique est centrale dans la mise en œuvre de ces unités. Je montrerai finalement que l'introduction de la physique quantique dans le SI va induire un changement de définitions de certaines unités.

Le chapitre 2 introduira le graphène, sa structure de bande et ses propriétés de transport.

Le chapitre 3 est consacré à la description théorique de l'effet Hall quantique. Je montrerai en particulier pourquoi, sous fort champ magnétique, la résistance transverse d'un conducteur bi-dimensionnel forme des plateaux quand, simultanément la résistance longitudinale s'annule. Tout au long de ce chapitre, les différences entre l'effet Hall quantique dans une hétéro-structure GaAs/AlGaAs et le graphène seront mises en avant.

Dans le chapitre 4 je présenterai la métrologie de l'ohm. Une description de l'étalon de résistance en GaAs/AlGaAs fondé sur l'E HQ sera réalisée, exposant une méthode de fabrication ainsi que les principaux résultats métrologiques obtenus avec cette hétéro-structure. Pour le graphène, ses différentes techniques de fabrication seront passées en revue. Ensuite, un état de l'art des principaux résultats métrologiques obtenus dans ce matériau sera dressé.

Le chapitre 5 sera consacré à la description de l'instrumentation ainsi qu'aux

techniques de mesures utilisées afin d'obtenir des incertitudes relatives de 10^{-9} . Pour cela les systèmes cryo-magnétiques et le Comparateur Cryogénique de Courant, qui est un appareil central à la métrologie électronique, seront passés en revue. Pour finir ce chapitre, nous verrons les différents types de mesure ainsi que leur déroulement.

Le chapitre 6 exposera les différents résultats obtenus pour l'effet Hall quantique dans le graphène. Pour cela, je décrirai la technique de croissance de graphène CVD (propane/Hydrogène) sur SiC ainsi que la méthode de fabrication des barres de Hall. Viendront ensuite les mesures métrologiques qui démontrent une parfaite quantification de la résistance de Hall avec des conditions expérimentales jamais atteintes, bien plus accessibles que celles des hétéro-structures GaAs/AlGaAs. Ces résultats exceptionnels nous ont encouragés à réaliser des mesures pour comprendre quels sont les paramètres permettant d'obtenir un effet Hall quantique d'une telle robustesse. Je détaillerai des expériences de contrôle de la densité réalisées par décharge corona. Je présenterai des mesures de quantification de la résistance de Hall pour différentes densités électroniques. La théorie du transfert de charge sera également exploitée afin de comprendre la très grande taille du plateau de Hall. Une étude des mécanismes de dissipation sera faite montrant des différences notables entre les différentes plaquettes. Finalement, le couplage entre les résistances longitudinale et de Hall mettra en évidence le rôle des inhomogénéités dans les échantillons.

Lors du dernier chapitre, je montrerai une manière innovante de réaliser l'ampère en utilisant l'effet Hall quantique grâce à la loi d'ohm. Une description détaillée de la manière dont nous avons combiné les dispositifs quantiques sera réalisée. Ensuite, la démonstration de la génération d'un courant directement relié à la charge élémentaire e à une incertitude requise pour la métrologie électrique sera faite. À la fin de ce chapitre, nous nous concentrerons sur l'utilisation de ce courant pour étalonner un ampèremètre.

Chapitre 1

La métrologie électrique

1.1 L'histoire des systèmes de mesure et du SI

Bien que la métrologie existe depuis la naissance du commerce, la volonté d'unifier les unités commença bien plus tard. En 789, Charlemagne, empereur franc, unifia les poids, les mesures et les monnaies de son empire. Il devint alors le seul à avoir le droit de fabriquer la monnaie. Il en décidait ainsi le poids et la taille. Il lui faudra presque vingt ans pour mettre en application son système métrologique, qui ne durera que le temps de son règne et qui n'aura pas dépassé les frontières de son empire [23].

Plusieurs autres tentatives d'unification seront ensuite mises en place par les États généraux du royaume de France dans le but d'unifier les poids, les mesures et les monnaies. En 1789, dans les cahiers de doléances, on retrouve ainsi des demandes pour qu'il n'y ait plus "qu'un seul poids et une seule mesure". Ces demandes étant faites dans le but d'organiser la France sur des bases plus équitables. À partir de ce moment, l'unification des poids et des mesures en France était scellée.

En 1790, la France décida de diffuser son système de poids et mesures. Elle le proposa à différents pays, tels que l'Angleterre et les États Unis, qui refusèrent, ou l'Espagne qui accepta. En 1875, la Convention du Mètre fût signée par 17 pays, créant ainsi le Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), une organisation intergouvernementale. Actuellement, le BIPM compte 59 États Membres. La Convention du Mètre établit alors une structure permanente permettant aux États Membres d'avoir une action commune sur toutes les questions se rapportant aux unités de mesure.

En 1880, les unités électriques furent intégrées au système d'unité. En 1960, le Système International sous sa forme actuelle fût adopté [11].

1.1.1 Le SI actuel

Le Système International d'unités (SI) est un système cohérent de sept unités de base, considérées par convention comme indépendantes d'un point de vue dimensionnel. Le SI est un système pouvant évoluer afin d'intégrer des avancées scientifiques et technologiques. Le nombre d'unités de base, ainsi que leur définition et leur réalisation sont donc amenées à changer.

Au fil des âges et des tentatives d'unification des unités par les pays, les définitions des unités ont beaucoup évolué, passant d'artefacts arbitraires, à des définitions imaginées grâce à la science. L'évolution des unités permet de gagner en universalité dans le temps et l'espace. On peut donner à titre d'exemple le mètre, qui fût d'abord défini en fonction des parties du corps humain, le pied, le pouce, la toise... qui étaient souvent liées au roi de l'époque, et qui donc, changeaient à chaque nouveau souverain. Sa définition a ensuite évoluée plusieurs fois, se fondant sur des phénomènes physiques, pour finalement être défini, en 1983, par la vitesse de la lumière dans le vide absolu à $299\,792\,458\text{ m/s}$. Cette définition a pour effet de définir le mètre comme étant la distance parcourue par la lumière dans le vide en $1/299\,792\,458$ de seconde. Le mètre est donc relié directement à une constante de la nature, que l'on suppose universelle dans le temps et l'espace.

Le Système International d'unités actuel compte sept unités de base. La figure 1.1 les présente avec les différentes relations qui les lient. Leurs définitions sont présentées dans le tableau 1.1. Des produits de puissance des unités de bases permettent de former les unités dérivés. Par exemple, l'unité de résistance électrique, l'ohm Ω , s'écrit $\text{m}^2.\text{kg}.\text{s}^{-3}.\text{A}^{-2}$ en unité SI.

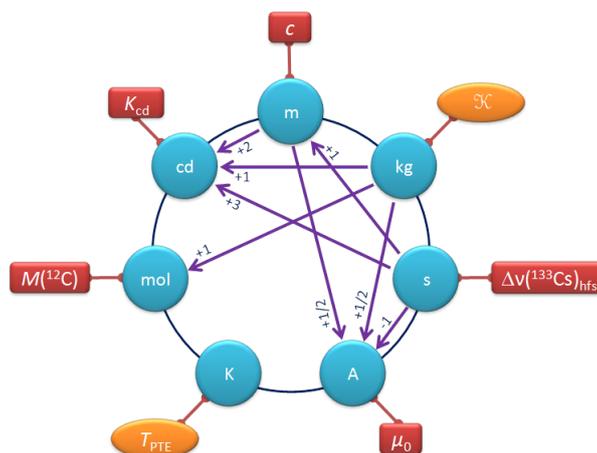


FIGURE 1.1 – a) Le Système International d'unités actuel, ainsi que les relations entre les unités.

La seconde et le mètre sont les seules unités qui possèdent une définition liée à la physique moderne. La définition du kelvin est fondée sur un état physique correspondant à un équilibre thermodynamique. La définition de l'ampère (1948) repose sur l'électromagnétisme et la mécanique et fixe la valeur de la permittivité du vide μ_0 . Toutes ces définitions d'unités sont basées sur des phénomènes physiques. Le kilogramme est la seule exception. Elle est la dernière unité à être définie à partir d'un artefact, et ce depuis 1889.

1.2 Les unités électriques

L'ampère est l'une des sept unités de base du SI dont découlent les définitions des autres unités électriques. À titre d'exemple, le volt est la différence de potentiel

Unité	Symbole	Définition
mètre	m	Le mètre est la longueur du trajet parcouru dans le vide par la lumière pendant une durée de $1/299\,792\,458$ de seconde. 17e CGPM (1983)
kilogramme	kg	Le kilogramme est l'unité de masse ; il est égal à la masse du prototype international du kilogramme. 3e CGPM (1901)
seconde	s	La seconde est la durée de $9\,192\,631\,770$ périodes de la radiation correspondant à la transition entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental de l'atome de césium 133. 13e CGPM (1967/68)
ampère	A	L'ampère est l'intensité d'un courant constant qui, maintenu dans deux conducteurs parallèles, rectilignes, de longueur infinie, de section circulaire négligeable et placés à une distance de 1 mètre l'un de l'autre dans le vide, produirait entre ces conducteurs une force égale à 2×10^{-7} newton par mètre de longueur. 9e CGPM (1948)
kelvin	K	Le kelvin, unité de température thermodynamique, est la fraction $1/273,16$ de la température thermodynamique du point triple de l'eau. 13e CGPM (1967/68)
mole	mol	La mole est la quantité de matière d'un système contenant autant d'entités élémentaires qu'il y a d'atomes dans 0,012 kilogramme de carbone 12. 14e CGPM (1971)
candela	cd	La candela est l'intensité lumineuse, dans une direction donnée, d'une source qui émet un rayonnement monochromatique de fréquence 540×10^{12} hertz et dont l'intensité énergétique dans cette direction est $1/683$ watt par stéradian. 13e CGPM (1967)

TABLE 1.1 – Définitions des différentes unités de base du SI.

électrique qui existe entre deux points d'un fil conducteur transportant un courant constant de 1 ampère, lorsque la puissance dissipée entre ces points est égale à 1 watt. Le volt est donc défini par l'ampère et le watt.

L'ampère étant central dans les définitions des autres unités électriques, les larges incertitudes sur la réalisation de cette unité limitent l'exactitude de réalisation des autres à quelques 10^{-7} en valeur relative. Depuis 1948, date de la définition actuelle de l'ampère, les avancées de la physique ont mis en évidence de nouveaux phénomènes, comme le blocage de Coulomb, l'effet Hall quantique ou l'effet Josephson, permettant d'améliorer l'exactitude de réalisation des différentes unités électriques.

1.2.1 L'ampère

La définition de l'ampère est illustrée sur la figure 1.2. Dans cette définition, présentée dans le tableau 1.1, le courant est défini par la force magnétique, dite force

d'ampère, qu'il génère par circulation dans des fils infiniment longs et infiniment fins.

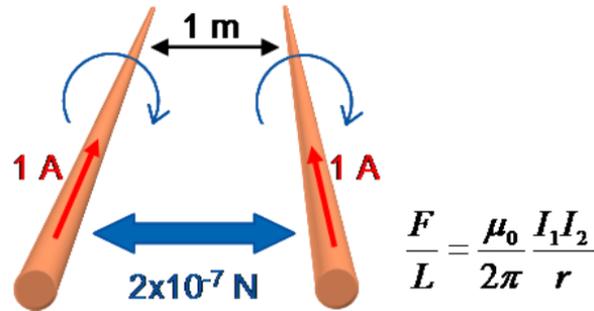


FIGURE 1.2 – La définition de l'ampère dans le SI.

Cette définition qui fixe la valeur de la perméabilité magnétique du vide $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ kg.m.A}^{-2}.\text{s}^{-2}$, date de 1948 et repose sur des propriétés électromécaniques. La limite de la réalisation de cette définition est intrinsèque puisque des fils infiniment fins et longs ne peuvent être réalisés. De plus, les précisions sur la distance entre les fils qui doit être maintenue constante sur toute la longueur, ainsi que sur les mesures de la force, ne permettent pas d'obtenir des exactitudes relatives suffisantes, c'est-à-dire 10^{-8} .

Les métrologues ont imaginé une mise en œuvre, la balance de l'ampère, afin de réaliser cette définition. Le courant circule dans deux fils bobinés. Une des bobines est attachée à un bras d'une balance. La force magnétique entre les deux bobines est compensée par des poids servant à équilibrer la balance. L'incertitude de cette mise en œuvre est de quelques 10^{-6} à cause des incertitudes sur le calcul du champ magnétique rayonné par la bobine, et donc de la force d'Ampère.

Physiquement nous savons que le courant électrique correspond à un nombre de charges élémentaires circulant dans un conducteur par unité de temps. Les chercheurs ont alors imaginé des transistors mono-électroniques (SET pour single electron transistor) permettant de manipuler la charge élémentaire. Un dispositif SET est composé d'un îlot central séparé d'une source et d'un drain par des jonctions tunnels. Le schéma d'un transistor SET est représenté sur la figure 1.3 a). Le transistor est polarisé par une tension V_p et l'îlot est couplé capacitivement à une grille connectée à un générateur de tension V_g .

Sur la figure 1.3 b), l'électron n'a pas d'état accessible dans l'îlot, il ne peut pas passer par effet tunnel. En effet, les niveaux d'énergie de l'îlot sont séparés par une énergie $E_{n+1} - E_n = e^2/C_{ilot}$ où $C_{ilot} = 2C + C_g$. Cette énergie électrostatique de Coulomb est l'énergie de charge, c'est l'énergie qu'il faut fournir pour rajouter un électron sur un îlot. C'est le blocage de Coulomb. Pour pouvoir observer le blocage de Coulomb, il faut que l'énergie thermique soit plus faible que l'énergie de charge $e^2/C_{ilot} \gg k_B T$, pour interdire aux électrons un passage par activation thermique, de manière non contrôlée. La température typique d'observation du phénomène de blocage de Coulomb, dans des dispositifs sub-microniques, est de l'ordre de quelques centaines de millikelvin. Du principe d'incertitude on déduit que $\Delta E \approx h/RC_{ilot}$. La quantification de la charge impose que $R > h/e^2$. La résistance tunnel doit donc

être très supérieure au quantum de résistance. À l'inverse, sur la figure 1.3 c), la tension de grille V_g est modifiée de sorte qu'un état soit disponible pour l'électron. La transmission d'un unique électron par saut tunnel devient alors possible. Lorsque l'électron quitte l'îlot pour aller dans le drain, le cycle peut recommencer, avec à chaque cycle, un électron passant les barrières tunnels.

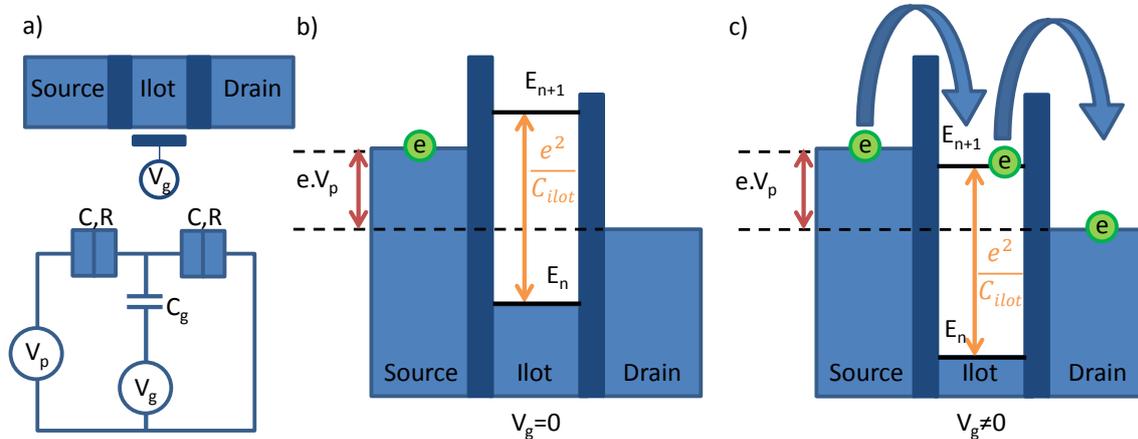


FIGURE 1.3 – a) Schéma d'un dispositif SET avec son circuit électrique équivalent. b) Niveau énergétique du dispositif SET en situation de blocage de Coulomb pour une tension de grille $V_g = 0$, le saut tunnel est impossible. c) $V_g \neq 0$, transmission possible d'un électron par saut tunnel.

Le dispositif SET permet bien le passage des électrons un par un, cependant le saut tunnel est un phénomène aléatoire non-contrôlé dans le temps. Les physiciens ont donc complexifié ces dispositifs afin de fabriquer des pompes à électrons pour pallier ce problème. Elles ont été pensées dans le but de contrôler le transfert électron par électron à une certaine fréquence. La figure 1.4 a) présente le schéma d'une pompe mono-électronique métallique à trois jonctions tunnels et deux îlots, capacitivement couplés aux tensions de grille V_{g1} et V_{g2} . Ces deux tensions de grille permettent, pour certains couples de tension, d'avoir un courant non-nul en sortie du dispositif.

L'espace des phases des tensions est représenté sur la figure 1.4 b). La pompe est toujours en état de blocage de Coulomb sauf pour certains couples de tension, appelés les points triples. Chaque point est le sommet d'un hexagone correspondant à un état de fonctionnement particulier de la pompe. Le moyen de générer du courant est de tourner autour d'un point triple, c'est-à-dire, passer d'un état où il n'y a pas d'électron dans aucun des deux îlots, état $(0,0)$, à un état $(1,0)$ qui correspond à la situation où un électron est en excès dans le premier îlot et où aucun électron n'est dans le second. Vient ensuite l'état $(0,1)$, avec un électron en excès dans le second îlot et aucun dans le premier. Finalement, il ne reste plus qu'à faire sortir l'électron du second îlot pour revenir à l'état initial $(0,0)$ et ainsi avoir généré un courant d'un électron par cycle. En réalisant plusieurs fois ce cycle, il est possible de générer un courant proportionnel à la fréquence de répétition du cycle tel que $I = Qf_p$, où Q est théoriquement égal à e et f_p la fréquence de pompage.

Les courants générés par les pompes à électrons métalliques sont faibles, de l'ordre de 1 à quelques dizaines de picoampère. Les taux d'erreurs par cycle ont

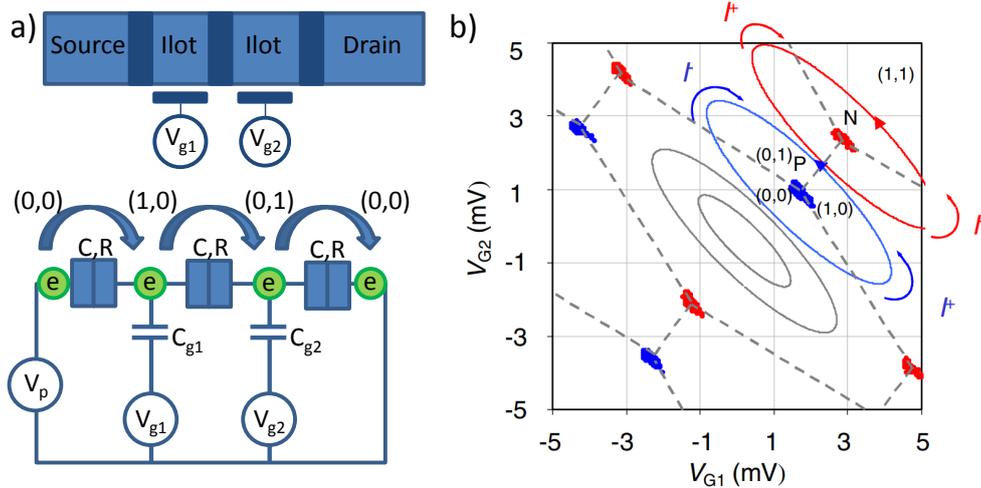


FIGURE 1.4 – a) Schéma électrique d'une pompe à électron à trois jonctions tunnels. b) Diagramme des points triples en fonction des deux tensions de grilles (V_{g1} , V_{g2}). Image extraite de [27].

été démontrés $< 10^{-8}$ en valeur relative, cependant l'exactitude du courant est déterminée avec des incertitudes relatives plus larges. Une capacité étalonnée peut être utilisée pour mesurer des courants de cette amplitude. Pour cela, la capacité est chargée avec un nombre précis d'électrons [69]. La tension mesurée à ses bornes est étalonnée par un étalon de tension Josephson. On peut citer quelques résultats obtenus avec des pompes métalliques : Keller *et al* ont généré un courant de 1 pA avec une incertitude relative de $9,2 \times 10^{-7}$ en utilisant une pompe à 7 jonctions [70]. Camarota *et al* ont utilisé une pompe métallique de type R à cinq jonctions, fonctionnant à 40 mK. Ils ont généré un courant inférieur à 10^{-13} A exact à une incertitude relative près de $1,66 \times 10^{-6}$ [16]. Une description des pompes à électrons plus récentes et plus performantes, réalisées en semi-conducteurs, sera faite plus tard dans le chapitre consacré à l'étalon quantique de courant.

Les dispositifs SET ne sont pas utilisés dans les instituts nationaux de métrologie pour réaliser des étalonnages. Ces dispositifs sont trop irréproductibles et ils n'ont pas de critères de quantification fiables. À la place, les laboratoires nationaux de métrologie utilisent la loi d'Ohm appliquée à des étalons secondaires de tension et de résistance, étalonnés par rapport aux étalons quantiques (décrits ci-après). Les incertitudes associées sont de l'ordre de 10^{-6} en valeur relative pour des courants entre $1 \mu\text{A}$ et $0,1 \text{ A}$ [10]. Cette incertitude augmente avec la diminution du courant à étalonner.

1.2.2 Le volt

C'est en 1800 que A. Volta invente la pile voltaïque qui est une superposition de plusieurs disques de cuivre avec des disques de zinc. Les disques des deux matériaux sont séparés par un tissu retenant une solution aqueuse de NaCl. À l'interface entre la solution et le zinc, se passe une réaction d'oxydo-réduction qui génère une tension. En 1881, le Congrès international d'électricité définit le volt par la "différence de potentiel électrique qui existe entre deux points d'un circuit parcouru par un courant

constant de 1 ampère, lorsque la puissance dissipée entre ces deux points est égale à 1 watt". C'est une unité dérivée du SI où $1 \text{ V} = 1 \text{ kg.m}^2.\text{A}^{-1}.\text{s}^{-3}$. Les premiers étalons de conservation du volt fondés sur le principe de la pile voltaïque avaient des forces électromotrices constantes de 1,079 volts à 20°C. Ils étaient fabriqués à partir de piles étalons au Cadmium avec une solution électrolytique. Les incertitudes de réalisation étaient alors de l'ordre de quelques 10^{-6} en valeur relative. Plus tard, on comparera la force électromotrice à la force mécanique créant ainsi la balance du volt qui a permis d'obtenir des incertitudes de réalisation du volt plus faibles, par la mise en œuvre d'une expérience plus complexe.

En 1962, Brian David Josephson prédit théoriquement la circulation de supercourants entre des supraconducteurs séparés par une barrière tunnel [65] : c'est l'effet Josephson. Il sera mis en évidence une année plus tard par S. Shapiro [122]. Lorsque les barrières non-supraconductrices sont suffisamment fines, les paires de Cooper, formées par appariement de deux électrons, peuvent passer d'un supraconducteur à l'autre par effet tunnel, tout en gardant leur cohérence de phase. Un supercourant continu I_s traverse une jonction Josephson sans qu'aucune tension de polarisation ne soit appliquée. Plus généralement, le courant circulant I_s est donné par :

$$I_s = I_c \sin(\Delta\phi) \quad (1.1)$$

où I_c est le supercourant maximal que peut supporter la jonction et $\Delta\phi$, la différence de phase des fonctions d'onde supraconductrices des deux matériaux supraconducteurs.

Si on applique une tension de polarisation aux bornes de la jonction, la variation de la différence de phase devient proportionnelle à la tension telle que :

$$\frac{d\Delta\phi}{dt} = \frac{2eV}{h} = \frac{V}{\phi_0} \quad (1.2)$$

où $\phi_0 = h/2e$ est le quantum de flux. Si la tension appliquée est continue, le courant traversant la jonction est alternatif de fréquence $2eV/h$. À l'inverse, il est possible de synchroniser le supercourant en irradiant la jonction par une onde électromagnétique extérieure à la fréquence f_J . Il apparaît alors des marches de tension, lorsqu'on trace la courbe $I(V)$. Ces marches ont une tension qui s'écrit comme :

$$V_J = n_S f_J \frac{h}{2e} = n \phi_0 f_J \quad (1.3)$$

où n_S est le numéro de marche de Shapiro. La jonction joue le rôle d'un convertisseur fréquence-tension. Sur le plateau de tension, pour chaque photon absorbé, une variation de phase de 2π s'opère, correspondant à un quantum de flux.

Le modèle RCSJ (Resistively and Capacitively Shunted Junction) [89], permet de rendre compte de la dynamique de la jonction. Il prend en considération les valeurs de la capacité et de la résistance qui court-circuitent une jonction idéale. L'équation 1.2 devient :

$$\frac{\hbar C}{2e} \frac{d^2 \Delta\Phi}{dt^2} + \frac{\hbar}{2eR} \frac{d\Delta\Phi}{dt} + I_C \sin(\Delta\Phi) = I_0 + I_{r,f} \sin(\omega_J t) \quad (1.4)$$

où R et C sont la résistance R et la capacité C de la jonction, I_0 est le courant continu de polarisation, I_C est le courant critique de la jonction et $I_{r,f}$ est le courant

alternatif de fréquence $f_J = \omega_J/2\pi$. Lorsque la jonction est synchronisée avec le signal hyperfréquence, le courant supraconducteur oscille à la fréquence harmonique nf_J où n est un entier. Pour chaque harmonique, une marche de tension va se créer, dont la largeur en courant ΔI_n est donnée par la fonction de Bessel d'ordre n , J_n :

$$\Delta I_n = 2I_C |J_n(2eV_{rf}/hf_J)| \quad (1.5)$$

où V_{rf} est l'amplitude du signal hyperfréquence en tension au niveau de la jonction. On peut définir un paramètre d'amortissement $\beta_C = \frac{2e}{h} I_C R^2 C$. Dans le cas où $\beta_C \gg 1$, la jonction est sous amortie, c'est une jonction hystérétique. Au contraire, dans le cas où $\beta_C \leq 1$, la jonction est amortie. C'est ce type de jonction qui est utilisé dans les réseaux Josephson programmables PJVS (Programmable Josephson Voltage Standards).

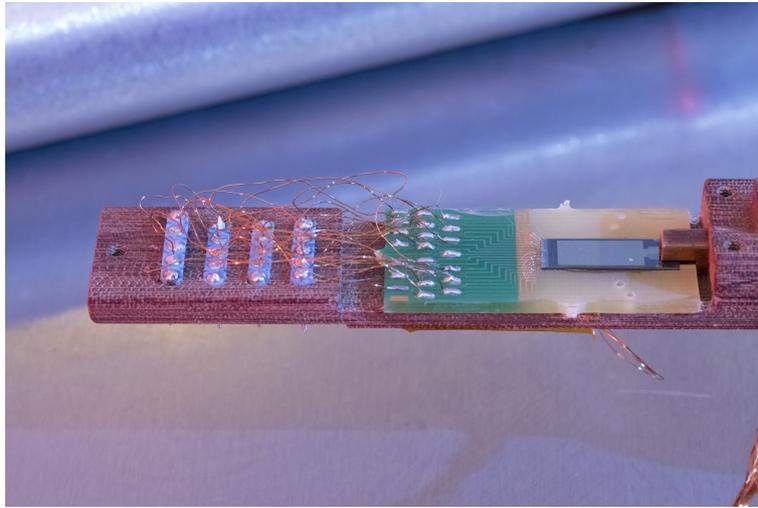


FIGURE 1.5 – Photographie d'un réseau Josephson étalon de 8192 jonctions, fabriqué à la PTB en Allemagne.

La tension V_J est reliée aux constantes h et e . C'est pour cette raison que la tension est reproductible et universelle. La reproductibilité et l'universalité ont été prouvées en opposant la tension aux bornes de deux jonctions fabriquées dans des matériaux différents. L'opposition a montré une égalité entre les tensions avec une incertitude relative de 2×10^{-16} [77]. Il a été recommandé par la Conférence Générale de Poids et Mesures (CGPM) d'utiliser l'effet Josephson comme étalon de conservation de la tension à partir de 1990 [113]. Il a cependant fallu construire des dispositifs générant des tensions supérieures à celle d'une unique jonction pour pouvoir réaliser des étalonnages avec des incertitudes relatives faibles ($< 10^{-8}$). Il a été développé des réseaux comptant des milliers de jonctions pour atteindre des tensions de 1 V puis de 10 V. Sur la photographie 1.5, un réseau programmable de 8192 jonctions Josephson est visible. Ce type de réseau réalise un étalon de tension reproductible avec une incertitude relative inférieure à 10^{-10} . Dans le cas des réseaux programmables, les marches de tension utilisées sont les marches $n_S = 0$ ou ± 1 . Il est possible de réécrire l'équation 1.3 en faisant apparaître la constante de Josephson K_J théoriquement égale à $2e/h$. On a alors :

$$V_J = n_J K_J^{-1} f_J \quad (1.6)$$

où n_J est le nombre de jonctions utilisées pour générer la tension.

La valeur de K_J adoptée par le CIPM est $K_J = 483597,8525(1 \pm 4 \times 10^{-7})$ GHz.V⁻¹ [95].

1.2.3 L'ohm

Peu après la découverte de la pile voltaïque, G. S. Ohm commence à l'étudier et découvre une relation de proportionnalité entre la tension aux bornes d'un conducteur et le courant électrique le traversant, c'est la résistance électrique.

"L'ohm est la résistance électrique qui existe entre deux points d'un conducteur lorsqu'une différence de potentiel constante de 1 volt, appliquée entre ces deux points, produit, dans ce conducteur, un courant de 1 ampère, ce conducteur n'étant le siège d'aucune force électromotrice." La réalisation de l'ohm dans le SI se fait par l'intermédiaire d'un étalon du farad, tel que l'étalon calculable de Thompson-Lampard [129]. La résistance électrique R peut être comparée, à quelques 10^{-8} près, à une capacité étalon C en utilisant un pont de quadrature :

$$R = \frac{\omega}{C} \quad (1.7)$$

où ω est la fréquence d'alimentation du pont.

En 1980, K. von Klitzing, publie un article dans lequel il découvre l'effet Hall quantique. Cette découverte a été faite dans un conducteur MOSFET-silicium placé sous un fort champ magnétique. L'effet Hall quantique apparaît dans un gaz d'électron bidimensionnel soumis à un fort champ magnétique et à basse température. En régime d'effet Hall quantique entier, la résistance longitudinale au sens de propagation du courant est nulle, tandis que la résistance transverse est quantifiée aux valeurs R_K/i , où i est un entier et R_K est la constante de von Klitzing, théoriquement égale à $R_K = h/e^2$. La valeur adoptée est $R_K = 25812,807(1 \pm 1 \times 10^{-7}) \Omega$ [95].

À partir de 1990, le CIPM recommande l'utilisation de l'effet Hall quantique pour le maintien de l'ohm [114]. Les métrologues utilisent depuis une hétérostructure en GaAs/AlGaAs, à l'interface de laquelle se forme un gaz d'électron bidimensionnel (photographie figure 1.6). Une description plus complète des étalons de résistance sera faite dans le chapitre consacré à la métrologie de l'ohm.

1.2.4 Le kilogramme

Le kilogramme est la seule unité encore définie par un artefact, le prototype international du kilogramme, qui est en platine iridié et conservé au Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) à Sèvres (figure 1.7 a)). Sur la figure 1.7 b), il est possible d'observer l'évolution des écarts relatifs du prototype du kilogramme (réalisé en 1875) avec ses copies. Ces dérives relatives sont faibles, 3×10^{-8} sur une durée de 125 ans, soit $2,4 \times 10^{-10}$ par an en moyenne. Mais elles existent et posent quelques questions quant à la qualité de la définition du kilogramme. Elles peuvent s'expliquer par le fait que l'étalon, ainsi que ces copies, sont des artefacts matériels et, par conséquent, peuvent être sensibles à l'environnement, en l'occurrence capter des atomes ou s'oxyder. Par ailleurs, toutes les unités, à l'exception de la seconde et du mètre, sont reliées au kilogramme. Une dérive du kilogramme impacte donc toutes

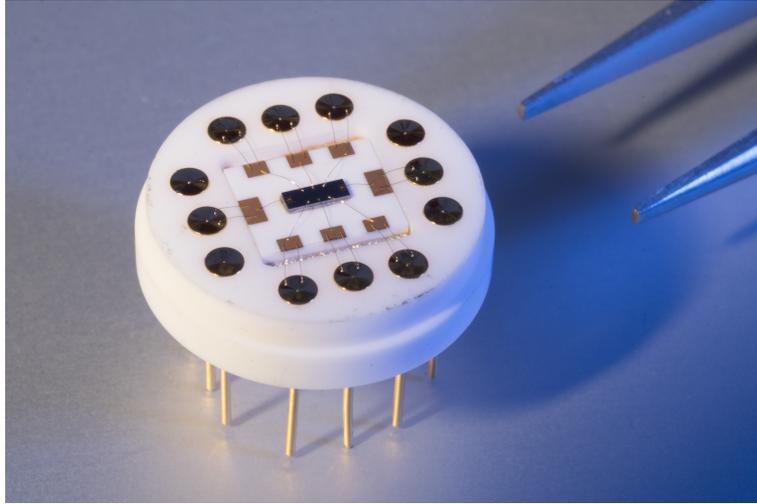


FIGURE 1.6 – Photographie d'un étalon de résistance en GaAs/AlGaAs fondé sur l'effet Hall quantique entier.

ces unités directement. En plus de ce problème de dérive, il n'existe qu'une seule réalisation de la définition du kilogramme dans le monde rendant sa dissémination difficile.

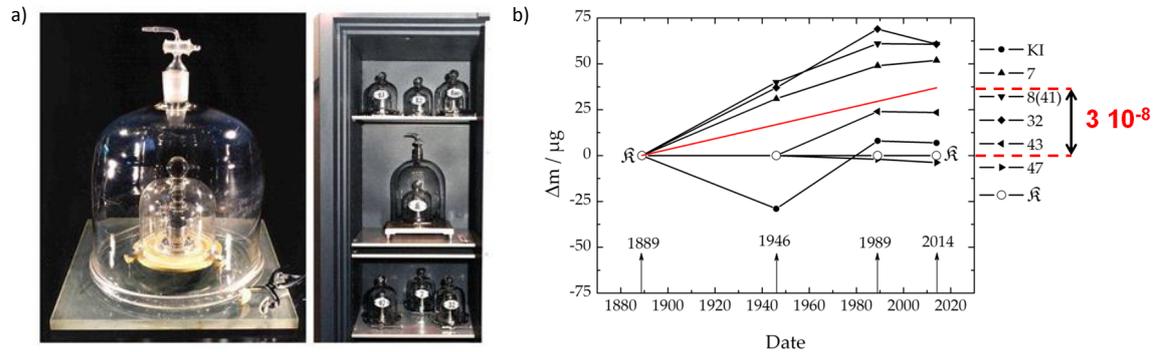


FIGURE 1.7 – a) Le prototype international du kilogramme ainsi que ses copies. b) Variation de la masse des copies par rapport à la masse du prototype international en fonction du temps.

En vue de redéfinir le kilogramme, les métrologues ont imaginé une expérience comparant la puissance mécanique d'une masse m soumise au champ gravitationnel g , à une puissance électrique. La comparaison des puissances est réalisée par la mise en œuvre de deux équilibres correspondant à deux phases de l'expérience. Lors de la phase statique, le poids de la masse m est équilibré par la force électromagnétique générée par un courant $I = V/R$ circulant dans une bobine de longueur l , placée dans un champ magnétique radial B . L'équilibre est représenté sur la figure 1.8. L'équation exprimant l'équilibre de la balance s'écrit :

$$mg = BIl \quad (1.8)$$

Le problème de cette équation est qu'il est difficile de connaître très précisément la longueur l . B. Kibble a eu l'idée de mettre en œuvre une phase dynamique pour

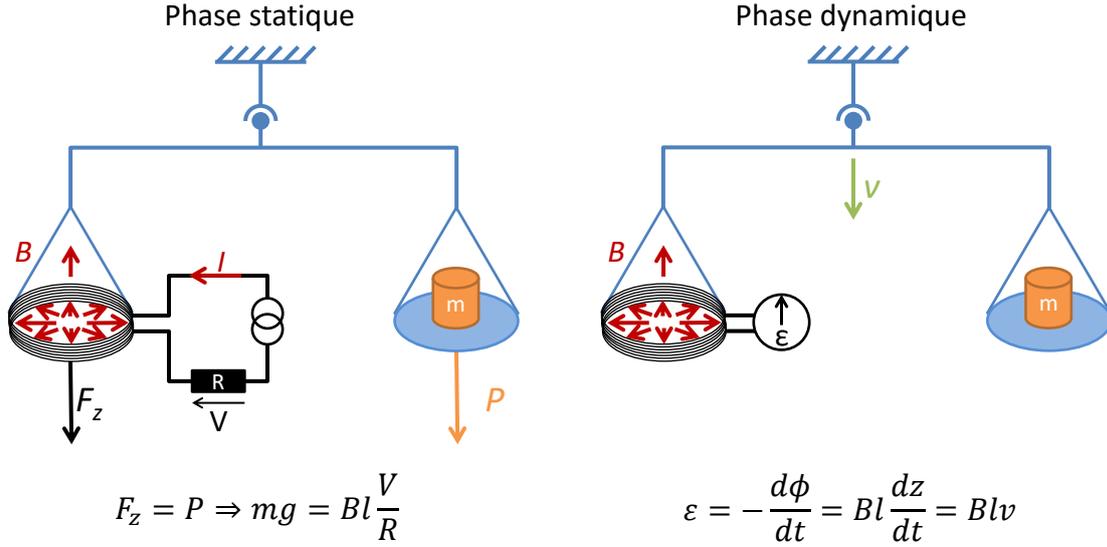


FIGURE 1.8 – Principe de l’expérience de la balance du watt. À gauche, la phase statique, où la masse est comparée à la force électromagnétique générée par une bobine. À droite, la phase dynamique, la balance est mise en mouvement.

remédier à ce problème. Dans la phase dynamique, la bobine se déplace à la vitesse v dans le champ magnétique radial. Une différence de tension est alors créée $\varepsilon = -\frac{d\phi}{dt} = Blv$. Cette nouvelle équation combinée à l’équation 1.8 permet de substituer le facteur géométrique l de la bobine. L’équation 1.8 se réécrit :

$$mgv = \frac{V\varepsilon}{R} \quad (1.9)$$

En utilisant l’effet Hall quantique ainsi que l’effet Josephson pour étalonner la résistance et les tensions, le kilogramme est alors relié aux constantes R_K et K_J . En remplaçant dans l’équation 1.9, $R = R_K/2$, $V = n_1 K_J^{-1} f_1$ et $\varepsilon = n_2 K_J^{-1} f_2$, où n_1 et n_2 sont les nombres de jonctions Josephson, f_1 et f_2 sont les fréquences Josephson, il en résulte :

$$mgv = \frac{2n_1 n_2 f_1 f_2}{K_J^2 R_K} \quad (1.10)$$

Si les expressions théoriques $K_J = 2e/h$ et $R_K = h/e^2$ sont adoptées, alors la masse m est directement reliée à la constante de Planck h via la relation :

$$m = h \frac{2n_1 n_2 f_1 f_2}{4gv} \quad (1.11)$$

La balance de Kibble permet donc de mesurer la constante de Planck à partir de l’étalon de masse.

La figure 1.9 a) présente l’état de l’art des déterminations de la constante de Planck d’après les travaux du groupe CODATA [95]. Celles obtenues à partir de la balance de Kibble sont écrites en violet. Une valeur de h a été donnée en 2017 par la balance de Kibble du LNE, en photographie 1.9 b), avec une incertitude relative de $5,7 \times 10^{-8}$ [128].

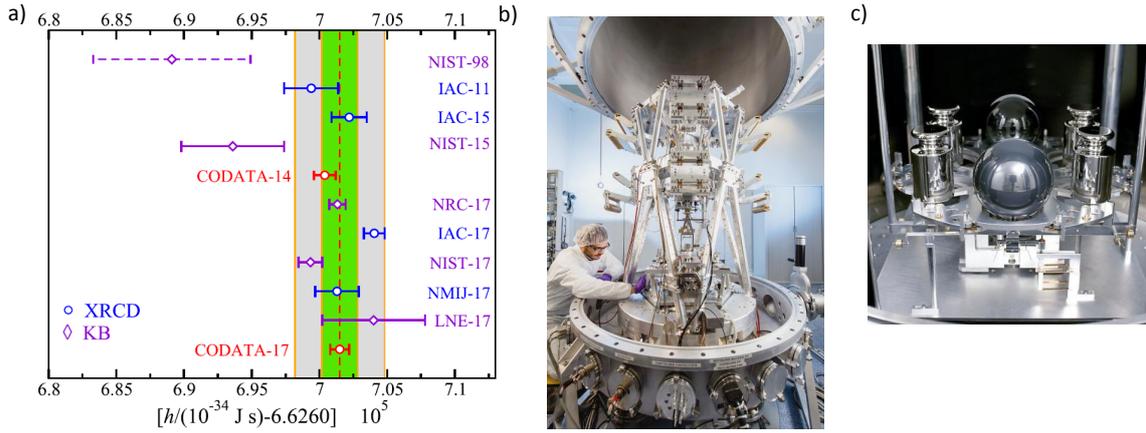


FIGURE 1.9 – a) Déterminations de la constante de Planck h d’après les travaux du groupe CODATA [95]. b) Photographie de la balance de Kibble du LNE. c) Photographie d’une sphère de silicium.

Il est également possible de déterminer h , et par conséquent la masse, à partir du nombre d’Avogadro N_A en utilisant la relation $h = \frac{c A_r(e) M_u \alpha^2}{2 R_\infty N_A}$, où $A_r(e)$ est la masse atomique relative de l’électron, M_u est la constante de masse molaire, R_∞ est la constante de Rydberg. La valeur de N_A a été déterminée à partir du nombre d’atomes contenu dans une sphère de silicium, en photographie 1.9 c), de volume V_{sphere} et de masse m_{sphere} , selon la relation $N_A = \frac{M_{\text{Si}} V_{\text{sphere}}}{\sqrt{8} d_{220}^3 m_{\text{sphere}}}$, où M_{Si} est la masse molaire du silicium et d_{220} est la distance inter-atomique mesurée par diffraction X. Cependant, la sphère de silicium est un artefact matériel, et bien qu’il soit possible d’en fabriquer plusieurs, on peut imaginer que les problèmes que rencontre le prototype international du kilogramme étalon actuellement tels que des dérives dans le temps liés à l’oxydation ou à l’adsorption d’atomes, pourraient se répéter avec une sphère de silicium.

La figure 1.9 a) montre qu’il y n’a pas d’écart significatif entre les deux types de mesure. En combinant toutes les mesures de h réalisées, il est possible de donner une valeur de la constante de Planck $h = 6,626070150 \times 10^{-34} (1 \pm 1 \times 10^{-8})$ [95].

1.3 Le nouveau SI

La réalisation des unités électriques est donc limitée par l’incertitude sur la réalisation de la définition de l’ampère. Il n’est donc pas possible d’exploiter la reproductibilité et l’universalité de l’effet Hall quantique et de l’effet Josephson, non seulement pour l’ohm et le volt mais également pour le kilogramme. D’autres unités sont également limitées par leur définition, par exemple le kelvin, qui se trouve limité par la pureté de l’eau. Ces limitations peuvent être levées avec une modification majeure du SI. Une proposition d’un nouveau SI a émergé avec l’ambition d’introduire la physique quantique et la physique statistique, tout en ayant des définitions ne dépendant plus de réalisations spécifiques.

Ce processus a déjà été entamé par la redéfinition du mètre en 1983 quand la vitesse de la lumière dans le vide a été fixée pour définir le mètre. Plus généralement,

il est possible de fixer des constantes qui définissent les unités. Le futur SI comptera toujours 7 unités de base, comme représenté sur la figure 1.10 [93,94]. Chaque unité sera définie à partir d'une constante comme c'est déjà le cas pour le mètre. Les futures définitions des constantes et des unités sont présentées dans le tableau 1.2.

Unité	Définition de la constante associée
mètre	La vitesse de la lumière dans le vide c est égale à exactement 299 792 458 mètres par seconde.
kilogramme	La constante de Planck h est égale à exactement $6,626\,07015 \times 10^{-34}$ joule seconde.
seconde	La fréquence de la transition hyperfine dans l'état fondamental de l'atome de césium 133 $\Delta\nu$ (^{133}Cs) $_{hfs}$ est égale à exactement 9192631770 hertz
ampère	La charge élémentaire e est égale à exactement $1,6021760634 \times 10^{-19}$ coulomb
kelvin	La constante de Boltzmann k_B est égale à exactement $1,380649 \times 10^{-23}$ joule par kelvin
mole	La constante d'Avogadro N_A est égale à exactement $6,02214076 \times 10^{23}$ par mole
candela	L'efficacité lumineuse K_{cd} d'un rayonnement monochromatique de fréquence 540×10^{12} Hz est égale à exactement 683 lumens par watt

TABLE 1.2 – Définitions des unités de base du Système International (SI) à partir du 20 mai 2019. Les valeurs des constantes sont établies à partir de l'ajustement CODATA 2017 [95]

Ce changement de SI est prévu pour le 20 mai 2019. Plusieurs constantes seront donc fixées comme la charge élémentaire e , la constante de Planck h , la constante d'Avogadro et la constante de Boltzmann, définissant ainsi l'ampère, le kilogramme, la mole et le kelvin.

De plus, les relations $R_K = h/e^2$ et $K_J = 2e/h$ seront adoptées et seront donc sans incertitude. Les réalisations de l'ohm via l'effet Hall quantique et de la tension via l'effet Josephson seront également sans incertitude, si ce n'est celles liées à leur mise en œuvre. Il sera également possible de réaliser la future définition de l'ampère à partir de la charge élémentaire via la loi d'Ohm, en l'appliquant aux étalons quantiques de tension et de résistance.

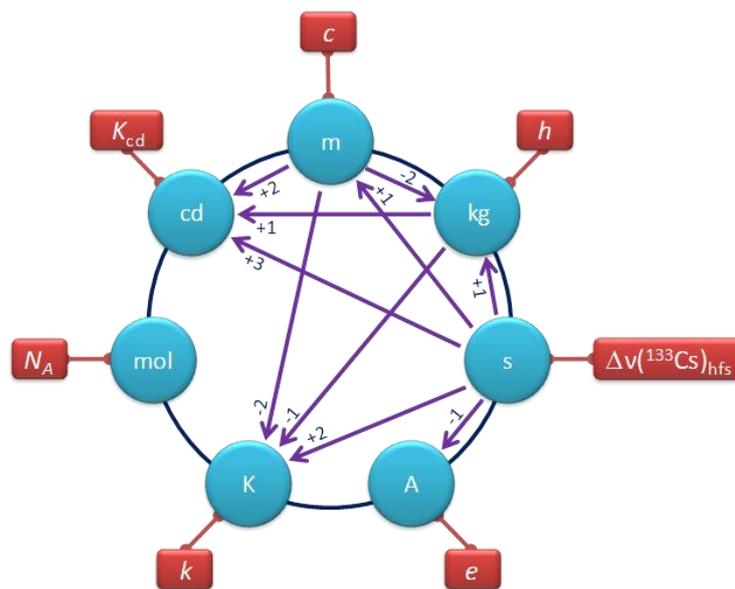


FIGURE 1.10 – Représentation du nouveau SI avec les unités et les constantes qui leurs sont propres ainsi que les liens entre les unités.

Chapitre 2

Le graphène

Le graphite est constitué de feuilles d'atomes de carbone empilées les unes sur les autres. L'exfoliation de feuilles de carbone est aisée. Une image optique d'une exfoliation est reportée sur la figure 2.1 a). C'est par cette technique d'exfoliation mécanique avec du "scotch", qu'une unique monocouche de carbone a été isolée pour la première fois par Geim et Novoselov de l'université de Manchester en 2004 [101] ainsi que par P. Kim [142]. L'étude des propriétés de transport électrique leur valut le prix Nobel de physique en 2010. En effet ils ont réussi à montrer que les porteurs de charge se comportent comme des particules sans masse et circulent à une vitesse limite très élevée $v_F = c^* = 10^6 \text{ m.s}^{-1}$. Par analogie on peut considérer que se sont des quasi-particules relativistes [100]. Ces feuilles de carbone ont une épaisseur monoatomique et sont appelées feuilles de graphène. Le carbone, lorsqu'il est organisé de manière à ne former qu'un plan bidimensionnel, s'arrange en un réseau hexagonal de sorte à ce que chaque atome soit lié à trois autres atomes, comme imagé sur la figure 2.1 b). Le carbone a 6 électrons de valence, qui remplissent les orbitales atomiques de la manière suivante : $1s^2$, $2s^2$, $2p^2$. Dans le graphène, les fonctions d'ondes $2s$ et $2p$ sont hybridées de sorte à avoir 3 états sp^2 dans le plan, orientés à 120° les uns des autres et 2 états p_z hors du plan, représentées figure 2.1 c).

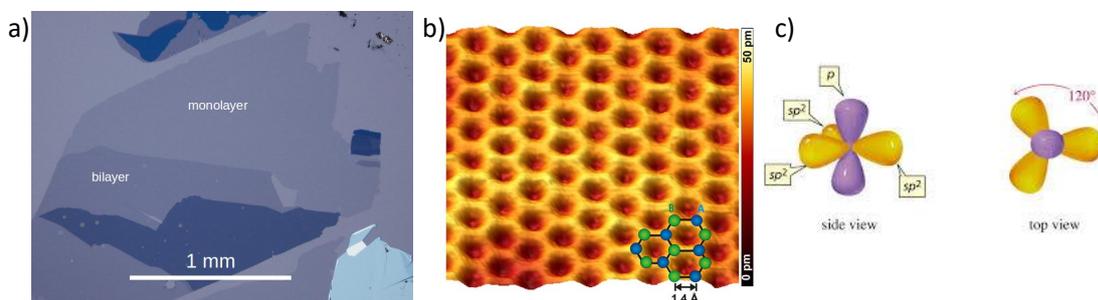


FIGURE 2.1 – a) Image optique de mono-couches de graphène ainsi que de bi-couches. b) Image STM montrant la forme du réseau hexagonal. c) Hybridation des orbitales du carbone dans le graphène.

2.1 La structure cristallographique du graphène

La présentation du graphène et de ses propriétés s'appuie sur les cours de J. Cayssol donnés lors de l'école d'été de physique mésoscopique, ainsi que sur un article de revue de M. O. Goerbig [45].

Le graphène est un cristal bidimensionnel constitué d'atomes de carbone formant un réseau hexagonal qui n'est pas un réseau de Bravais car les sites atomiques voisins ne sont pas équivalents. Il y a deux atomes A et B distincts par maille. Sur la figure 2.2 a), les atomes vides A constituent un premier sous-réseau, tandis que les atomes pleins B en représentent un autre. Ces deux sous-réseaux de Bravais sont tous deux triangulaires et les atomes formant ces triangles sont reliés par les vecteurs \mathbf{a}_1 et \mathbf{a}_2 avec :

$$\mathbf{a}_1 = \sqrt{3}a\mathbf{e}_x \quad \text{et} \quad \mathbf{a}_2 = \frac{\sqrt{3}a}{2} (\mathbf{e}_x + \sqrt{3}\mathbf{e}_y) \quad (2.1)$$

où $a \simeq 0,142 \text{ nm}$ est la distance inter-atomique. La distance séparant deux atomes plus proches voisins des deux sous-réseaux est donnée par les trois vecteurs δ_1, δ_2 , et δ_3 où

$$\delta_1 = \frac{a}{2} (\sqrt{3}\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y) \quad \delta_2 = \frac{a}{2} (-\sqrt{3}\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y) \quad \delta_3 = -a\mathbf{e}_y \quad (2.2)$$

Le réseau réciproque est également triangulaire et défini par les vecteurs

$$\mathbf{b}_1 = \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} \left(\mathbf{e}_x - \frac{\mathbf{e}_y}{\sqrt{3}} \right) \quad \text{et} \quad \mathbf{b}_2 = \frac{4\pi}{3a} \mathbf{e}_y \quad (2.3)$$

La première zone de Brillouin, visible sur la figure 2.2 b), est hexagonale avec deux points non-équivalents, les points de Dirac, \mathbf{K} et \mathbf{K}' , situés à deux sommets opposés de l'hexagone et donnés par :

$$\mathbf{K} = \frac{4\pi}{3\sqrt{3}a} \mathbf{e}_x \quad \text{et} \quad \mathbf{K}' = -\frac{4\pi}{3\sqrt{3}a} \mathbf{e}_x \quad (2.4)$$

2.2 Les liaisons fortes

Le modèle de liaisons fortes permet de calculer le spectre en énergie considérant les deux atomes A et B par maille élémentaire. On peut écrire l'hamiltonien qui en résulte :

$$\hat{H} = -t \sum_{i \in A} \sum_{j=1}^3 \left(a_{\mathbf{R}_i}^\dagger b_{\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j} + b_{\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j}^\dagger a_{\mathbf{R}_i} \right) \quad (2.5)$$

où

- $t \approx 2,7 \text{ eV}$ l'énergie de saut entre deux plus proches voisins
- $a_{\mathbf{R}_i}^{(\dagger)}$ l'opérateur d'annihilation (création) qui supprime (créé) une particule à la position \mathbf{R}_i du sous-réseau A
- $b_{\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j}^{(\dagger)}$ l'opérateur d'annihilation (création) qui supprime (créé) une particule à la position $\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j$ du sous-réseau B

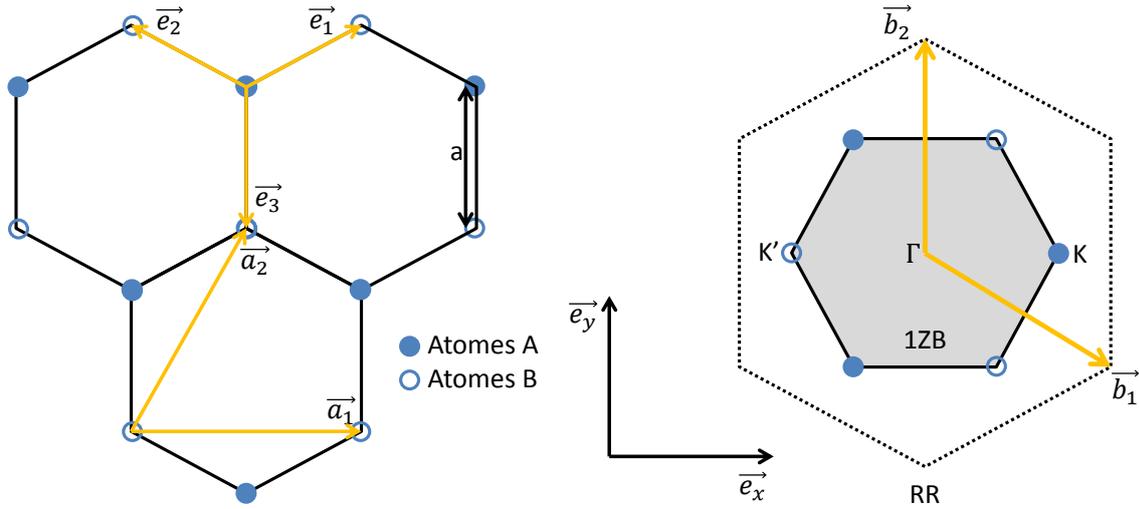


FIGURE 2.2 – a) Réseau de Bravais triangulaire du graphène. Chacun des sous-réseaux est défini par les atomes A (ou B). Les vecteurs δ_1, δ_2 , et δ_3 connectent les plus proches atomes de carbone. La distance entre les plus proches voisins est $a = 0,142 \text{ nm}$. b) Réseau réciproque (RR) avec la première zone de Brillouin (1ZB).

En introduisant les opérateurs d'échelle

$$a_{\mathbf{R}_i} = \sum_k \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_i) a_k \quad \text{et} \quad b_{\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j} = \sum_k \exp(-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i + \mathbf{e}_j)) b_k \quad (2.6)$$

on peut réécrire l'hamiltonien :

$$\hat{H} = \sum_k \begin{pmatrix} a_k^\dagger & b_k^\dagger \end{pmatrix} \mathcal{H}_k \begin{pmatrix} a_k \\ b_k \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

avec

$$\mathcal{H}_k = \begin{pmatrix} 0 & h(\mathbf{k}) \\ h^*(\mathbf{k}) & 0 \end{pmatrix} \quad \text{où} \quad h(\mathbf{k}) = -t \sum_j \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \quad (2.8)$$

On peut remarquer que la matrice est anti-diagonale du fait que le plus proche voisin de A est B et inversement. En utilisant les matrices de Pauli, on peut réécrire l'hamiltonien :

$$\mathcal{H}_k = -t \sum_j (\cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \sigma^x + \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \sigma^y) \quad (2.9)$$

où les matrices de Pauli sont définies comme :

$$\sigma^x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma^y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \sigma^z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

La diagonalisation de \mathcal{H}_k donne les valeurs propres qui sont :

$$\epsilon_k = \alpha t \sqrt{\left(\sum_j \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \right)^2 + \left(\sum_j \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \right)^2} \quad (2.11)$$

où $\alpha = \pm$ est l'indice de bande. La solution positive correspond à la branche des électrons (la bande de conduction), tandis que la solution négative correspond à celle des trous (la bande de valence). Les bandes de conduction et de valence se touchent aux six sommets de la première zone de Brillouin, c'est à dire aux points de Dirac (voir figure 2.3 a)). Le graphène est donc un semi-conducteur sans gap. Autour de des points de Dirac, la relation de dispersion est linéaire, le spectre d'énergie est donc conique. Pour du graphène non dopé, le niveau de Fermi repose au niveau des points de Dirac, comme il est possible de voir sur la figure 2.3 b)).

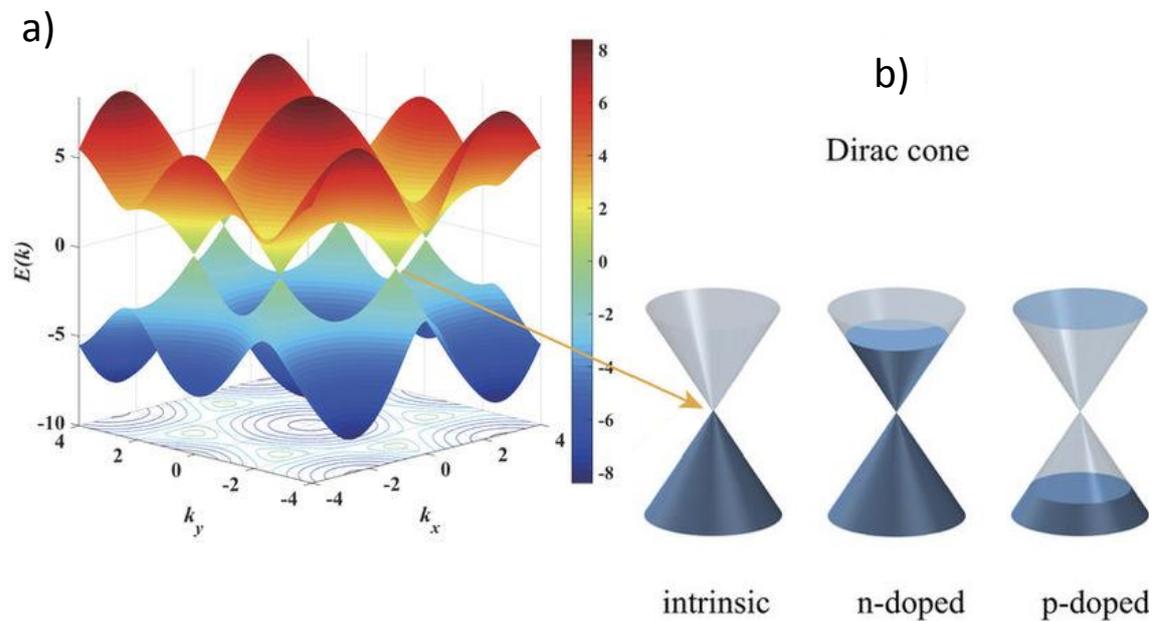


FIGURE 2.3 – a) Structure de bande d'une mono-couche de graphène. b) Cône de Dirac selon différents niveaux de dopage : intrinsèque, dopé en électrons, dopé en trous. Figure adaptée de [135].

2.3 La limite continue

Dans le but de décrire les excitations de basses énergies, on va se contenter de regarder les énergies proches des points de Dirac. Cela correspond à des excitations électroniques petites devant la largeur de bande $\epsilon \ll t$. Il existe deux hamiltoniens correspondant aux deux vallées \mathbf{K} et $\mathbf{K}' = -\mathbf{K}$. En décomposant le vecteur d'onde \mathbf{k} autour de \mathbf{K} ou de \mathbf{K}' selon $\mathbf{k} = \pm\mathbf{K} + \mathbf{q}$ et $|\mathbf{q}| \ll 1/a$, on peut réécrire l'élément

$h(\mathbf{k})$ de la matrice de l'hamiltonien :

$$\begin{aligned} h(\mathbf{k}) &= -t \sum_j \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}_j) \approx -t \sum_j \exp(-i(\xi\mathbf{K}) \cdot \mathbf{e}_j) (1 - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_j) \\ &\approx -it \sum_j \exp(i(\xi\mathbf{K}) \cdot \mathbf{e}_j) (\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_j) + \mathcal{O}(a^2) \\ &= \frac{3}{2}ta (\xi\mathbf{q}_x - i\mathbf{q}_y) + \mathcal{O}(a^2) \end{aligned}$$

où $\xi = \pm$ est l'indice de vallée. Ce qui donne un hamiltonien effectif à deux dimensions dans l'espace des sous réseaux A et B :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{q}}^{eff,\xi} = \frac{3}{2}ta \begin{pmatrix} 0 & \xi\mathbf{q}_x - \mathbf{q}_y \\ \xi\mathbf{q}_x + i\mathbf{q}_y & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_{\mathbf{q}}^A \\ \Psi_{\mathbf{q}}^B \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

En inversant le rôle des sous-réseaux, c'est à dire en échangeant les composantes du spineur pour la vallée \mathbf{K}' , l'hamiltonien effectif déterminant l'évolution du spineur à 4 composantes peut être écrit :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{q}}^{eff,\xi} = \hbar v_F \tau^z \otimes \mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad , \quad \Psi_{\mathbf{q}} = \begin{pmatrix} \Psi_{\mathbf{q}^+}^A \\ \Psi_{\mathbf{q}^+}^B \\ \Psi_{\mathbf{q}^-}^B \\ \Psi_{\mathbf{q}^-}^A \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

où

$$\tau^z \otimes \boldsymbol{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma & 0 \\ 0 & -\sigma \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

Les matrices de Pauli représentent le pseudo-spin de sous-réseau tandis que τ^z le pseudo-spin de vallée.

En introduisant la vitesse de Fermi :

$$v_F = \frac{3|t|a}{2\hbar} \approx 1,1 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1} \quad (2.15)$$

On obtient l'énergie de dispersion en diagonalisant l'hamiltonien :

$$\epsilon_{\mathbf{q},\alpha} = \alpha \frac{3}{2}ta|\mathbf{q}| = \alpha \hbar v_F |\mathbf{q}| \quad (2.16)$$

On peut remarquer que la relation de dispersion est continue et varie linéairement pour les faibles énergies, positives comme négatives. Il est possible de passer continuellement des électrons aux trous en modifiant l'énergie de Fermi. De plus, la masse des électrons n'intervient pas. Ils se comportent comme des particules sans masse se propageant à une vitesse limite v_F . Cette vitesse très élevée ($\approx 1/300$ de la vitesse de la lumière) par rapport aux semi-conducteurs classiques ($3 \times 10^5 \text{ m.s}^{-1}$), est très attractive pour fabriquer des capteurs ou des transistors avec un temps de réaction très court.

Dans le cas où les vallées sont découplées, on peut ne considérer que l'hamiltonien à deux composantes :

$$\mathcal{H}_{\mathbf{q}}^{eff,\xi} = \hbar \xi v_F (\mathbf{q}_x \sigma^x + \mathbf{q}_y \sigma^y) = \hbar \xi v_F \mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (2.17)$$

où le vecteur propre est :

$$\Psi_{\mathbf{q},\xi} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \pm \xi \alpha e^{i\theta(\mathbf{q})} \end{pmatrix}, \quad (2.18)$$

avec :

$$\theta_q = \arctan \left(\frac{q_y}{q_x} \right) \quad (2.19)$$

Dans la vallée K, les électrons ont une quasi-impulsion p telle que $\sigma \mathbf{p}/p = +1$ alors que l'impulsion des trous obéit à $\sigma \mathbf{p}/p = -1$. À l'inverse, dans la vallée K', $\sigma \mathbf{p}/p = -1$ pour les électrons et $\sigma \mathbf{p}/p = +1$ pour les trous. On définit l'opérateur de chiralité η_q comme étant la projection du spin de sous réseau sur la direction de propagation tel que $\eta_q = \frac{q \cdot \sigma}{|q|}$. Ces valeurs propres sont $\eta = \pm 1$ et sont liées à l'indice de bande α ainsi qu'à l'indice de vallée ξ à travers la relation $\alpha = \xi \eta$. On observe donc que la chiralité est opposée entre les deux vallées.

La chiralité est un nombre quantique conservé pour des processus de diffusion élastiques induits par des potentiels non abrupts. Dans ce cas, α est constant et la diffusion inter-vallée est supprimée donc ξ est constant. La relation $\alpha = \xi \eta$ implique que la chiralité η soit aussi constante. La conséquence est que, dans le graphène, il y a absence de rétro-diffusion à incidence normale : pour un potentiel d'impureté $V(r)$ diffusant un état $|q_1, \xi, \eta\rangle$ vers un état $|q_2, \xi, \eta\rangle$, la probabilité de rétro-diffusion dans l'approximation de Born est donnée par $|V(q_2 - q_1)|^2 \cos^2[\theta(q_2) - \theta(q_1)]/2$. Cette probabilité est nulle pour $\theta(q_2) - \theta(q_1) = \pi$. La probabilité de rétro-diffusion est nulle pour une incidence normale, c'est le paradoxe de Klein. Le paradoxe de Klein a été observé expérimentalement en 2006 dans le graphène [86]. À l'inverse, dans le cas non relativiste, la probabilité de saut tunnel décroît exponentiellement.

2.4 La densité d'états

Considérons uniquement la bande d'énergie positive, qui contient n états électroniques par unité de surface. En utilisant le fait que la distribution des niveaux d'énergie est quasiment continue on peut écrire :

$$n = 4 \sum_{\substack{\mathbf{k} \\ \epsilon_{\mathbf{k}} < \epsilon} } \mathbf{k} \approx \frac{4}{2\pi} \int_0^{k_F} q dq = \frac{4}{2\pi} \int_0^{\epsilon_F} q(E) \frac{\partial q}{\partial \epsilon} d\epsilon \quad (2.20)$$

où le facteur 4 provient du produit des dégénérescences de spin et de vallée qui valent chacun 2. En utilisant la relation linéaire de dispersion 2.16 on obtient la densité d'états par unité d'énergie $\rho(E) = \frac{\partial n}{\partial \epsilon}$:

$$\rho(\epsilon) = \frac{\partial n}{\partial \epsilon} = \frac{4}{2\pi} q(E) \frac{\partial q}{\partial E} = \frac{2|\epsilon|}{\pi \hbar^2 v_F^2} \quad (2.21)$$

On peut en déduire la densité d'électrons en fonction de l'énergie de remplissage ϵ_F :

$$n(\epsilon_F) = \frac{\epsilon_F^2}{\pi \hbar^2 v_F^2} \quad (2.22)$$

Au niveau de Fermi, la densité de porteurs de charge donnée par $n_s = n(\epsilon_F)$ mène à :

$$\epsilon_F = \hbar v_F \sqrt{\pi n_s} = \hbar v_F |k_F| \quad (2.23)$$

On obtient donc que $k_F = \sqrt{\pi n_s}$. Il est possible de modifier l'énergie de Fermi en modifiant la densité des porteurs, ce qui peut être fait au moyen d'une grille en ajustant la tension de la grille ($n_s \propto V_g$). Il est possible de passer continument d'une conduction dominée par des électrons ou par des trous et inversement en passant par le point de neutralité de charge à $n_s = 0$. La figure 2.4 a) montre l'évolution de la conductivité en fonction de la tension de grille dans une mono-couche de graphène déposée sur un substrat de SiO₂/Si, à 10 K. La conductivité σ augmente linéairement avec la valeur absolue de la tension de grille V_g pour les deux polarités de tension : $\sigma \propto n_s$, ce qui implique que la mobilité des porteurs de charge est constante avec la densité [100]. Pour une tension de grille négative, les trous sont responsables de la conductivité, tandis que pour $V_g > 0$, ce sont les électrons. On peut voir que la conduction n'est pas nulle lorsque $V_g = 0$, cela peut s'expliquer par l'absence de gap d'énergie dans le graphène et les impuretés chargées à proximité du graphène [119]. Ces impuretés chargées mènent à des fluctuations de la densité électronique qui sont visibles au point de neutralité de charge. En moyenne la densité électronique est nulle mais au niveau microscopique, des flaques d'électrons et de trous gardent une densité finie. Ces flaques, visibles sur la figure 2.4 b) peuvent avoir des densités de quelque 10^{10} cm⁻² dans du graphène exfolié déposé sur un substrat de SiO₂/Si [87].

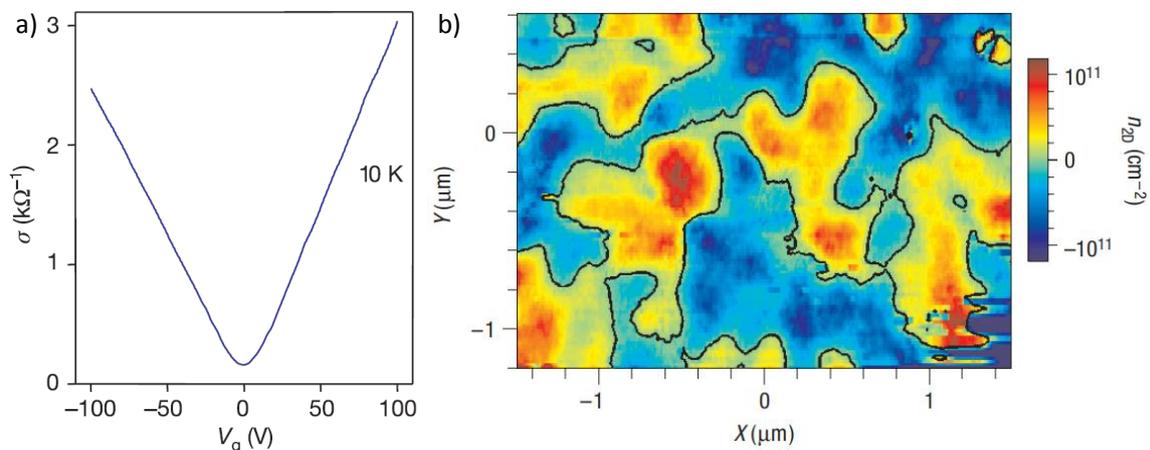


FIGURE 2.4 – a) Conductivité du graphène en fonction de la tension de grille appliquée. Image extraite de [100]. b) Flaques d'électrons et de trous observées par balayage avec un transistor à effet tunnel mono-électronique dans du graphène déposé sur un substrat de SiO₂/Si. Image extraite de [87]

Chapitre 3

L'effet Hall quantique

Cette description théorique de l'effet Hall quantique s'appuie sur des articles de M.O. Goerbig [45], B. Douçot et P. Pasquier [28].

3.1 Du transport classique au transport quantique

3.1.1 Longueurs caractéristiques du transport

Les propriétés de transport électronique sont fortement reliées à un certain nombre de longueurs qui caractérisent la dimensionnalité du conducteur et les processus de diffusion des électrons.

- **La longueur d'onde de Fermi** $\lambda_F = 2\pi/k_F$ représente l'extension spatiale du paquet d'onde électronique. Elle permet de définir la dimensionnalité d'un conducteur. Dans le cas d'un conducteur bi-dimensionnel, une des trois dimensions spatiales est plus petite que λ_F . La longueur d'onde de Fermi est reliée à la densité. La longueur de Fermi peut atteindre quelques dizaines de nanomètres dans les semi-conducteurs grâce à leur faible densité électronique.
- **La longueur de cohérence de phase** l_ϕ est la longueur sur laquelle l'évolution de la phase de la fonction d'onde reste déterministe. En régime balistique, $l_\phi = v_F\tau_\phi$, où τ_ϕ est le temps de relaxation de la phase. Tandis qu'en régime diffusif l_ϕ devient $l_\phi = \sqrt{D\tau_\phi}$ où D est le coefficient de diffusion. La longueur de cohérence de phase peut atteindre quelques micromètres dans des conducteurs de grande pureté et à une température très basse $T < 1$ K. Dans le cas général on peut écrire que le temps de relaxation évolue comme $\frac{1}{\tau_\phi} = \frac{1}{\tau_T} + \frac{1}{\tau_{in}}$.
- **Le libre parcours moyen élastique** $l_e = v_F\tau_e$ est la distance parcourue par un électron situé au niveau de Fermi, entre deux chocs élastiques. Les chocs élastiques ont la propriété de conserver l'énergie et la cohérence de phase des porteurs de charge. Lorsque l_e est supérieur à la largeur de l'échantillon ($l_e > W$) alors le régime est balistique : les chocs élastiques se font sur les bords de l'échantillon. À l'inverse si $l_e < W$, le régime est diffusif, les électrons diffusent sur des défauts pendant leurs trajets. Les chocs ont lieu lorsqu'un électron rencontre une impureté chargée dans le réseau qui peut être une substitution d'un atome dans le réseau cristallin, une dislocation ou bien les bords de l'échantillon. À basse température, le libre parcours moyen dans des hétérostructures de hautes mobilités électroniques est de l'ordre de 20 μm .

- **Le libre parcours moyen inélastique** $l_{in} = v_F \tau_{in}$ est la longueur entre deux collisions inélastiques successives. Lors de ces collisions, il y a un échange d'énergie entre l'électron et le centre diffuseur. Ces interactions sont responsables de la thermalisation des électrons et détruisent la cohérence de phase. Les diffuseurs peuvent être des électrons, des phonons, des impuretés magnétiques,... Plus la température est faible, plus le nombre de modes des phonons est faible et la probabilité de collision électron-phonon l'est également. Ainsi, à très basse température, ce sont les collisions électron-électron qui sont dominantes.
- **La longueur magnétique** $l_B = \sqrt{\hbar/eB}$ représente l'extension spatiale de la fonction d'onde dans le conducteur en régime d'effet Hall quantique.
- **La longueur thermique** $l_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} = v_F \tau_T$ caractérise l'étalement spatial de la particule en fonction de l'énergie du système.

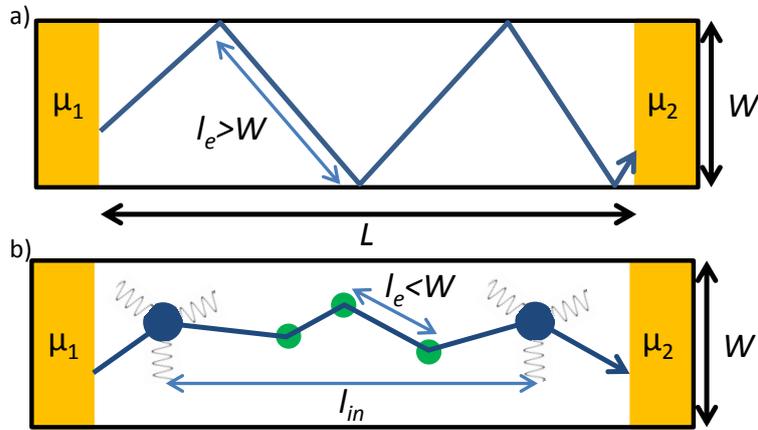


FIGURE 3.1 – a) Régime balistique. b) Régime diffusif avec de la diffusion élastique et inélastique.

3.1.2 Le modèle de Drude

En 1900, Paul Drude propose une adaptation de la théorie cinétique des gaz aux électrons dans un métal. Il considère que les électrons dans un métal sont similaires à des particules ponctuelles confinées dans un volume délimité par le volume du métal. Ces électrons en grand nombre constituent l'équivalent d'un gaz. Drude propose deux hypothèses qui sont à la base de ce modèle. La première est que les électrons n'interagissent pas entre deux chocs consécutifs. La seconde concerne les chocs, ils sont instantanés et assurent une redistribution aléatoire et isotrope de la vitesse des électrons. On fait l'hypothèse qu'en l'absence de champ électrique E , la distribution de vitesse des électrons est aléatoirement distribuée $\langle \mathbf{v} \rangle = 0$. En présence d'un champ électrique, la vitesse moyenne des électrons devient non nulle et est égale à $\langle \mathbf{v} \rangle = (-e\tau/m) \times \mathbf{E}$ où τ est le temps moyen entre deux chocs consécutifs et e est la charge élémentaire ($e > 0$). La vitesse de dérive vaut :

$$\mathbf{v}_{drift} = -\frac{e\tau}{m} \mathbf{E} = -\mu \mathbf{E} \quad (3.1)$$

où on a défini la mobilité électronique $\mu = e\tau/m$. La mobilité est un critère relié au taux de désordre dans l'échantillon. Plus la mobilité est élevée plus le désordre est faible. Dans des hétérostructures de type GaAs/AlGaAs, la mobilité peut atteindre jusqu'à $36 \times 10^6 \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ [132]. Pour le graphène ayant les meilleurs mobilités, la mobilité peut monter jusqu'à $10^6 \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ [4]. À partir de l'équation 3.1, on peut réécrire l'équation de la densité de courant $\mathbf{j} = -ne \langle \mathbf{v} \rangle$:

$$\mathbf{j} = \frac{ne^2\tau}{m} \mathbf{E} = \sigma \mathbf{E} \quad (3.2)$$

où n est la densité électronique par unité de volume et $\sigma = ne^2\tau/m$ est la conductivité de Drude.

3.1.3 La théorie du transport semi-classique de fermions

En présence d'une différence de potentiel chimique aux bornes d'un conducteur, les électrons se mettent en mouvement. Il apparaît un courant de diffusion proportionnel au gradient de concentration ∇n selon :

$$\mathbf{j}_{Diff} = eD\nabla n \quad (3.3)$$

où D est le coefficient de diffusion et ∇n peut être vu comme la compressibilité du gaz d'électrons. Comme les électrons sont des fermions, ils obéissent à la distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\epsilon) = \frac{1}{e^{(\epsilon-\mu)/k_B T} + 1} \quad (3.4)$$

Par conséquent, les états libres pouvant conduire le courant sont dans une bande d'énergie de largeur $k_B T$ centrée autour du niveau de Fermi ϵ_F . Si on se place à l'équilibre thermodynamique, le potentiel chimique donné par $\mu = \epsilon_F - eV$, où V est le potentiel électrique appliqué, est uniforme dans le conducteur. À l'équilibre $\nabla\mu = 0$, ce qui donne :

$$e\mathbf{E} + \frac{\partial\epsilon_F}{\partial n} \nabla n = 0 \Leftrightarrow \mathbf{E} = - \left(e \frac{\partial n}{\partial \epsilon_F} \right)^{-1} \nabla n \quad (3.5)$$

où $\frac{\partial n}{\partial \epsilon_F} = \rho(\epsilon_F)$ est la densité d'états électroniques par unité d'énergie au niveau de Fermi. De plus, à l'équilibre thermodynamique, le courant net est nul, ce qui implique :

$$\sigma \mathbf{E} + eD\nabla n = 0 \quad (3.6)$$

et en utilisant l'équation 3.5 on obtient l'équation de diffusion d'Einstein :

$$\sigma = e^2 D \rho(\epsilon_F) \quad (3.7)$$

La conductivité est une grandeur locale permettant de faire une description microscopique. La densité de courant est directement reliée au champ électrique à travers la loi d'Ohm locale, $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$. Les mesures de transport permettent de mesurer la conductance $G = I/V$ égal au rapport entre le courant I traversant l'échantillon et

la chute de tension V à ses bornes. Dans un conducteur homogène bi-dimensionnel classique, la conductance est reliée à la conductivité par la relation :

$$G = \frac{W}{L}\sigma \quad (3.8)$$

où W est la largeur de l'échantillon tandis que L est sa longueur. Dans le cas classique, cette relation reste vraie quelle que soit la taille. On peut cependant se poser la question de la réalité de cette équation lorsque les tailles géométriques de l'échantillon deviennent très faibles. Lorsque les dimensions du conducteur sont du même ordre de grandeur que la longueur de cohérence de phase l_ϕ , un traitement quantique du problème est nécessaire pour pouvoir reproduire fidèlement les observations expérimentales.

3.2 Le transport quantique cohérent

3.2.1 Le formalisme de Landauer-Büttiker

Le formalisme de Landauer-Büttiker permet de décrire les propriétés de transport d'un conducteur de longueur L , où la longueur de cohérence de phase est plus grande, ou égale, à la longueur du système $l_\phi > L$. Il permet notamment de décrire ses propriétés de conductance, à partir des différences de potentiels chimiques entre ses terminaux. Nous allons nous intéresser au cas d'un canal quasi-unidimensionnel dans la suite, mais il est possible de généraliser cette approche pour le cas d'une conduction apportée par de multiples canaux.

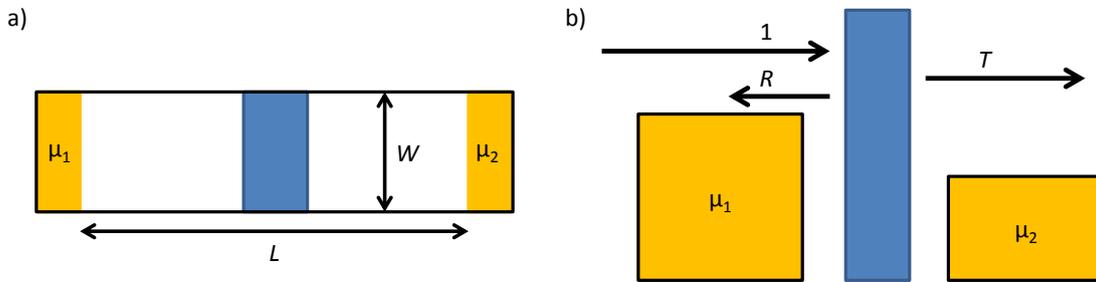


FIGURE 3.2 – a) Représentation schématique d'un conducteur unidimensionnel mono-mode, connecté à deux réservoirs. La différence de potentiel électrochimique est imposée par la différence de potentiel $eV = \mu_1 - \mu_2$. b) Dans le formalisme de Landauer-Büttiker, le conducteur est représenté par deux potentiels électrochimiques, séparés par une barrière de potentiel avec des coefficients de transmission et de réflexion caractéristiques du conducteur.

À l'échelle mésoscopique, les dimensions des fils conducteurs sont telles qu'ils se comportent comme des guides d'ondes électroniques. Les conditions d'annulation aux limites de la fonction d'onde imposent que le vecteur d'onde transverse soit quantifié, définissant ainsi, des modes unidimensionnels de propagation pour des électrons. Si on considère un cas mono-mode simple, représenté figure 3.2 a), composé

de deux réservoirs d'électrons (les contacts) reliés par un fil de longueur $L < l_\phi$, les électrons sont cohérents à l'intérieur du fil et incohérents dans les réservoirs. Cela revient à dire qu'il n'y a que des collisions élastiques dans le fil tandis que les chocs inélastiques se font dans les réservoirs et servent à thermaliser les électrons. Pour imposer le passage des électrons dans le conducteur, une différence de potentiel électrochimique entre les deux réservoirs est appliquée. La différence d'énergie entre les deux potentiels chimiques vaut $eV = \mu_1 - \mu_2$. Le comportement microscopique du transport peut être schématisé par une barrière de potentiel de transmission T et de réflexion R tel que $R = 1 - T$, figure 3.2 b). Les électrons participants au courant sont au nombre de $eV \cdot \rho_{1G}(\epsilon_F)$, l'indice G représente le réservoir de gauche dont le potentiel a été augmenté, avec $\rho_{1G} = 1/\pi\hbar v_F$ la densité d'état à une dimension. Comme les électrons ont une probabilité T d'être transmis, on peut écrire le courant électrique :

$$I = eV \cdot \rho_{1G}(\epsilon_F) e v(\epsilon_F) T \quad (3.9)$$

$$= e^2 \frac{1}{\pi\hbar} T V \quad (3.10)$$

On trouve la formule de Landauer [13] pour un conducteur unidimensionnel pour des fermions dégénérés de spin :

$$G = 2 \frac{e^2}{h} T \quad (3.11)$$

où le facteur 2 représente la dégénérescence de spin.

La conductance est quantifiée en unité de quantum de conductance $e^2/h \approx (25812,807 \Omega)^{-1}$ qui ne dépend que de constantes fondamentales $h = 6,6260700 \times 10^{-34} \text{kg}^2 \text{s}^{-1}$ et $e = 1,6021766 \times 10^{-19} \text{C}$. Un moyen d'expliquer le quantum de conductance est de se représenter le courant comme l'émission de paquets d'onde. Le principe de Pauli interdit d'avoir deux fermions de même spin au même endroit. Le temps qui sépare le centre de deux paquets d'ondes successifs est donné par le principe d'incertitude : $\Delta t = \frac{\hbar}{\Delta E} = \frac{\hbar}{eV}$ où eV représente la bande d'énergie des électrons. Comme le courant correspond à la quantité de charge transmise par unité de temps, on a donc $I = \frac{Q}{\Delta t}$ et $G = \frac{I}{V}$. En combinant les deux équations, on retrouve la conductance $G = \frac{e^2}{h}$. Si maintenant on considère un conducteur multimodal, on peut généraliser la formule de Landauer [14] :

$$G = g \frac{e^2}{h} \sum_{n=1}^N T_n \quad (3.12)$$

où g est le nombre de dégénérescence (spin, vallée,...) et n est le nombre de modes ayant chacun une transmission T_n . On peut remarquer que même si tous les modes sont parfaitement transmis $T_n = 1$, la conductance vaut $G = Nge^2/h$. C'est à dire que la conductance dite "2 terminaux" est un multiple de $2e^2/h$ et est donc finie, malgré l'absence de dissipation dans le conducteur. La dissipation a donc lieu dans les contacts. Pour s'affranchir de cette résistance quantique, il faut utiliser une configuration quatre terminaux.

3.2.2 La mesure de conductance à quatre terminaux

La théorie de Landauer Büttiker peut se généraliser pour un conducteur à quatre terminaux, tel que représenté sur la figure 3.3. Deux terminaux 1 et 2 permettent d'injecter le courant, tandis que deux autres terminaux 3 et 4 servent à mesurer la différence de potentiel. Dans le cas où la transmission de chaque mode est identique $T_n = T$, on démontre [14] que la conductance quatre terminaux $G_{1,2,3,4} = \frac{I_{1 \rightarrow 2}}{V_3 - V_4}$ s'écrit :

$$G_{1,2,3,4} = \frac{eI}{\mu_3 - \mu_4} = g \times \frac{e^2 N}{h} \frac{\mu_1 - \mu_2}{\mu_3 - \mu_4} = g \times \frac{e^2 N}{h} \frac{T}{1 - T} \quad (3.13)$$

où N est le nombre total de modes de propagation. Ainsi la résistance vaut donc :

$$R_{1,2,3,4} = \frac{h}{ge^2 N} \frac{1 - T}{T} \quad (3.14)$$

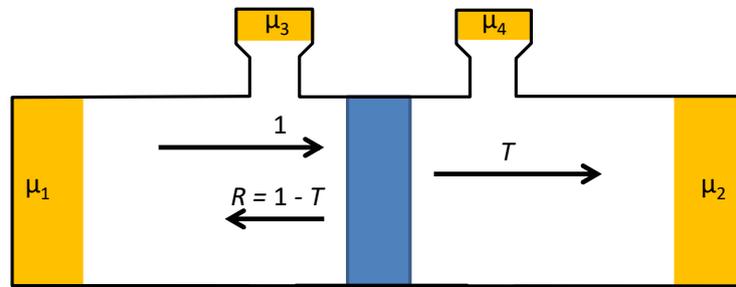


FIGURE 3.3 – Dispositif 4 terminaux. Le courant est injecté par les contacts 1 et 2 tandis que la tension est mesurée entre 3 et 4.

On peut remarquer que si la transmission $T = 1$, la résistance quatre terminaux est nulle $R_{1,2,3,4} = 0$ tandis qu'en deux terminaux $R_{1,2} = h/(ge^2)$.

3.3 Particule chargée dans un champ magnétique

L'effet Hall classique a été découvert en 1879 par Edwin Hall [49]. La découverte de cet effet, bien avant la découverte de l'électron, a permis de mettre en évidence que la circulation du courant électrique dans les conducteurs était généralement due à un mouvement de charges négatives. À contrario, il a aussi permis de mettre en évidence que dans certains matériaux le courant était dû à des "trous", de charge positive, plutôt qu'à des électrons. L'effet Hall est maintenant utilisé dans l'industrie dans de nombreux détecteurs de différents types, par exemple des capteurs de positionnement, ou bien des mesures de courant.

Dans le cas d'un conducteur bidimensionnel, lorsqu'un électron se déplace en présence d'un champ magnétique perpendiculaire à sa trajectoire, il est soumis à la force de Lorentz et son équation de mouvement s'écrit :

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -e\dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B} \quad (3.15)$$

La résolution de ces équations donne :

$$x = X - r\sin(\omega_c t + \phi) \quad \text{et} \quad y = Y + r\cos(\omega_c t + \phi) \quad (3.16)$$

Sur la figure 3.4 a), l'électron décrit une orbite cyclotron de rayon r à la pulsation

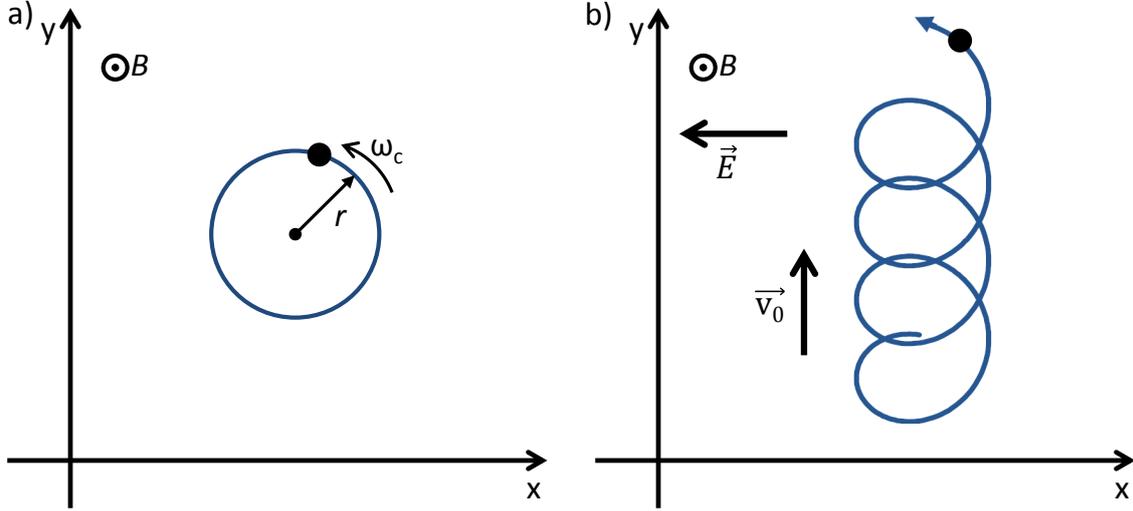


FIGURE 3.4 – a) Mouvement cyclotron d'un électron placé dans un champ magnétique B . La trajectoire de l'électron suit un rayon cyclotron r à la pulsation $\omega_c = eB/m$. b) Lorsqu'on rajoute un champ électrique \mathbf{E} le mouvement cyclotron, acquiert un mouvement de dérive à la vitesse \mathbf{v}_0 .

$\omega_c = \frac{eB}{m}$. Si on rajoute un champ électrique \mathbf{E} , figure 3.4 b), l'électron acquiert une vitesse de dérive \mathbf{v}_0 et l'équation de mouvement devient :

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -e(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}) \quad (3.17)$$

et la vitesse de dérive vaut :

$$\mathbf{v}_0 = \frac{\mathbf{E} \wedge \mathbf{B}}{B^2} \quad (3.18)$$

Si on prend en compte les phénomènes de diffusion, en considérant un terme de relaxation, l'équation de mouvement 3.17 devient :

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -e(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}) - \frac{m}{\tau}\dot{\mathbf{r}} \quad (3.19)$$

La densité de courant $\mathbf{j} = -ne\dot{\mathbf{r}}$ est liée au champ électrique \mathbf{E} par le biais du tenseur de résistivité :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} \\ -\rho_{xy} & \rho_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

où la résistivité longitudinale ρ_{xx} est donnée par :

$$\rho_{xx} = \frac{m^*}{n_s e^2 \tau} \quad (3.21)$$

et la résistivité transverse ρ_{xy} , ou de Hall, est donnée par :

$$\rho_{xy} = \frac{B}{n_s e} \quad (3.22)$$

Les tenseurs de résistivité ρ et de conductance σ sont reliés par :

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \quad \text{et} \quad \rho_{xy} = -\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \quad (3.23)$$

Lorsque le courant circule selon la direction x , dû fait du champ magnétique perpendiculaire, les charges vont s'accumuler d'un côté ou de l'autre du conducteur selon le signe de leur charge. Cela engendre une différence de potentiel non nulle, entre les bords parallèles (à x) du conducteur : c'est la tension de Hall V_H . Si W est la largeur du conducteur, la résistance transverse se calcule grâce à la loi d'Ohm : $R_H = V_H/I = WE_y/Wj_x = E_y/j_x = \rho_{xy}$. À 2 dimensions, la résistance et la résistivité sont égales si $W = L$. De plus, la résistance transverse a la même valeur quelle que soit la taille du conducteur, c'est un invariant d'échelle. Par ailleurs, on a directement accès à la densité de porteurs à partir de la résistance de Hall qui évolue linéairement avec B , selon :

$$R_H = \frac{B}{n_s e} \quad (3.24)$$

C'est l'effet Hall classique.

3.4 L'effet Hall quantique entier

En 1980, Klaus von Klitzing *et al.* étudient un dispositif Si-MOSFET qui forme un gaz d'électrons bidimensionnel. Ils mesurent les résistances longitudinales et transverses à la propagation du courant lorsque ce dispositif est placé à la température de l'hélium liquide et sous fort champ magnétique, visible sur la figure 3.5 a). Contrairement à la description classique, où la résistance de Hall R_H est sensée varier linéairement avec le champ magnétique, les auteurs observent au contraire, que la résistance forme des plateaux quantifiés à des valeurs spécifiques qui sont des fractions du quantum de résistance h/e^2 . Aux valeurs de B pour lesquelles R_H est quantifiée, la résistance longitudinale R_{xx} chute à zéro [75]. Depuis la découverte de l'effet Hall quantique, la physique de ce phénomène a été étudiée dans différents matériaux tels que les hétérostructures GaAs/AlGaAs, dont certains résultats majeurs pour la métrologie seront rappelés plus tard, ou bien encore dans le graphène. La figure 3.5 b) montre l'observation de l'effet Hall quantique avec une monocouche de graphène [101]. Il est intéressant de noter que la hiérarchie des plateaux de Hall observables avec ce matériau est différente de celle observée sur la figure 3.5 a). Cette différence sera également expliquée plus tard dans ce chapitre.

3.4.1 Les niveaux de Landau

Dans un semi-conducteur classique

L'hamiltonien d'un électron sous champ magnétique s'écrit :

$$H = \frac{\Pi^2}{2m} \quad (3.25)$$

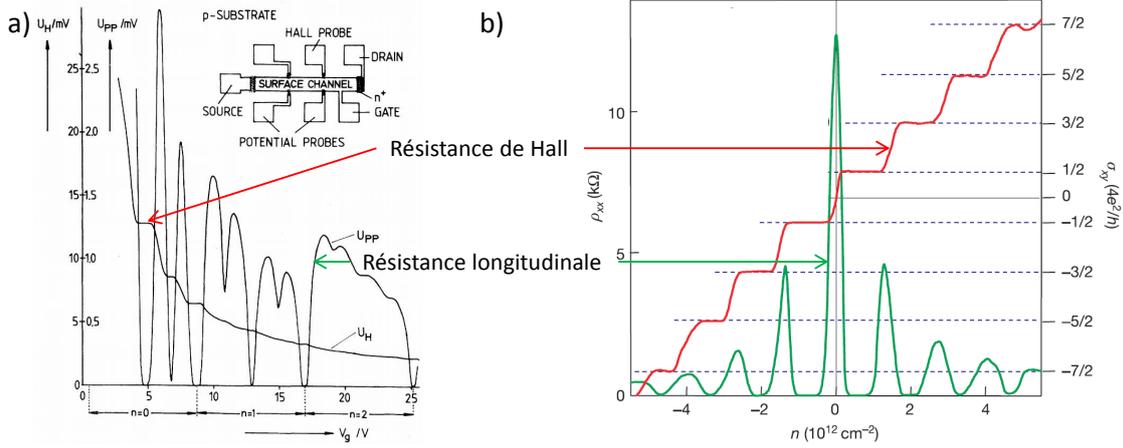


FIGURE 3.5 – a) Première observation de l’EHQ dans un dispositif de Si-MOSFET. Image extraite de [75] b) Première observation de l’EHQ dans un dispositif à base de graphène. Image adaptée de [101].

où $\hat{\Pi}$ est l’opérateur d’impulsion dynamique :

$$\mathbf{\Pi} = \mathbf{p} + e\mathbf{A} \quad (3.26)$$

où \mathbf{A} est le potentiel vecteur tel que $\mathbf{B} = \nabla \mathbf{A}$.

Nous avons vu que la trajectoire classique d’un électron dans un champ magnétique peut se décomposer, d’une manière générale, comme étant la somme d’un mouvement de dérive, ainsi que d’un mouvement de rotation par rapport au centre du mouvement de dérive. Considérons le centre de guidage : $C = C_x + iC_y$. En utilisant les coordonnées complexes $z = x + iy$, l’équation du mouvement s’écrit :

$$z = C - \frac{i}{eB} (\Pi_x + i\Pi_y) \quad (3.27)$$

On rappelle les relations de commutation pour les opérateurs $\hat{\Pi}$ et \hat{C} :

$$[\hat{\Pi}_x, \hat{\Pi}_y] = \frac{-i\hbar^2}{l_B^2} \quad [C_x, C_y] = \frac{-i\hbar}{l_B^2} \quad [\Pi_x, C_y] = 0 \quad (3.28)$$

où $l_B = \sqrt{\hbar/eB}$ est la longueur magnétique. Elle représente l’extension spatiale typique de la fonction d’onde dans l’échantillon en régime d’effet Hall quantique. Si on écrit l’hamiltonien avec les opérateurs d’échelle :

$$a = \sqrt{\frac{1}{2\hbar eB}} (\Pi_x - i\Pi_y) \quad \text{et} \quad a^\dagger = \sqrt{\frac{1}{2\hbar eB}} (\Pi_x + i\Pi_y) \quad (3.29)$$

$$b = \sqrt{\frac{eB}{2\hbar}} (C_x + iC_y) \quad \text{et} \quad b^\dagger = \sqrt{\frac{eB}{2\hbar}} (C_x - iC_y) \quad (3.30)$$

Les opérateurs d’échelle vérifient les relations de commutation $[a, a^\dagger] = [b, b^\dagger] = 1$, $a^\dagger a = n$ et $b^\dagger b = m$. L’hamiltonien est donc celui d’un oscillateur harmonique :

$$H = \hbar\omega_c \left(a^\dagger a + \frac{1}{2} \right) \quad (3.31)$$

Les valeurs propres de l'énergie correspondant à cet hamiltonien est :

$$\epsilon = \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2} \right) \quad (3.32)$$

L'énergie est quantifiée en niveaux de Landau, indexé par l'entier n , positif ou nul, qui est une valeur propre de $a^\dagger a$. Dans le cas de fermions de type Schrödinger que l'on trouve dans le GaAs/AlGaAs, on a $\omega_c = eB/m$. Le gap en énergie $\hbar\omega_c$ évolue donc de manière linéaire avec le champ magnétique B .

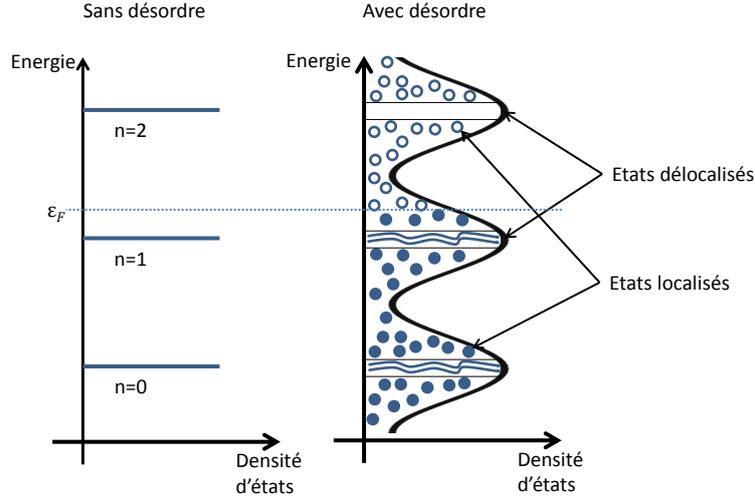


FIGURE 3.6 – Densité d'états sous fort champ magnétique dans un gaz d'électron bidimensionnel, sans désordre à gauche, avec à droite. Le niveau de Fermi est représenté en pointillé. Les états en dessous du niveau de Fermi sont occupés, tandis que les états vacants sont au-dessus. Les états localisés sont représentés par les cercles et les états délocalisés par les oscillations au centre des niveaux de Landau.

Le fait que H et C commutent implique une très grande dégénérescence des niveaux de Landau. Les états propres associés à chaque niveau de Landau peuvent être notés $|n, m\rangle$, où m est valeur propre de $b^\dagger b$. Il est possible de construire les différents états dégénérés de proche en proche grâce aux opérateurs d'échelles à partir de l'état nul :

$$|n, m\rangle = \frac{(a^\dagger)^n (b^\dagger)^m}{\sqrt{n!m!}} |0\rangle \quad (3.33)$$

La forme des fonctions d'onde dans l'espace réel dépend du choix de jauge pour le potentiel vecteur. Par exemple, pour la jauge symétrique, la fonction d'onde associée au niveau de Landau n est la fonction $\phi_m(\mathbf{r})$:

$$\langle \mathbf{r} | 0, m \rangle = \phi_m(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi l_B^2 (2^m m)!}} \left(\frac{\mathbf{r}}{\sqrt{2} l_B} \right)^m \exp\left(-\frac{\mathbf{r}^2}{4l_B^2}\right) \quad (3.34)$$

avec $\mathbf{r} = x + iy$.

Dans le graphène

Dans le cas du graphène, où il y a une dégénérescence de vallée ainsi que des électrons de type de Dirac, l'hamiltonien prend la forme :

$$H_\xi = \xi \begin{pmatrix} 0 & \Pi_x - i\Pi_y \\ \Pi_x + i\Pi_y & 0 \end{pmatrix} = \xi \frac{\hbar v_F \sqrt{2}}{l_B} \begin{pmatrix} 0 & a \\ a^\dagger & 0 \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

ξ est l'indice de vallée et vaut $\xi = \pm$. Le terme $v_F \sqrt{2}/l_B = \omega'$ peut être vu comme la fréquence cyclotron relativiste. On cherche à résoudre la solution de l'équation $H\Psi = \epsilon_n \Psi_n$. Les états propres, solutions de l'équation, sont des spineurs de type :

$$\Psi_n = \begin{pmatrix} u_n \\ v_n \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

où u_n et v_n représentent les sous-réseaux A et B du graphène. Ce qui mène aux équations :

$$\hbar\omega' a v_n = \epsilon_n u_n \quad \text{et} \quad \hbar\omega' a^\dagger u_n = \epsilon_n v_n \quad (3.37)$$

et en les combinant :

$$a^\dagger a v_n = \left(\frac{\epsilon_n}{\hbar\omega'} \right)^2 v_n \quad (3.38)$$

v_n est un état propre de $a^\dagger a = n$ de valeur propre $\left(\frac{\epsilon_n}{\hbar\omega'} \right)^2$. En sachant que $a^\dagger a = n$, on déduit que :

$$\epsilon_n^2 = n(\hbar\omega')^2 \leftrightarrow \epsilon_{\alpha,n} = \alpha \frac{\hbar v_F}{l_B} \sqrt{2n} \quad \text{avec} \quad \alpha = \pm 1 \quad (3.39)$$

Il est important de noter que l'énergie $E \propto \sqrt{Bn}$, ne varie pas linéairement avec le champ magnétique contrairement au cas du GaAs/AlGaAs. L'évolution des premiers niveaux de Landau est représentée sur la figure 3.7. Contrairement aux semi-conducteurs classiques, les niveaux ne sont pas équidistants et l'écart entre eux diminue lorsque l'indice des niveaux augmente. Grâce aux équations 3.38 et 3.37 et en utilisant le fait que $a|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle$ pour $n > 0$, on trouve le second composant du spineur Ψ_n :

$$u_n \propto a v_n = a|n\rangle = |n-1\rangle \quad (3.40)$$

Pour $n > 0$, le spineur s'écrit :

$$\Psi_{n,\alpha} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} |n-1\rangle \\ \alpha |n\rangle \end{pmatrix} \quad (3.41)$$

Pour $n = 0$, on obtient :

$$\Psi_0 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ |n=0\rangle \end{pmatrix} \quad (3.42)$$

Dans le cas $n = 0$, seulement une composante du vecteur est non nulle. Cette composante correspond au sous-réseau B pour la vallée K ($\xi = +$) et au sous-réseau A pour la vallée K' ($\xi = -$). Pour ce niveau de Landau particulier, il y a une correspondance entre vallée et sous-réseau.

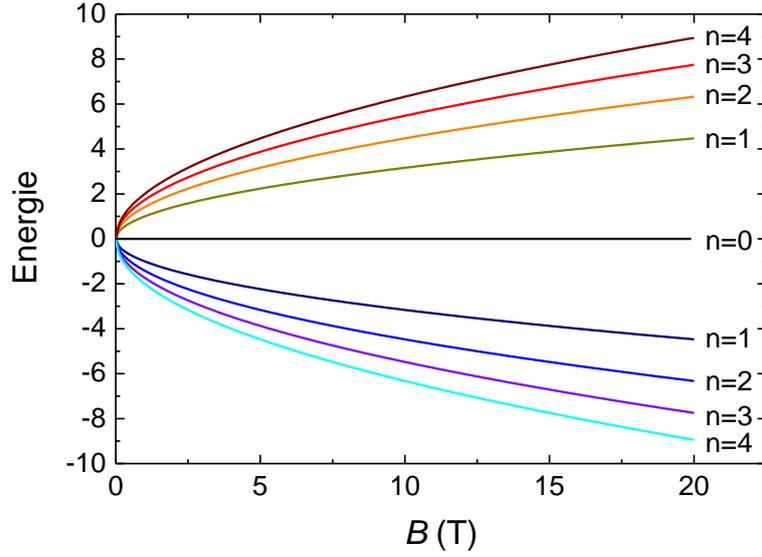


FIGURE 3.7 – Niveaux de Landau d'énergies positives et négatives dans une monocouche de graphène en fonction du champ magnétique.

3.4.2 Le facteur de remplissage

Comme C_x et C_y ne commutent pas ($[C_x, C_y] = i\ell_B^2$), on peut écrire la relation d'incertitude suivante $\Delta C_x \Delta C_y \propto 2\pi\ell_B^2$. Cette aire, représentant l'espace minimal d'une action dans l'espace des phases, indique qu'un état occupe une aire typique correspondant à celle d'un quantum de flux. Pour être plus précis, il faut compter le nombre d'états disponibles dans un échantillon de surface A .

$$N_B = \frac{A}{2\pi\ell_B^2} = n_B \times A \quad (3.43)$$

ce qui permet de définir la densité de flux magnétique n_B :

$$n_B = \frac{1}{2\pi\ell_B^2} = \frac{B}{h/e} = \frac{\phi}{\phi_0} \quad (3.44)$$

ϕ_0 est le quantum de flux magnétique. Pour un niveau de Landau donné, il y a n_B valeurs permises pour le vecteur d'onde. La relation entre la densité électronique n_s et la densité de flux n_B , porte le nom de facteur de remplissage ν , défini comme étant le rapport entre le nombre d'électrons N_{el} et le nombre d'états disponibles par niveau de Landau N_B :

$$\nu = \frac{N_{el}}{N_B} = \frac{n_s}{n_B} = \frac{hn_s}{eB} \quad (3.45)$$

Pour un facteur de remplissage entier, il y a un nombre entier d'électrons par ϕ_0 . Le facteur de remplissage joue un rôle important dans la physique de l'effet Hall quantique, il est similaire à une énergie de Fermi effective dans le système. Il est possible de modifier la valeur du facteur de remplissage par deux moyens non équivalents, soit en modifiant la densité de porteurs, soit en modifiant la valeur du champ magnétique. Modifier la densité de porteurs modifie la mobilité, et plus généralement

les propriétés de transport, tandis que modifier le champ magnétique changera la valeur de la longueur magnétique l_B qui modifiera l'espacement entre les niveaux de Landau.

La figure 3.6 à gauche, présente le cas d'un conducteur sans défaut. On peut voir qu'il n'y a pas d'état disponible entre les niveaux de Landau. Lorsque ν augmente, le niveau de Fermi passe brutalement au niveau de Landau supérieur en énergie. Les plateaux de Hall ne peuvent donc pas exister et la résistance de Hall h/e^2 n'est obtenue que pour des valeurs de ν entières.

3.4.3 L'impact du désordre

Dans un échantillon parfait, sans défaut ni désordre, la densité d'états est nulle lorsque ν prend une valeur exactement entière. Les échantillons réels, comme ceux utilisés en métrologie contiennent des diffuseurs. Le désordre a comme conséquence d'ajouter des potentiels qui brisent la symétrie par translation. Ces potentiels de désordre lèvent la dégénérescence de chaque niveau de Landau et créent des états accessibles à des énergies entre les niveaux de Landau. L'énergie de Fermi peut donc passer continument d'un niveau de Landau à un autre. Comme décrit sur la figure 3.6 à droite, il est possible de différencier deux types d'états en présence de désordre : les états localisés, présents entre les niveaux de Landau et les états délocalisés situés près du centre des niveaux de Landau. Les états localisés sont symbolisés par des cercles sur la figure 3.6 à droite. D'un point de vue microscopique, le potentiel vu par les électrons est constitué de sommets et de creux causés par les défauts. Les équipotentielles forment des boucles fermées autour de sommets ou de creux, tandis que les états délocalisés suivent des équipotentielles ouvertes dans les vallées modelées par le désordre présent dans l'échantillon.

On considère qu'un potentiel $V(r)$ variant faiblement sur une longueur de l'ordre de l_B :

$$|l_B \nabla(V(r))| \ll \hbar\omega_c \quad (3.46)$$

Cela implique que les électrons se propagent le long de lignes équipotentielles et que le potentiel vu par les électrons est le même tout au long de leur rotation cyclotron. Entre deux niveaux de Landau, la longueur de localisation ξ_{loc} est petite : plus on se rapproche du centre d'un niveau de Landau, en modifiant ν , plus ξ_{loc} augmente. Les porteurs se propagent sur des équipotentielles de plus en plus larges, jusqu'à ce que ξ_{loc} devienne plus large que W , la largeur de l'échantillon si on est à température nulle (ou que l_ϕ , si on est à température finie). Le seuil de percolation apparaît à l'énergie ϵ^- et se termine à ϵ^+ . À l'intérieur de cette bande d'énergie $\Delta\epsilon$ centrée sur ϵ_n , les états sont délocalisés $\xi_{loc} > l_\phi$. ϵ^- et ϵ^+ définissent les bords de mobilité. Les porteurs peuvent alors s'étendre sur tout l'échantillon, ils ne sont plus localisés et peuvent donc participer au courant. En dehors de $\epsilon_n \pm \Delta\epsilon$ les porteurs sont piégés par le désordre et ne participent pas au courant. La dépendance de ξ_{loc} est liée à l'énergie telle que :

$$\xi_{loc}(\epsilon) = |\epsilon - \epsilon_n|^{-\gamma} \quad \text{avec } \gamma = 2,3 \quad (3.47)$$

où $\gamma = 2,3$ est un exposant critique [112] [38] calculé dans un cas de percolation quantique. Des mesures de la longueur de localisation ont été réalisées dans le gra-

phène [44]. Un exposant $\gamma = 2,6 \pm 0,5$ est trouvé universel, en accord avec les calculs théoriques. Les résultats sont montrés sur la figure 3.8.

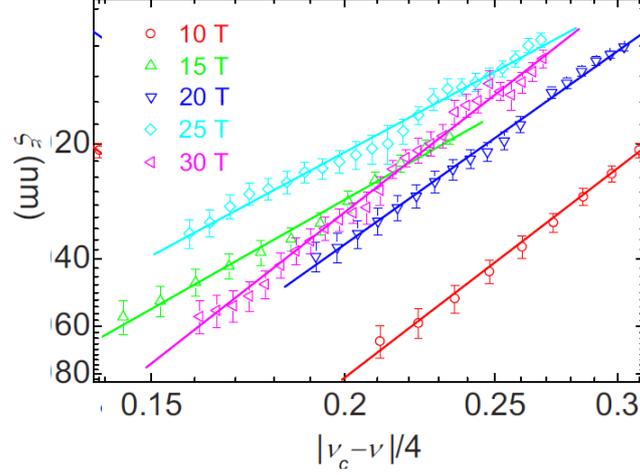


FIGURE 3.8 – Mesures de la longueur de localisation dans le graphène. Courbe extraite de [44].

Dans le cas où le niveau de Fermi est positionné au niveau des états localisés, les électrons circulent sur des équipotentielles fermées et ne contribuent donc pas au courant. Du fait de l'espacement entre les niveaux de Landau, les états étendus ne sont pas excités. Dans un conducteur 2d infini, le système est isolant $R_{xx} = \infty$, tandis que la résistance transverse vaut $R_H = h/\nu e^2$. Si la valeur du facteur de remplissage augmente, de plus en plus d'états localisés sont occupés mais R_H reste constant. Cela crée un plateau de Hall. Si ν continue à augmenter, c'est le seuil de percolation, les états délocalisés participent à la conduction : R_{xx} prend une valeur finie tandis que R_H s'écarte de la valeur quantifiée.

3.4.4 Différences entre les effets Hall quantiques du GaAs/AlGaAs et du graphène

Bien que la physique des deux structures soit différente, les éléments nécessaires à l'apparition de l'effet Hall quantique sont les mêmes pour les deux matériaux. La structure de bandes particulière du graphène, permet d'obtenir un espacement entre les deux premiers niveaux de Landau bien plus important que dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs et donc un plateau de Hall $\nu = 2$ plus robuste même à très bas champ. Cela est bien visible sur la figure 3.9, qui représente l'évolution des espacements en énergie entre deux niveaux de Landau successifs, en fonction du champ magnétique. On retrouve un écart entre les niveaux de Landau proportionnel à B pour le GaAs/AlGaAs et proportionnel à \sqrt{B} pour le graphène.

Le GaAs/AlGaAs est utilisé comme étalon de résistance à un champ magnétique typique de 10 T. À cette valeur de champ magnétique, l'écart entre les deux premiers niveaux de Landau est de 17,2 meV. Dans le GaAs/AlGaAs, cet écart permet d'obtenir un niveau de quantification de la résistance de Hall de 10^{-9} en valeur relative à 1,3 K. Cette valeur correspond environ à la condition d'un écart énergétique

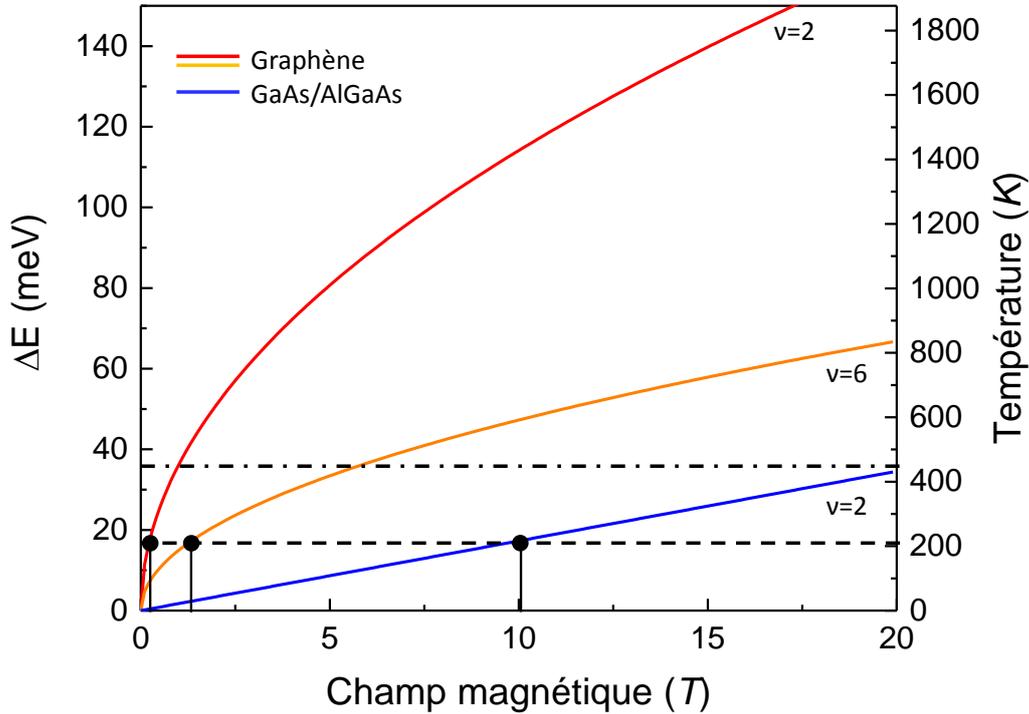


FIGURE 3.9 – Évolution des écarts entre deux niveaux de Landau successif en fonction du champ magnétique pour le GaAs/AlGaAs (bleu) et le graphène (rouge pour $\nu = 2$ et orange pour $\nu = 6$). La ligne en pointillé correspond à un espacement entre deux niveaux énergétiques qui permet d’obtenir une quantification égal à 10^{-9} en valeur relative, pour le GaAs/AlGaAs, à 1,3 K tandis que la ligne pointillé/tiré correspond au même écart énergétique mais calculé pour 4,2 K.

$\Delta E > 100k_B T$, où T est la température. Cet écart est tracé en pointillé sur la figure 3.9. On peut supposer que cette condition énergétique de quantification s’applique aussi au graphène. À 1,3 K, cet écart énergétique, entre les deux premiers niveaux de Landau dans le graphène, (le plateau $\nu = 2$) est atteint à une valeur de champ magnétique de 0,3 T. Pour le plateau $\nu = 6$, le même écart est atteint à un champ magnétique proche de 1,5 T qui est également un champ magnétique facile à obtenir avec des aimants permanents. Bien que le plateau $\nu = 6$ soit moins prometteur que le plateau $\nu = 2$, il semble également intéressant à observer pour la métrologie. Le trait en pointillé/tiré correspond au même écart énergétique mais calculé pour 4,2 K. Là encore, le graphène permettrait d’obtenir une parfaite quantification pour un champ magnétique aussi faible que 1 T.

3.4.5 Les canaux de bord

Un conducteur réel présente des bords qu’il faut prendre en compte. Pour cela, on considère un conducteur de largeur W et on introduit un potentiel de confinement qui est induit par le bord de l’échantillon. Ce potentiel $V(y)$, représenté en vert sur

la figure 3.10, joue un rôle important dans l'effet Hall quantique. Ce potentiel qui confine les électrons dans le système peut être considéré dans l'hamiltonien par :

$$H = \frac{\mathbf{\Pi}^2}{2m} + V(y) \quad (3.48)$$

Loin des bords du conducteur, dans le "bulk", le potentiel de confinement est nul. Lorsque le facteur de remplissage ν est entre deux niveaux de Landau, les états sont localisés et ne contribuent pas au courant. Le potentiel de confinement des électrons courbe la forme des niveaux de Landau près des bords de l'échantillon. Cela crée un croisement entre l'énergie de Fermi et les niveaux de Landau inférieurs. Sur la figure 3.10 b), l'énergie de Fermi, coupe 2 niveaux de Landau. Cela définit deux états de bord. Les orbites et le sens de propagation des électrons sont représentés sur la figure 3.10, en bleu. On peut calculer la vitesse de groupe des porteurs, dans ces états de bords, en utilisant le fait que, dans la jauge de Landau, $\hbar k_y = eBy$:

$$v_g = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E_n}{\partial k_y} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial V}{\partial y} \frac{\partial y}{\partial k_y} = \frac{1}{eB} \frac{\partial V}{\partial y} \quad (3.49)$$

Il apparaît que la vitesse de groupe change de signe en fonction du bord du conducteur où se propage la particule : les états de bords sont chiraux. Si on change le sens du champ magnétique, le sens de rotation des orbites cyclotrons est inversé. Il en est de même pour le sens de propagation des porteurs sur les bords de l'échantillon.

Les états de bords de vitesse de groupe opposée, sont spatialement séparés. La largeur de l'échantillon étant très supérieure à l_B , il en résulte que la probabilité qu'un électron passe d'un bord à l'autre du conducteur par effet tunnel est très faible (proportionnel à $\exp(-W/l_B)$). Il n'y a donc pas de rétro-diffusion. En régime d'effet Hall quantique, il n'y a donc pas de dissipation possible dans le conducteur, ce qui implique que $R_{xx} = 0$. L'une des conséquences est que les états de bord sont des canaux de conduction unidimensionnels parfaits avec un coefficient de transmission $T = 1$ (ballistique). En utilisant la formule de Landauer introduite précédemment, la conductance s'écrit donc :

$$G = N \frac{2e^2}{h} \quad (3.50)$$

où le 2 vient de la dégénérescence de spin, et N est le nombre de canaux de bord déterminé par la valeur entière de ν .

Pour une barre de Hall en régime d'effet Hall quantique pour $\nu = 2$, en utilisant la formule 3.13 de la théorie de Landauer Büttiker [14] introduite précédemment, il est possible d'écrire 6 équations par rapport aux 6 différents contacts présentés

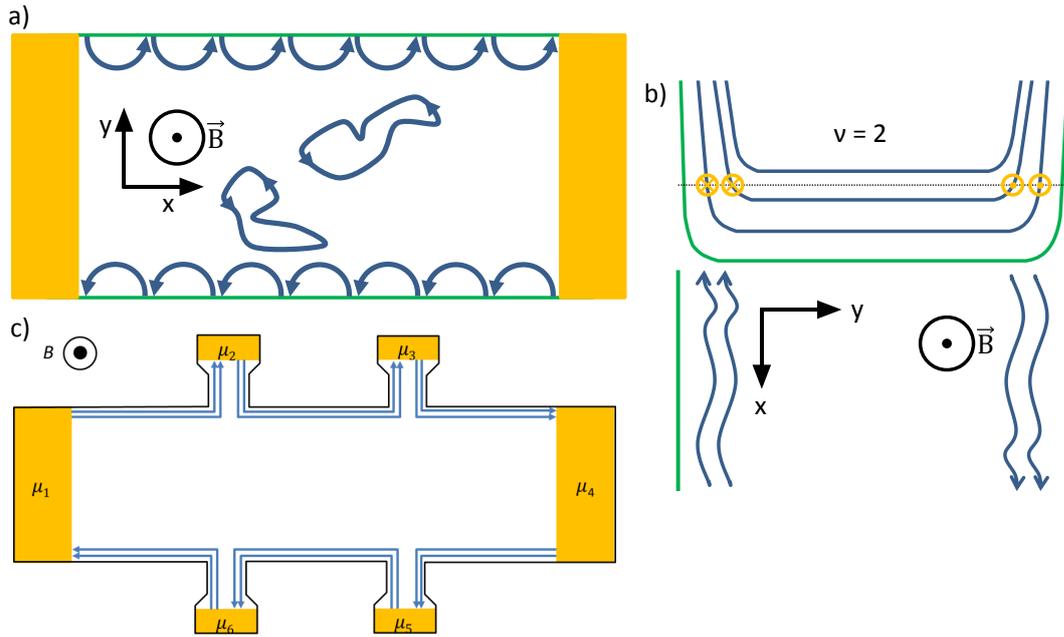


FIGURE 3.10 – a) Trajectoires des électrons dans un conducteur. Les trajectoires sont contre-propageantes sur les bords du conducteur. À l’intérieur du conducteur, les trajectoires suivent les équipotentielles modelées par le désordre. b) Les croisements entre le niveau de Fermi, en pointillé noir, et les niveaux de Landau, en bleu, correspondent au cas $\nu = 2$, créant ainsi deux canaux de bord. Le potentiel de confinement correspondant au bord du conducteur est en vert. c) Barre de Hall à six contacts en régime d’effet Hall quantique, pour $\nu = 2$.

sur la figure 3.10 c) :

$$\begin{aligned}
 I &= \frac{2e}{h}(\mu_2 - \mu_6) \\
 0 &= \frac{e}{h}(\mu_2 - \mu_1) \\
 0 &= \frac{e}{h}(\mu_3 - \mu_2) \\
 -I &= \frac{2e}{h}(\mu_5 - \mu_3) \\
 0 &= \frac{e}{h}(\mu_5 - \mu_4) \\
 0 &= \frac{e}{h}(\mu_6 - \mu_5)
 \end{aligned}$$

On retrouve que :

$$\mu_1 = \mu_2 = \mu_3 = \mu_H \quad \text{et} \quad \mu_4 = \mu_5 = \mu_6 = \mu_L \quad (3.51)$$

puis :

$$R_{xx} = \frac{V_2 - V_3}{I} = 0 \quad \text{et} \quad R_H = \frac{V_6 - V_2}{I} = \frac{h}{2e^2} \quad (3.52)$$

La théorie des états de bord met en lumière que la condition de parfaite quantification de Hall est l'absence de rétro-diffusion. On peut montrer que deux mauvais contacts (trop désordonnés) adjacents peuvent conduire à un écart de R_H à la valeur quantifiée car les états de bord auront un potentiel chimique différent. Lorsque les contacts sont bons, la présence de chocs inélastiques permet de restaurer un potentiel chimique équilibré car ils permettent un échange d'énergie [12], et donc la quantification.

3.5 Les mécanismes de dissipation

La description précédente a été faite à température nulle ainsi qu'à courant de mesure nul. Dans la réalité, la température n'est jamais nulle et il est nécessaire de faire circuler un courant pour faire une mesure électrique. Ces deux effets ont tendance à altérer l'effet Hall quantique. Dans le but d'avoir un étalon performant, il est primordial de comprendre les différents mécanismes de dissipation qui sont dus, à la fois au courant et à la température.

En régime d'effet Hall quantique, la dissipation n'existe que s'il y a de la rétro-diffusion, c'est-à-dire lorsque des électrons d'un côté du conducteur arrivent à passer de l'autre côté. Il y a deux mécanismes prépondérants, l'activation thermique et le saut à portée variable (Variable Range Hopping). L'étude de ces deux mécanismes est cruciale en métrologie car le niveau de quantification de la résistance de Hall est directement relié au taux de rétro-diffusion. Les rétro-diffusions entraînent en effet une chute de potentiel longitudinale qui modifie la valeur de la résistance de Hall par effet de couplage. En régime d'effet Hall quantique, σ_{xx} est très faible devant σ_{xy} qui est constant, on obtient donc :

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \approx \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xy}^2} \approx \sigma_{xx} R_H^2 \quad (3.53)$$

La mesure de la résistivité donne accès à la conductivité, c'est-à-dire à la quantité prédite par les différents mécanismes de dissipation.

3.5.1 L'activation thermique

L'activation thermique, ou la loi d'Arrhenius, est un mécanisme proposé par S. Arrhenius en 1889 et réadapté pour l'effet Hall quantique en 1994 [47]. Ce mécanisme est à l'origine de transition d'électrons vers les niveaux de Landau de part et d'autre du niveau de Fermi. Un électron proche du niveau de Fermi récupère de l'énergie thermique extérieure et peut l'utiliser de deux manières différentes. Il peut passer dans un état délocalisé dans le niveau de Landau directement supérieur et ensuite se désexciter via des interactions électrons-phonons et donc créer de la dissipation. Un électron peut également passer d'un niveau de Landau inférieur vers un état au niveau de Fermi. Un trou dans le niveau inférieur est donc formé. Le trou va atteindre le canal de bord opposé et donc créer de la dissipation. L'évolution de la conductivité longitudinale en fonction de la température suit la relation :

$$\sigma_{xx} \propto \left(\sigma_0 \exp\left(-\frac{E_{n+1} - E_F}{kT}\right) + \sigma_1 \exp\left(-\frac{E_F - E_n}{kT}\right) \right) \quad (3.54)$$

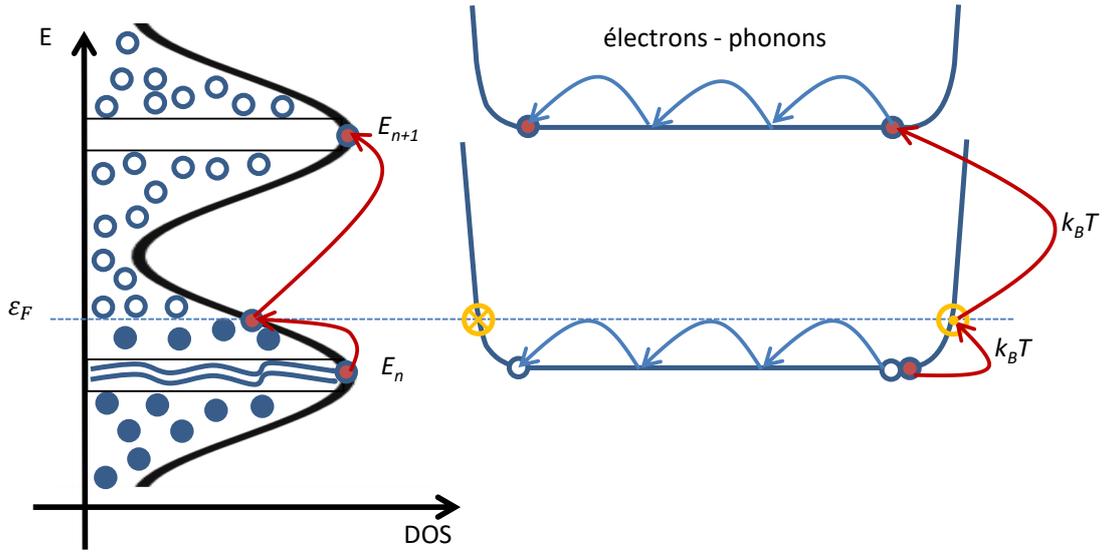


FIGURE 3.11 – Schéma de principe de l'activation thermique.

où E_{n+1} , E_n sont les énergies du niveau de Landau directement supérieur et inférieur au niveau de Fermi. E_F est l'énergie au niveau de Fermi, k est la constante de Boltzmann et T la température. Les constantes σ_0 et σ_1 sont des coefficients qui en pratique sont ajustés expérimentalement. Si on se place exactement entre deux niveaux de Landau, alors $E_F = (E_{n+1} + E_n)/2$, ce qui permet de réécrire l'équation 3.54 [47] :

$$\sigma_{xx} = \sigma_0^{act} \exp\left(-\frac{\Delta E}{2k_B T}\right) \quad (3.55)$$

où ΔE correspond à l'énergie cyclotron entre deux niveaux de Landau et $\sigma_0^{act} \approx e^2/h$ et faiblement dépendant du couplage électron-phonon lorsque le potentiel de désordre est à courte portée [47]. Pour un désordre à longue portée, le coefficient est universel et vaut $\sigma_0^{act} = 2e^2/h$ [54]. Lorsque l'activation thermique est dominante, on peut utiliser l'équation 3.55 pour déterminer le gap d'énergie ΔE .

La figure 3.12, montre la conductivité longitudinale en fonction de la température, pour du graphène obtenu par épitaxie sur la face silicium d'un substrat SiC. La densité électronique est de $n_s = 1,5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [6]. Les traits pleins rouges ont été tracés en utilisant un modèle combinant l'activation thermique (AT) et le modèle de saut à portée variable (VRH) de mott (décrit après) : $\sigma_{xx} = \sigma_{AT} + \sigma_{VRH}$. Entre 20 K à 100 K le logarithme de la conductivité longitudinale est linéaire lorsqu'elle est tracée en fonction de $1/T$, démontrant que l'activation thermique est dominante. Dans le cas des basses températures, des non-linéarités apparaissent : le modèle de VRH de mott devient dominant en dessous de 20 K.

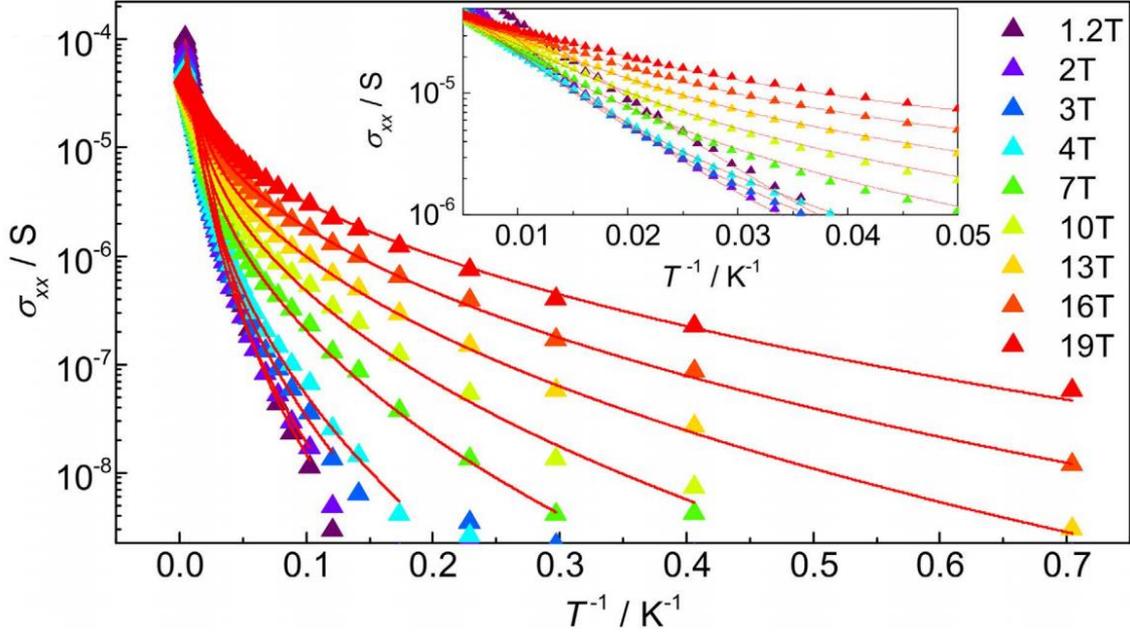


FIGURE 3.12 – Conductivité longitudinale en fonction de la température entre 1,4 K et 200 K pour plusieurs champs magnétiques tandis que dans l’insert $20 < T < 200$ K. Figure extraite de [6].

3.5.2 Le saut à portée variable

Le saut à portée variable de Mott

À basse température, le mécanisme de dissipation par activation thermique peut difficilement avoir lieu, les électrons n’ayant pas suffisamment d’énergie pour passer au niveau de Landau supérieur. Cependant, des mécanismes tunnels assistés par des phonons peuvent contribuer à la rétro-diffusion. Le mécanisme de saut à distance variable (Variable Range Hopping, VRH) devient dominant à faibles températures. La probabilité d’un électron de sauter d’un site i vers un site j distants de r s’écrit [97] :

$$P \propto \exp \left[- \left(\frac{2r}{\xi} + \frac{\Delta E}{k_B T} \right) \right] \quad (3.56)$$

où ξ est la longueur de localisation et ΔE la différence d’énergie entre les deux sites. Le premier terme de l’exponentielle représente la probabilité de saut tunnel, rendu possible par le recouvrement des deux fonctions d’ondes des deux états de deux sites. Le second exprime la contrainte énergétique de saut entre les sites.

Pour un électron à très basse température, il est plus probable de sauter sur un site éloigné ayant un écart énergétique faible. À plus haute température, l’électron peut sauter moins loin en privilégiant un site ayant un écart énergétiquement plus important. On peut calculer la distance de saut donnant le maximum de probabilité, correspondant à la résistance électrique la plus faible à une température donnée par

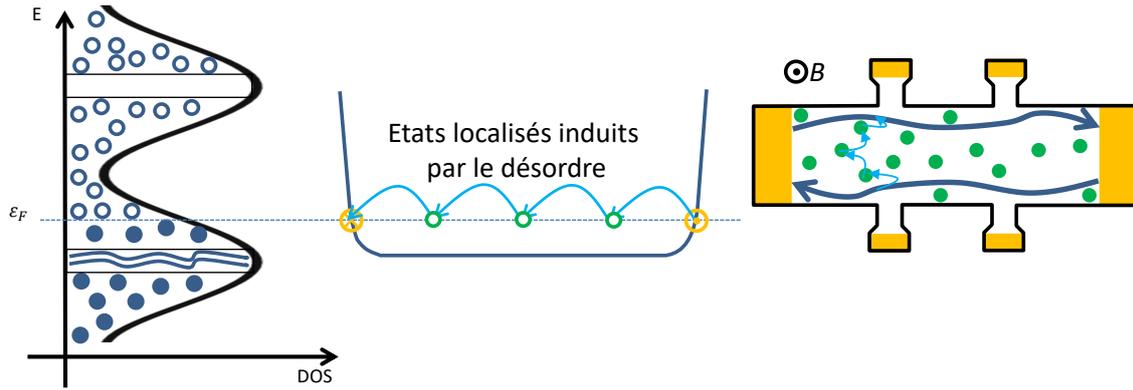


FIGURE 3.13 – Schéma de principe du saut à portée variable.

un calcul de minimisation :

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{2r}{\xi} + \frac{\Delta E}{k_B T} \right) = 0 \quad (3.57)$$

où $\Delta E = 1/\rho(E)r^d$ est la différence d'énergie moyenne entre deux sites d'une boîte de taille r^d , où d est la dimensionnalité et $\rho(E)$ la densité d'états au niveau de Fermi. En résolvant l'équation 3.57 en dimension 2, on obtient ainsi le rayon de Mott r_{Mott} :

$$\frac{2}{\xi} - \frac{2}{\rho(E)k_B T r_{Mott}^3} = 0 \Leftrightarrow r_{Mott} = \left(\frac{\xi}{\rho(E)k_B T} \right)^{1/3} \quad (3.58)$$

En remplaçant dans l'équation 3.56 les expressions de r et de ΔE , on obtient la résistance qui est proportionnelle à :

$$R \propto \exp \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/3} \quad \text{avec } T_0 = \frac{2}{\rho(E)k_B \xi^2} \quad (3.59)$$

Cette théorie est valide pour des isolants désordonnés [33] mais peut s'appliquer également pour modéliser la rétro-diffusion entre les canaux de bord en régime d'effet Hall quantique, quand l'interaction coulombienne est négligeable. La conductivité longitudinale σ_{xx} est fonction de la température selon :

$$\sigma_{xx} = \sigma_{xx}^0 \exp \left[- \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/3} \right] \quad (3.60)$$

Le saut à portée variable d'Efros et Shklovskii

Dans la théorie d'Efros et Shklovskii (E-S), on considère deux états i et j séparés d'une distance r . L'état i est occupé tandis que l'état j est vacant. Le transfert d'un électron de l'état i vers l'état j augmente l'énergie du système de $\Delta E \propto e^2/4\pi r \epsilon_0 \epsilon_r$ du fait de l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou laissé sur le site initial [33]. En faisant le même raisonnement que précédemment, on trouve que la

conductivité longitudinale σ_{xx} évolue comme :

$$\sigma_{xx} = \sigma_{xx}^T \exp \left[\left(\frac{T_1}{T} \right)^{1/2} \right] \text{ avec } T_1 = \frac{Ce^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r k_B \xi} \quad (3.61)$$

où C est une constante numérique qui vaut $C = 6,2$ [98]. Si la conduction suit cette loi, son comportement permet de déduire la longueur de localisation ξ qui peut se mesurer sans avoir à connaître la densité d'état, laquelle peut être difficile à mesurer précisément.

La valeur du pré-facteur est toujours débattue. Ono [103] utilise la théorie de percolation dans des systèmes désordonnés et calcule un pré-facteur qui dépend de la température comme :

$$\sigma_{xx}^0 = \frac{e^2 \gamma}{k_B T} \quad (3.62)$$

où γ est un couplage électron-phonon.

Pour Polyakov et Shklovskii le pré-facteur est calculé d'après le modèle de VRH E-S et en ne prenant en compte que les interactions électron-phonon [111]. Ils trouvent une valeur universelle sur une gamme de température $T_1 < T < T_2$ où $T_1 \simeq W(l_B/d_s)^2$ avec W l'énergie du potentiel apporté par une impureté et d_s la taille du spacer dans un hétérostructure (décrit dans le chapitre suivant). $T_2 \simeq W\alpha^{3/10}$ où α est le couplage électron-phonon. Dans cette gamme de température, le pré-facteur vaut :

$$\sigma_{xx}^0 = \frac{2e^2}{h} \quad (3.63)$$

Lorsque la température T est supérieur à T_2 , le coefficient dépend de la température comme :

$$\sigma_{xx}^0 \approx \frac{e^2}{h} \left(\frac{T_2}{T} \right)^{10/13} \quad (3.64)$$

Pepper *et al* considèrent le couplage électron-électron et trouvent un préfacteur universel et indépendant de la température [125] :

$$\sigma_{xx}^0 = \frac{e^2}{h} \quad (3.65)$$

Dans le cadre du mécanisme VRH, il est possible de montrer que la conductivité augmente avec le courant électrique et donc avec l'augmentation du champ électrique de Hall E_H . Efros et Shklovskii utilisent la théorie de saut sous fort champ électrique [124]. Cette théorie est basée sur le fait qu'il existe un quasi niveau de Fermi incliné par le champ électrique E_H , ce qui favorise la probabilité de saut. Dans ce formalisme, E_H est équivalent à une température effective $T \Rightarrow eE_H \xi / 2k_B$. En remplaçant dans l'équation 3.61 on obtient une conductivité :

$$\sigma_{xx}(E_H) = \sigma_{xx}^I \exp \left[- \left(\frac{E_1}{E_H} \right)^{1/2} \right] \text{ avec } E_1 = \frac{2k_B T_1}{e\xi} \quad (3.66)$$

La relation $I = WE_H/R_H$ permet de lier le champ électrique au courant, avec W la largeur typique de chute du potentiel. Ce qui mène à la température effective :

$$T_{eff}(I) = \frac{eR_H\xi I}{2k_B W} \quad (3.67)$$

Dans un échantillon parfaitement homogène, la largeur W est égale à celle de la barre de Hall. Dans cette théorie, la relation entre la température effective et le courant d'injection est linéaire.

Expérimentalement, il est difficile de différencier les mécanismes de VRH de Mott et de E-S. Il faut pour cela mesurer l'évolution de la conductivité sur plusieurs ordres de grandeur en température et éventuellement en courant. Ces théories s'appliquent au régime d'effet Hall quantique [46] pour déduire la dépendance en température de la conductivité longitudinale. Dans le GaAs/AlGaAs, en régime d'effet Hall quantique, il est souvent observé un pré-facteur proportionnel à $1/T$ [41].

La figure 3.14 présente des mesures de conductivité en fonction de $1/T^{1/2}$ pour différents facteurs de remplissage dans un échantillon de graphène exfolié sur un substrat de SiO₂/Si [8]. Les mesures sont réalisées à des valeurs de ν proches du niveau de Landau $N = -1$ donc en dehors du centre d'un plateau de Hall. Lorsque ν est proche de $\nu = 6$, la longueur de localisation ξ est faible et le mécanisme de dissipation dominant est le VRH E-S. À l'inverse, lorsque ν se rapproche du niveau de Landau $N = -1$, ξ augmente jusqu'à devenir supérieure à la distance entre le graphène et la grille métallique. Il y a alors écrantage des interactions électrons-électrons par la grille, le modèle de dissipation qui est prédominant est donc celui du VRH de Mott [8].

Nous avons vu que pour qu'il y ait de la dissipation dans l'échantillon, il faut que des électrons passent d'un état de bord d'un côté de l'échantillon à un état de bord de l'autre côté. De larges barres de Hall sont donc recommandées pour la métrologie afin de limiter les processus de rétro-diffusion.

3.5.3 La rupture de l'effet Hall quantique

Expérimentalement, il a été observé que pour un certain courant électrique, la résistance longitudinale augmente de manière très abrupte et par conséquent, R_H dévie de sa valeur quantifiée. Ce changement ne peut être expliqué ni par le modèle de l'activation thermique, ni par le modèle de VRH, c'est la rupture de l'effet Hall quantique [15]. Il peut s'expliquer de manière simplifiée par la relation entre la température électronique T_{el} et la résistivité longitudinale ρ_{xx} qui est non-linéaire. Au delà d'un courant critique I_C , le flux de chaleur dégagé par effet Joule ($\propto \rho_{xx} T_{el} I^2$) dépasse la capacité d'évacuation de la chaleur par le conducteur, ce qui provoque une instabilité menant à une brutale augmentation de la température électronique [141].

D'un point de vue microscopique, Heinonen et al. [52] ont développé un modèle où les niveaux de Landau sont inclinés par l'effet d'un champ électrique homogène. Le recouvrement des fonctions d'ondes n'est alors plus négligeable. Des transitions inter-niveaux de Landau, assistées par des phonons ou des impuretés, deviennent possibles. Ces transitions tunnels mènent à la rupture de l'effet Hall quantique pour un champ électrique critique [20].

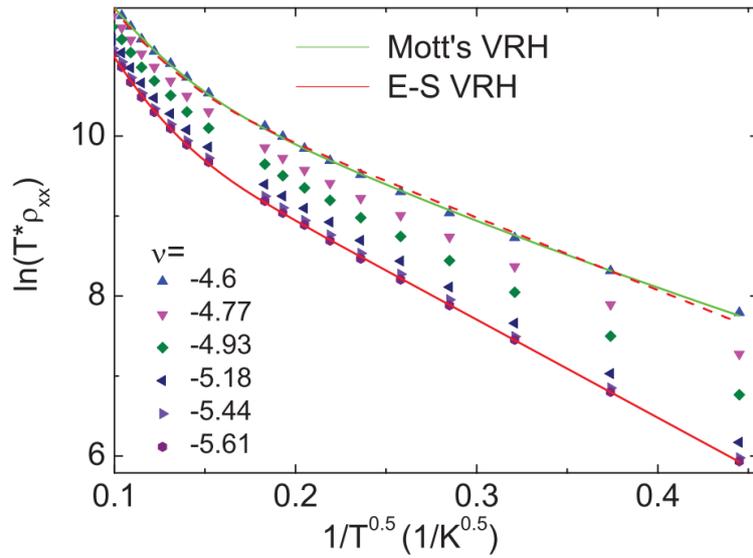


FIGURE 3.14 – Mesures de $T.\sigma_{xx}$ en fonction de $1/T^{1/2}$ à 14,8 T pour différents facteurs de remplissage. Les courbes en traits pleins et en pointillés sont des ajustements des points mesurés par les théories de VRH de Mott ou de E-S. L'ajustement réalisé dans le modèle de Mott en trait plein vert est meilleur que l'ajustement réalisé dans le modèle E-S en pointillé rouge pour le facteur de remplissage $\nu = -4,6$. Figure adaptée de [8].

L'étude des mécanismes de dissipation a permis de réaliser des étalons de résistance dont la géométrie minimise la dissipation. Dans le prochain chapitre nous présenterons les caractéristiques principales que doivent avoir les échantillons afin de réaliser un étalon de résistance fondé sur l'effet Hall quantique.

Chapitre 4

La métrologie de l'ohm

4.1 L'étalon de résistance en GaAs/AlGaAs

Pour réaliser un gaz d'électrons bi-dimensionnel, il faut que les électrons se propagent uniquement dans deux directions, la dimension transverse doit donc être plus petite que la longueur de Fermi. Il est possible de créer un puits de potentiel qui forme un gaz d'électrons bidimensionnel dans une structure tridimensionnelle comme le Si-MOSFET où l'hétéro-structures en GaAs/AlGaAs. Dans ces matériaux la densité électronique est faible, de l'ordre de $n_s = 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, la longueur de Fermi est de l'ordre de la centaine de nanomètre, bien plus grande que l'extension du puits de potentiel.

En métrologie des gaz bidimensionnels obtenus à partir de MOSFET silicium et des hétérostructures GaAs/AlGaAs ont été exploités. Les hétérostructures de GaAs/AlGaAs sont majoritairement utilisées du fait de la haute mobilité des porteurs, due à la faible masse effective ($m^* = 0,067m_e$) et du large gap d'énergie entre les niveaux de Landau.

Pour fabriquer un gaz d'électrons dans ce type de matériau, il faut créer un gap en énergie entre les sous-bandes bidimensionnelles. Cela est possible en jouxtant d'une part, du GaAs non dopé qui a un gap de 1,42 eV, et d'autre part du $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ dopé avec $x = 0,28$ pour lequel le gap vaut 1,77 eV, comme représenté sur la figure 4.1. Les deux potentiels chimiques des deux matériaux cherchent à s'équilibrer, en conséquence le profil des bandes d'énergies est déformé et, à l'interface se forme un puits de potentiel de forme triangulaire qui capte les électrons fournis par les dopants. Il confine les électrons dans le plan de l'interface sur une épaisseur d'une dizaine de nanomètres ce qui est plus petit que la longueur d'onde de Fermi des électrons.

Grâce à ce confinement dans le plan transverse à l'interface, le moment transverse est quantifié ce qui conduit à des sous-bandes bidimensionnelles séparées énergétiquement. L'espacement entre les deux premières sous-bandes 2D, de l'ordre de 0,1 eV est bien plus grand que l'énergie thermique à 1,3 K qui vaut environ 1×10^{-4} eV. Donc seule la première sous-bande est remplie à basse température, pour des dopages inférieurs à $6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

La fabrication de ce dispositif se fait par épitaxie par jet moléculaire (MBE Moléculaire Beam Epitaxy) ou par dépôt chimique en phase gazeuse (MOCVD Metal Organic Chemical Vapor Deposition). La formation des contacts électriques se fait

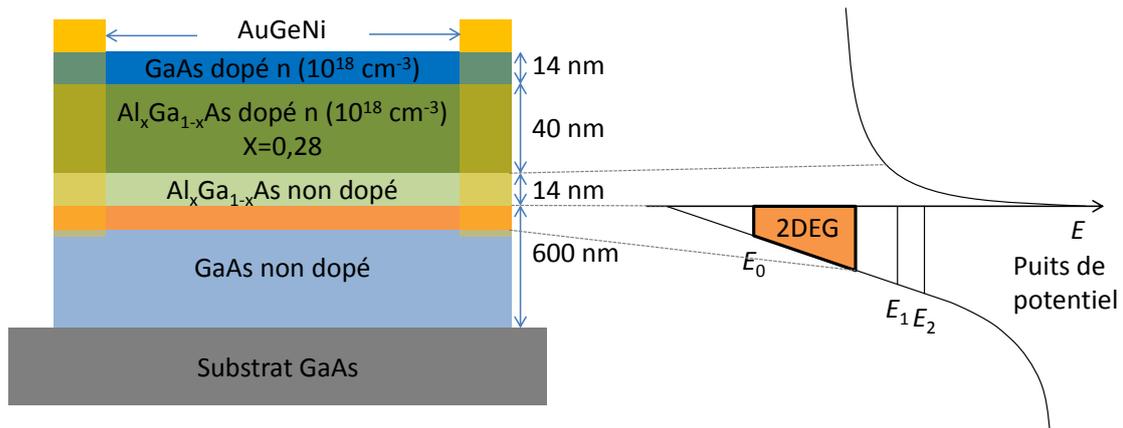


FIGURE 4.1 – Schéma d'un empilement de couches afin de former une hétérostructure GaAs/AlGaAs avec les bandes d'énergies proche de l'interface. Un puits de potentiel de forme triangulaire est créé à l'interface.

en chauffant un empilement de couches d'or, de germanium et de nickel. Il se forme alors un eutectique AuGe qui va diffuser et finir par contacter le gaz d'électrons de manière ohmique.

La barre de Hall

Les métrologues ont optimisé la forme des échantillons pour obtenir un effet Hall quantique le plus robuste et le plus exact possible. Dès le départ, les métrologues ont étudié l'effet de la largeur de l'échantillon sur le courant de rupture. En métrologie, le courant utilisé pour réaliser des mesures précises est élevé, quelques dizaines ou centaines de microampères. La différence de potentiel chimique est alors très grande devant l'énergie cyclotron. Pour un courant de $400 \mu\text{A}$ et un champ magnétique $B = 10 \text{ T}$, $\Delta\mu = 5 \text{ eV}$ soit l'équivalent de $\Delta\mu = 300\hbar\omega_c$. Dans ce régime de fort courant, une partie du courant circule en dehors des états de bord, dans le "bulk" [106]. On peut s'attendre à ce que la largeur de l'échantillon joue un rôle important dans le courant de rupture. Plusieurs groupes ont observé la variation du courant de rupture en fonction de la largeur des barres de Hall. La figure 4.2 a) tirée de Jeckelmann et al. [61], montre que le courant de rupture évolue linéairement avec la largeur. Meziani et al. [90] montrent également que le courant de rupture augmente avec la largeur de la barre, mais avec un comportement sous-linéaire 4.2 b). On constate que plus la largeur des échantillons est grande, plus le courant de rupture est élevé. Par conséquent, en métrologie, il est préférable d'avoir des échantillons en GaAs/AlGaAs les plus larges possible. De nos jours, la taille usuelle pour les étalons est $400 \mu\text{m}$.

Les contacts ont un rôle important, dans la théorie de Landauer-Büttiker, il est possible de montrer que deux mauvais contacts peuvent apporter un écart à la valeur quantifiée de la résistance de Hall. De bons contacts doivent être peu résistifs afin de préserver un bon niveau de quantification. Leur comportement doit également être ohmique. Les expériences ont montré [60] que la résistance des contacts doit être inférieure à 10Ω pour limiter les effets d'échauffement et conserver une quantification

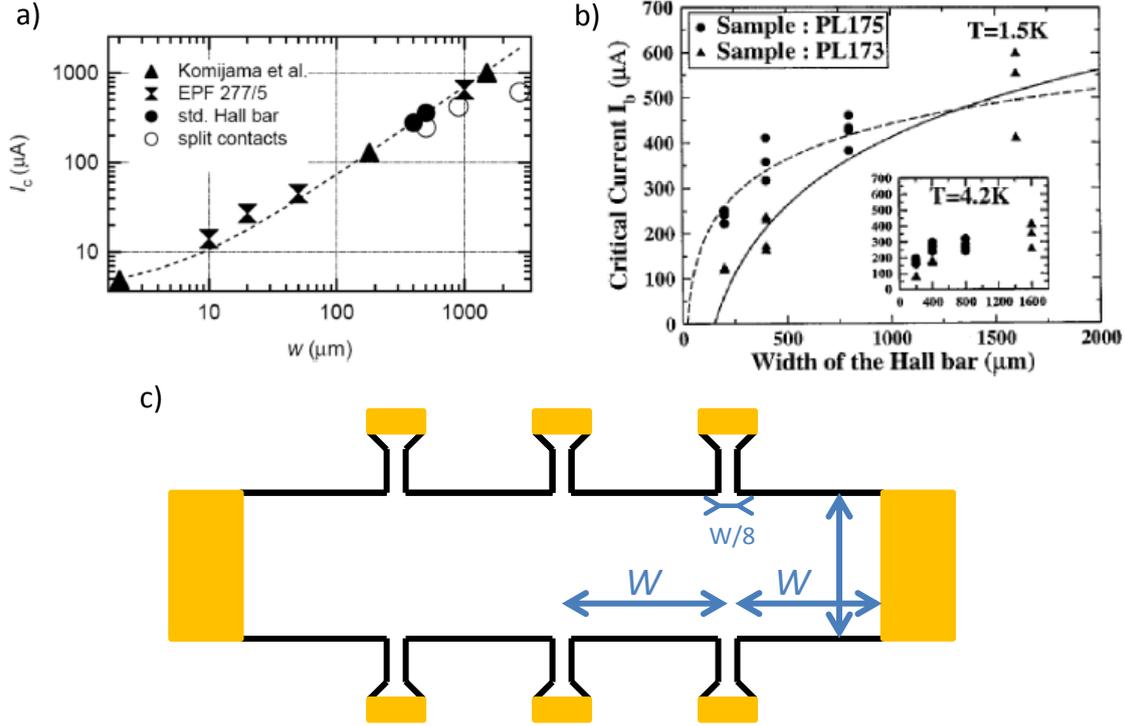


FIGURE 4.2 – a) Dépendance du courant de rupture avec la largeur de l'échantillon. Jeckelmann et al. observent un comportement linéaire [61]. b) Une évolution sous-linéaire est toutefois observée par Meziani et al. [90]. c) Hall bar métrologique avec les différentes longueurs importantes.

de 10^{-9} à 1,3 K. De manière générale, de larges contacts sont à privilégier pour obtenir de faibles résistances. Dans le GaAs/AlGaAs, des contacts de bonne qualité sont réalisés avec un alliage AuGeNi.

Dans une barre de Hall dont la forme est métrologique, il faut que les contacts soient excentrés par rapport au canal principal de la barre de Hall. Les contacts de tension ne sont, ainsi, pas invasifs : les contacts métalliques ne perturbent pas la densité électronique dans le canal. L'espacement entre les contacts de courant et les contacts de tension doivent être séparés d'une longueur au moins similaire à la largeur de l'échantillon pour que les equipotentiels aient la distance suffisante pour être parallèle au canal [61]. Un large espacement entre les contacts permet à des chocs inélastiques d'avoir lieu, ce qui rééquilibre les états de bord et est favorable à la bonne quantification de la valeur de la résistance de Hall [13].

Guide technique pour les étalons de résistance de type GaAs/ AlGaAs

À partir de nombreuses études, les métrologues ont défini des recommandations techniques pour les barres de Hall de type GaAs/AlGaAs [61, 110] destinées à être des étalons métrologiques, c'est-à-dire à avoir une quantification de la valeur de la résistance de Hall exacte à une incertitude relative au moins égale à 10^{-9} . Pour cela, les échantillons doivent remplir plusieurs conditions [25] :

- La mobilité doit être comprise entre $40 \text{ m}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1} < \mu < 80 \text{ m}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$.

- La densité de porteurs doit être comprise entre $3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2} < n_s < 5,5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$. Cette gamme de densité permet d'avoir un plateau $\nu = 2$ à des champs magnétiques accessibles et d'assurer un remplissage de la première sous-bande uniquement.
- La barre de Hall doit être la plus large possible pour avoir un courant de rupture le plus grand possible (typiquement $400 \mu\text{m}$).
- La longueur entre les contacts de tension doit être grande pour maximiser la thermalisation des états de bord (typiquement $L \simeq W$).
- Le rapport entre la largeur du bras de tension et la largeur de la barre doit être petite (typiquement $1/8$).
- Les contacts de tension doivent être éloignés des contacts de courant, la distance minimale étant une fois la largeur W .

Il est aussi question des caractéristiques de la barre de Hall en régime d'effet Hall quantique :

- Les contacts doivent avoir une résistance inférieure à 10Ω et être capable de supporter de larges courants ($40 - 60 \mu\text{A}$), tout en restant ohmiques.
- La valeur de la résistance de Hall ne doit pas dépendre de la polarité du champ magnétique, à 10^{-9} près.
- La valeur de R_{H} doit être la même, à 10^{-9} près, pour les différentes paires de mesure transverses utilisées.

Les étalons de résistance fabriqués à partir d'hétérostructures de GaAs/AlGaAs sont présents dans beaucoup de laboratoires nationaux de métrologie et permettent d'avoir une représentation de l'ohm avec une incertitude de 1×10^{-9} .

4.1.1 Résultats métrologiques du GaAs/AlGaAs

L'effet Hall quantique est un effet quantique universel, c'est à dire que la résistance de Hall est reliée à la constante R_{K} indépendamment du matériaux bidimensionnel utilisé, R_{K} n'étant dépendant que des constantes fondamentales e and h .

Afin de tester l'universalité de l'effet Hall quantique, des mesures de comparaison de résistances de Hall dans différents échantillons semi-conducteurs ont été réalisées. Un des tests a consisté à mesurer le rapport des résistances de Hall sur le plateau $\nu = 2$ d'un échantillon GaAs/AlGaAs et sur le plateau $\nu = 4$ d'un échantillon Si-MOSFET. Le rapport résultant de cette expérience est de $R_{\text{H}}^{\text{GaAs}}(\nu = 2)/R_{\text{H}}^{\text{Si-MOSFET}}(\nu = 4) = 2[1 - (0,22 \pm 3,5) \times 10^{-10}]$ [51]. Une comparaison a également été réalisée avec les plateaux $\nu = 4$ des deux matériaux : $R_{\text{H}}^{\text{GaAs}}(\nu = 4)/R_{\text{H}}^{\text{Si-MOSFET}}(\nu = 4) = 1 - (1,2 \pm 3,6) \times 10^{-10}$ [59]. L'universalité a aussi été testée en comparant des échantillons de GaAs/AlGaAs qui diffèrent les uns des autres par certains paramètres comme la largeur de la barre de Hall, la mobilité électronique où le facteur de remplissage. Là encore aucun écart significatif n'est mesuré avec une incertitude relative de $(1,6 \pm 2,3) \times 10^{-10}$ [60].

Pour comparer des résistances proches de manière très précise, le LNE à développé un pont de Wheatstone quantique, dont le schéma et une photographie sont visibles sur les figures 4.3 a) et b). Les différentes barres de Hall sont connectées avec la technique de la multiple connexion, permettant de diminuer fortement l'impact de la résistance des câbles connectant les différentes barres et ainsi supprimer

les écarts à la valeur quantifiée. Cette technique sera détaillée dans la partie 7.2.1. La mise en œuvre de ce pont de Wheatstone a permis de comparer la résistance des quatre barres de Hall en GaAs/AlGaAs. La figure 4.3 c) montre la dépendance de l'écart relatif $\Delta R/R$ d'une barre de Hall par rapport aux trois autres en fonction du niveau de dissipation moyen. Elle met en évidence une relation linéaire entre $\Delta R/R$ et R_{xx} . La véritable quantification du dispositif est attendue lorsque la dissipation est nulle. L'extrapolation à dissipation nulle, donne un écart relatif de $\Delta R/R(R_{xx} = 0) = (-1,9 \pm 31,8) \times 10^{-12}$ [120]. Ce résultat démontre la reproductibilité de l'effet Hall quantique avec une incertitude relative record de 3×10^{-11} .

4.2 La métrologie de la résistance dans le graphène

4.2.1 La fabrication du graphène

L'exfoliation

La première méthode pour fabriquer du graphène est l'exfoliation mécanique du graphite. Le graphite est composé d'une multitude de couches de graphène empilées les unes sur les autres et faiblement liées. En 2004, un groupe de l'université de Manchester, mené par A. Geim et K. Novoselov, en Angleterre, a réussi à obtenir du graphène grâce à une exfoliation mécanique [101]. La technique est décrite schématiquement sur la figure 4.4 a). Pour obtenir du graphène en utilisant cette technique, il faut commencer par cliver plusieurs couches d'un bloc de graphite en utilisant un ruban adhésif. En répétant le processus de collage/décollage sur les couches extraites, ces chercheurs ont réussi à obtenir des multifeuillets ou des mono-couches qu'ils ont déposés sur un substrat SiO_2/Si . Une détection optique a permis de sélectionner soit une mono-couche (MLG) soit quelques couches (FLG) qui ont été connectées électriquement. Des mesures de transport, visibles sur la figure 4.4 b), représentant la conductivité de Hall à 14 T et 4 K, en fonction de la densité électronique ont mis en évidence des comportements de fermions de Dirac, observables dans des mono-couches de graphène [100]. Cette technique d'exfoliation donne des échantillons ayant de très bonnes mobilités ($15000 \text{ cm}^{-2}\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ à 10 K), cependant, la taille des mono-feuillets ne dépasse pas quelques micromètres et la technique n'est pas utilisable pour une production de masse.

La décomposition thermique du carbure de silicium

En 2004, une autre technique de fabrication du graphène a été développée par une équipe de l'université de Georgia Tech aux Etats-Unis. Il a été démontré [18] que le graphène pouvait être synthétisé par décomposition thermique d'un substrat de carbure de silicium. À haute température, les atomes de silicium sont sublimés tandis que les atomes de carbone restants diffusent et se réorganisent à la surface du substrat pour finalement former un film continu de graphène. Les deux faces présentes dans un substrat de type 6H-SiC sont visibles sur la figure 4.5 a). La croissance de graphène est possible sur les deux faces et chaque face possède des particularités. La face à terminaison carbone (000-1) permet une croissance rapide cependant il est difficile d'obtenir une mono-couche. Sur la face à terminaison silicium (0001) la croissance

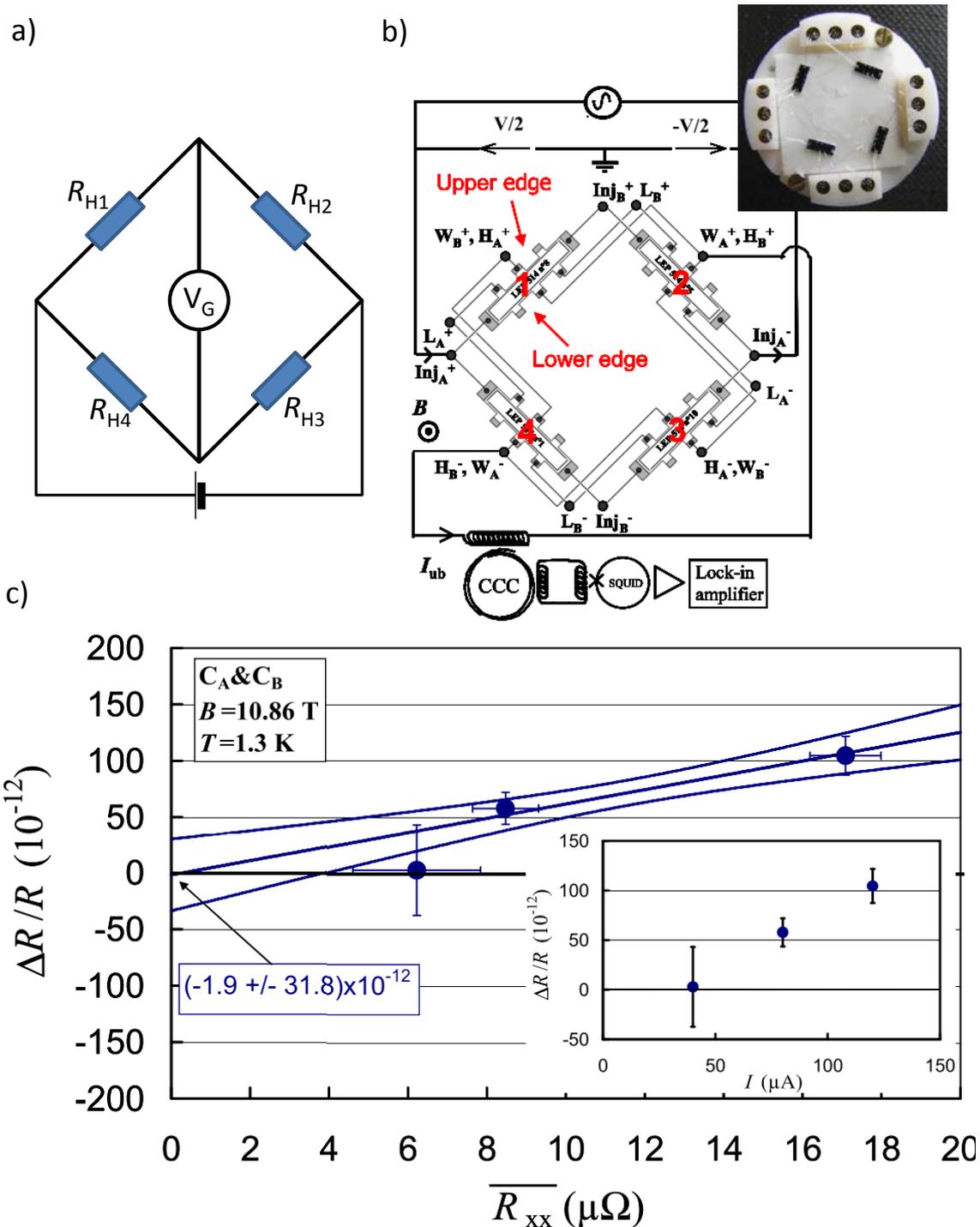


FIGURE 4.3 – a) Schéma d'un pont de Wheatstone b) Schéma du pont de Wheatstone quantique réalisé avec des barres de Hall, ainsi qu'une photographie des échantillons sur un porte échantillon. c) $\Delta R/R$ en fonction de R_{xx} à $B = 10,86$ T et $1,3$ K. Dans l'insert $\Delta R/R$ en fonction de I . Image extraite de [120].

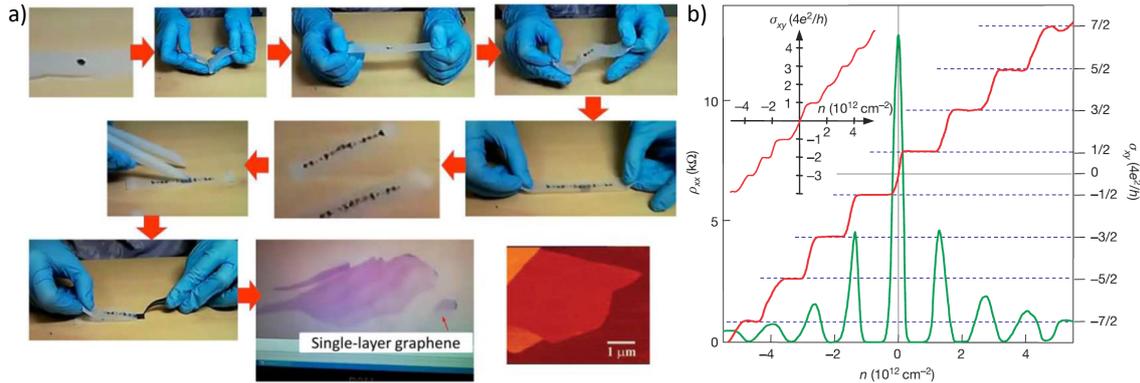


FIGURE 4.4 – a) Différentes étapes de l'exfoliation mécanique de graphène à partir de graphite. Image extraite de [140] b) Mesures de la conductivité de Hall en fonction de la densité électronique réalisées par A. K. Geim et K. S. Novoselov [100].

est plus lente, permettant de contrôler plus précisément le nombre de couches et donc d'arrêter la croissance après une mono-couche.

Il existe plusieurs méthodes pour former du graphène par décomposition thermique du SiC sur la face silicium. La première a lieu lorsque le substrat de carbure de silicium est chauffé au dessus de 1200°C sous ultra vide [18]. La seconde lorsque la température atteint 1600°C sous atmosphère d'argon. L'augmentation de la température a permis l'augmentation de la qualité du graphène et donc de plus hautes mobilités [34]. Dans les deux cas, les atomes de silicium se subliment [118], cette étape de la croissance est visible sur la figure 4.5 c). Cette sublimation mène à la formation d'une première couche carbonée (Zero Layer Graphene, ZLG sur les figures 4.5 b) et c) en pointillé bleus) qui est formée à la surface du substrat. Un atome de carbone sur trois de la ZLG est lié de manière covalente au substrat, rendant cette couche carbonée inactive électriquement. Comparée au substrat de SiC, la ZLG a une structure $(6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3})R30^\circ$. En continuant la croissance, une seconde couche carbonée se forme au dessus de la ZLG, c'est la couche active de graphène, sur la figure 4.5 b). Le dopage en électron de la couche de graphène est généralement élevé 10^{13} cm^{-2} , principalement à cause des liaisons pendantes du SiC qui vont doper le graphène [118]. Plusieurs techniques ont ensuite été étudiées pour réduire le dopage. Il est possible de saturer les liaisons pendantes par des atomes d'hydrogène [105], réduisant ainsi le dopage induit par la ZLG. Il est également possible de recouvrir l'échantillon par une résine photosensible de type ZEP520A pour compenser ce fort dopage électronique [82]. Il est également possible de réaliser des grilles au dessus ou au dessous de l'échantillon de graphène afin de modifier la densité de porteurs [66, 85, 134].

Le dépôt en phase vapeur sur métal

La technique de dépôt sur métal en phase vapeur (Chemical Vapor Deposition CVD) permet de produire de grandes couches de graphène à moindre coût en quelques dizaines de minutes. Une feuille de métal, par exemple en cuivre, est placée dans le réacteur qui permet le chauffage sous flux de gaz. Il faut ensuite introduire un composé carboné, par exemple du méthane mélangé à de l'hydrogène, dans

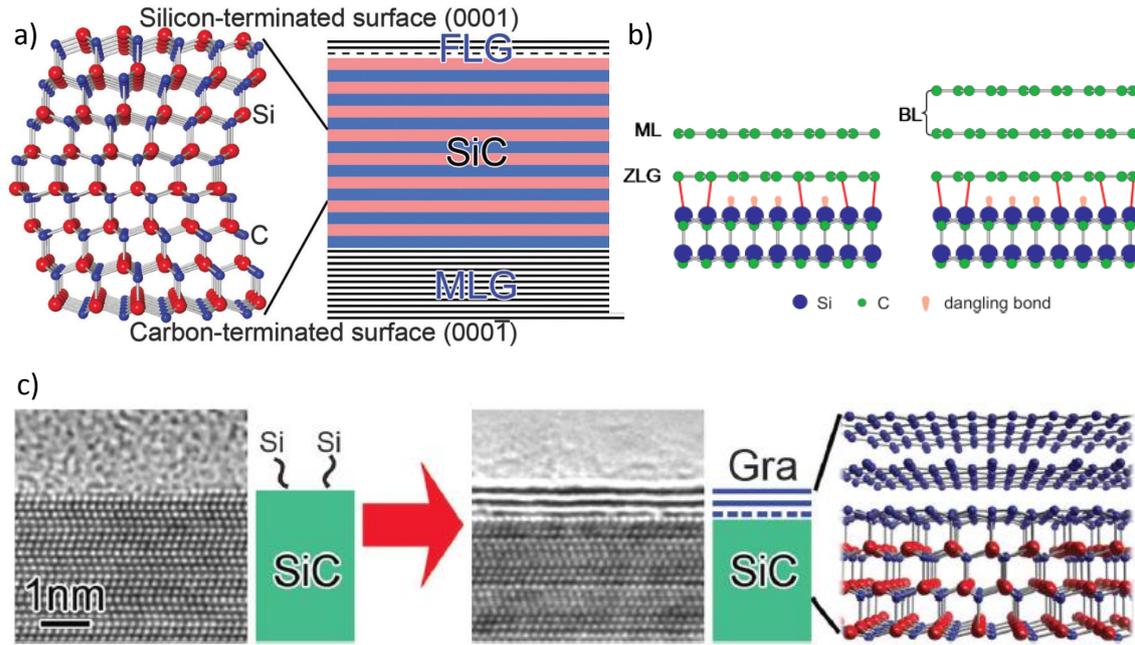


FIGURE 4.5 – a) Schéma de la structure atomique du carbure de silicium 6H-SiC, mettant en évidence la terminaison des deux faces ainsi que le type de croissance obtenu. Les atomes rouges et bleus représentent respectivement le silicium et le carbone. b) Schéma du substrat de SiC, la ZLG est représentée avec les liaisons covalentes et une couche de graphène à gauche et une bi-couche de graphène à droite. c) Images de croissance de graphène obtenu par décomposition thermique de SiC. Images a) et c) extraites de [99] et image b) de [118].

le réacteur. Lorsque la température atteint typiquement 1000°C , le méthane se décompose et le carbone produit diffuse à l'intérieur de la feuille de cuivre. Lorsque la température diminue, la solubilité du carbone dans le cuivre diminue et les atomes de carbone ressortent du cuivre par des points de nucléation, principalement des défauts dans le réseau cristallin du cuivre. La température est suffisante pour que les atomes de carbone à la surface du cuivre diffusent et contribuent à la poursuite de la croissance du graphène, formant des grains de graphène. Si la croissance continue, les différents grains peuvent fusionner et ainsi former un large film polycristallin [50,84], photographie de la figure 4.6). Ce film peut ensuite être transféré sur un substrat isolant de type SiO_2/Si .

Le dépôt en phase vapeur sur SiC

La croissance de graphène réalisée par un dépôt en phase vapeur (CVD) d'un mélange de gaz de propane/hydrogène sur la face silicium d'un substrat semi-isolant de carbure de silicium (SiC) allie les avantages de la décomposition thermique du SiC et de la croissance CVD. Un mélange de gaz hydrogène/argon circule à une pression de 800 mbar et à une température proche de 1500°C . Lorsque le gaz de propane est ajouté, la croissance du graphène commence et dure quelques minutes [91]. Une description plus détaillée sera présentée dans le chapitre dédié à l'étude

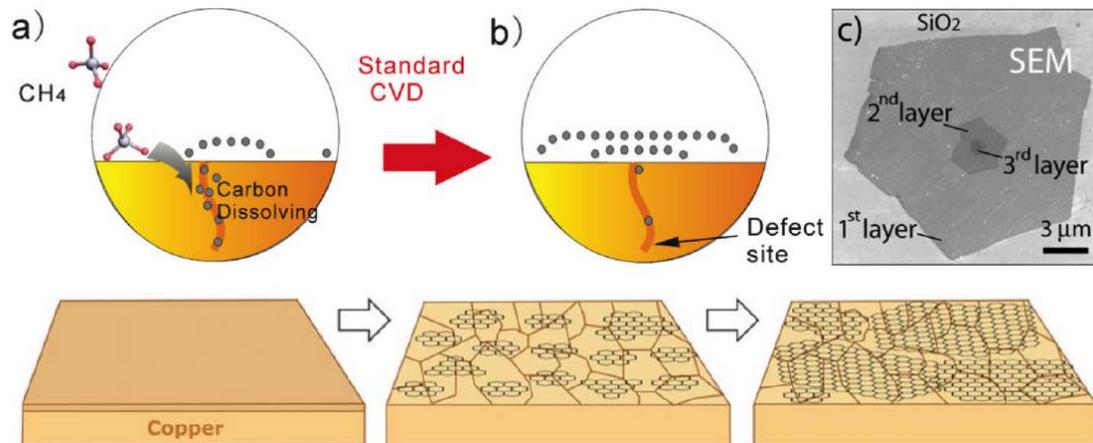


FIGURE 4.6 – a), b) Schéma du processus de croissance de CVD sur métal. Les atomes de carbone se dissolvent dans le métal lorsque que la température est élevée ($T \geq 1000^\circ\text{C}$) et ressortent par les défauts lorsque la température diminue pour former un film continu et polycristallin de graphène. c) Image prise par microscopie électronique permettant d’observer plusieurs couches de graphène. Images extraites de [88].

des échantillons de graphène réalisés par cette technique.

4.2.2 Résultats métrologiques

Les résultats présentés dans cette partie sont classés par type de graphène et non pas chronologiquement.

Graphène exfolié sur oxyde de silicium

Le graphène exfolié est le premier système sur lequel des mesures métrologiques ont été réalisées. Le graphène, une fois exfolié, est transféré sur un substrat. Le premier substrat qui a été utilisé est de l’oxyde de silicium sur silicium (SiO_2/Si).

Le substrat permet d’avoir une fine couche isolante (SiO_2) à la surface de la face (001) d’une couche de silicium qui peut être conductrice si elle est dopée. Grâce au couplage capacitif entre le graphène et le silicium via la couche isolante, il est possible de varier la densité électronique du graphène. Le silicium constitue donc une grille arrière. L’un des défauts de ce substrat est que l’oxyde peut comporter des impuretés chargées qui peuvent modifier localement les propriétés électroniques du graphène.

Les premiers résultats métrologiques avec du graphène exfolié déposé sur un substrat SiO_2/Si ont été obtenus en 2008 par un consortium de plusieurs laboratoires comprenant le laboratoire de métrologie Hollandais, un groupe de l’université de Nijmegen en Hollande ainsi qu’un groupe de l’université de Manchester (A. Geim et K. Novoselov). Le graphène a été gravé pour former une barre de Hall de $1 \mu\text{m}$ de large ayant une mobilité électronique de $8000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. La grille arrière a permis de moduler la densité électronique. La valeur de la résistance de Hall, sur le plateau $\nu = 2$, à 14 T, 0,35 K et pour un courant de $1,5 \mu\text{A}$, a été comparée à celle d’un

étalon de référence en GaAs/AlGaAs. L'écart relatif a été trouvé égal à [43] :

$$\frac{\Delta R_H^G}{R_H} = \frac{R_H^G - R_H^{GaAs}}{R_H^{GaAs}} = (-5 \pm 15) \times 10^{-6} \quad (4.1)$$

L'incertitude de mesure était limitée d'une part par de mauvais contacts, ($\sim 1 \text{ k}\Omega$) qui augmentaient considérablement le bruit de la mesure, d'autre part les faibles courants de mesure qui ne permettaient pas d'avoir un rapport signal sur bruit suffisant, le courant de rupture de l'effet Hall quantique étant de $2,5 \text{ }\mu\text{A}$. Il est cependant intéressant de noter que la densité de courant dans cet échantillon est de l'ordre de $\sim 2,5 \text{ A/m}$, ce qui est supérieur à celui obtenu avec les meilleurs étalons de résistance en GaAs/AlGaAs.

Plus tard, en 2012, le Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE) a étudié une barre de Hall de graphène exfolié déposé sur un substrat SiO_2/Si mesurant $15 \times 2 \text{ }\mu\text{m}^2$ (une image de l'échantillon est reproduite figure 4.7 a)). La courbe de magnéto-résistance présentée sur la figure 4.7 b) montre que la valeur de la mobilité électronique de l'échantillon était de $2000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. À basse température, $1,3 \text{ K}$, et fort champ magnétique, $11,7 \text{ T}$, la valeur de la résistance de Hall varie et forme des plateaux de Hall lorsque la densité change. La valeur de la résistance de Hall, sur le plateau $\nu = 2$, à $11,7 \text{ T}$, $1,3 \text{ K}$ et pour des courants de $0,5$ et $1 \text{ }\mu\text{A}$, a été comparée à celle d'un étalon de référence en GaAs/AlGaAs. Sur la figure 4.7 c) on peut voir qu'une parfaite quantification de la résistance de Hall a été démontrée avec une incertitude relative de 5×10^{-7} , en extrapolant dans la limite sans dissipation ($R_{xx} = 0$) [48].

Une barre de Hall formée avec une bi-couche de graphène a également été étudiée. Sa mobilité électronique était de $3500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. Là encore aucun écart n'a été trouvé lors de la comparaison des résistances de Hall entre le GaAs/AlGaAs et la bi-couche de graphène à $18,5 \text{ T}$ et $0,35 \text{ K}$ avec une incertitude relative de 5×10^{-7} .

Les incertitudes de mesure des deux comparaisons étaient limitées par les faibles courants de rupture de l'effet Hall quantique, de l'ordre du microampère dans ces échantillons. Ces faibles courants de rupture de l'effet Hall quantique ont été expliqués d'une part, par la petite taille des échantillons et, d'autre part par la forte concentration en impuretés chargées interagissant avec le graphène, responsables d'une augmentation des transitions inter-niveaux de Landau (QUILLS). Les conditions expérimentales de quantification des échantillons en graphène n'étaient pas meilleures que celles d'un étalon de GaAs/AlGaAs. Deux points majeurs ont été conclus de ces travaux pour faciliter les conditions d'utilisation du graphène. Premièrement, des échantillons avec une mobilité électronique plus élevée, ainsi qu'une densité de porteur plus homogène sont nécessaires. Pour atteindre cet objectif, un substrat de très bonne qualité sans impuretés chargées est requis. Deuxièmement, le graphène exfolié est de trop petite taille, les courants de ruptures ne sont pas assez élevés pour l'application métrologique.

Graphène exfolié sur GaAs/AlGaAs

Egalement en 2012, une équipe de la PTB, en Allemagne, a produit une large barre de Hall, $150 \times 30 \text{ }\mu\text{m}^2$, en graphène exfolié déposé sur un substrat de GaAs/AlGaAs

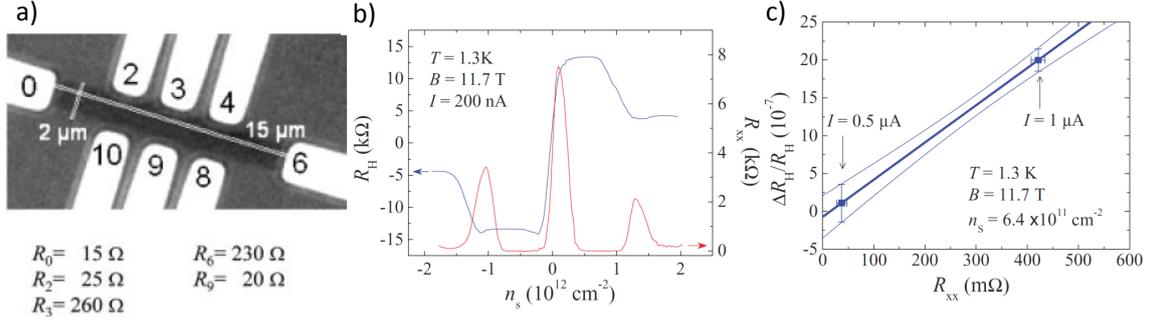


FIGURE 4.7 – Travaux du LNE. a) Image optique de la barre de Hall de graphène exfolié déposé sur un substrat SiO_2/Si de taille $15 \times 2 \mu\text{m}^2$ et valeur des résistances de contacts. b) Courbe de magnéto-résistance de l'échantillon. En rouge, la résistance longitudinale et en bleu, la résistance de Hall. c) $\Delta R_{\text{H}}/R_{\text{H}}$ en fonction de R_{xx} . Courbes extraites de Guignard et al. [48].

(image optique figure 4.8 à gauche). La figure 4.8 de droite représente l'évolution des résistances de Hall et longitudinales en fonction du champ magnétique, à une température de 60 mK, pour deux densités de trous différentes. Afin de modifier la densité, un gaz 2D enterré est utilisé comme grille arrière. On peut observer un plateau de Hall à la valeur de $R_{\text{K}}/2$ accompagné par une chute à zéro de la résistance longitudinale. Des mesures de la résistance longitudinale en fonction du courant, figure 4.8 c) ont permis de mettre en évidence un courant de rupture de l'effet Hall quantique de $12 \mu\text{A}$ [136]. La valeur de la résistance de Hall, sur le plateau $\nu = 2$, à 18 T, 0,06 K mesurée pour un courant de $10 \mu\text{A}$, a été comparée à celle d'un étalon de référence en GaAs/AlGaAs. Une parfaite quantification de la résistance de Hall a été démontrée avec une incertitude relative de $6,3 \times 10^{-9}$. Une densité de courant de $0,5 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ a été démontrée dans ce système. Cette valeur est plus faible que celle mesurée dans les étalons en GaAs. La limitation en courant a également été expliquée par la présence d'impuretés chargées. Bien qu'un échantillon de plus grande taille a pu être produit, la production de tels échantillons par exfoliation est irréproductible, ce qui n'est pas compatible avec l'application métrologique.

La décomposition thermique du SiC par sublimation du silicium

En 2010, le National Physical Laboratory (NPL), en charge de la métrologie anglaise a réalisé des mesures électriques dans un échantillon de graphène, mesurant $160 \times 35 \mu\text{m}^2$ [131], figure 4.9 a) dont la croissance a été faite à l'université de Linköping, par décomposition thermique du SiC sur face silicium 4H-SiC (0001). Cette croissance particulièrement bonne a été rendue possible grâce à un recuit du substrat à haute température sous une atmosphère d'argon plutôt que sous vide. Cela a permis d'obtenir un graphène de haute qualité ($\mu = 1500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) et de densité électronique plus basse ($n_s = 10^{12}\text{cm}^{-2}$) sur de grandes surfaces. Dans l'échantillon cité ci-dessus, les mesures de magnéto-résistance ont montré un plateau de Hall débutant à 10 T se prolongeant au delà de 14 T, figure 4.9 b). Une densité électronique $n_s = 8,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ en a été extraite. La valeur de la résistance

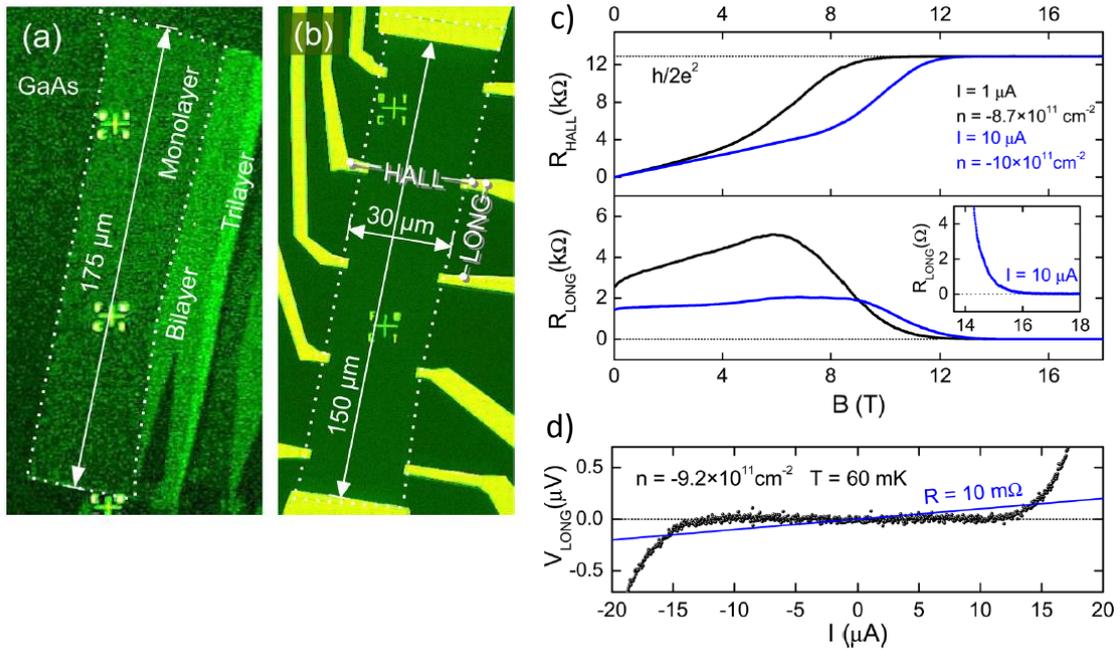


FIGURE 4.8 – Travaux de la PTB. a) Image optique de la barre de graphène exfolié déposé sur un substrat en GaAs b) Large barre de Hall $150 \times 30 \mu\text{m}^2$. À droite c) Evolution des résistances de Hall et longitudinales en fonction du champ magnétique pour un échantillon de graphène déposé sur un substrat de GaAs. Les deux couleurs représentent deux densités électroniques différentes. Dans l'insert, l'évolution de la résistance longitudinale entre 13,8 et 18 T, correspondant aux champs magnétiques où la résistance de Hall commence à atteindre la valeur quantifiée. d) Résistance longitudinale en fonction du courant électrique. La courbe bleue correspond à une résistance de 10 mΩ. Images extraites de Woszczyna et al. [136].

de Hall, sur le plateau $\nu = 2$, à 14 T, 0,3 K mesurée pour un courant de 11,6 μA , a été comparé à celle d'un étalon de référence en GaAs/AlGaAs. Une parfaite quantification de la résistance de Hall a été démontrée avec une incertitude relative de 3×10^{-9} . Ce résultat a montré pour la première fois que la résistance de Hall d'un échantillon de graphène pouvait être aussi bien quantifiée que celle d'un étalon de GaAs/AlGaAs.

Les auteurs des travaux ont pu réduire la densité électronique pour atteindre un début de plateau $\nu = 2$ à des valeurs de champ magnétique plus faibles à 6 T. Pour réaliser cela, une bi-couche de résine de P(MMA-MAA)-ZEP520A a été déposée sur le graphène. L'intérêt de ce dépôt est multiple. Il permet tout d'abord de protéger l'échantillon de l'adsorption d'atomes extérieurs, donc de stabiliser et d'uniformiser la densité électronique [82]. De plus, la résine ZEP 520a est photosensible. Sous irradiation ultraviolette, elle devient accepteuse d'électrons, ce qui permet de diminuer le dopage en électrons du graphène. Après illumination ultra-violette, la densité à basse température a pu être diminuée dans un premier temps à $n_s = 6,7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, corollairement la mobilité a augmenté jusqu'à $\mu = 6700 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ du fait d'une

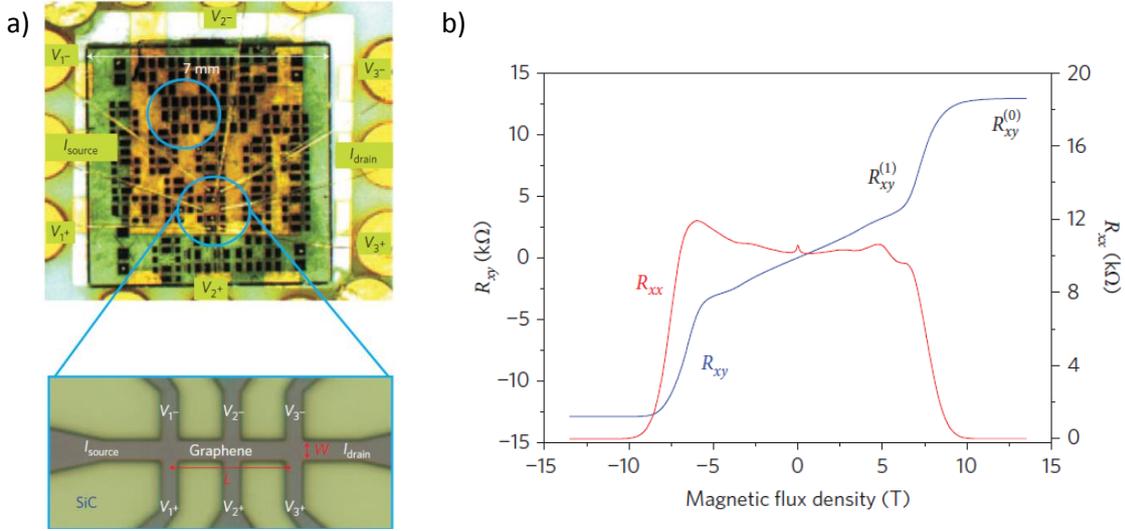


FIGURE 4.9 – Travaux du NPL. a) En haut, image optique de l'échantillon de graphène sur un substrat de SiC, sur son porte échantillon. En bas, schéma de la barre de Hall sur laquelle les mesures ont été faites. b) Courbe de magnéto-résistance. Le début du plateau de Hall $\nu = 2$ apparaît aux alentours de 10 T. La densité électronique est de $8,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Courbes extraites de [131].

diffusion à courte portée dominante dans cette barre de Hall [57]. Sur la figure 4.10 a), le plateau $\nu = 2$ commence aux alentours de 6 T contre 10 T avant illumination, ce qui coïncide avec une densité plus faible. Il a pu être montré que la résistance de Hall était parfaitement quantifiée avec une incertitude relative de l'ordre 10^{-9} sur une gamme de champs magnétiques allant de 11,75 T jusqu'à 14 T (champ maximal d'étude). Cette gamme de champs magnétiques est largement supérieure à la plage d'utilisation du GaAs/AlGaAs qui est typiquement d'un tesla.

Une seconde illumination de la résine aux ultra-violets a permis de descendre la densité électronique jusqu'à $n_s = 4,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et d'augmenter la mobilité jusqu'à $\mu = 7500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. La figure 4.10 b) met en évidence un début du plateau de Hall qui commence à un champ magnétique proche de 5 T et qui se prolonge au delà de 14 T. La figure 4.10 c) présente les résultats d'une comparaison entre les valeurs de la résistance de Hall, sur le plateau $\nu = 2$, à 14 T (à l'exception du point noir qui est à 11 T), 0,3 K obtenues pour différents courants de mesure et celle d'un étalon de référence en GaAs/AlGaAs. La moyenne pondérée des mesures a permis aux auteurs de calculer un écart relatif entre la résistance de Hall dans le graphène et dans le GaAs/AlGaAs : $\Delta R_H/R_H = (-4,7 \pm 8,7) \times 10^{-11}$. L'accord démontré constituait le test d'universalité de l'effet Hall quantique réalisé aux incertitudes les plus faibles jamais obtenues dans le domaine de la métrologie. Ces travaux ont également montré que le courant de rupture, en bleu sur la figure 4.10 b), augmentait de manière continue jusqu'à $500 \mu\text{A}$ à un champ magnétique de 14 T. Or, il aurait dû être observé un maximum pour 9,5 T, champ pour lequel $\nu = 2$ est théoriquement atteint à la densité électronique $n_s = 4,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Les auteurs ont expliqué l'extension du plateau de Hall vers les forts champs magnétiques par un transfert de charge, proportionnel au champ magnétique, depuis la ZLG, bloquant ainsi le facteur de remplissage à la valeur $\nu = 2$.

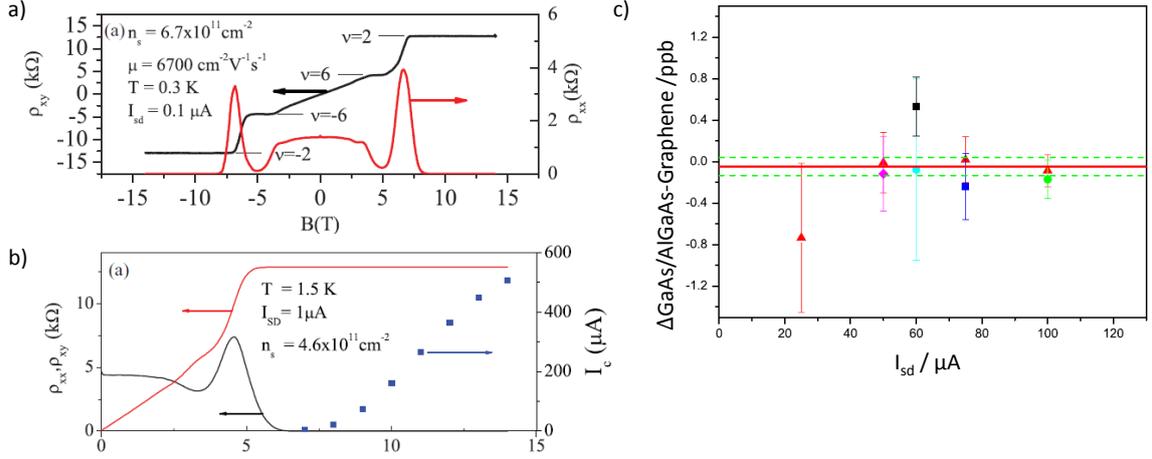


FIGURE 4.10 – Travaux du NPL. a) Courbes de magnéto-résistance après illumination ultra-violette. b) Courbes de magnéto-résistance après une seconde illumination aux ultra-violets de la résine. En bleu, est représenté l'évolution du courant de rupture de l'effet Hall quantique avec le champ magnétique. c) Mesures des écarts relatifs entre la valeur de la résistance de Hall dans un étalon de GaAs/AlGaAs et de l'échantillon de graphène, pour $n_s = 4,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ en fonction du courant. Pour le graphène, les mesures sont faites à 14 T (à l'exception du point noir qui est à 11 T) et à 0,3 K. La valeur moyenne pondérée de tous les points est symbolisée par la ligne rouge tandis que les pointillés verts représentent l'incertitude de 1σ . Courbes extraites de [57, 58].

Le modèle du transfert de charge [76] décrit l'effet qu'a la ZLG sur la densité électronique. La figure 4.11 a) schématise le mécanisme du principe du transfert de charges de la ZLG vers le graphène pour $B = 0$. Les états sont alors distribués de manière continue avec le niveau de Fermi. Ce modèle permet d'expliquer la forte densité électronique des échantillons de graphène obtenu par décomposition thermique du SiC. Une description plus détaillée du modèle de transfert de charges sera présentée dans le chapitre 6.

Afin de comprendre le mécanisme du transfert de charge ainsi que l'évolution du courant de rupture, ce même groupe du NPL, en collaboration avec le Laboratoire National des champs Magnétiques Intenses (LNCMI), a mené une série de mesures à très fort champ magnétique. Pour cela, un échantillon de Hall d'une taille de $5 \times 22,5 \mu\text{m}^2$ [5] a été soumis à un champ magnétique allant jusqu'à 30 T. La densité de courant de rupture de l'effet Hall quantique maximale, $j_c = 43 \text{ Am}^{-1}$, a été trouvée à un champ magnétique de 23 T, visible sur les figures 4.12 a) et b). Le courant de rupture augmente de manière quasi linéaire jusqu'à 23 T. Le maximum de densité de courant étant censé apparaître lorsque le facteur de remplissage vaut exactement $\nu = 2$, on devrait déduire une densité de porteur $n_s = \nu e B / h = 1,1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Le calcul de densité à faible champ, via l'effet Hall classique, donnait en fait une densité de $n_s = 6,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Les auteurs ont conclu, là encore, à un transfert de charges assisté par le champ magnétique qui bloque le facteur de remplissage à 2 dans les systèmes graphène sur SiC. La figure 4.12 c), qui présente une modélisation, montre l'évolution de la densité électronique en fonction du champ magnétique (courbe

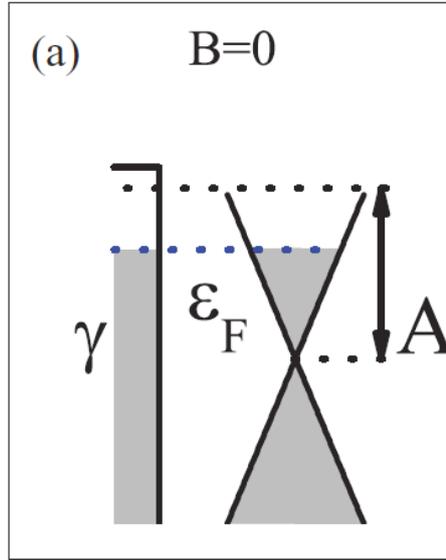


FIGURE 4.11 – Schéma de principe du transfert de charges du substrat de SiC vers le graphène sans champ magnétique. Figure adaptée de [55].

noire) induite par le transfert de charge de la ZLG vers le graphène.

Les travaux effectués sur la croissance de graphène obtenu par décomposition thermique du SiC permettent désormais de fabriquer de larges surfaces de graphène de bonne qualité, où la densité électronique peut être modulée selon les besoins.

Le LNE a également travaillé sur graphène obtenu par décomposition thermique de SiC sur la face silicium. Les liaisons pendantes inhérente à ce type de croissance, schématisées sur la figure 4.13 a), dopent fortement le graphène. Un moyen de diminuer le dopage dû au transfert de charge depuis la ZLG, est de découpler la couche d'interface du substrat par hydrogénation. L'hydrogénation à pression et température adéquates permet de briser les liaisons entre le carbone et le substrat et de combler les liaisons pendantes [117]. La couche d'interface devient du graphène "quasi free standing". L'idée du C2N était d'hydrogéner faiblement l'échantillon après croissance afin de ne pas détruire les liaisons carbone-SiC, seules les liaisons pendantes sont comblées (comme présenté sur la figure 4.13 a)) afin de diminuer le dopage électronique. L'hydrogénation est faite en plaçant le graphène sous 100% d'hydrogène à 820°C pendant 10 mn. Les figures 4.13 b) et c) permettent de comparer les courbes de magnéto-résistances avant hydrogénation (courbe b)) et après hydrogénation (courbe c)). On peut observer que l'hydrogénation a permis de réduire la densité électronique de $1,9 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ à $1,1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, augmentant également la mobilité de $2236 \text{ cm}^{-2}/\text{Vs}$ à $5450 \text{ cm}^{-2}/\text{Vs}$ à 1,6 K. Des mesures XPS confirment que les liaisons pendantes ont bien été comblées après hydrogénation. Des mesures de précision ont été réalisées à 0,3 K, l'exactitude de la résistance de Hall n'a pas été trouvée meilleure que 5×10^{-3} . Cette mauvaise quantification a été expliquée par de la dissipation sur l'un des bords de la barre de Hall. La résistance longitudinale sur un des bords a cependant été trouvée inférieure à 5 mΩ jusqu'à des courants élevés de 250 μA, tandis que sur l'autre bord, une résistance de 150 Ω est mesurée même pour de très faibles courant de 10 nA. Le C2N a donc produit du

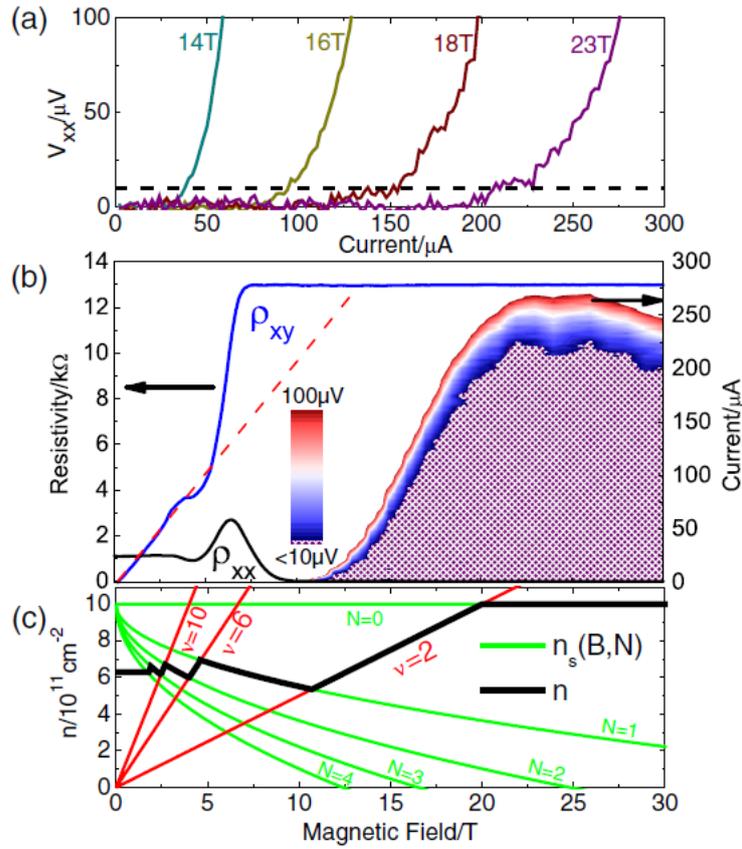


FIGURE 4.12 – Travaux du NPL sur un échantillon de Hall d’une surface de $5 \times 22,5 \mu\text{m}^2$ fabriqué à partir de graphène sur SiC. a) Tension longitudinale en fonction du courant électrique, où la tension $V_{xx} = 10 \mu\text{V}$ définit le courant de rupture. b) Courbe de magnéto-résistance combinée à la courbe d’évolution du courant de rupture maximal en fonction du champ magnétique. c) Evolution de la densité des porteurs en fonction du champ magnétique, en noir, déterminée par modélisation avec le modèle de transfert de charges [57]. Courbes extraites de [5].

graphène à fort potentiel pour la métrologie, dont le dopage peut être contrôlé. Il reste cependant à améliorer l’homogénéité de la croissance.

Le graphène par dépôt en phase vapeur sur métal

Le NIST a été le premier laboratoire de métrologie à travailler sur du graphène polycristallin produit par CVD sur cuivre dans un but métrologique. Un feuillet de graphène de 7mm^2 a été transféré sur un substrat de SiO_2/Si où la couche Si sert de grille [123]. Les mesures ont été faites dans une configuration de Van der Pauw. Un plateau de Hall a été observé par variation de la tension de grille. Des mesures effectuées à 1,7 K, 14 T et à 100 nA ont montré des résultats légèrement différents selon la nature des porteurs de charges. Pour des trous, la valeur de la résistance longitudinale R_{xx} n’était jamais inférieure à 200 Ω . La résistance de Hall, quand à elle était écartée de la valeur quantifiée $h/2e^2$ de 50 Ω , soit un écart relatif $\Delta R_H^G/R_H = 3 \times 10^{-3}$. Lorsque les porteurs étaient des électrons, $R_{xx} > 500 \Omega$ tandis

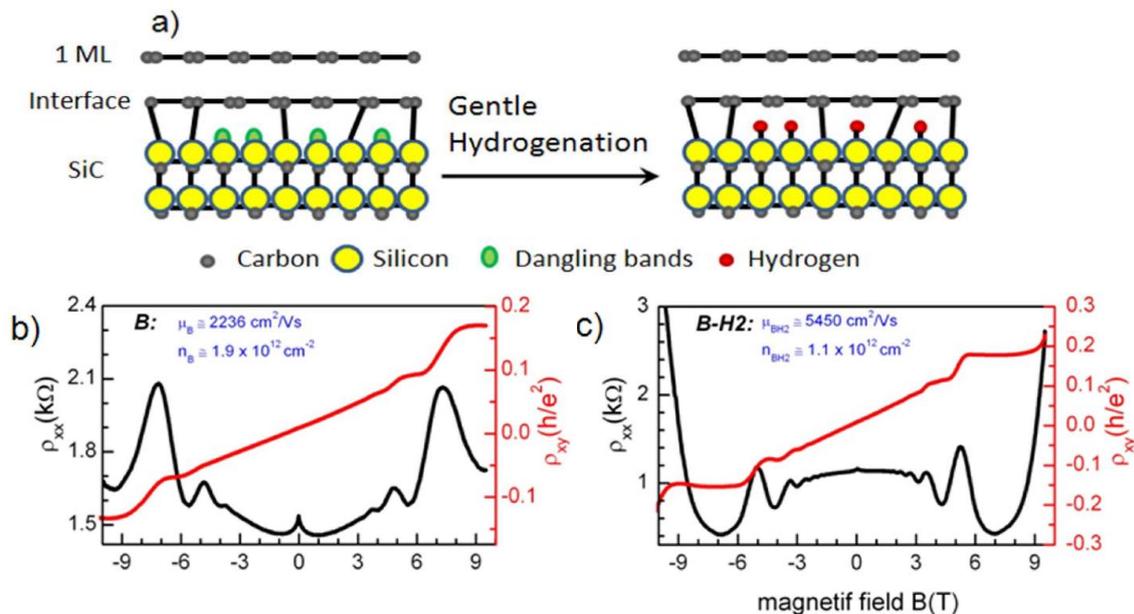


FIGURE 4.13 – Travaux C2N/LNE. a) Schéma du principe d'hydrogénation. b) Courbes de magnéto-résistance de l'échantillon de graphène avant hydrogénation. c) Courbes de magnéto-résistance de l'échantillon de graphène après hydrogénation. Courbes extraites de [105].

que l'écart de la résistance de Hall à la valeur quantifiée $h/2e^2$ atteignait 100Ω , soit $\Delta R_H^G/R_H = 8 \times 10^{-3}$ en valeur relative. Donc des écarts à la quantification de Hall très importants ont été observés qui n'étaient pas expliqués par les auteurs.

En 2014, le Laboratoire National de métrologie et d'Essais a également travaillé sur du graphène produit par CVD sur cuivre. Le graphène est poly-cristallin et la taille typique des grains est comprise entre 1 et $10 \mu\text{m}$ [80]. Le graphène a été transféré sur un substrat SiO_2/Si où le Si est utilisé comme grille. La taille de la barre de Hall était de $200 \times 400 \mu\text{m}^2$ (visible sur la figure 4.14 c)). Une image optique de l'échantillon de graphène après avoir été déposé sur le substrat SiO_2/Si est représentée sur la figure 4.14 a). Il est possible d'observer des zones plus foncées, qui correspondent à des multi-couches de graphène. Des lignes foncées sont révélatrices de plis du graphène et sont visibles sur l'images 4.14 a) mais également sur l'image AFM 4.14 b). Les techniques de mesures optiques et AFM n'ont évidemment pas permis de mettre en évidence les joints de grains. Les plateaux $\nu = \pm 2$ et ± 6 sont visibles sur les courbes de magnéto-résistance de la figure 4.14 d). Les mesures de R_{xx} et R_H ont été réalisées à 19 T et 0,3 K en variant la tension de grille V_g . Cependant les mesures ont montré une dissipation importante en régime d'effet Hall quantique, avec des valeurs de $R_{xx} = 150 \Omega$ à $1 \mu\text{A}$ sur le plateau $\nu = -2$, similaire à celles mesurées par le NIST. Les auteurs attribuent cette dissipation aux joints de grains ainsi qu'aux plis du graphène. Les lignes de défauts traversant l'échantillon court-circuiteraient les deux de bords de l'échantillon, permettant ainsi à des états faiblement localisés de créer des rétro-diffusions. La modélisation d'un type de joint de grain (défaut 5-8) est visible sur la figure 4.14 c). La figure 4.14 d) montre la circulation du courant le

long de ce type de défaut, confirmant que des états délocalisés peuvent s'étendre le long de lignes de défauts coupant l'échantillon de part en part. Cette étude a permis de montrer que pour la métrologie, il est nécessaire d'étudier du graphène mono-cristallin afin d'éliminer au moins l'impact des joints de grain [80].

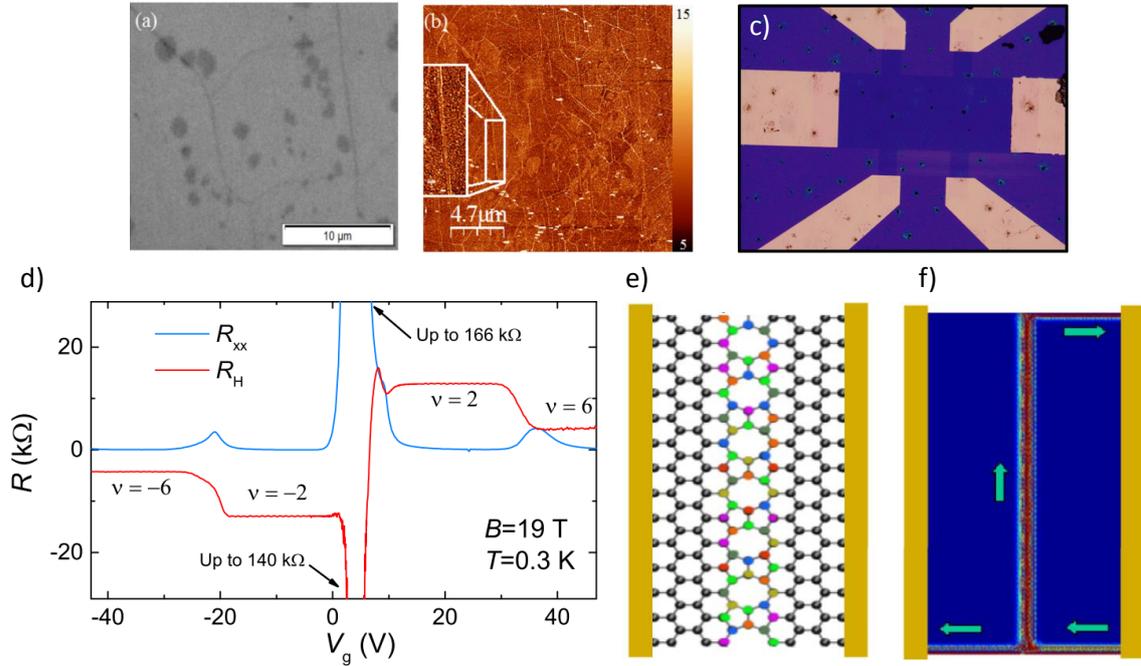


FIGURE 4.14 – Travaux LNE a) Image optique, b) Image AFM et c) Image optique de la barre de Hall de l'échantillon de graphène après avoir été déposé sur le substrat SiO_2/Si . d) Courbes de magnéto-résistance en fonction de V_g à 19 T et 0,3 K. e) Représentation schématique d'une ligne de défauts causée par un joint de grain. f) Distribution spatiale du courant dans l'échantillon. Une densité de courant finie existe le long d'une la ligne de défauts et traverse l'échantillon. Images extraites de [80]

Le dépôt en phase vapeur sur SiC

Début 2015, le LNE publie les premiers résultats concernant un échantillon fabriqué par CVD (propane/hydrogène) sur SiC. La taille de la barre de Hall est de $100 \times 420 \mu\text{m}^2$, figure 4.15 a) [81]. L'échantillon est couvert d'une bi-couche de ZEP520a et de PMMA mais il n'a subi aucune illumination ultra-violette afin de modifier la densité de porteurs. Des mesures de magnéto-résistance ont permis de déterminer une mobilité électronique de $3500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ et une densité électronique de $3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, figure 4.15 b). On peut également observer un très grand plateau de Hall qui commence aux alentours de 4 T et qui s'étend jusqu'à 19 T (valeur maximale du champ magnétique accessible). Ce très grand plateau a été bien décrit par le transfert de charge. Des mesures de résistance longitudinale et de Hall ont été faites sur une large gamme de champ magnétique. À partir de 10 T et jusqu'à 19 T, une résistance de Hall sans écart à la valeur quantifiée $h/2e^2$ est mesurée avec une incertitude relative de mesure inférieure à 1×10^{-9} à une température de 1,4 K

et pour un courant de mesure de $20 \mu\text{A}$, figure 4.15 b). Pour les mêmes conditions expérimentales, la résistance longitudinale est inférieure à $30 \mu\Omega$. La figure 4.15 c) présente la résistance longitudinale en échelle de couleur en fonction du courant et du champ magnétique. La ligne noire correspond à une résistance de $250 \mu\Omega$. En dessous d'un courant de $40 \mu\text{A}$, aucune dissipation importante n'est mesurée. Pour la première fois la résistance de Hall dans le graphène est quantifiée à 1×10^{-9} à dans des conditions expérimentales de fonctionnement similaires à celles d'un étalon GaAs/AlGaAs (10 T, 1,3 K et $60 \mu\text{A}$).

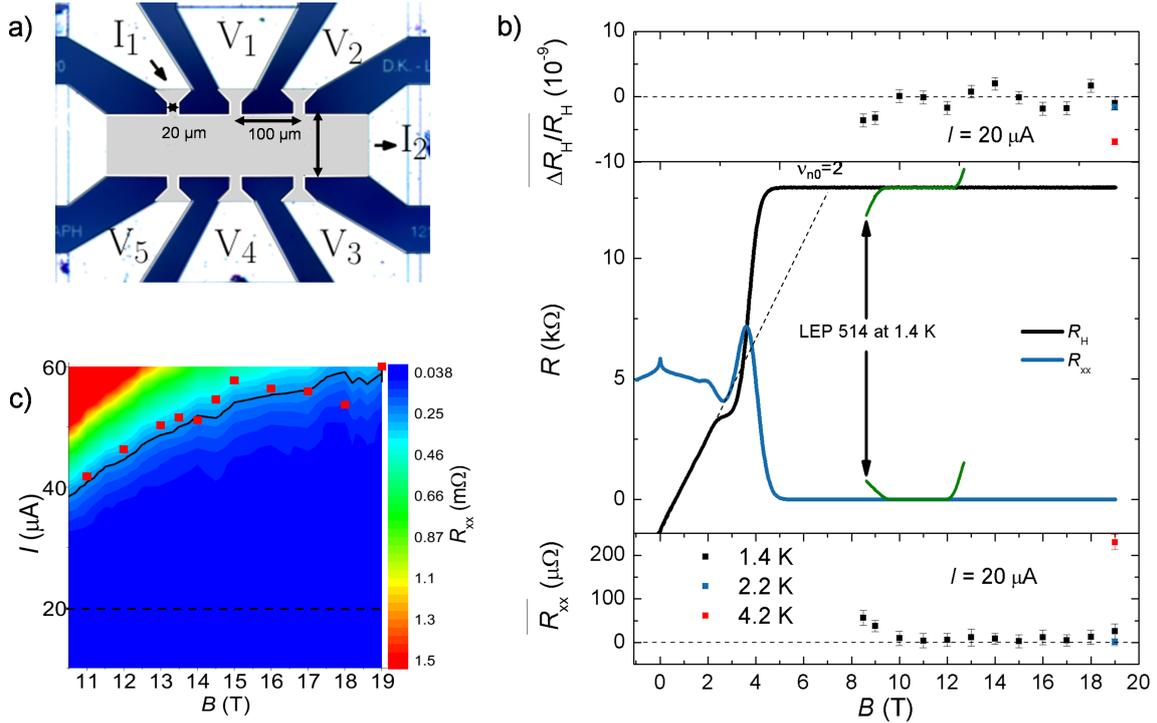


FIGURE 4.15 – Travaux LNE a) Barre de Hall de dimension $100 \times 420 \mu\text{m}$. b) En haut, écart de la valeur de la résistance de Hall par rapport à la valeur théorique en fonction du champ magnétique. Au milieu, courbe de magnéto-résistance pour l'échantillon de graphène et d'un étalon en GaAs/AlGaAs de type LEP514. En bas, mesure de la résistance longitudinale en fonction du champ magnétique pour un courant de $20 \mu\text{A}$. c) Mesure de la résistance longitudinale en fonction du champ magnétique et du courant. Courbes extraites de [81].

4.3 Conclusion

Les différentes technologies de croissance du graphène, ainsi que les principaux résultats métrologiques ont été passés en revue dans ce chapitre. Il apparaît que l'effet Hall quantique peut être très robuste dans le graphène, cependant la mise en œuvre d'un étalon en graphène n'est pas chose aisée. La taille des échantillons est cruciale, c'est pourquoi l'exfoliation n'est plus utilisée pour la métrologie de l'ohm. La croissance CVD sur cuivre peut être une piste sérieuse pour fabriquer du graphène de qualité, mais il faut s'intéresser aux mono-cristaux de grandes tailles que

l'on sait aujourd'hui produire [17, 73]. La décomposition thermique du SiC permet d'obtenir des échantillons de bonne qualité, c'est l'une des principales voies pour fabriquer du graphène pour des applications métrologiques. Au début de ma thèse, la croissance CVD sur SiC apparaissait comme une alternative prometteuse ayant déjà montrée de bons résultats. Ma thèse a débuté par l'étude d'un échantillon fabriqué par cette technique de croissance qui présente un très large plateau et une basse densité électronique. Cette étude est présentée au chapitre 6.

Chapitre 5

Le dispositif expérimental

La salle expérimentale du LNE a été spécialement construite pour la métrologie. Les murs sont totalement recouverts par une feuille de cuivre, visible sur la photo 5.2 a) qui sert de cage de Faraday connectée à la terre. La salle est blindée contre les signaux électromagnétiques aux fréquences comprises entre 10 kHz et 3 GHz. La température et l'hygrométrie de la salle sont régulées par un flux d'air laminaire respectivement à $20 \pm 0,2^\circ\text{C}$ et à $50 \pm 5\%$ d'humidité, afin d'éviter la dérive des différents appareils électroniques.

Une photographie d'une partie de la salle est visible sur la figure 5.1. Sur cette photographie, on peut retrouver différents éléments servant à réaliser des mesures de résistance dont un système cryo-magnétique ainsi que le Comparateur Cryogénique de Courant (CCC) qui seront décrits dans la suite de ce chapitre.

5.1 Les systèmes cryo-magnétiques

5.1.1 Les cryostats

Les conditions d'observation de l'effet Hall quantique requièrent que les échantillons soient plongés dans de fortes inductions magnétiques de plusieurs teslas et refroidis à très basse température, souvent en dessous de 4,2 K, la température de l'hélium liquide. Pour cela, la salle est équipée de deux systèmes cryo-magnétiques. Pour limiter les vibrations, chaque cryostat est suspendu sur une plaque en acier, elle-même installée sur une fosse bétonnée. La fosse bétonnée est mécaniquement découplée du reste du laboratoire et repose sur du sable. Le découplage est visible sur la photo 5.2 b).

Le premier système, visible sur la figure 5.3, est un cryostat contenant un aimant supraconducteur générant une induction magnétique de 14 T (à 4 K)/16 T (à 2,2 K), ainsi qu'un insert dans lequel se font face (figure 5.4 c)) les échantillons dans un faible volume d'hélium liquide. En diminuant la pression dans l'insert par pompage, on évapore les atomes d'hélium les plus chauds qui emportent, à la fois de l'énergie cinétique et l'énergie nécessaire à l'évaporation. La température du bain d'hélium descend ainsi aux alentours de 1,3 K : on appelle ce bain le pot à 1 K.

Le deuxième système, photographié sur la figure 5.4 a), est un cryostat à hélium 3 dont la température de base est 0,3 K. Le cryostat contient un aimant 19,5 T (à 4 K)/20,2 T (à 2,2 K). L'avantage de hélium 3 est qu'à température identique, sa

Boîtier à l'intérieur
duquel se font les
branchements

nano-voltmètres,
détections synchrones,
générateurs de tension,
source de courant,

Cryostat ^4He

Pont de comparaison
des résistances

Comparateur
Cryogénique de Courant
(CCC)

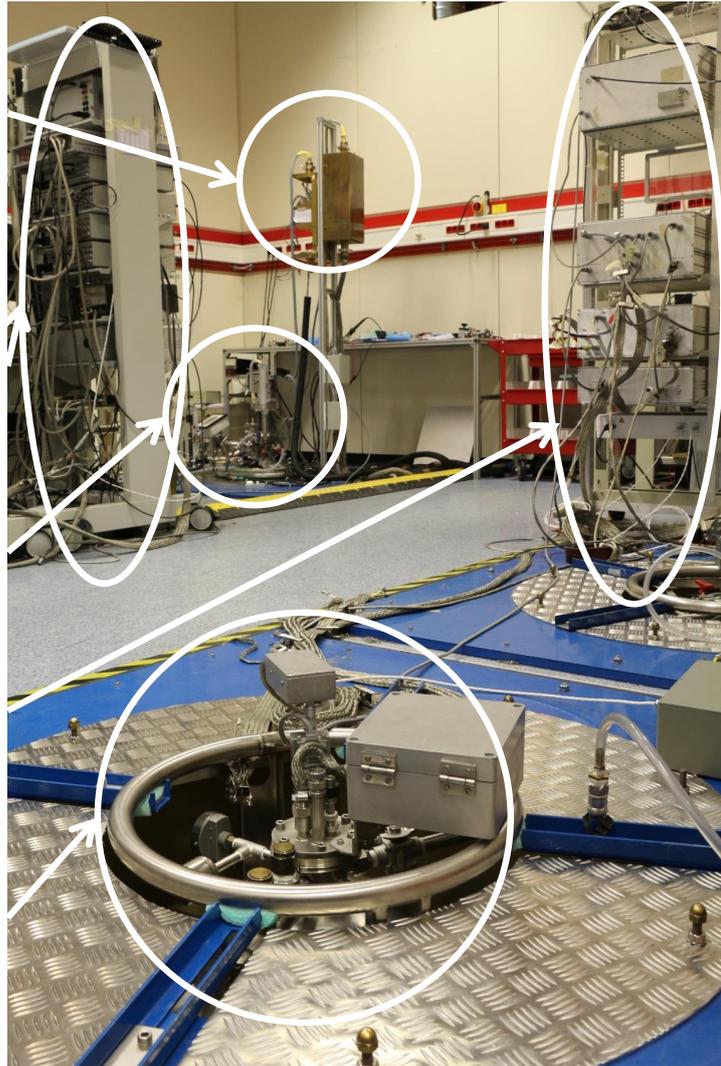


FIGURE 5.1 – Photographie de la salle d'expérience avec les différents éléments utilisés pour réaliser une mesure de résistance.

chaleur spécifique est bien plus importante que celle de l'hélium 4. L'isotope hélium 3 est bien plus cher que l'hélium 4 du fait de sa rareté. Pour limiter la quantité d'hélium 3 nécessaire au refroidissement, l'hélium 3 est recyclé. Ce cryostat est composé d'un pot à 1 K faiblement couplé thermiquement à une pompe à sorption. Cette dernière pompe l'hélium 3, ce qui permet de diminuer la pression résiduelle du gaz, provoquant ainsi la baisse de la température du liquide jusqu'à 0,3 K. La température de 0,3 K peut être maintenue pendant approximativement 12 heures.

5.1.2 Les cannes de mesure

Les deux cannes de mesure, pouvant être insérées dans les réfrigérateurs, sont équipées de deux porte-échantillons au format TO8. Ces deux supports sont disposés en bas de la canne, cela permet par exemple, d'avoir en même temps un échantillon de graphène ainsi qu'un étalon LEP514 (hétérostructure GaAs/AlGaAs). Les deux

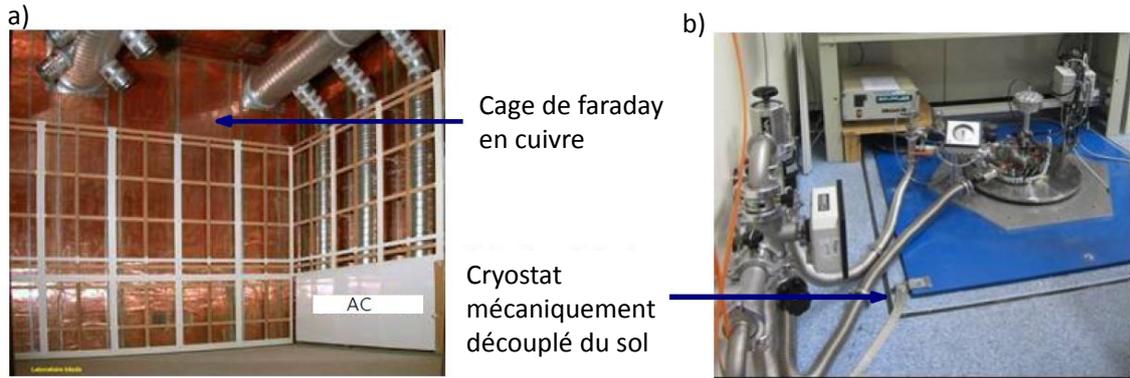


FIGURE 5.2 – a) Photographie de la salle lors de la construction. b) Photographie d'un cryostat dont la dalle sur laquelle il repose est mécaniquement décollée du sol du laboratoire.

échantillons se font face et ne sont séparés que de quelques millimètres. Ils sont ainsi dans un volume limité, homogène en température et champ magnétique. La partie basse d'une canne de mesure est visible sur les photographies des figures 5.4 b) et c). Sur la figure 5.4 b), un échantillon étalon de GaAs/AlGaAs est en train d'être installé, tandis que sur la photographie c), deux échantillons se font face en bas de la canne de mesure. Deux thermomètres de types CERNOX et RuO₂ ainsi qu'une résistance, contrôlés par un TRMC2, sont placés à l'intérieur du cylindre en laiton encapsulant les deux échantillons. La résistance sert de chauffage pour réguler la température entre 1,3 K et 70 K.

Pour le système cryo-magnétique 18/20 T, les deux porte-échantillons sont reliés aux connecteurs en haut de la canne par deux groupes de quatre câbles blindés, chacun par une tresse INOX (un groupe par porte-échantillon). La tresse INOX reliée à la terre sert de blindage et peut être utilisée comme garde pour limiter les fuites de courant pour certaines configuration de mesure. Chaque câble regroupe trois fils de cuivre de jauge AWG 34, d'une résistance d'environ 2Ω , isolés avec du polytétrafluoroéthylène (PTFE) et torsadés entre eux. La résistance électrique d'isolation entre les fils est de l'ordre de $100 T\Omega$. Le fait de torsader les câbles entre eux permet de limiter les forces électromotrices induites par les rayonnements électromagnétiques. Les câbles de mesure sont serrés sur un doigt froid, lui-même soudé sur une pièce de thermalisation en cuivre. La température de cette pièce est entre 2 et 3 K, lorsque le réfrigérateur est à 300 mK. La chaleur apportée par les câbles ($50 \mu W$) est très inférieure à la puissance de refroidissement du réfrigérateur hélium 3 à 300 mK ($400 \mu W$). Au niveau supérieur de la canne, les fils de mesure sont connectés sur des connecteurs Fischer à trois pinoches, isolés par du PTFE et rendus hermétiques par l'injection d'une résine époxy à haute isolation électrique. Ces connecteurs permettent d'une part, de ne pas perdre d'hélium 3 gazeux et de conserver le vide à l'intérieur de la canne cryogénique et d'autre part de réaliser une très bonne isolation entre les connecteurs et la masse ainsi qu'entre les pinoches elles-mêmes. La continuité électrique du câblage est conservée jusqu'au boîtier de branchement.

Pour le système cryo-magnétique 14/16 T, une canne cyogénique, un câblage et



FIGURE 5.3 – Photographie du système cryo-magnétique à hélium 4.

une connectique similaires ont été installés.

5.2 Les techniques de mesure métrologiques des résistances

5.2.1 Le Comparateur Cryogénique de Courant

Le Comparateur Cryogénique de Courant (CCC) est un appareil central en métrologie [26]. Le CCC est un transformateur "parfait" fonctionnant en régime continu. Le principe de fonctionnement repose sur le théorème d'Ampère et l'effet Meissner. Pour expliquer son principe de fonctionnement, on considère un tore supraconducteur traversé par deux fils dans lesquels circulent deux courants I_1 et I_2 , comme on peut le voir sur le schéma de la figure 5.5 a). Le théorème d'Ampère impose que la circulation de l'induction magnétique \vec{B} sur un contour fermé soit proportionnelle à la somme algébrique des courants traversant le contour :

$$\oint \vec{B} \cdot d\vec{l} = \mu_0(I_1 + I_2 - I) \quad (5.1)$$

où I est le courant d'écrantage supraconducteur et $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{V.s.A}^{-1}.\text{m}^{-1}$ est la perméabilité magnétique du vide. Ce théorème est imagé sur la figure 5.5 a). L'induction magnétique à l'intérieur d'un supraconducteur est nulle du fait de

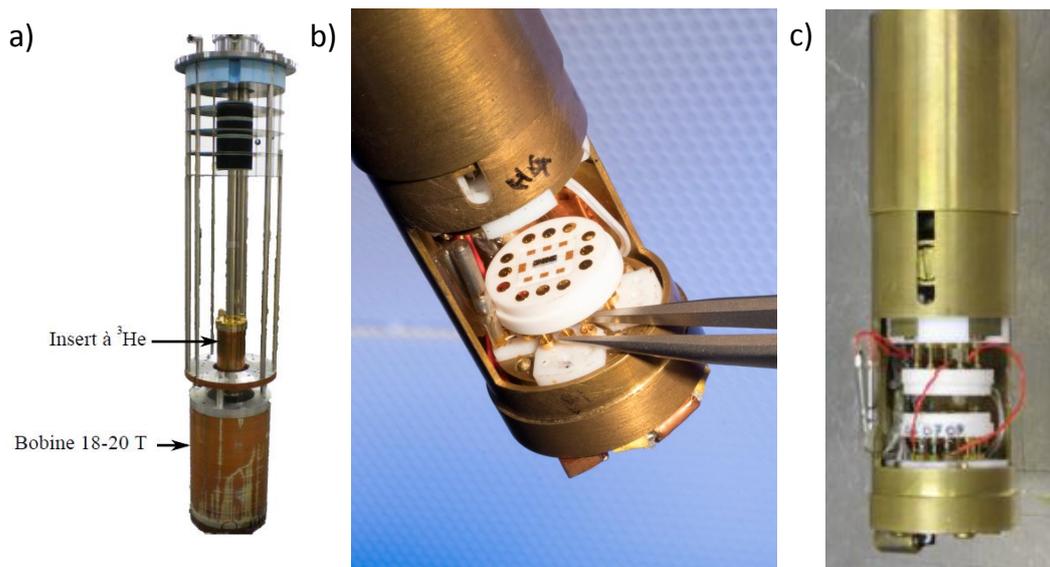


FIGURE 5.4 – a) Photo du dispositif hélium 3 avec la bobine magnétique 18/20 T. b) Photographie des porte-échantillons sur la canne cryogénique. Sur le porte-échantillon du bas, une barre de Hall étalon en GaAs/AlGaAs est en train d'être installée. c) Deux échantillons sont installés, typiquement un échantillon de graphène et un en GaAs/AlGaAs.

l'écrantage du champ magnétique par un courant supraconducteur I généré en réponse au champ magnétique. Le courant I généré par l'effet Meissner circule le long du tore supraconducteur et vaut donc :

$$I = I_1 + I_2 \quad (5.2)$$

Le CCC est composé de plusieurs enroulements supraconducteurs en NbTi, enroulés à l'intérieur d'un blindage supraconducteur de forme torique en plomb. Un schéma du CCC est présenté sur la figure 5.5 b) et une photographie d'un CCC est visible sur la figure 5.6 a). Le blindage en Pb se recouvre plusieurs fois sur lui-même, sans qu'il n'y ait de contact électrique entre les différentes couches de ce blindage. Cette géométrie en "serpent qui se mord la queue" oblige le courant d'écrantage à circuler le long d'un chemin fermé, de la surface intérieure vers la surface extérieure du tore, figure 5.5 b). Il peut aussi être détecté par une bobine de captation (pickup coil) de flux connectée à l'inductance d'entrée d'un SQUID.

Considérons des enroulements de nombres de tours N_1 et N_2 , traversés respectivement par des courants I_1 et I_2 . D'après le théorème d'Ampère, le courant supraconducteur circulant à la surface du blindage supraconducteur I_{CCC} est proportionnel au nombre d'ampère.tours, soit la somme des courants circulant dans les enroulements multipliés par leur nombre de tours :

$$I_{CCC} = N_1 I_1 - N_2 I_2 \quad (5.3)$$

On peut chercher à connaître la différence entre un courant de référence et un courant à étalonner. Pour cela, faisons circuler les courants I_1 et I_2 dans des directions

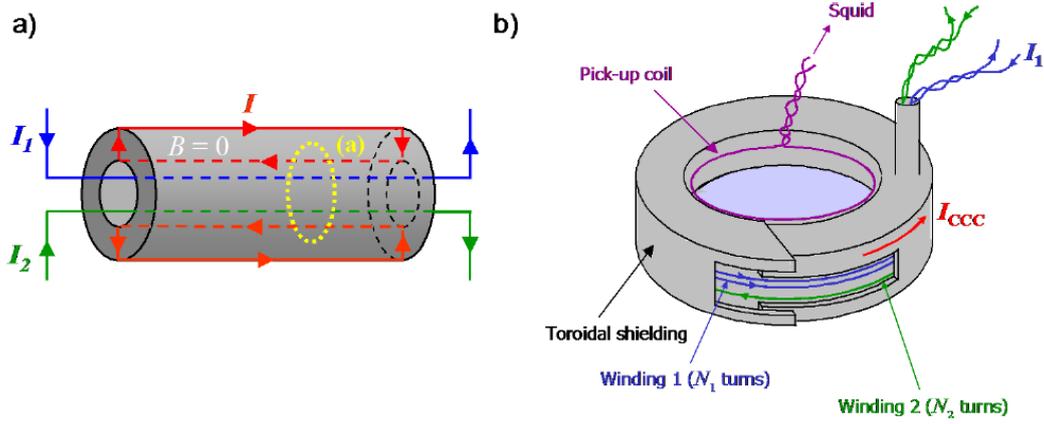


FIGURE 5.5 – a) Principe du théorème d’ampère dans un tore supraconducteur. b) Schéma d’un CCC comprenant deux fils dans lesquels circulent I_1 et I_2 . Le courant supraconducteur résultant est capté par une bobine conetée à un SQUID.

opposées. En choisissant des nombres de tours adéquats on a :

$$I_{CCC} = N_1 I_1 - N_2 I_2 \approx 0 \quad (5.4)$$

Il est possible d’asservir le rapport I_1/I_2 à partir du signal I_{CCC} pour maintenir de manière précise $I_{CCC} = 0$. L’équation 5.4 devient $N_1 I_1 = N_2 I_2$ et par conséquent $N_1/N_2 = I_2/I_1$. Le rapport des courants est égal au rapport des nombres de tours des enroulements. La sensibilité du CCC est définie par la valeur du courant S_{CCC} qui génère un quantum de flux magnétique $\phi_0 = h/2e$ dans la boucle du SQUID, soit :

$$S_{CCC} = \frac{\partial I_{CCC}}{\partial \phi_{SQUID}} \quad (5.5)$$

où ϕ_{SQUID} est le flux magnétique détecté par le SQUID.

Pour le CCC utilisé dans nos expériences, qui est équipé d’un SQUID DC (Quantum Design), la sensibilité est $S_{CCC} = 8 \mu\text{A.tour}/\phi_0$. La figure 5.7 présente la densité spectrale de bruit exprimée en $\mu\phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ du CCC utilisé dans notre expérience en fonction de la fréquence. Autour de 14 kHz, on peut voir quelque pics qui correspondent aux résonances propres au CCC. Ces pics proviennent du couplage entre les capacités des différentes spires et les inductances des enroulements du CCC. On peut voir que pour les fréquences inférieures à quelque kHz, jusqu’à environ 6 Hz, les pics présents sont principalement dûs à des vibrations mécaniques. À plus basse fréquence, le bruit semble être blanc jusqu’à 0,1 Hz, avec un niveau proche de $10 \mu\phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$, supérieur au niveau de bruit du SQUID qui est de $3 \mu\phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$. En prenant en compte le gain du CCC qui est de $8 \mu\text{A.tour}/\phi_0$, on obtient la sensibilité en courant du CCC qui est de $80 \text{ pA} \times \text{tour}/\sqrt{\text{Hz}}$. En dessous de 0,1 Hz, le bruit en $1/f$ du SQUID devient dominant. Pour 2000 tours, la sensibilité en courant est donc $S_{CCC}^{2000 \text{ tours}} = 4 \text{ nA}/\phi_0$ et la résolution est $40 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$ avec le SQUID Quantum Design. Pour limiter les effets des champs magnétiques extérieurs, le CCC est positionné à l’intérieur de plusieurs blindages magnétiques : deux blindages en plomb,

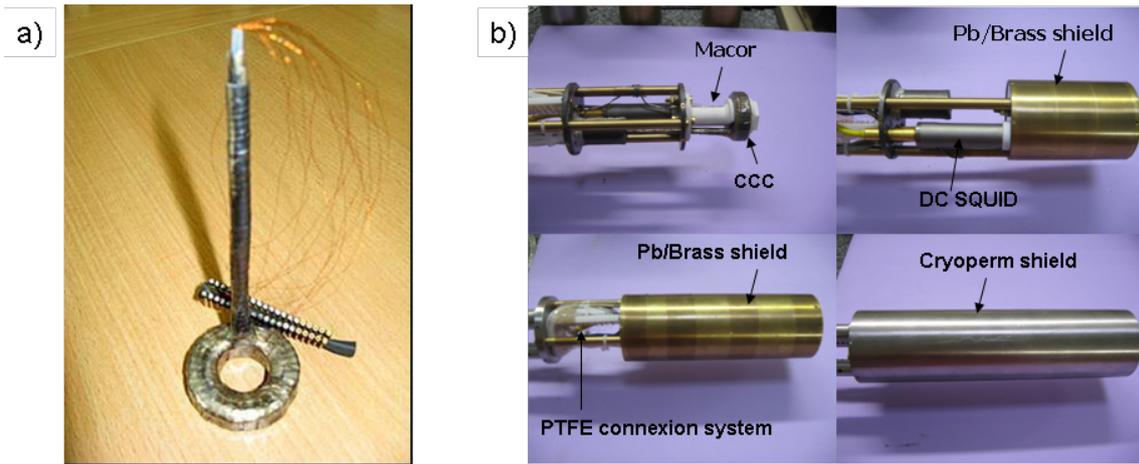


FIGURE 5.6 – a) Photographie d'un CCC. b) Photographie du CCC ainsi que des différents blindages magnétiques, présents sur la canne cryogénique.

eux-mêmes recouverts par un blindage CRYOPERM, les différents blindages sont visibles sur la figure 5.6 b).

L'exactitude du CCC est directement liée à la qualité du blindage magnétique toroïdal. Les fuites entraînant des erreurs, peuvent être apportées par la longueur finie du blindage ainsi que la cheminée qui amène les fils dans le blindage. Pour mesurer expérimentalement l'exactitude du CCC, un fort courant (typiquement $I = 100$ mA) est envoyé dans des enroulements de même nombre de tours N mais connectés en opposition. Le désaccord en ampère.tours du CCC donne lieu à un flux $\delta\phi$ non nul, mesuré par le SQUID de détection. Ainsi l'erreur relative sur le nombre de tours est ensuite donné $\delta\phi S_{CCC} = NI$. Il a été calculé [121] que le blindage doit se recouvrir sur une longueur équivalente à presque 3 tours pour que les fuites de flux magnétique soient suffisamment faibles pour atteindre une exactitude de $\approx 10^{-10}$, en valeur relative sur la mesure des rapports du courant. Le blindage du CCC utilisé a une longueur équivalente de 2 tours $3/4$ et les mesures d'opposition donnent des erreurs relatives des enroulements du CCC de quelques 10^{-11} .

Le CCC est un instrument extrêmement précis, exact et versatile. Il est utilisé pour les mesures de résistance longitudinale, transverse ainsi que pour l'amplification et la génération de petits courants.

5.2.2 La mesure de la résistance longitudinale

En régime d'effet Hall quantique, la résistance longitudinale et la résistance transverse sont des grandeurs importantes liées entre elles. La mesure de l'une donne des informations sur l'autre. La mesure précise de la résistance longitudinale est plus facile à mettre en œuvre et fournit de précieuses informations quand à l'homogénéité de l'échantillon, au comportement de la résistance de Hall ou bien à son niveau de quantification. La mesure de la résistance longitudinale des barres de Hall se fait par une mesure 4 fils. Le schéma de principe de la mesure est représenté sur la figure 5.8. Deux fils injectent le courant (noirs sur la figure), tandis que les deux autres mesurent la chute de tension longitudinale. Cette mesure peut se faire en régime

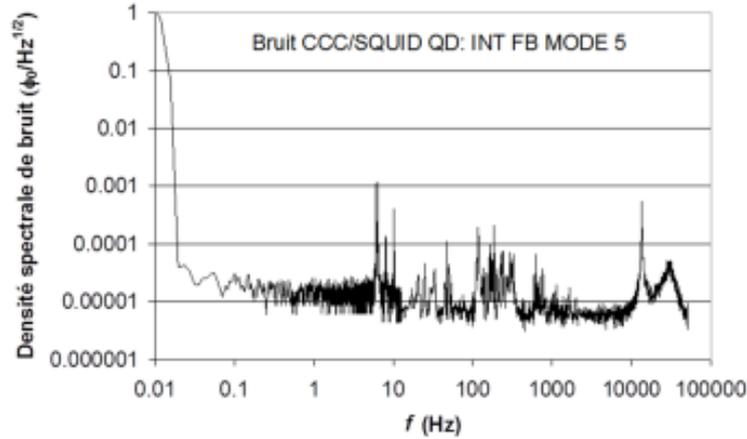


FIGURE 5.7 – Spectre de bruit du CCC en fonction de la fréquence.

de courant continu DC (fils oranges) ou de courant alternatif AC (fils bleus). Dans les deux cas, une source de courant fabriquée au laboratoire est utilisée. C'est une source bas bruit avec une haute isolation électrique alimentée par des batteries. Les calibres de courant sont compris entre $0,2 \mu\text{A}/\text{V}$ et $20 \text{ mA}/\text{V}$. Elle est pilotée par une source de tension externe, un générateur de tension Keithley 263 pour le régime continu, ou une détection synchrone Signal recovery 7265 fonctionnant à une fréquence faible (2 Hz) pour le régime alternatif.

Un moyen de mesurer la chute de tension V_{xx} aux bornes de la barre de Hall est de connecter un nanovoltmètre de précision de type EMN11 (visible sur la figure 5.8) ou EMN31, dont la sortie est branchée sur un HP3458A qui permet de communiquer avec un ordinateur pour enregistrer le signal en tension.

Il est possible de remplacer le voltmètre par un Comparateur Cryogénique de Courant (CCC) en n'utilisant qu'un seul enroulement de nombre de tours N_1 , typiquement 2065. Ce branchement permet de réaliser les mesures dans les régimes de courant DC et AC. Toute différence de potentiel V_{xx} entre les deux contacts de tension crée un courant i qui circule dans l'enroulement du CCC. Puisque toute résistance 2 fils est égale à R_H en régime d'effet Hall quantique, le courant i est égal à V_{xx}/R_H . Le courant i détecté est converti en un signal de tension par l'électronique du SQUID. Le signal est ensuite enregistré par un HP3458A (pour le régime continu) ou par la détection synchrone (pour le régime alternatif) qui sont tous deux connectés à un ordinateur.

En régime d'effet Hall quantique, la résistance mesurée par le CCC vaut :

$$R_{xx} = \frac{i}{I} R_H \quad (5.6)$$

où I est le courant principal circulant dans la barre de Hall. Pour un courant de $50 \mu\text{A}$, un nombre de tours $N_1 = 2065$, une sensibilité du CCC de $80 \text{ pA}/\text{tours}/\text{Hz}^{-1}$ on obtient une résolution r , sur le plateau $\nu = 2$ en régime d'effet Hall quantique :

$$r \approx \frac{80 \times 10^{-12}}{50 \times 10^{-6}} \times \frac{12906}{2065} \approx 10 \mu\Omega/\sqrt{\text{Hz}} \quad (5.7)$$

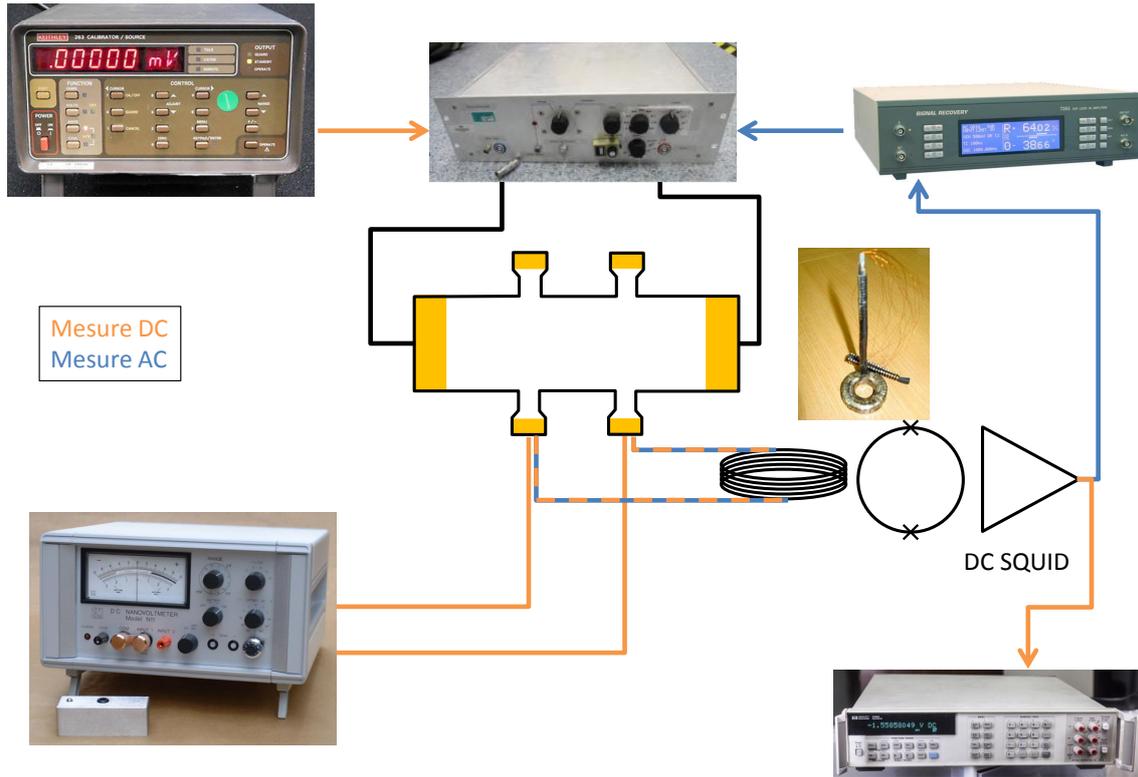


FIGURE 5.8 – Schéma de mesure de la résistance longitudinale.

La résolution en résistance est plus faible d'un ordre de grandeur que celle obtenue avec un nanovoltmètre de type EMN11 $\approx 140 \mu\Omega/\sqrt{\text{Hz}}$.

Le système de mesure en courant continu est utilisé pour mesurer des résistances longitudinales très faibles, de l'ordre du micro-ohm. Le temps de mesure est long, de l'ordre de 10 minutes. À contrario, la détection en régime de courant alternatif (2 Hz) permet des mesures plus rapides mais moins précises qui sont utiles, typiquement pendant des variations de champ magnétique (typiquement $6 \text{ mT}\cdot\text{s}^{-1}$) ou de température ($20 \text{ mK}\cdot\text{s}^{-1}$).

5.2.3 La mesure de la résistance de Hall

La figure 5.9 a) présente le protocole de comparaison des résistances de Hall. Pour nos travaux, la résistance de Hall du graphène est la résistance dont on souhaite connaître la valeur par rapport à celle d'une résistance étalon en GaAs/AlGaAs.

Comme on peut le voir sur la figure, une mesure du rapport des résistances $r_{\text{GaAs}}^{1-3} = R_{100}/R_{\text{H-GaAs}}$, entre une résistance étalon $R_{100} = 100 \Omega$ et la résistance de Hall de l'étalon en GaAs/AlGaAs $R_{\text{H-GaAs}}$ est réalisée afin d'étalonner la résistance R_{100} (en principe par rapport à $R_K/2$). Cette mesure est réalisée avant et après la mesure du rapport $r_{\text{Graph}}^2 = R_{100}/R_{\text{H-Graph}}$ entre la résistance R_{100} et la résistance de Hall du graphène $R_{\text{H-Graph}}$. Cette mesure "aller-retour" permet de soustraire la dérive temporelle de la résistance R_{100} pourtant très faible (7×10^{-11} /jour). L'écart

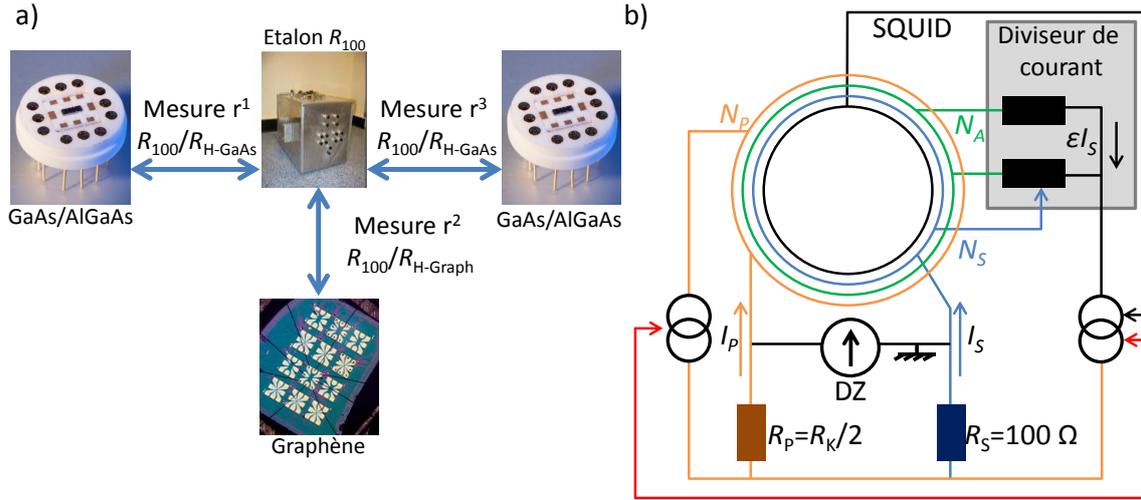


FIGURE 5.9 – a) Représentation schématique du protocole de mesure de résistance de Hall du graphène. b) Schéma de fonctionnement du pont de comparaison du LNE.

relatif entre la résistance de Hall du graphène et du GaAs/AlGaAs est donné par :

$$\Delta R_{H\text{-Graph}} = \frac{(R_{H\text{-Graph}} - R_{H\text{-GaAs}})}{R_{H\text{-GaAs}}} = \frac{(r_{\text{GaAs}}^1 + r_{\text{GaAs}}^3)/2 - r_{\text{Graph}}^2}{r_{\text{GaAs}}} \quad (5.8)$$

L'incertitude typique obtenue pour une mesure de $\Delta R_{H\text{-Graph}}$ est de 3×10^{-10} , pour un courant de $50 \mu\text{A}$ et un temps de mesure de total de 3h.

Le rapport r des résistances est mesuré en utilisant un pont de comparaison de résistances, dont le schéma de principe est représenté figure 5.9 b). Deux sources de courant alimentent les deux résistances R_P et R_S avec des courants I_P et I_S . R_P est la résistance de Hall, tandis que R_S est une résistance étalon de 100Ω . Le rapport des courants envoyés est pré-ajusté, de sorte que la tension aux bornes du détecteur de zéro représente moins de 10^{-5} de la tension aux bornes des étalons. Les courants I_P et I_S circulent dans des enroulements du CCC respectivement de N_P et N_S tours. Les enroulements utilisés sont $N_P = 2065$ et $N_S = 16$, de sorte que $N_P/N_S = 2065/16 = 129,0625$ soit proche de $(R_K/2)/R_{100\Omega} = 129,0640$. Le rapport des courants étant proche du rapport des enroulements, le courant I_{CCC} est très faible et peut être détecté par le SQUID. Le rapport de courant I_S/I_P est asservi pas le CCC de manière à ce que $I_{CCC} = 0$. Un enroulement supplémentaire N_A est utilisé pour y faire circuler un faible courant $I_A = \epsilon I_S$, où ϵ est une fraction du courant I_S prélevée par un diviseur de courant. ϵ est choisi de telle sorte que le détecteur de zéro (nanovoltmètre de type EMN11) mesure une tension nulle. Dans ces conditions on obtient les deux équations :

$$R_P I_P = R_S I_S \quad (5.9)$$

et

$$N_P I_P = N_S I_S + \epsilon N_A I_S \quad (5.10)$$

ce qui mène à :

$$\frac{R_s}{R_p} = \frac{N_s}{N_p} \left(1 + \epsilon \frac{N_a}{N_s} \right) \quad (5.11)$$

Cette équation permet de connaître le rapport des résistances en fonction uniquement du rapport des enroulements et de la fraction ϵ qui est étalonnée. On choisit d'utiliser des fractions du diviseur de courant légèrement supérieures et inférieures de manière à encadrer la fraction théorique qui annule exactement la tension. Les deux fractions utilisées, ϵ_+ et ϵ_- donnent lieu à deux tensions $V_{\epsilon+}$ et $V_{\epsilon-}$, mesurées par le détecteur de zéro. La fraction à l'équilibre ϵ est alors calculée grâce aux deux équations 5.9 et 5.10 :

$$\epsilon = \epsilon_- + (\epsilon_+ - \epsilon_-) \frac{|V_{\epsilon-}|}{|V_{\epsilon-}| + |V_{\epsilon+}|} \quad (5.12)$$

Les valeurs des fractions doivent être prises de part et d'autre de la valeur à l'équilibre, tout en restant dans de faibles valeurs pour que le détecteur de zéro fonctionne dans un régime linéaire et avec un maximum de rejet de mode commun. Le mode opératoire pour calibrer une résistance est le suivant :

- On commence par déterminer approximativement la fraction d'équilibre ϵ , on choisit alors les deux fractions ϵ_+ et ϵ_- , une supérieure et une inférieure à ϵ .
- On sélectionne la fraction inférieure ϵ_- , on injecte un courant I_p^+ dans la résistance primaire et un courant I_s^+ dans la résistance secondaire. On attend quelques secondes, typiquement 10 secondes selon le filtre du détecteur de zéro utilisé, le temps que les tensions se stabilisent. On mesure alors la tension $V_{\epsilon-}^+$. La mesure dure environ 25 secondes.
- On inverse ensuite la polarité des courants. I_p^- et I_s^- sont envoyés dans leur résistance respective, on attend de nouveau quelques secondes que le système se stabilise puis on mesure $V_{\epsilon-}^-$. Cette alternance de polarité de courant est répétée plusieurs fois selon l'incertitude de mesure à atteindre. Les alternances de la polarité du courant permettent de soustraire les offsets.
- Après que la mesure pour la première fraction est faite on passe à la seconde en répétant le même processus. On injecte I_p^+ et I_s^+ et on mesure la tension $V_{\epsilon+}^+$ puis I_p^- et I_s^- pour obtenir la tension $V_{\epsilon+}^-$ et on répète cette alternance de courant.

Le schéma du protocole de mesure est montré figure 5.10 a). La quantité $V_{\epsilon+}$ est la moyenne de plusieurs groupe de mesure. Un groupe de mesure est représenté en trait plein sur la figure 5.10 a). Pour un groupe, la tension $V_{\epsilon+}$ est calculée de la façon suivante :

$$V_{\epsilon+} = \frac{(V_{1\epsilon+}^+ + V_{2\epsilon+}^+) - (V_{1\epsilon+}^- + V_{2\epsilon+}^-)}{2} \quad (5.13)$$

Les tensions mesurées pour chaque groupe sont ensuite moyennées. $V_{\epsilon-}$ est déterminée de manière similaire. Si on prend le niveau de bruit donné par chacun des appareils du circuit d'étalonnage, on peut calculer le bruit total en tension lors d'un étalonnage. Le tableau suivant décrit les principales contributions au budget des incertitudes de type A lors d'un étalonnage :

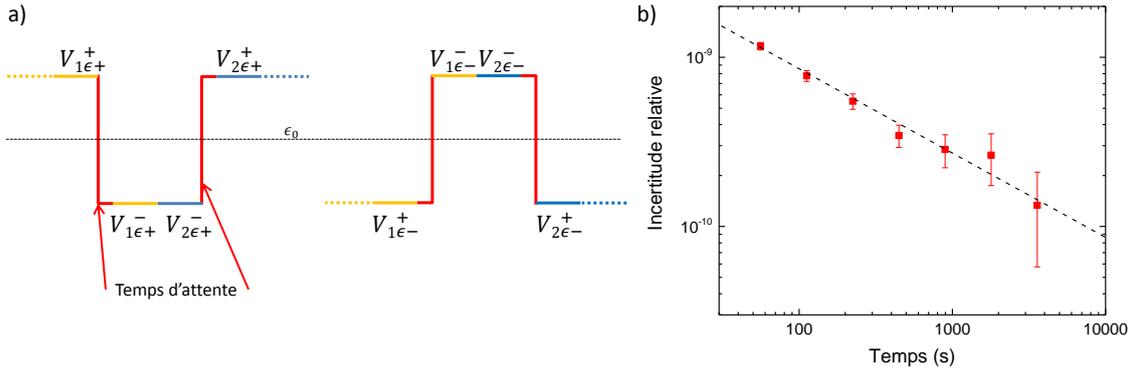


FIGURE 5.10 – a) Principe de calibration d’une résistance. La tension nulle obtenue pour la fraction à l’équilibre ϵ_0 est représentée par le trait tireté gris. La valeur de la tension pour deux fractions (ϵ_+ à gauche et ϵ_- à droite) symétriques autour de ϵ_0 et en fonction de la polarité du courant est représentée. b) Ecart-type d’Allan en rouge, en noire une courbe en $t^{-1/2}$. L’écart-type d’Allan est linéaire en $t^{-1/2}$ ce qui implique que le bruit est blanc pour un temps de mesure allant jusqu’à environ 60 minutes, soit l’équivalent de 9 groupes de mesure.

Source du bruit	Niveau de bruit nV/ $\sqrt{\text{Hz}}$
SQUID DC	0,5
Détecteur de zéro EMN11	7
Bruit Johnson-Nyquist ($\sqrt{4k_B T R}$)	≈ 1
Bruit total	7,1

Le niveau de bruit en tension pour la mesure du rapport $100 \Omega / (R_K/2)$ avec un courant de $50 \mu\text{A}$ circulant dans $R_K/2$, des enroulements $N_p = 2065$, $N_s = 16$ et $N_A = 16$ est de $7,1 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$. Le bilan d’incertitude de type A est dominé par le bruit du détecteur de zéro.

Le bruit de l’expérience, en conditions réelles, est estimé par l’écart-type d’Allan. Cette quantité évolue en τ^α , où τ est le temps de l’expérience et α , un exposant qui dépend de la nature du bruit. Il est donc possible de différencier les types de bruits en analysant l’évolution de l’écart-type avec le temps τ . Par exemple, en présence de bruits blancs, l’écart-type d’Allan évolue comme $\tau^{-1/2}$. On considère un temps total d’expérience $T = M\tau_0$ où M est le nombre total de mesures et τ_0 est le temps entre deux mesures successives. On définit \bar{q}_i comme étant la i ème moyenne d’une mesure calculée sur un temps $\tau = m\tau_0$ ou m peut aller jusqu’à $M/2$. La variance d’Allan s’écrit :

$$\sigma_q^2(\tau = m\tau_0) = \frac{1}{2(M-1)} \sum_{i=1}^{M-1} (\bar{q}_{i+1} - \bar{q}_i)^2 \quad (5.14)$$

Pour les mesures longues, la variance d’Allan totale assure une plus grande confiance, c’est donc cette forme qui est utilisée dans la suite. Elle s’écrit :

$$\sigma_q^2(\tau = m\tau_0) = \frac{1}{2(M-1)} \sum_{i=1}^{M-1} (\bar{q}_{i+j+1}^* - \bar{q}_{i+j}^*)^2 \quad (5.15)$$

où M mesures sont réalisées à $\tau = \tau_0$. Le vecteur comprenant les mesures est symétrisé de manière à fabriquer un vecteur virtuel \bar{q}^* . Au centre du vecteur \bar{q}^* , on retrouve les mesures originales, $\bar{q}_i^* = \bar{q}_i$, lorsque $1 \leq i \leq M$. Les mesures symétrisées apparaissent de part et d'autre des mesures initiales, $\bar{q}_{1-j}^* = \bar{q}_j$ et $\bar{q}_{M+j}^* = \bar{q}_{M+1-j}$, lorsque $1 \leq j \leq M-1$. On peut noter que la durée totale sur laquelle l'analyse peut être faite équivaut à la moitié du temps de mesure total.

La figure 5.10 b), présente l'écart-type d'Allan de la mesure en tension (exprimé en valeur relative de résistance). L'évolution en $t^{-1/2}$ de l'écart-type d'Allan prouve que le bruit est blanc et que l'écart-type sur la valeur moyenne est un bon estimateur de l'incertitude de type A de la mesure. Par exemple, avec un courant typique de $50 \mu\text{A}$, l'incertitude relative de type A vaut 2×10^{-10} sur la mesure du rapport de résistances $100 \Omega/R_{K/2}$, pour un temps de mesure de 38 minutes. L'écart type d'Allan a également permis de déterminer qu'il était préférable de faire plusieurs alternances courtes plutôt qu'une seule mesure plus longue.

Dans la suite, ces différentes techniques de mesures seront utilisées afin de déterminer précisément la valeur de résistance de Hall et la résistance longitudinale.

Chapitre 6

Le graphène CVD sur SiC comme étalon de résistance électrique

Avant le début de ma thèse, les résultats obtenus avec l'échantillon 12159-3-1 ont permis de montrer que le graphène pouvait être utilisé pour réaliser l'étalon de résistance électrique à effet Hall quantique dans les mêmes conditions que les hétérostructures en GaAs/AlGaAs. Comme nous l'avons présenté précédemment dans le chapitre 5, la résistance de Hall quantifiée a pu être mesurée sans écart à la valeur théorique avec une incertitude de 1×10^{-9} en valeur relative à 1,3 K, 10 T et $50 \mu\text{A}$ [81]. Sur la base de ces résultats très encourageants, nous avons continué à étudier des barres de Hall en graphène produites par la même technique.

6.1 La croissance CVD de graphène sur SiC

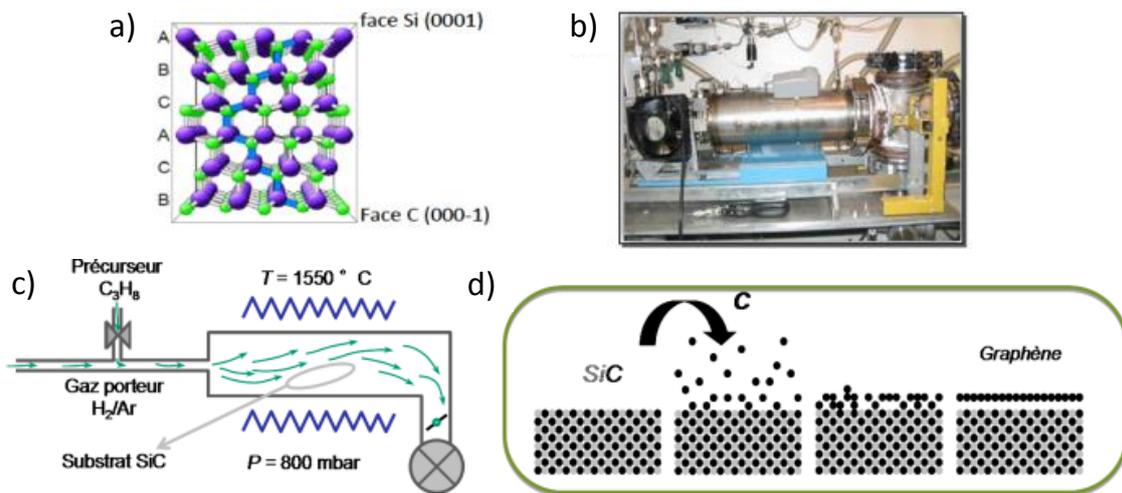


FIGURE 6.1 – a) Structure cristallographique du substrat 6H-SiC utilisé. b) Photographie du réacteur. c) Représentation schématique du protocole de croissance CVD sur substrat de SiC. d) Schéma des étapes de la formation de graphène sur la surface du substrat par la technique utilisée.

Le graphène que j'ai étudié pendant ma thèse a été fabriqué au Centre de Recherche sur l'Hétéro-Epitaxie et ses Applications (CRHEA) par l'équipe d'A. Mi-

chon. La croissance du graphène a été réalisée par un dépôt chimique en phase vapeur (CVD) d'un mélange gazeux de propane/hydrogène sur la face silicium d'un substrat 6H-SiC semi-isolant de carbure de silicium (SiC) (figure 6.1 a)). La croissance se fait à l'intérieur d'un réacteur CVD horizontal dont une photographie et un schéma sont présentés sur les figures 6.1 b) et c). Un mélange de gaz hydrogène/argon circule à une pression de 800 mbar et à une température proche de 1500°C. Lorsque le gaz de propane est ajouté, la croissance du graphène commence (schéma de la figure 6.1 d)) et dure quelques minutes [91]. Il a été montré que les conditions de croissance de cette méthode hybride, permettent de moduler les propriétés structurales et électroniques du graphène produit [53]. La concentration en hydrogène et la température sont deux des principaux paramètres : une faible concentration en hydrogène (typiquement 20%) et une haute température entraînent une croissance du graphène sur une couche d'interface (ZLG) $6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3} - R30^\circ$ et présente un dopage intrinsèque n (électrons). À l'inverse, une haute concentration en hydrogène et une température plus basse amènent à l'absence de la ZLG et le graphène est dopé p (trous). Plusieurs plaquettes ont été produites avec une faible concentration en hydrogène et à haute température, à partir de substrats 6H-SiC de Tank.Blue, ayant un angle de découpe hors axe (cut-off) de 0,16%. Les paramètres de croissance propres à chacune des plaquettes sont détaillés dans le tableau 6.1.

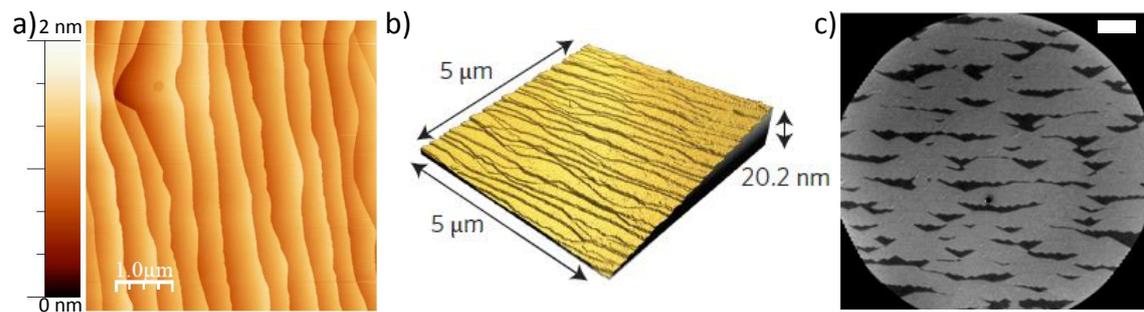


FIGURE 6.2 – Image de la topographie de la surface par AFM a) et reconstruction de la surface 3D b) de graphène après la croissance sur le substrat de SiC. Les marches atomiques du substrat de SiC sur lesquelles le graphène est déposé sont visibles. c) Image LEEM (Low Eletron Energy Microscopy). Les taches sombres peuvent être associées à des bi-couches de graphène. Le trait blanc représente une longueur de 1 μm .

Des images obtenues par microscopie à force atomique (AFM) sont présentées sur les figures 6.2 a) et b). Le graphène recouvre la totalité du substrat de SiC. Les marches atomiques du substrat de SiC sont également mises en évidence. Les marches ont une largeur typique de 300 nm et une hauteur de 0,75 nm. L'image de la figure 6.2 c), obtenue par microscopie à électrons de faible énergie (LEEM Low Energy Electron Microscopy), démontre que le substrat est majoritairement couvert par une mono-couche de graphène. Les taches sombres correspondent à des zones de bi-couches de graphène, couvrant un pourcentage non négligeable de la surface de la couche de graphène (entre 10 et 15 %). Les zones oblongues de bi-couches sont majoritairement alignées avec les marches du substrat, ce qui suggère que la croissance de la bi-couche démarre le long des marches, comme attendu. La longueur typique d'une zone de bi-couche ne dépasse pas quelques micro-mètres et est bien

inférieure à la taille de la barre de Hall ensuite fabriqué. Leur largeur ne dépasse pas celle d'une terrasse atomique de SiC. Les zones de bi-couches sont séparées les unes des autres

L'image de diffraction LEED (Low-energy electron diffraction) de la figure 6.3 a), démontre l'existence de la couche d'interface (ZLG) $6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3} - R30^\circ$, qui se trouve à l'interface entre le graphène et le substrat SiC (schématisé sur la figure 6.3 b)). La mesure ARPES (Angle-resolved photoemission spectroscopy), présentée sur la figure 6.3 c), confirme la présence des bandes électroniques caractéristiques de la mono-couche de graphène ainsi que de la bi-couche. Elle indique également un dopage en électron initial important, voisin de 10^{13} cm^{-2} , que l'on peut expliquer par un transfert de charges depuis la ZLG vers le graphène. Le transfert de charges peut avoir lieu car certains atomes de silicium ne sont pas liés à la ZLG (seul 1/3 des atomes de carbone de la ZLG sont liés au substrat) et laissent des liaisons pendantes (en orange sur la figure 6.3 b)).

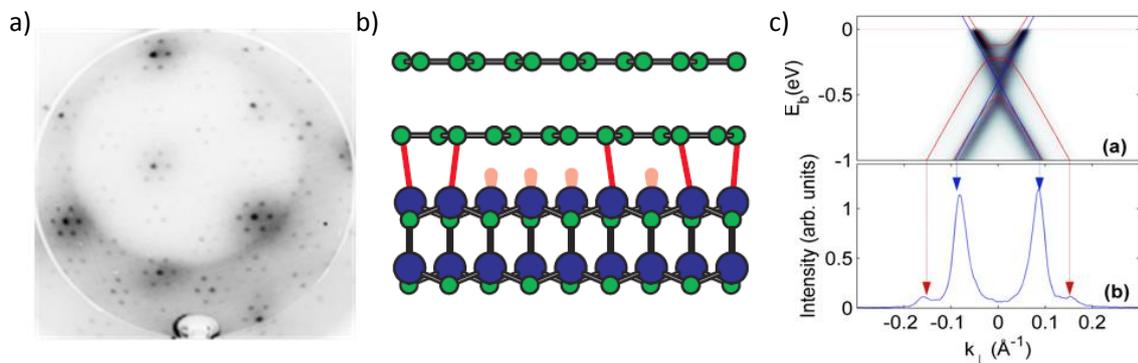


FIGURE 6.3 – a) Image LEED (Low Electron Energy Diffraction) montrant la présence d'une ZLG $6\sqrt{3} \times 6\sqrt{3} - R30^\circ$. b) Schéma de la couche de graphène qui repose sur la ZLG elle-même liée au substrat SiC par quelques liaisons. Les liaisons pendantes sont représentées en orange. Image extraite de [117]. c) Image ARPES (Angle-Resolved Photo-Emission Spectroscopy) mettant en évidence le cône de Dirac d'une mono-couche ainsi que les bandes paraboliques d'une bi-couche. La bi-couche couvre 10% de la surface d'après l'intensité des pics satellites.

Nous avons réalisé des mesures sur plusieurs barres de Hall ayant des paramètres de croissance légèrement différents avec l'objectif d'établir éventuellement des corrélations entre les conditions de croissance, les propriétés structurales et les propriétés de transport électronique, notamment en régime d'effet Hall quantique pour l'utilisation métrologique. Au total, quatre plaquettes ont été testées. La température, la pression, le taux d'hydrogène ainsi que le temps de croissance de chacune des plaquettes sont indiqués dans le tableau 6.1.

6.2 La fabrication de barres de Hall

Les images AFM nous ont permis de connaître l'orientation des marches par rapport aux bords du substrat pour ensuite réaliser des barres de Hall parallèles ou perpendiculaires aux marches, afin d'étudier leurs effets sur les propriétés de

Plaquette	Température (°C)	Pression (mbar)	Taux de H ₂ (%)	Temps de croissance (min)
12159-3	1550	800	23	5
13051-b	1550	800	44	10
16543	1550	800	25	15
16545	1600	800	25	15

TABLE 6.1 – Tableau récapitulatif des différents paramètres de croissance.

l'effet Hall quantique dans le graphène. Le tableau 6.2 récapitule les différentes orientations des barres de Hall par rapport aux bords des marches, ainsi que leurs tailles respectives.

Plaquette	Taille (μm)	Nombre de barres de Hall	Orientation de la barre (θ)
12159-3	420 × 100	6	-45°
	85 × 20	6	-45°
13051-b	820 × 200	8	4 × -14° et 4 × +76°
	420 × 100	8	4 × -14° et 4 × +76°
16543	820 × 200	12	6 // et 6 \perp
16545	1620 × 400	1	1 × -9°
	820 × 200	6	3 × -9° et 3 × +81°
	420 × 100	2	1 × -9° et 1 × +81°

TABLE 6.2 – Tableau récapitulatif des différentes caractéristiques des barres de Hall fabriquées en graphène. Sont résumés : la taille, le nombre et l'orientation par rapport aux marches du substrat des différentes barres de Hall.

Le processus de fabrication des barres de Hall a été développé au C2N par D. Kazazis, pour les plaquettes de graphène 12159-3 [81] et 13051-b [115]. Durant ma thèse, j'ai reproduit la même technique pour trois autres plaquettes : la plaquette 16543 et deux plaquettes 16545. La méthode est la suivante : tout d'abord, la plaquette de graphène est recuite sous vide (~ 10 mPa) pendant 1 min à 500°C. La durée de la montée en température est de 500 s tandis que le refroidissement est de 3h30. Les plaquettes sont ensuite immédiatement protégées par un dépôt de résine PMMA. Les motifs ainsi que l'orientation des barres de Hall entre elles sont présentés sur la figure 6.4 a). Un Nanomasqueur "VISTEC EBPG 5000 plus" (visible sur la photographie 6.4 b)) est utilisé pour dessiner la barre de Hall par lithographie électronique sur la résine PMMA. Le graphène est enlevé en dehors du motif en utilisant une gravure ionique réactive (Reactive Ion Etching RIE) fondée sur un plasma oxygène. Des contacts ohmiques sont réalisés par un dépôt de Pd/Au (60/20 nm) sur une fine couche de titane (2,5 nm) préalablement déposée pour augmenter l'accroche. Les plots de soudure sont formés par une bi-couche de Ti/Au (20/200 nm) à cheval entre le dépôt de Pd/Au et une zone sans graphène pour obtenir une meilleure adhésion au substrat SiC. Si le Ti/Au est déposé sur les plots Pd/Au, les bondings ultrasoniques ont tendance à décoller les dépôts métalliques. Finalement, les barres de Hall sont couvertes par 300 nm de MMA

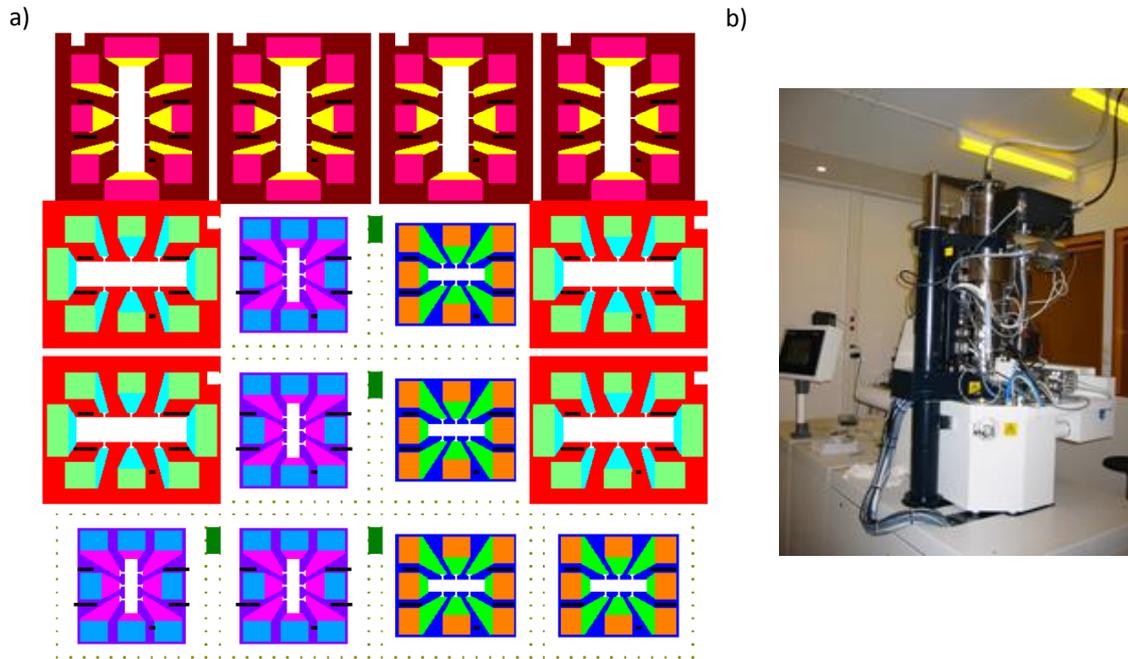


FIGURE 6.4 – a) Masques des barres de Hall pour la plaquette 13051-b. Les plus grandes barres ont une largeur de $200 \mu\text{m}$, les plus petites font $100 \mu\text{m}$ b) Nano-masker du C2N utilisé pour réaliser les barres de Hall.

(8,5) MAA EL10 de Microchem (poly(methylmethacrylate-co-methacrylate acid)) et 300 nm de ZEP520A (poly(methylstyrene-co-chloromethylacrylate)) de Zeon Chemicals. Comme nous l'avons vu au chapitre 4.2.2, la résine ZEP520A est une résine photo-chimique qui réduit la densité d'électron sous illumination ultra-violette [82]. Cependant aucune illumination n'a été réalisée pour toutes ces barres de Hall.

Les différentes barres de Hall réalisées sont récapitulées dans le tableau 6.2. Celles-ci devraient nous permettre de répondre à plusieurs problématiques en ce qui concerne les performances des barres de Hall en tant qu'étalon à effet Hall quantique : Quel est le niveau de reproductibilité entre différentes barres de Hall ? Quel est l'effet de la largeur de la barre de Hall ? Quel est l'influence de l'orientation des marches du substrat par rapport à la barre de Hall (comme représenté sur la figure 6.5) ?

6.3 La plaquette 13051-b

Pour la plaquette 13051-b, les conditions de croissance diffèrent légèrement de celles de la plaquette 12159-3 dont les premières mesures sont intervenues auparavant. Le tableau 6.1, qui résume les paramètres de croissance, indique que le taux d'hydrogénation ainsi que le temps de croissance sont plus importants lors de cette croissance comparativement à la croissance du graphène de la plaquette 12159-3.

Une image AFM de la couche de graphène 13051-b est visible sur la figure 6.2 b), ainsi qu'une image LEEM sur la figure 6.2 c). Un échantillon de Hall d'une taille de $420 \times 100 \mu\text{m}^2$ a été étudié et est visible sur la photographie de la figure 6.6.

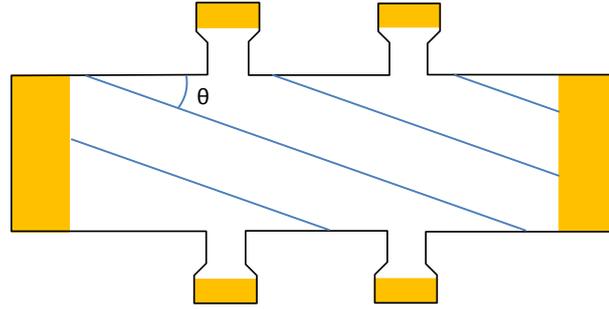


FIGURE 6.5 – Schéma d'une barre de Hall représentant l'angle θ entre la barre de Hall et les marches du substrat.

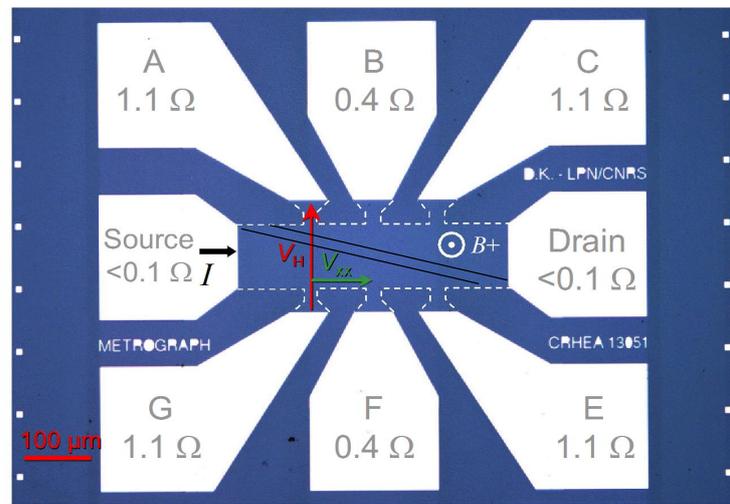


FIGURE 6.6 – Image par microscopie optique de la barre de Hall ($100 \times 420 \mu\text{m}^2$) en graphène sur SiC qui a été étudiée. Les résistances de contacts sont de l'ordre de 1Ω . L'orientation des marches du substrat est également représentée par les traits noirs. Le sens du champ magnétique positif est également défini.

Les images AFM ainsi que LEEM, permettent de connaître l'orientation exacte de la barre de Hall par rapport aux marches du substrat. Cet angle est de -14° . La taille de la barre de Hall est bien plus grande que la longueur typique d'une zone de bi-couche de graphène et les zones de bi-couches étant disjointes les unes des autres, elle ne peuvent donc pas court-circuiter les deux états de bord de la barre de Hall.

Quelques mois se sont écoulés entre la fabrication des barres de Hall sur la plaquette 13051-b, les mesures de transport électroniques préliminaires réalisées au laboratoire Charles Coulomb (L2C) de Montpellier puis le refroidissement de la barre de Hall au LNE. La plaquette a été refroidie lentement, environ 1 K/min , jusqu'à une température de $1,3 \text{ K}$, afin qu'elle ne subisse pas de choc thermique trop important. À cette température, la résistance longitudinale par carré ainsi que la résistance de Hall ont été mesurées pour un courant de mesure de 100 nA , en faisant varier le champ magnétique. La courbe de la figure 6.7 présente le résultat de cette mesure. La densité d'électrons extraite de la dépendance en champ magnétique de

la résistance de Hall à faibles champs magnétiques (régime d'effet Hall classique) est $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et la mobilité électronique extraite de la conductivité longitudinale de Drude ($B = 0$) est $\mu = 9400 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. L'écart de la courbe de résistance de Hall apparaissant à $B > 1,5 \text{ T}$, révèle la formation d'un plateau à une valeur de résistance $h/(6e^2)$. Un large plateau de Hall $\nu = 2$, à la valeur de résistance de $h/(2e^2)$, commençant à un champ magnétique de $2,5 \text{ T}$ est observé, tandis que la résistance longitudinale par carré chute à zéro. Le plateau s'étend jusqu'à 14 T (champ maximal disponible pour cette étude). La grande robustesse du plateau en température est démontrée par la courbe en pointillé rouge qui représente la valeur de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique à une température de 100 K . Le plateau $\nu = 2$ est toujours visible, bien que non-quantifié précisément. Une magnéto-résistance d'un étalon de résistance en GaAs/AlGaAs est tracée afin de comparer la largeur des deux plateaux de Hall. Le plateau de Hall de la barre de Hall en graphène s'étend sur plus de 11 T , contre 2 T pour celui en GaAs/AlGaAs. Les résistances de contact ont été mesurées en trois fils et en régime d'effet Hall quantique. Les contacts ont une résistance inférieure à $1,2 \Omega$. Les contacts de la source et du drain ont une résistance inférieure à $0,1 \Omega$ pour un contact de $100 \mu\text{m}$ de large, ce qui est très bon. La valeur de chaque contact est représentée sur la figure 6.6. On peut également préciser que les courbes de magnéto-résistance réalisées avec différentes paires de tension permettent d'extraire des densités d'électrons similaires, les variations de densité sont inférieures à $1,5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, démontrant ainsi la bonne homogénéité de la densité de porteurs pour cet barre de Hall.

6.3.1 Les propriétés métrologiques de la barre de Hall 13051-b

En utilisant les techniques de mesure décrites dans le chapitre 6, des mesures d'exactitude de la résistance de Hall $R_{\text{H-G}}$ sur le plateau $\nu = 2$ ont été réalisées et leurs valeurs comparées avec celle de la résistance de Hall d'un étalon en GaAs/AlGaAs (LEP 514) $R_{\text{H-GaAs}}$, également mesurée sur le plateau $\nu = 2$. La figure 6.8 a) montre l'écart relatif entre les valeurs des résistances de Hall des deux dispositifs quantiques $(R_{\text{H-G}} - R_{\text{H-GaAs}})/R_{\text{H-GaAs}}$, en fonction du champ magnétique auquel le graphène est soumis. Le champ magnétique de l'étalon en GaAs/AlGaAs étant fixe à $10,67 \text{ T}$. Les mesures sont effectuées à $1,3 \text{ K}$ et pour différents courants de mesure. Entre $3,5 \text{ T}$ et 14 T , la résistance de Hall du graphène ne montre aucun écart significatif à la valeur quantifiée $h/2e^2$ aux regard des incertitudes relatives de mesure, $u_c \approx 1 \times 10^{-9}$. Ce plateau, parfaitement quantifié sur plus de 10 T , est à comparer à la largeur en champ magnétique du plateau de quantification mesuré avec la même précision dans un étalon en GaAs/AlGaAs qui est typiquement de 1 T . Sur la même gamme de champ magnétique, de $3,5 \text{ T}$ à 14 T et à une température de $1,3 \text{ K}$, la résistance longitudinale par carré R_{xx} ne dépasse pas $40 \mu\Omega$. En dessous de 5 T le courant de mesure est diminué, passant de $50 \mu\text{A}$ à $10\text{-}20 \mu\text{A}$, afin de pouvoir conserver la très faible résistance longitudinale par carré. Un minimum de $5 \pm 2 \mu\Omega$ est trouvé entre 5 et 6 T pour des courants de $50 \mu\text{A}$ (figure 6.8 a)).

La robustesse de la quantification de R_{H} à différent champ magnétique, le long du plateau, a été testée en augmentant la température et en gardant un courant de mesure compris entre 10 et $50 \mu\text{A}$. Les résultats des différentes mesures de résistance

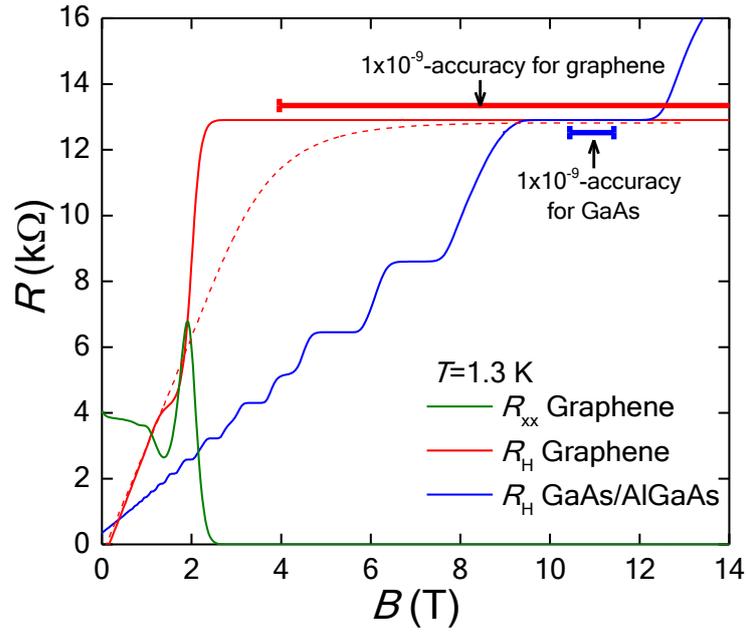


FIGURE 6.7 – Pour la barre de Hall de graphène, la résistance longitudinale par carré apparaît en vert et la résistance de Hall en rouge. Pour l'étalon en GaAs/AlGaAs, la résistance de Hall est représentée en bleu. Les résistances sont données en fonction du champ magnétique. La température de la plaquette est de 1,3 K et le courant de mesure est de 100 nA. La courbe en pointillé rouge représente la résistance de Hall de la barre de Hall de graphène à une température de 100 K. Les segments au dessus des courbes de résistance de Hall représentent les gammes de champs magnétiques pour le graphène et une barre de Hall en GaAs/AlGaAs typiquement utilisée en métrologie, sur lesquelles la résistance de Hall ne s'écarte pas de la valeur quantifiée $h/2e^2$ de plus de 1×10^{-9} en valeur relative.

de Hall et de résistance longitudinale par carré sont reportés sur la figure 6.8 b). La température maximale pour laquelle est préservée une quantification de la résistance de Hall à mieux que 1×10^{-9} , est de 10 K pour un champ magnétique de 8,5 T et un courant de 20 μ A.

La robustesse en courant de la quantification de la résistance de Hall a été entièrement réalisée en étudiant la dépendance en courant de la résistance longitudinale par carré R_{xx} . En effet, la mesure de l'écart de la résistance de Hall à la valeur théorique ΔR_H étant effectuée avec le pont de comparaison de résistance, le même courant électrique de mesure doit circuler dans la barre de Hall de graphène et dans la barre de Hall de GaAs/AlGaAs, afin d'éviter tous les biais expérimentaux dus au pont de comparaison. Pour les courants supérieurs à 60 μ A, l'écart de R_{H-GaAs} à $h/2e^2$ devient supérieur à 1×10^{-9} dans la barre de Hall GaAs/AlGaAs utilisée, à 1,3 K et 10,7 T. Il nous est donc impossible de réaliser des mesures de ΔR_H précises à de plus forts courants de mesure. Nous avons utilisé la relation de couplage qui existe entre ΔR_H et R_{xx} (qui sera détaillée dans la suite) pour déterminer le courant maximal pour lequel R_H ne s'écarte pas de plus de 1×10^{-9} de la valeur quantifiée. Les mesures ont été réalisées à 1,3 K, à plusieurs champs magnétiques et plusieurs

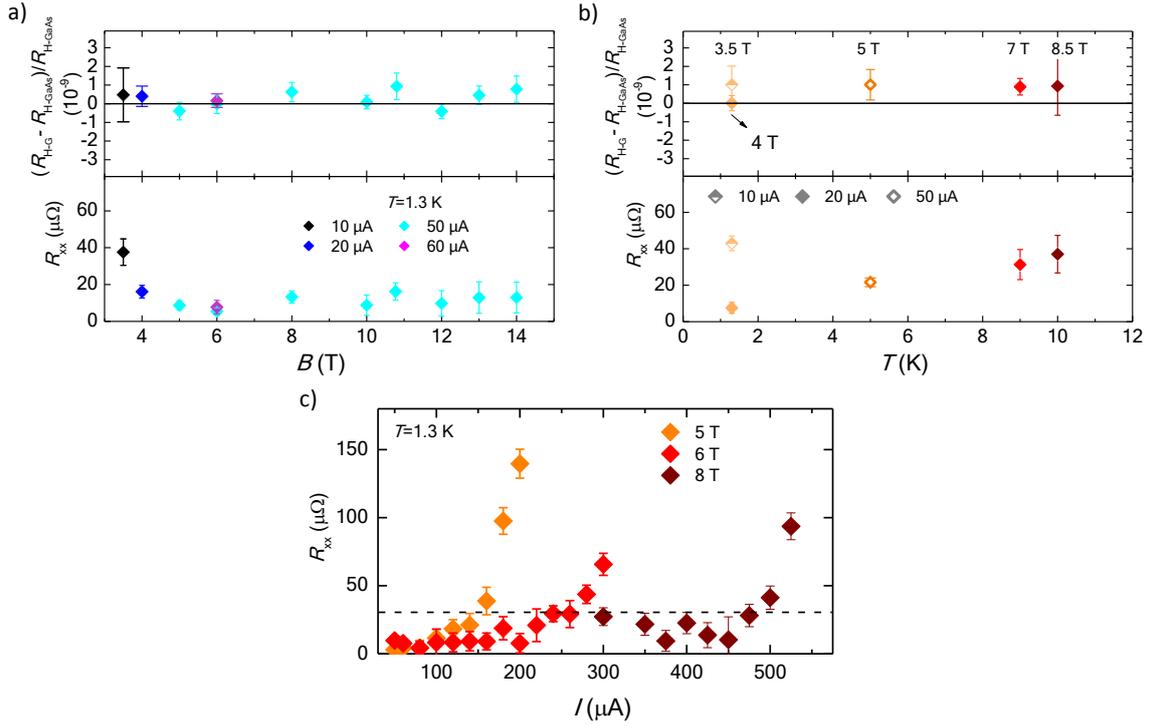


FIGURE 6.8 – a) Écart relatif de la résistance de Hall en graphène par rapport à celle du GaAs/AlGaAs $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs}$ et résistance longitudinale par carré R_{xx} en fonction du champ magnétique pour différents courants de mesure, à 1,3 K. b) $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs}$ et R_{xx} en fonction de la température, pour différents champs magnétiques et courants de mesure. c) R_{xx} en fonction du courant de mesure, pour différents champs magnétiques à 1,3 K. Le trait en pointillé représente une résistance longitudinale par carré de $30 \mu\Omega$.

températures. La figure 6.8 c) donne l'exemple de trois séries de mesures réalisées à 1,3 K et pour trois champs magnétiques B de 5 T, 6 T et 8 T afin de déterminer le courant critique. Au total c'est donc un très grand nombre de mesures qui a été réalisé. Le trait en pointillé représente une résistance longitudinale par carré de $30 \mu\Omega$, correspondant à un niveau de quantification de la valeur de la résistance de Hall meilleur que 1×10^{-9} en valeur relative, en considérant un couplage entre R_{xx} et R_H de 0,5 (la valeur de ce couplage sera discutée dans la suite). On observe que le seuil de résistance de $30 \mu\Omega$ est atteint pour un courant plus élevé lorsque le champ magnétique augmente entre 5 T et 8 T, passant respectivement de $150 \mu A$ à $500 \mu A$. Ce maximum n'avait jamais été atteint auparavant dans le graphène.

En définissant le courant critique I_c et la température critique T_c comme étant les courants et températures maximales pour lesquels la résistance longitudinale par carré reste inférieure à $30 \mu\Omega$ et la résistance de Hall ne s'écarte pas de la valeur quantifiée à plus de 1×10^{-9} en valeur relative, il a été possible de réaliser les figures 6.9 a) et b). La courbe 6.9 a) est obtenue à la fois par des mesures de R_{xx} mais également par des mesures de R_H . La température critique augmente avec le champ magnétique jusqu'à un maximum de $T_c = 10$ K pour $B = 8$ T. La température critique diminue ensuite faiblement pour atteindre 9 K à 14 T. Pour la courbe 6.9 b), seules des mesures de R_{xx} ont pu être faites car des mesures précises de R_H

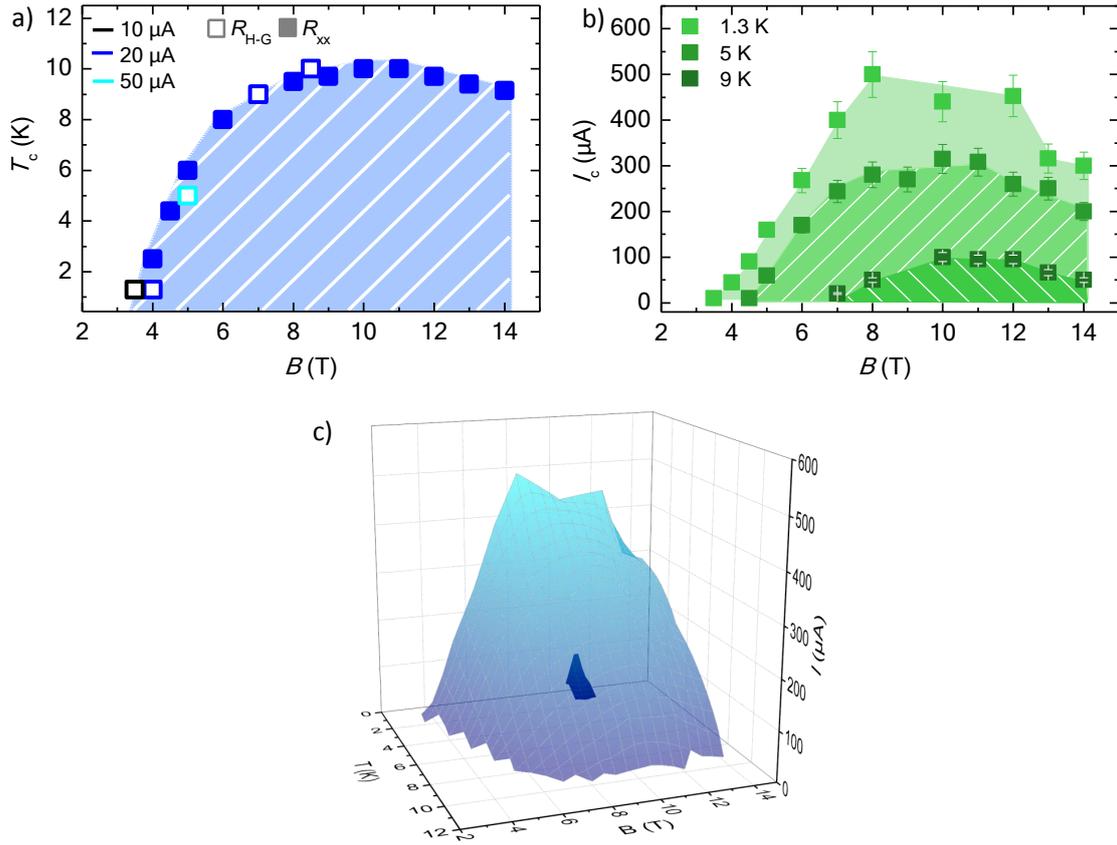


FIGURE 6.9 – a) Valeurs de T_c pour lesquelles $R_{xx} \leq 30 \mu\Omega$ et/ou $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs} \leq 1 \times 10^{-9}$ en fonction de l'induction magnétique, pour différents courants. b) Valeurs de I_c pour lesquelles $R_{xx} \leq 30 \mu\Omega$, pour différentes valeurs de champs magnétiques et pour trois températures. c) Le volume bleu clair représente le domaine des conditions expérimentales du graphène pour lesquelles $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs} \leq 1 \times 10^{-9}$. La surface bleu foncée correspond au domaine des conditions d'utilisation de notre étalon LEP 514 en GaAs/AlGaAs.

ne peuvent être réalisées pour les forts courants (pour les courants supérieurs à $60 \mu A$, l'écart de R_{H-GaAs} à $h/2e^2$ devient supérieur à 1×10^{-9} dans la barre de Hall GaAs/AlGaAs utilisée). Entre 2,5 et 8 T, le courant de rupture augmente avec le champ magnétique, passant ainsi de $I_c = 150 \mu A$ pour $B = 5$ T à $I_c = 500 \mu A$ pour $B = 8$ T, à 1,3 K. Au delà, le courant de rupture diminue faiblement avec le champ magnétique. La figure 6.9 b) présente également des mesures de I_c pour des températures de 5 et 9 K. Le courant de rupture n'est pas aussi élevé qu'à plus faible température mais vaut tout de même $I_c = 300 \mu A$ à $T = 5$ K pour $B = 10$ T et $I_c = 100 \mu A$ à $T = 9$ K pour $B = 10$ T.

Ces courbes permettent de déterminer le domaine des conditions d'utilisation (B, T, I) pour lesquelles $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs} \leq 1 \times 10^{-9}$. Cet espace des phases est visible sur la figure 6.9 c). Le volume bleu clair représente l'espace des phases du graphène. En le comparant à celui du GaAs/AlGaAs, en bleu foncé, il apparaît que le graphène est caractérisé par des conditions d'utilisation beaucoup plus étendues que le GaAs/AlGaAs et plus simples à mettre en œuvre. La résistance de Hall

est très bien quantifiée même à des champs magnétiques aussi faibles que 3,5 T, des températures aussi hautes que 10 K ou des courants de mesure de 500 μA . La densité de courant pouvant circuler dans la barre de Hall tout en conservant une quantification de R_{H} à 1×10^{-9} près est de 5 A.m^{-1} . Cette valeur est supérieure à la densité de courant mesurée dans les hétérostructures GaAs/AlGaAs, typiquement 0,25 A.m^{-1} [62]. Ce résultat démontre, pour la première fois, que le graphène surpasse le GaAs/AlGaAs, en terme de facilité d'utilisation. Cette barre de Hall 13051-b de graphène est très polyvalente : on peut noter des points de fonctionnement particuliers tels que (5 T, 5 K, 50 μA) ou bien (6 T, 5 K, 160 μA). Ces conditions expérimentales qui sont compatibles avec une instrumentation fondée sur de petits aimants supraconducteurs et un système cryo-magnétique compact fonctionnant sans apport d'hélium liquide, tel que celui développé par les chercheurs du NPL en collaboration avec la compagnie Oxford [56]. Dans ce dispositif fonctionnant à 3,8 K et 5 T, la résistance de Hall d'un graphène obtenu par décomposition thermique d'un substrat de SiC a été mesurée avec une précision de 5×10^{-9} en valeur relative pour un courant de 10 μA . Ces systèmes compacts devraient permettre de disséminer facilement les futurs étalons de résistance en graphène.

Dans le but de déterminer l'accord entre le graphène de la plaquette 13051-b et le GaAs/AlGaAs avec la meilleure précision possible, un grand nombre de mesure a été réalisé dans les conditions expérimentales où le graphène est bien quantifié : $T = 1,3 \text{ K}$, $B = 4 - 8 \text{ T}$ et $I = 20 - 60 \mu\text{A}$. Le calcul de la valeur moyenne pondérée des écarts des 28 comparaisons donne $\Delta R_{\text{H}}/R_{\text{H}} = (-0,9 \pm 8,2) \times 10^{-11}$ [115]. Ce résultat apporte une vérification de l'universalité de l'effet Hall quantique avec une incertitude jamais atteinte. Ce résultat supporte le fait que l'effet Hall quantique est universel et vaut $R_{\text{H}} = h/(ie^2)$ indépendamment du matériau utilisé.

6.3.2 L'homogénéité de la barre de Hall 13051-b

La qualité de la barre de Hall 13051-b se manifeste notamment à travers l'homogénéité spatiale de ses propriétés. La figure 6.10 a) présente les écarts $(R_{\text{H-G}} - R_{\text{H-GaAs}})/R_{\text{H-GaAs}}$ mesurés pour différentes inductions magnétiques et pour trois paires de Hall (A,G), (B,F) et (C,E). Pour les trois paires, les écarts sont inférieurs à $1,5 \times 10^{-9}$ en valeur relative, pour les différents champs magnétiques et courants de mesure. L'écart-type expérimental sur la moyenne des mesures faites avec les trois paires de terminaux est faible et représenté sur la figure 6.10 b). Ces écarts sont inférieurs à 1×10^{-9} en valeur relative à 4 T et à 5 T, à une température de 1,3 K et pour les deux sens de champ magnétique. Entre 4 et 10,8 T, la dispersion des points est inférieure à 2×10^{-9} pour des courants allant jusqu'à 60 μA . L'homogénéité de toutes ces mesures montre que la barre de Hall 13051-b de graphène est de très bonne qualité sur la totalité de la barre de Hall. De plus, l'homogénéité des propriétés de transport électronique, comme la densité ou la mobilité, est elle aussi vérifiée pour les trois paires de terminaux de mesure.

Cette barre de Hall a donc démontré des caractéristiques exceptionnelles très homogènes sur toute sa surface. L'effet Hall quantique est trouvé très robuste vis à vis du courant, de la température et la résistance de Hall reste parfaitement quantifiée jusqu'à des champs magnétiques faibles. Cette barre de Hall a toutes les propriétés d'un étalon à effet Hall quantique idéal et fiable. De telles caractéristiques peuvent

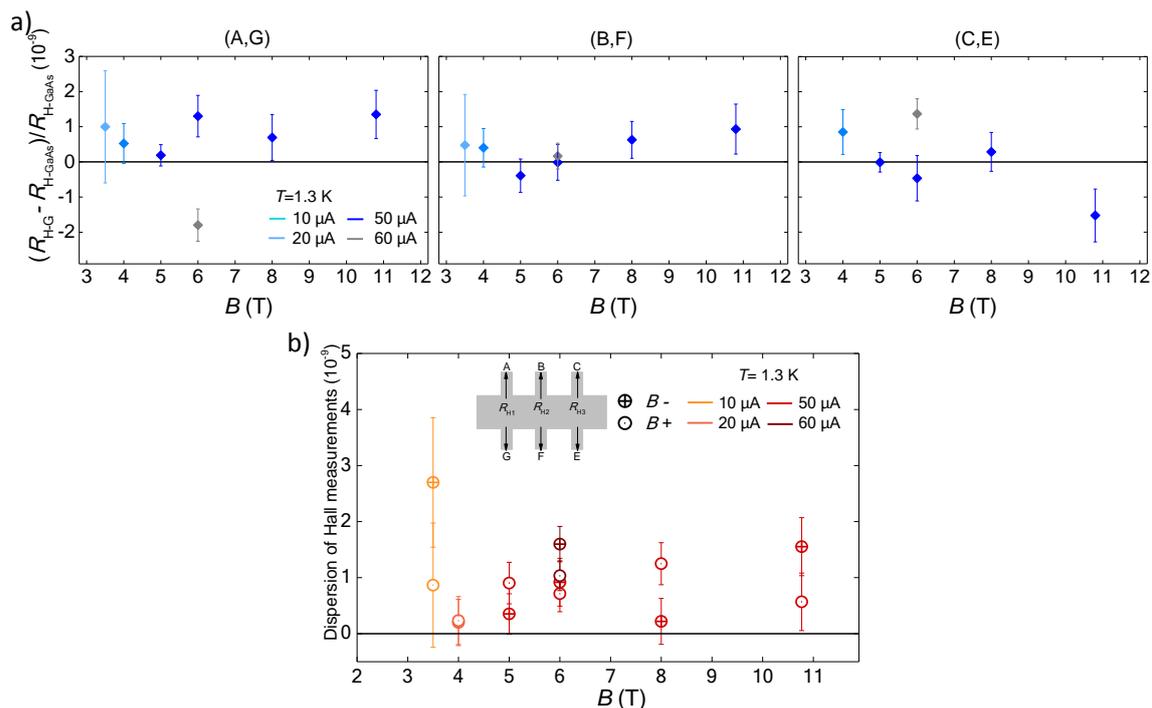


FIGURE 6.10 – a) En haut, $(R_{H-G} - R_{H-GaAs})/R_{H-GaAs}$ en fonction du champ magnétique mesuré pour différents courants et pour les différentes paires de contacts (A,G), (B,F), (C,E). b) Ecart-type sur la moyenne des mesures de R_{H-G} pour trois différentes paires de mesures, en fonction du champ magnétique et pour différents courants.

permettre de grandement simplifier l'utilisation des étalons dans les centres d'étalonnages en exploitant, par exemple, des systèmes cryo-magnétiques contenant de petits aimants supraconducteurs de quelques teslas. De plus, l'augmentation des courants de mesure pouvant atteindre 0,5 mA permet d'envisager l'utilisation d'appareils de mesure commerciaux.

6.4 L'influence des cyclages thermiques et du temps sur les barres de Hall

Après avoir réalisé la totalité des mesures souhaitées, la plaquette étudiée est réchauffée jusqu'à température ambiante puis sortie de son insert. Après observation de la plaquette par microscopie optique, il s'avère que des fissures au niveau de la bi-couche de résine peuvent être présentes. Ce type de fissure a été observé sur la plaquette 12159-3 (photographie figure 6.11 a)) ainsi que sur la plaquette 13051-b alors que les plaquettes les plus récentes (16543 et 16545) en sont, pour l'instant, exemptes. Cette photographie a été prise quatre ans après la fabrication des barres de Hall. Des fissures de la bi-couche de résine PMMA/ZEP520A apparaissent sur la quasi-totalité de la plaquette. Les cyclages thermiques causent des variations brusques de température provoquant ainsi des contractions de la bi-couche de résine

lors du refroidissement (ou des dilatations lors du réchauffement) capables de la fissurer. On observe cependant que les fissures n'apparaissent qu'à l'extérieur des barres de Hall. Le graphène au niveau des barres de Hall est toujours bien protégé par la bi-couche de résine. Il apparaît que ces fissures sont sans influence sur la quantification de la résistance de Hall. On peut cependant se demander pendant combien de cyclage thermique la résine va continuer à être stable sur les barres de Hall.

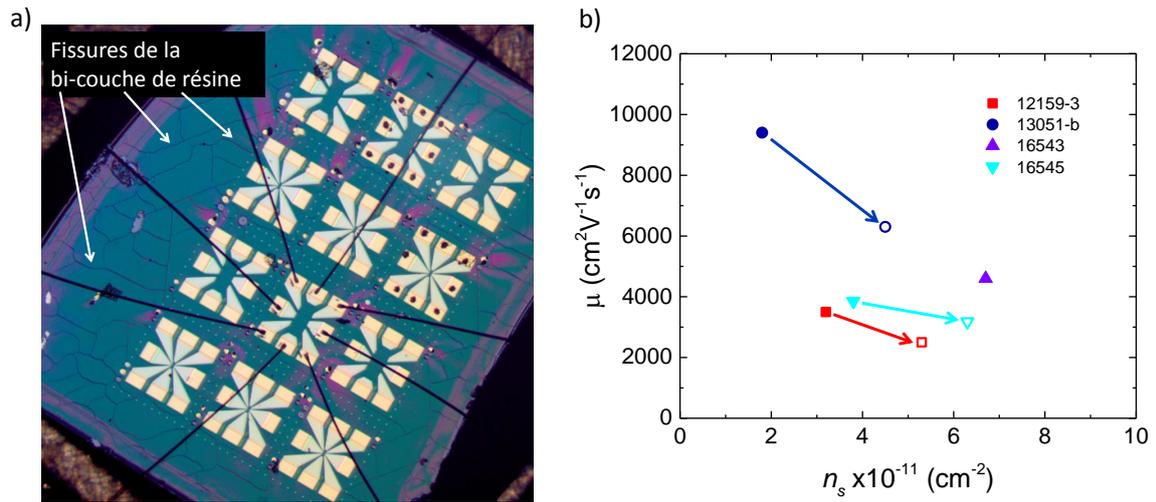


FIGURE 6.11 – a) Photographie de la plaquette 12159-3. b) Mobilité électronique μ en fonction de la densité électronique n_s pour les différentes plaquettes étudiées à une température de 1,3 K. Les différentes flèches représentent l'évolution temporelle de la densité en électron.

Aucune modification des propriétés ne sont observées lorsque la plaquette est conservée à basse température dans le système cryomagnétique, même sur de longues périodes de temps qui peuvent être supérieures à deux années. À l'inverse, lorsque la plaquette est conservée à température ambiante, sous atmosphère d'hélium et dans le noir, des changements peuvent survenir. Par exemple, pour la barre de Hall 13051-b, nous mesurons qu'un contact s'est détérioré en l'espace d'une année et vaut maintenant 330 $\Omega \cdot \mu\text{m}$ contre 20 $\Omega \cdot \mu\text{m}$ précédemment. Une dérive de la densité d'électrons ainsi que de la mobilité électronique sont également mesurées. Les plaquettes 12159-3, 13051-b et 16545 présentent une dérive de la densité électronique dans le temps, représentée par des flèches sur la figure 6.11 b). Une augmentation de la densité d'électrons ainsi qu'une diminution de la mobilité électronique sont observées pour les couches de graphène qui ont subit deux mesures séparées d'une période de conservation à température ambiante.

À titre d'exemple, la barre de Hall 13051-b a été stockée durant deux années à température ambiante, dans le noir et sous atmosphère d'hélium et sa densité d'électrons passant de $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ à $n_s = 4,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Cette variation peut être due à la désorption d'hydrogène qui saturait les liaisons pendantes de la ZLG, ou à des adatoms qui ont réussi à traverser les couches de polymères. L'évolution de la densité ne permet plus de mesurer une parfaite quantification

de Hall pour un champ magnétique inférieur à 6 T. De plus on n’observe pas de corrélation entre la densité électronique et la durée entre les étapes de croissance, de fabrication des barres et la mesure à basse température. Il est donc nécessaire de pouvoir moduler de façon fiable la densité électronique afin de pouvoir utiliser les barres de Hall de graphène à des champs magnétiques accessibles et pratiques. Pour cela nous avons étudié la décharge corona.

6.5 Contrôle de la densité de porteurs de charge et étude du transport électronique à densité de porteurs variable

En plus de chercher un moyen de contrer l’évolution de la densité lors de la conservation à température ambiante, nous avons cherché à obtenir la parfaite quantification de la résistance de Hall à plus bas champ magnétique, l’objectif final étant de pouvoir obtenir une parfaite quantification avec un aimant permanent. Atteindre une quantification exacte de R_H à de faibles valeurs de champ magnétique simplifierait la mise en œuvre expérimentale de l’étalon à effet Hall quantique. Nous avons vu précédemment dans la partie 3.4.4 que, théoriquement, la résistance de Hall dans le graphène pourrait potentiellement être quantifiée à $\nu = 2$ à très faible champ magnétique (à partir de 1 T à 4 K) grâce à un large écart énergétique entre les deux premiers niveaux de Landau. Le facteur de remplissage des niveaux de Landau pouvant être contrôlé par la densité de porteurs, nous avons voulu étudier le contrôle de la densité électronique pour du graphène sur SiC. La densité électronique intrinsèque dans le graphène sur SiC est élevée à cause du transfert de charge, la diminuer pourrait permettre de faire apparaître le début du plateau de Hall à $\nu = 2$ à plus faible champ magnétique. Nous avons donc étudié plusieurs barres de Hall dont la densité d’électrons a évolué, soit de manière naturelle avec le temps, soit par l’action de décharges corona, c’est-à-dire en déposant des ions en surface du polymère.

6.5.1 La modulation de la densité électronique par la décharge corona

Il est possible de modifier la densité de porteurs du graphène en déposant des ions chargés sur la couche de polymère qui recouvre l’échantillon. Cela est possible grâce à un pistolet anti-électricité statique, utilisant l’effet corona. Le pistolet peut générer des décharges positives ou négatives selon la compression ou la détente de la gâchette, provoquant une compression ou un étirement sur un cristal piézo-électrique, lui-même connecté à une pointe métallique. L’effet corona est un phénomène de décharge électrique partielle entraînée par l’ionisation de l’air entourant une pointe métallique conductrice soumise à une forte tension. Il s’en suit un phénomène d’avalanche qui permet, selon la polarité de la tension appliquée sur la pointe, de déposer des ions positifs (principalement H_3O^+) ou négatifs (principalement CO_3^-) en surface de la bi-couche de ZEP520A et PMMA au dessus du graphène. Le principe de fonctionnement de la décharge est schématisé sur la figure 6.12 a). Sur la partie de gauche, la décharge corona est dite positive. La décharge

est amorcée par un électron résultant de l'ionisation d'un atome par l'effet photoélectrique (étoile rouge sur la figure). L'électron généré est alors accéléré vers la pointe. Sur sa trajectoire, des collisions inélastiques ont lieu avec plusieurs atomes créant une avalanche électronique ionisant de plus en plus d'atomes. Les ions, étant chargés positivement, vont subir le champ électrique de la pointe et ainsi migrer vers la couche de graphène. L'ionisation se passe à l'intérieur de la zone encerclée en pointillé, sur quelques millimètres au maximum [19]. En dehors de cette région, les ions créés dans le plasma sont mis en mouvement par le champ électrique. Des ions positifs se déposent en surface, le graphène obtient ainsi un dopage plus fort en électrons à cause du couplage capacitif.

La décharge négative fonctionne différemment. Les électrons initiant l'avalanche sont extraits de la pointe et accélérés. Les collisions créent également des ions positifs qui vont se rapprocher de la pointe. Au fur et à mesure que les électrons réalisent des collisions, ils perdent de l'énergie. En dehors de la zone encerclée, les électrons ont suffisamment peu d'énergie pour être acceptés dans le nuage électronique de molécules électronégatives, formant des ions négatifs. Le champ électrique généré par la pointe n'est plus suffisant pour attirer les ions. Ils vont finir leur course sur l'échantillon.

La modulation de la densité électronique par décharge corona a été réalisée à température ambiante, la distance entre le pistolet corona et la couche de graphène était de quelques centimètres. La barre de Hall étant connecté à une détection synchrone, il était possible de suivre l'évolution de la résistance de Hall en temps réel lors des décharges coronas. Immédiatement après avoir utilisé le pistolet à décharge corona sur l'échantillon, une modification de la résistance est observée. La résistance de Hall mesurée diminue (augmente) si on appuie (relâche) la gâchette du pistolet. Une augmentation (diminution) de la résistivité ρ peut s'interpréter comme une diminution (augmentation) de n_s dans le cas simple où $\mu = cte$ puisque $\rho = 1/n_s e \mu$. Nous verrons plus loin que ce modèle pour μ n'est pas complet. On remarque également que la résistance évolue plus fortement lorsque la distance entre la pointe conductrice et l'échantillon est faible. Une étude réalisée par Lartsev *et al* [83], sur une barre de Hall en graphène épitaxié sur SiC a montré l'instabilité du dopage immédiatement après la décharge par une variation de densité de trous non négligeable de $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ en l'espace de 10 minutes après modification de la densité par décharge corona. Dans notre cas, la densité se stabilise après quelques secondes et reste stable sur plusieurs heures. Cette instabilité peut conduire à une inhomogénéité lorsque la barre de Hall est refroidie rapidement après la décharge.

Le tableau 6.3 récapitule les différentes plaquettes, les barres de Hall ainsi que leur taille, les densités de porteurs, les mobilités électroniques et les résistances de contact. Les plaquettes 12159-3 et 13051-b ont été fabriquées en 2012 et 2013 respectivement, tandis que la croissance des couches 16543 et 16545 a été faite en 2016. Les plaquettes 16543-1 et 16543-2 ont été mesurées à deux semaines d'intervalle. On observe que la densité est similaire (4% d'écart) sur deux barres de Hall de cette même plaquette, ce qui montre une bonne homogénéité spatiale de la densité sur une large surface. Toutes les plaquettes présentent des dopages initiaux inférieurs à 10^{12} cm^{-2} . Après avoir mesuré des barres de Hall de $20 \mu\text{m}$ et de $100 \mu\text{m}$ sur la plaquette 12159-3, il apparaît que la taille des barres de Hall ne semble pas avoir d'effet ni sur la densité électronique initiale, ni sur la mobilité électronique, ni sur

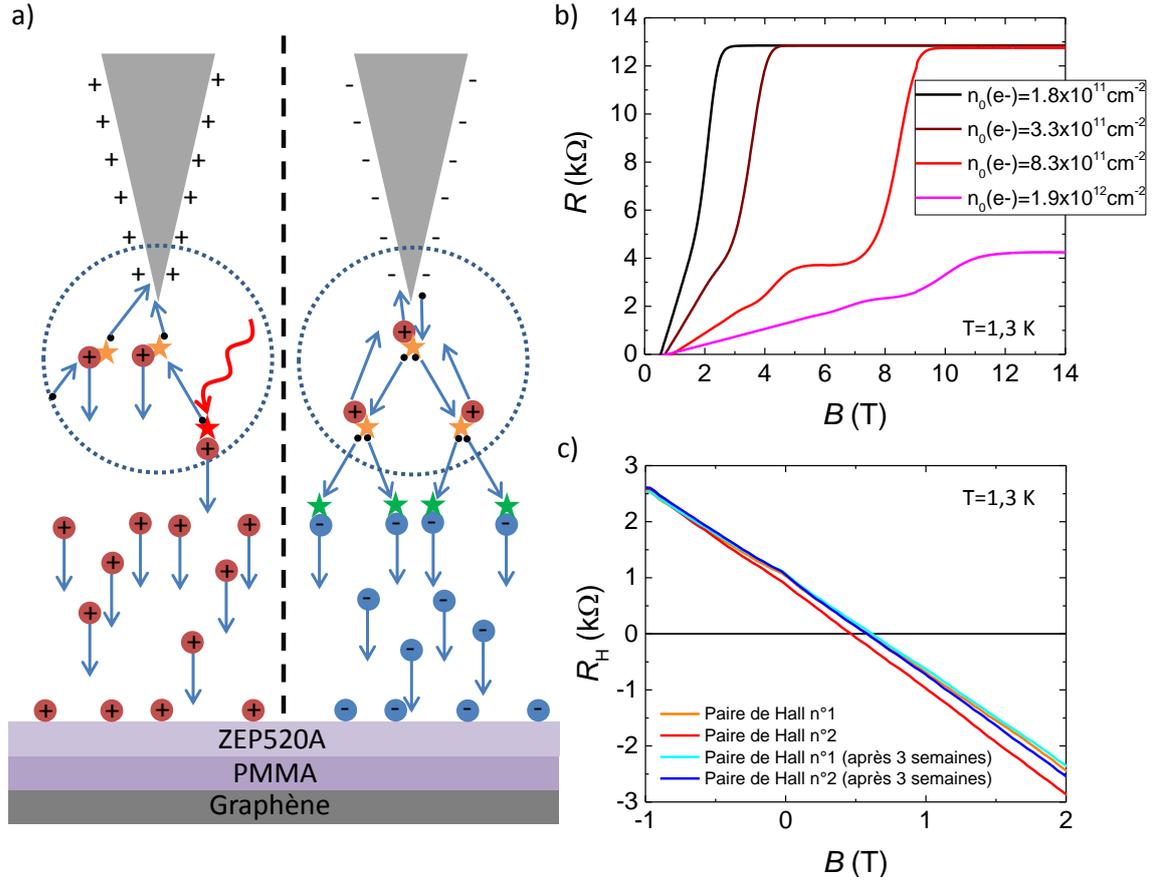


FIGURE 6.12 – a) Schéma du principe du dopage par décharge corona. L'étoile rouge correspond à l'ionisation d'un électron par effet photo-électrique, qui est à l'origine de la réaction en chaîne. Les étoiles oranges symbolisent des chocs inélastiques, tandis que les étoiles vertes l'addition d'un électron au nuage électronique d'une molécule électronégative. b) Mesures de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique de la barre de Hall 12159-3-1 à différents dopages sur la paire de Hall centrale. c) Résistance de Hall pour la barre de Hall 12159-3-p4 à la densité $n_s = 3,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ à 1,3 K. Les deux séries de mesure ont été réalisées à trois semaines d'intervalle.

la résistance des contacts.

6.5.2 Les courbes de magnéto-résistance

La modification de la densité par décharge corona a permis de modifier la densité électronique entre $1,5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et $1,9 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. En dessous de $1,5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, le plateau de Hall n'apparaît plus quantifié. La figure 6.12 b) montre plusieurs courbes de magnéto-résistances de la barre de Hall 12159-3-1 à différentes densités électroniques. Le début du plateau de la résistance de Hall apparaît à plus faible champ magnétique lorsque la densité électronique est faible, comme attendu. On peut également observer que le plateau $\nu = 6$ n'est pas visible pour $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, cela résulte de la faible mobilité qui ne permet pas d'observer de quantification de l'orbite cyclotron au champ requis ($\approx 1,2$ T). Pour une densité électronique élevée de $19 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, il est au contraire clairement développé puisque le plateau

$\nu = 6$ est atteint à un champ magnétique 10 fois supérieur (≈ 12 T). À ce champ magnétique, l'orbite cyclotron est bien plus faible et devient quantifiée. À cette densité, le plateau $\nu = 10$ commence à apparaître.

La figure 6.12 c) présente la mesure de la résistance de Hall pour deux paires de Hall distinctes en fonction du champ magnétique pour la barre de Hall 12159-3-p4 de 20 μm de large à la densité électronique $n_s = 3,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. La première série de mesures, représentée par la courbes orange (paire n°1) et la courbe rouge (paire n°2), montre un écart de pente de 9%. Il apparaît que le dopage est inhomogène sur une distance de 20 μm , qui est la distance entre les deux paires de Hall. La plaquette 12159-3 est conservée à basse température (1,3 K) pendant trois semaines et la même mesure est de nouveau réalisée sur les deux paires de Hall. Le résultat est présenté par la courbe cyan (paire n°1) et par la courbe bleu (paire n°2). L'écart des pentes est alors de 5%. Il apparaît donc que l'inhomogénéité apportée par les décharges corona diminuent avec le temps.

6.5.3 La mobilité électronique

Les courbes de magnéto-résistances réalisées sur toutes les barres de Hall permettent de déterminer la densité électronique en utilisant l'effet Hall classique ainsi que la mobilité électronique extraite de la conductivité longitudinale de Drude. À partir de ces valeurs il a été possible de réaliser la courbe 6.13 a) où est représentée la mobilité électronique μ en fonction de la densité électronique n_s pour les barres de Hall 1 et 2 de la plaquette 12159-3 ainsi que pour la barre de Hall 13051-b, à la température de 1,3 K. Les variations de n_s résultent de la décharge corona ou du vieillissement. Les deux barres de Hall de la plaquette 12159-3 présentent une mobilité électronique voisine à densité électronique donnée. La mobilité électronique évolue avec la densité électronique de manière semblable dans les deux couches. La contribution dominante à la dépendance de μ est du type $1/n_s$. Selon Das Sarma et al., cette dépendance est caractéristique d'interactions à courte portée [119]. Ce type d'interaction a déjà été montré dominant dans du graphène sur SiC à basse température (< 50 K) [127]. Si les centres diffuseurs sont ponctuels et électriquement neutres, il a été montré que la conductivité s'écrit comme [96] :

$$\sigma \approx \frac{e^2}{h} \frac{1}{n_i R^2} \quad (6.1)$$

où n_i est la densité surfacique des centres diffuseurs. En utilisant le fait que $\sigma = \mu n_s e$ on obtient la mobilité électronique associée à des diffuseurs ponctuels courte portée :

$$\mu_{SR} \approx \frac{e}{h n_s} \frac{1}{n_i R^2} \quad (6.2)$$

La courbe rouge de la figure 6.13 a) est un ajustement de la mobilité électronique des barres de Hall 12159-3-1 et -2 selon l'équation $\mu = \mu_{SR} + \mu_{CI}$ [21]. En plus de la diffusion sur des centres diffuseurs ponctuels, une faible contribution due aux impuretés chargées ($\mu_{CI} = 1000 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$) est prise en compte. C'est cette contribution qui permet d'expliquer que $\rho = 1/n_s e \mu$ augmente lorsque n_s diminue

Plaquette	N° de la barre de Hall	Taille (μm)	Nombre de mauvais contacts	Densité ($\times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)	Mobilité ($\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$)
12159-3	1	420×100	1	1,5	4100
				1,8	3500
				3,2	3500
				3,3	2600
				8,3	2300
	2	420×100	0	19	2200
				0,5	12000
				2,6	4000
				4,4	2800
				4,6	3200
	3	420×100	0	3,5	2500
				2,9	3500
	p4	85×20	0	1	2200
				10,5	2200
				2,5	3000
3,6				3000	
5,8				2600	
p5	85×20	1	2,4	3500	
13051-b	1	420×100	0	1,8	9400
			1	4,5	6300
16543	1	820×200	1	6,7	4600
	2	820×200	0	6,4	4700
16545	1	820×200	0	3,8	3900
				6,3	3200

TABLE 6.3 – Tableau récapitulatif des différentes barres de Hall de graphène étudiés. Les contacts de bonne qualité sont tous inférieurs à $< 50 \Omega.\mu\text{m}$ tandis que les contacts dit "de mauvaise qualité" ont une résistance supérieure à $330 \Omega.\mu\text{m}$.

consécutivement aux décharges corona. Pour μ_{SR} , dans l'hypothèse où le paramètre $R = a = 0,142 \text{ nm}$ où a est la distance inter-atomique, la densité des centres diffuseurs vaut $n_i \approx 1,7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ pour la couche 12159-3. Cette valeur est proche de la densité d'atome de carbone dans le graphène. La courbe bleue est l'ajustement pour la barre de Hall 13051-b. La densité des centres diffuseurs est plus faible d'un facteur proche de 3.

Les valeurs de n_s et de μ mesurées dans la barre de Hall 13051-b après un stockage de 2 ans (point vide bleu sur la figure 6.13 a)) ne sont pas décrites correctement par l'ajustement des valeurs initiales selon le modèle de diffusion à courte portée. Dès lors, on peut supposer que le vieillissement ne se manifeste pas uniquement par une variation (augmentation) de densité comparable à celle obtenue par décharge corona.

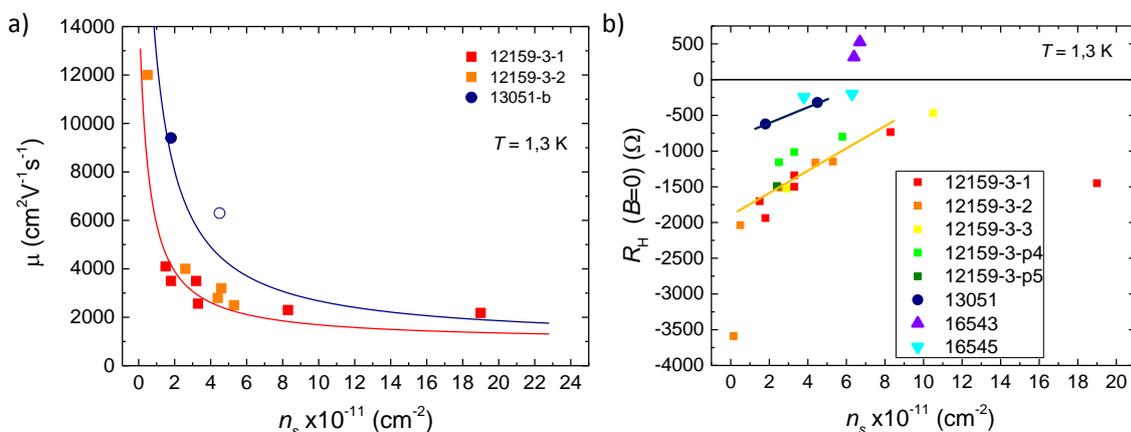


FIGURE 6.13 – a) Mobilité électronique μ en fonction de n_s pour les barres de Hall 1 et 2 de la plaquette 12159-3 et pour la barre de Hall 13051-b. Les courbes en trait pleins représentent l'ajustement de la mobilité électronique par $\mu = \mu_{SR} + \mu_{CI}$ avec $\mu_{SR} \propto 1/n_s$. b) R_H pour une induction magnétique nulle en fonction de la densité électronique, pour les différentes barres de Hall mesurées.

6.5.4 La résistance de Hall à champ nul

Mesurer la résistance de Hall à champ nul est une mesure rapide qui peut être réalisée en même temps que la magnéto-résistance. Sur la figure 6.13 b), sont représentées les résistances de Hall à champ nul des différentes barres de Hall mesurées en fonction de la densité électronique. Le signe de la valeur de la résistance est propre à chaque barre de Hall et ne dépend pas de la densité électronique. Pour la plaquette 12159-3, 5 barres de Hall ont été mesurées et le signe de la résistance est toujours négatif, on peut supposer que le signe de la résistance de Hall à champ nul est lié à un paramètre commun à toute la plaquette qui serait l'angle θ entre les marches du substrat et la barre de Hall. Un modèle fondé sur le modèle de Drude, décrivant la modification de la conductivité par les marches du substrat a été développé par B. Jouault et al. (article en préparation). Dans ce modèle, les marches du substrat apportent un terme de diffusion supplémentaire rendant les diffusions anisotropes.

La résistivité transverse est alors corrigée d'un offset qui dépend d'un coefficient d'anisotropie lié aux marches du substrat et de l'angle θ entre la barre de Hall et les marches du substrat. La résistivité ρ_{xy} à champ nul s'écrit comme :

$$R_H(B = 0) = \rho_{xy} = \rho_{yx} = \frac{\Delta\sigma}{2\sigma_{\parallel}\sigma_{\perp}} \sin(2\theta) \quad (6.3)$$

où σ_{\parallel} et σ_{\perp} sont les conductivités parallèle et perpendiculaire aux marches de SiC, $\Delta\sigma = \sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}$ et $\Delta\sigma/2\sigma_{\parallel}\sigma_{\perp}$ est un coefficient d'anisotropie. Pour les plaquettes 12159-3, 13051-b et 16545, les angles sont négatifs, respectivement $\theta = -45^\circ$, $\theta = -14^\circ$ et $\theta = -9^\circ$. Les tensions de Hall mesurées pour ces plaquettes sont négatives, ce qui est en adéquation avec le modèle. Pour la couche 16543, la barre de Hall a une orientation parallèle aux bords des marches, cependant un petit angle n'est pas à exclure. Les mesures des résistances de Hall à champ nul suggèrent un angle positif.

Les mesures sur la plaquette 12159-3 à différentes densités permettent d'observer que la résistance de Hall à champ nul augmente en valeur absolue lorsque la densité d'électron diminue. L'anisotropie semble donc se manifester d'avantage à basse densité électronique. Pour une densité électronique $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le coefficient d'anisotropie de la barre de Hall 12159-3-1 vaut 1950Ω tandis que pour la barre de Hall 13051-b il vaut 1320Ω . À la densité électronique proche de $n_s = 4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ les barres de Hall 13051-b et 16545 ont un coefficient d'anisotropie très proche : respectivement 700Ω et 800Ω , tandis que le coefficient de la barre de Hall 12159-3-2 est de 1500Ω . Le coefficient d'anisotropie entre les barres de Hall et les marches du substrat de la plaquette 12159-3 est le plus important des 4 plaquettes. La valeur de l'offset de Hall dépend de la valeur de l'angle entre les marches du substrat et de la barre de Hall mais également du coefficient d'anisotropie au second ordre.

6.5.5 Étude de la quantification de R_H en fonction de la densité électronique

Mesures d'exactitude sur le plateau $\nu = 2$

Le but des décharges corona est de modifier la densité électronique afin d'obtenir un plateau de Hall parfaitement quantifié à un champ magnétique désiré. Pour cela il faut que les contacts de la barre de Hall ne soient pas impactés par ce dépôt d'ions. Parmi les 72 contacts mesurés aux différentes densités électroniques, 68 sont très bons ($R_c < 50 \Omega \cdot \mu\text{m}$). Aucune dépendance des résistances de contact avec la densité électronique n'a été observée.

Des mesures de la résistance de Hall ont ensuite été réalisées dans la barre de Hall 12159-3-1 à différentes densités de porteurs et pour différents champs magnétiques le long du plateau $\nu = 2$. La figure 6.14 a) représente les différents écarts des mesures de la résistance de Hall sur le plateau $\nu = 2$ dans le graphène et dans le GaAs/AlGaAs. À la densité $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, on trouve une résistance de Hall quantifiée : l'écart mesuré est de $(-0,3 \pm 0,57) \times 10^{-9}$ à 1,3 K, 14 T et à $30 \mu\text{A}$, ce qui est comparable avec le résultat trouvé avant modification de la densité [81]. À 10 T, l'exactitude semble légèrement moins bonne, un écart de $(-3 \pm 1) \times 10^{-9}$ est observé. Cet écart, cependant faible, n'était pas présent dans les expériences réalisées quelques années plus tôt, en 2014. Bien que les densités électroniques soient identiques, les

mobilités électroniques sont différentes. La mobilité électronique en 2014 était de $\mu = 3500 \text{ cm}^{-2}$ contre $\mu = 2600 \text{ cm}^{-2}$ aujourd'hui ce qui permettait une meilleure quantification. En diminuant la densité jusqu'à $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, la valeur de R_H à 7 T et 1,3 K, ne s'écarte que de $(1 \pm 2, 1) \times 10^{-9}$ de la valeur quantifiée pour un courant de $10 \mu\text{A}$. La diminution de la densité a permis de conserver la quantification de la valeur de la résistance de Hall à plus bas champ magnétique. On peut donc voir que les deux barres de Hall 12159-3-1 et 13051-b, à la même densité électronique $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, ne présentent pas une quantification identique. Le contrôle de la densité ne suffit pas pour avoir les mêmes propriétés de quantification à bas champ magnétique. Cela suggère une influence de la diffusion courte portée sur la rupture de l'effet Hall quantique. La valeur de la résistance de Hall de la petite barre de Hall p12159-3-4, pour $n_s = 3,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, est également quantifiée au regard des incertitudes de mesure, un écart de $(-0,15 \pm 1,5) \times 10^{-9}$ est mesuré à $10 \mu\text{A}$, 14 T et 1,3 K, bien que le courant de rupture soit plus faible.

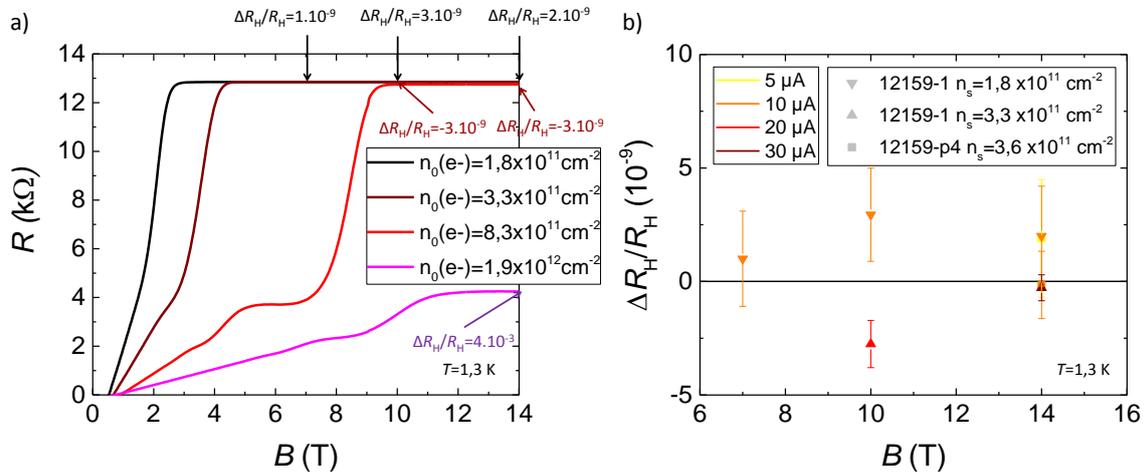


FIGURE 6.14 – a) Résistances de Hall en fonction du champ magnétique pour différentes densités électroniques. Les écarts des valeurs de la résistance de Hall à la valeur quantifiée sont indiqués par des flèches. La couleur du texte correspond aux couleurs de la légende. Les écarts de quantification et les incertitudes associées sont représentés sur la figure b). b) $\Delta R_H/R_H$ en fonction du champ magnétique pour différentes densités, différentes barres de Hall et différents courants de mesure.

Mesures d'exactitude sur le plateau $\nu = 6$

La résistance longitudinale a aussi été étudiée à forte densité ($n_s = 12 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) sur le plateau $\nu = 6$. Bien que le plateau de R_H paraisse plat sur la magnéto-résistance figure 6.14 b), la mesure de la résistance longitudinale par carré donne une valeur élevée de plusieurs dizaines d'ohm $R_{xx} = 53,3 \Omega$ à 100 nA et $13,3 \text{ T}$, champ magnétique pour lequel R_{xx} atteint un minimum. La mesure de la résistance de Hall à 1,3 K et 13,3 T à 100 nA donne un écart à la valeur quantifiée de 4×10^{-3} en valeur relative. Un tel écart n'est pas attendu car l'écart énergétique entre les niveaux de Landau est important à ce champ magnétique $\Delta E \approx 50 \text{ meV}$ par rapport à l'énergie thermique $100 \times k_B T \approx 17 \text{ meV}$. Cependant la faible mobilité électronique

élargit les niveaux de Landau et peut conduire à un rapprochement des bords de mobilités, augmentant ainsi la dissipation par activation. L'ordre de grandeur de la largeur du niveau de Landau, du fait du désordre dans l'approximation de Born, est donné par \hbar/τ_{tr} [141]. Pour limiter les diffusions inter-niveaux de Landau, il faut que l'espacement entre deux niveaux de Landau soit bien plus large que l'étalement du niveau de Landau, c'est-à-dire $\hbar\omega_c \gg \hbar/\tau_{tr}$. Pour les gaz bi-dimensionnels à base de semi-conducteurs à bande parabolique, la condition s'écrit $\mu B \ll 1$ avec $\omega_c = eB/m^*$ et $\tau_{tr} = \mu m^*/e$. Pour l'étalon LEP514, de mobilité électronique $\mu = 300000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ fonctionnant à $B = 10,7 \text{ T}$ sur le plateau $\nu = 2$, on calcule $\mu B = 321 \gg 1$. Pour le graphène et pour $\nu = 6$, la condition devient : $\mu B\sqrt{\nu}(\sqrt{2} - 1) \gg 1$ car $\omega_c = v_F\sqrt{2}(\sqrt{2} - 1)/l_B$ et $\tau_{tr} = \frac{\hbar\mu\sqrt{\pi n_s}}{v_F e}$. Dans le cas présent, la barre de Hall 12159-3-1 ayant une mobilité électronique $\mu = 2180 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ et fonctionnant à $B = 13,3 \text{ T}$ sur le plateau $\nu = 6$, le calcul donne $\mu B\sqrt{\nu}(\sqrt{2} - 1) = 2,9$, ce qui est légèrement plus grand que 1. L'espacement entre les deux niveaux de Landau est un peu faible pour pouvoir observer une quantification exacte. À titre de comparaison on peut faire le même calcul pour le plateau $\nu = 2$ qui est parfaitement quantifié à $B = 14 \text{ T}$ à des incertitudes métrologiques pour $n_s = 3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ alors que la mobilité électronique est $\mu = 3500 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. On obtient $\mu B\sqrt{\nu} = 7$ qui est plus grand que 1 et deux fois plus important que pour le plateau $\nu = 6$ à $13,3 \text{ T}$ pour $n_s = 12 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. L'écart entre les niveaux de Landau est suffisant pour observer la présence du plateau $\nu = 6$ mais à cause de la faible mobilité électronique, ce plateau n'est pas bien quantifié.

La courbe 6.14 b) récapitule les différentes valeurs des écarts de la valeur de la résistance de Hall mesurés à différentes densités et à différents champs magnétiques. La modulation de la densité par la décharge corona permet bien de modifier la densité électronique de manière quasi-réversible, sans endommager l'échantillon. Le dépôt d'ions en surface permet de diminuer ou d'augmenter la densité afin d'obtenir une quantification de la valeur de la résistance de Hall à des champs magnétiques inaccessibles avec la densité initiale, en contre-partie, à basse densité le courant de mesure doit diminuer afin de maintenir un niveau de quantification équivalent. Il s'agit probablement d'un effet de l'inhomogénéité de la densité.

Mesures de courant de rupture

En parallèle des mesures de quantification de la résistance de Hall, des mesures de résistance longitudinale ont été effectuées en régime continu sur les barres de Hall de la plaquette 12159-3 pour déterminer le courant de rupture de l'effet Hall quantique. Les courants de ruptures sont définis lorsque la résistance longitudinale par carré atteint $100 \mu\Omega$. La figure 6.15 a) montre les densités de courant de rupture $j_c = I_c/W$ en fonction des densités électroniques, pour les barres de Hall 12159-3-1, 12159-3-2 et 12159-3-p4. Les mesures ont été faites à $1,3 \text{ K}$ et à un champ magnétique $B = 14 \text{ T}$. Pour $n_s < 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ce champ magnétique correspond au minimum de dissipation. La dépendance du courant de rupture des trois barres de Hall par rapport à la densité en électron est la même : les courants de rupture montrent une décroissance linéaire avec la densité électronique pour $n_s < 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Plus la densité électronique est faible, plus la robustesse de l'effet Hall quantique l'est également. Le courant de rupture de l'effet Hall quantique est bien plus faible

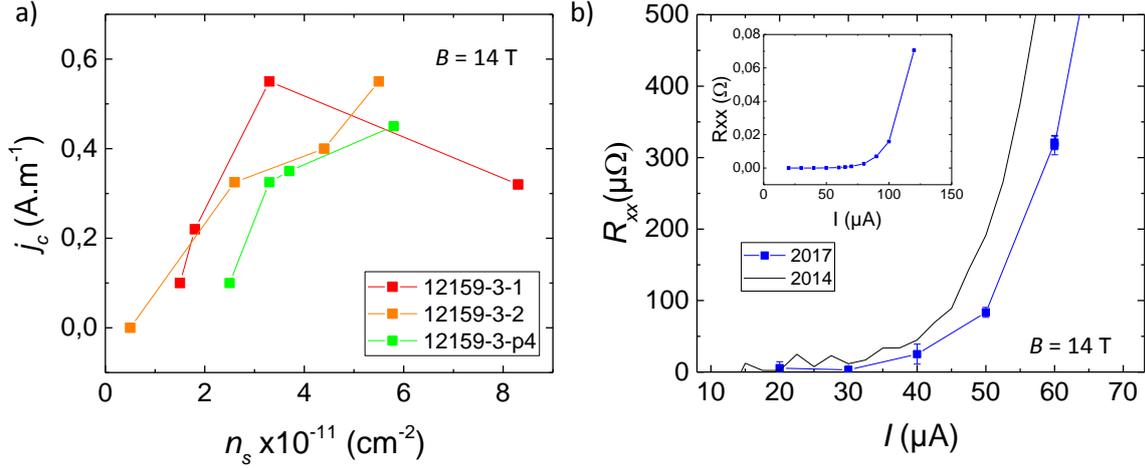


FIGURE 6.15 – a) Densités de courant en fonction de la densité électronique. b) Résistance longitudinale par carré en fonction du courant. Les deux courbes représentent la barre de Hall 12159-3-1 pour $n_s = 3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, qui est la densité originale (noire), et $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ après plusieurs modifications de la densité par décharge corona (bleu).

dans la barre de Hall 12159-3-1 que dans la barre de Hall 13051-b même pour des densités électroniques identiques alors que la barre de Hall 12159-3-1 est cinq fois plus large. Les densités de courant de rupture sont toutes proches les unes des autres à densités électroniques égales. Cela suggère que dans les barres de Hall de la couche de graphène et en régime d'effet Hall quantique, le courant de rupture est proportionnel avec la largeur W de la barre de Hall. La densité de courant de rupture est déterminée par des paramètres intrinsèques de la couche de graphène. La dépendance commune en n_s suggère qu'elle est déterminée par un paramètre de la couche : l'inhomogénéité intrinsèque. Des résultats similaires ont été observés dans des barres de Hall de GaAs/AlGaAs [61, 90]. Le point à la densité électronique $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ est en dehors du plateau $\nu = 2$ à cause de la forte densité électronique, c'est pourquoi le courant de rupture est plus faible et ne suit pas la tendance générale.

Après que la densité de la barre de Hall 12159-3-1 a été modifiée plusieurs fois, il a été possible de réajuster la densité à sa valeur d'origine, $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. À cette densité, on retrouve un comportement similaire et un courant de rupture de $55 \mu\text{A}$, identiques à ce qui avait été trouvé il y a 3 ans [81], figure 6.15 b). La barre de Hall a entre temps été décâblé, puis recâblé, a subi plusieurs cyclages thermiques ainsi que plusieurs modifications de la densité par décharge corona. Cela met en évidence plusieurs points importants comme la stabilité de la couche sur plusieurs années et aussi que le dopage corona n'affecte pas les propriétés de quantification de R_H . La modification de la densité de porteurs par décharge corona est réversible et n'altère pas les propriétés de la barre de Hall.

La modulation du dopage a permis de mettre en évidence que des barres de Hall dont les densités électroniques sont identiques ont des propriétés différentes en régime d'effet Hall quantique. Ces différences peuvent provenir de l'effet de l'inhomogénéité de n_s ainsi que de l'effet de la diffusion à courte portée, mais il reste des

problématiques ouvertes. Comment expliquer l'évolution du courant de rupture de l'effet Hall quantique avec l'évolution de la densité ? La persistance du plateau de Hall vers des champs magnétiques élevés suggère que le facteur de remplissage ν reste fixé à la valeur 2 ce qui indique ainsi que la compréhension du dopage dans ces barres de Hall doit être améliorée. Pour tenter de répondre à ces problématiques, le transfert de charges entre le ZLG et le graphène doit être pris en compte et il faut également chercher à comprendre les mécanismes de dissipation présents dans ces barres de Hall.

6.6 La théorie du transfert de charges

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 5, la théorie du transfert de charges de Kopylov [76] permet d'expliquer la très grande largeur du plateau. Cette théorie décrit l'évolution de la densité n_s en fonction du champ magnétique B en considérant que des porteurs de charge peuvent être transférés de la ZLG vers le graphène. La densité électronique peut être décrite par l'équation :

$$\gamma [A - 4\pi e^2 d(n_s + n_g) - \epsilon_F] = n_s + n_g \quad (6.4)$$

avec :

- γ , la densité d'états de donneurs de la ZLG
- $A = 0,4$ eV, la différence entre les travaux de sortie du graphène non dopé et la ZLG
- $d = 0,3$ nm, la distance entre le graphène et la ZLG
- n_s , la densité de porteur du graphène
- n_g , la densité de porteur transférée à la grille, dans notre cas le polymère PMMA/ZEP520A, ainsi que les ions déposés en surface par décharge corona.

La figure 6.16 a) présente les différents régimes du transfert de charges pour de forts champs magnétiques en régime d'effet Hall quantique. La partie I correspond au niveau de Landau $N = 1$ à demi-rempli, dans la partie II le facteur de remplissage est verrouillé sur la valeur $\nu = 2$ et pour la zone III le niveau de Landau $N = 0$ est demi-rempli.

Dans les systèmes semi-conducteurs usuels, en régime d'effet Hall quantique le minimum de dissipation et le maximum de courant de rupture, indiquent le champ magnétique pour lequel le facteur de remplissage est entier. Dans le modèle du transfert de charges, on s'attend à obtenir le minimum de dissipation et le maximum de courant de rupture au champ magnétique le plus élevé pour lequel le facteur de remplissage est entier. Cela permet de déterminer le champ magnétique pour lequel le transfert de charge se termine. Cette propriété est l'une des deux conditions pour déterminer les valeurs des paramètres γ et n_g dans nos barres de Hall de graphène. La deuxième condition est que la densité de départ doit être celle observée à champ nul en utilisant l'effet Hall classique.

6.6.1 Le transfert de charges appliqué à la barre de Hall 13051-b

Nous avons pu voir précédemment que le plateau $\nu = 2$ commence à plus ou moins bas champ magnétique selon la densité électronique du graphène. Nous n'avons cependant jamais observé la fin du plateau à fort champ magnétique. Par exemple, pour la barre de Hall 13051-b, avec une densité électronique à champ nul $n_s(B = 0) = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le facteur de remplissage $\nu = 2$ s'obtient à partir d'un champ magnétique $B = \hbar n_s / e\nu = 3,7 \text{ T}$. À $B = 14 \text{ T}$, dans l'hypothèse où il n'y a pas de transfert de charge, on calculerait $\nu = 0,5$, donc la fin du plateau devrait être observée, ce qui n'est pas le cas. Les mesures métrologiques des résistances longitudinale et transverse mettent en évidence un minimum de dissipation pour un champ magnétique compris entre 4,5 et 8 T (figure 6.8 a)). Enfin, c'est à $B = 8 \text{ T}$ que le courant de rupture est maximal et atteint $500 \mu\text{A}$ (figure 6.8 c)). C'est éléments suggèrent l'existence d'un transfert de charges de la ZLG vers le graphène.

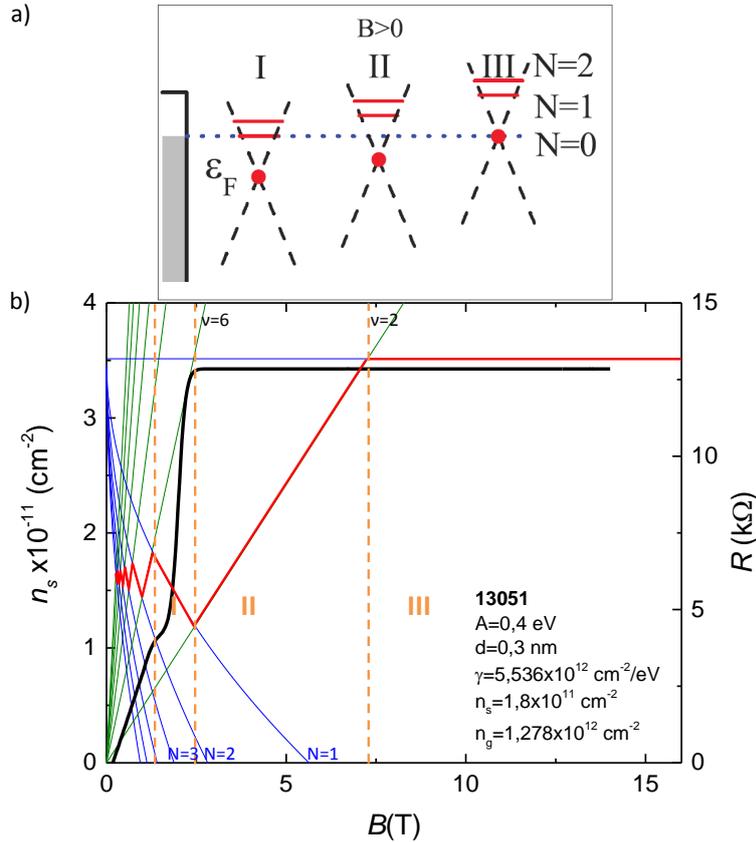


FIGURE 6.16 – a) Schéma de principe du transfert de charges du substrat de SiC vers le graphène sous fort champ magnétique. Figure extraite de [55]. b) En rouge, l'évolution de la densité de porteurs en fonction du champ magnétique. La valeur de la résistance de Hall mesurée en fonction du champ magnétique est en noir.

Sur la figure 6.16 b), les traits bleus correspondent à l'évolution de la densité

pour les niveaux de Landau N et évoluent selon l'équation :

$$n_s^N(B) = n_\infty - \frac{\gamma \hbar v_F \sqrt{2N}/l_B}{1 + e^2 \gamma / Cc} \quad (6.5)$$

avec $Cc = 1/(4\pi d)$ est la capacité classique par unité de surface. Les traits verts correspondent à l'évolution de la densité de porteurs en fonction de B selon $n_s^\nu = e\nu B/h$ pour différents ν . Il est possible de distinguer trois régions.

La région I représente le niveau de Landau $N=1$ partiellement rempli. Dans cette région, la densité électronique $n_s^{N=1}(B)$ évolue comme :

$$n_s^{N=1}(B) = n_\infty - \frac{\gamma \hbar v_F \sqrt{2}/l_B}{1 + e^2 \gamma / Cc} \quad (6.6)$$

avec

$$n_\infty = \frac{A\gamma}{1 + e^2 \gamma / Cc} - n_g \quad (6.7)$$

qui est la densité électronique dans le graphène pour une induction magnétique infinie, c'est-à-dire lorsque $\epsilon_F = 0$. L'équation 6.6 est tracée en bleu avec l'indice $N = 1$ sur la figure 6.16 b). On note $B_{1,h}$ le champ minimal à partir duquel le niveau $N = 1$ commence à se remplir et $B_{1,l}$, le champ où le niveau est complètement rempli avec :

$$B_{1,h} = \frac{h}{2e} \left[\sqrt{n_\infty + \frac{\pi}{2} \left(\frac{\gamma v_F \hbar}{(1 + e^2 \gamma / Cc)} \right)^2} - \sqrt{\frac{\pi}{2} \frac{\gamma v_F \hbar}{(1 + e^2 \gamma / Cc)}} \right]^2 \quad (6.8)$$

et

$$B_{1,l} = \frac{h}{6e} \left[\sqrt{n_\infty + \frac{\pi}{6} \left(\frac{\gamma v_F \hbar}{(1 + e^2 \gamma / Cc)} \right)^2} - \sqrt{\frac{\pi}{6} \frac{\gamma v_F \hbar}{(1 + e^2 \gamma / Cc)}} \right]^2 \quad (6.9)$$

L'intervalle de champ magnétique de $B_{1,l}$ à $B_{1,h}$ définit la région I.

La seconde région II correspond à une énergie de Fermi se trouvant entre les deux niveaux de Landau $N = 1$ et $N = 0$. Un transfert de charges de la ZLG vers la couche active du graphène a lieu, ce qui permet de conserver un facteur de remplissage constant $\nu = 2$ lorsque le champ magnétique augmente. Ce transfert de charges a lieu jusqu'à un champ B_{III} défini par :

$$B_{III} = \frac{h n_\infty}{2e} \quad (6.10)$$

La troisième région commence lorsque le champ magnétique dépasse B_{III} . La densité des porteurs de charges devient constante et vaut n_∞ . Le niveau de Landau $N = 0$ est alors complètement rempli. Le facteur de remplissage commence alors à décroître jusqu'à 0, lorsque le champ magnétique est encore augmenté.

Nos observations suggèrent donc que le facteur de remplissage resterait à la valeur $\nu = 2$ pour un champ magnétique allant de 2,5 T à 8 T, valeur de champ où

le courant de rupture de l'effet Hall quantique est maximum. Sur la figure 6.16 b), la résistance de Hall de la barre de Hall 13051-b en fonction du champ magnétique est tracée en noir. La courbe rouge est l'évolution de la densité de porteur si on applique le modèle du transfert de charges de Kopylov à notre barre de Hall. Les paramètres utilisés pour ajuster le verrouillage de $\nu = 2$ entre 2,5 T et 8 T, ainsi que le minimum de dissipation sont $\gamma = 5,536 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_g = 1,278 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles obtenues par le NPL pour du graphène obtenu par décomposition thermique de la face silicium d'un substrat SiC [57].

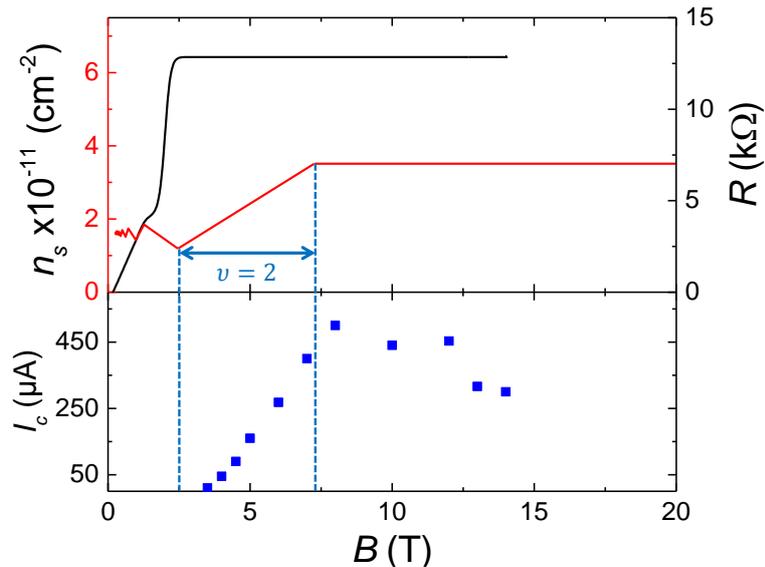


FIGURE 6.17 – Parallèle entre l'évolution de la densité, de la résistance de Hall et des courants de rupture, en fonction du champ magnétique, pour la barre de Hall 13051-b.

La partie supérieure de la courbe 6.17 reprend $R_H(B)$ ainsi que l'évolution de la densité de porteurs avec le champ magnétique en présence de transfert de charges tel que présenté dans la figure 6.16 b) et les compare avec les courants de rupture qui sont représentés sur la partie inférieure, en fonction du champ magnétique. Comme on a pu le voir dans la partie 6.3.1, le courant de rupture atteint un maximum à 8 T puis décroît lentement avec le champ magnétique. Le modèle de transfert de charges, avec ces paramètres $\gamma = 5,536 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ et $n_g = 1,278 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, permet de bien rendre compte de l'évolution du courant de rupture avec le champ magnétique.

6.6.2 Le transfert de charges appliqué aux barres de Hall de la plaquette 12159-3

Pour visualiser l'influence des paramètres clefs du modèle et pour illustrer plus en détail le processus d'ajustement des courbes expérimentales par le modèle, nous allons décrire le cas de la barre de Hall 12159-3-1 [81]. La figure 6.18 a) représente l'évolution de la densité électronique à partir d'une valeur à champ nul $n_s = 3,5 \times$

10^{11} cm^{-2} . Dans un souci de clarté, seulement les courbes $n_s^{N=0}(B)$ et $n_s^{N=1}(B)$ sont représentées dans une couleur différente pour chaque valeur de n_g ainsi que $n_s^{\nu=2}(B)$ en trait gras. La flèche noire représente l'évolution croissante de n_g . n_g varie entre $1,4 \times 10^{12} \text{ cm}^2$ et $1,61 \times 10^{12} \text{ cm}^2$ par pas de $3 \times 10^{10} \text{ cm}^2/\text{eV}$, γ est fixe et vaut $\gamma = 8,56 \times 10^{12} \text{ cm}^2/\text{eV}$. La courbe $n_s^{N=1}(B)$ pour une densité n_g donnée coupe la courbe $n_s^{\nu=2}(B)$ à un champ magnétique d'autant plus faible que la densité n_g est plus grande. La largeur en champ magnétique sur lequel le facteur de remplissage vaut $\nu = 2$ est déduite de l'évolution $n_s^{\nu=2}(B)$ représentée par les traits noirs (rouges) épais pour la densité n_g la plus faible $1,4 \times 10^{12} \text{ cm}^2$ (grande $1,61 \times 10^{12} \text{ cm}^2$). Le verrouillage $\nu = 2$ apparaît pour des champs magnétiques d'autant plus faibles que n_g est grand. La fin du transfert de charges pour lequel $\nu = 2$ se termine également à champ magnétique d'autant plus faible que n_g est grand. ν reste égale à 2 sur une gamme de champ magnétique plus importante lorsque n_g est faible. Augmenter n_g permet un début du transfert de charges à plus bas champ magnétique et raccourcit la gamme de champ magnétique sur lequel le transfert de charges s'opère. Il est donc possible de modifier la gamme de champ magnétique sur laquelle le facteur de remplissage est entier en modifiant la densité de la grille.

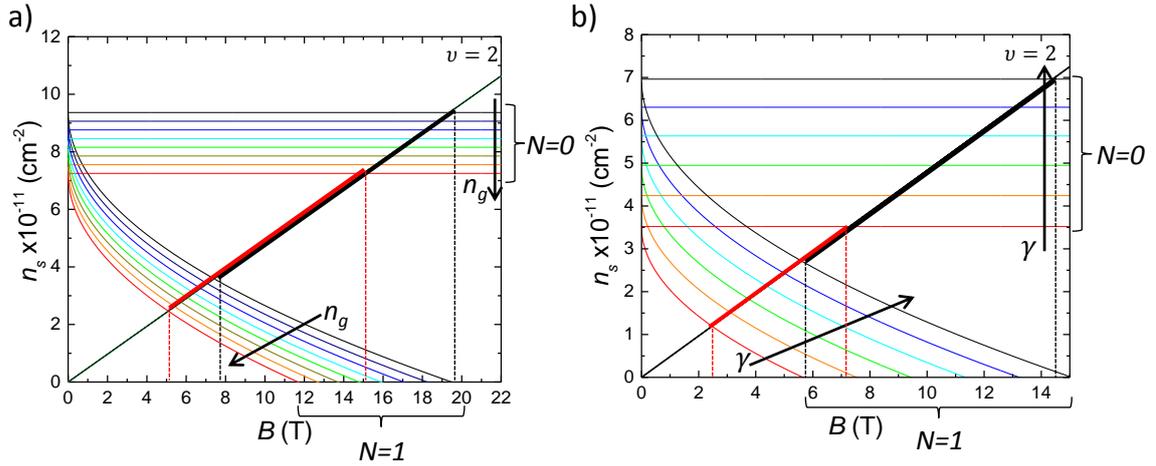


FIGURE 6.18 – Évolution de la densité de porteurs en fonction du champ magnétique. Sont représentées les courbes $n_s^{\nu=2} = 2eB/h$ ainsi que les courbes $n_s^{N=0}(B)$ et $n_s^{N=1}(B)$. Pour la courbe a), γ est constant et différentes densités n_g sont représentées. Les flèches noires indiquent le sens de n_g croissant. Pour la courbe b), n_g est constant et différents γ sont représentés, les flèches noires indiquent le sens de γ croissant.

Pour la courbe 6.18 b), la densité $n_g = 1,28 \times 10^{12} \text{ cm}^2$ est constante, le paramètre qui varie est γ . La flèche noire montre l'évolution croissante de la valeur de γ entre $5,23 \times 10^{12} \text{ cm}^2$ et $6,74 \times 10^{12} \text{ cm}^2/\text{eV}$ par pas de $3 \times 10^{11} \text{ cm}^2/\text{eV}$, $n_s^{N=0}(B)$ et $n_s^{N=1}(B)$ sont représentés dans une couleur différente pour chaque valeurs de γ . L'extension en champ magnétique sur laquelle le facteur de remplissage vaut $\nu = 2$ est déduite de l'évolution de $n_s^{\nu=2}(B)$ représentée par les traits noirs (rouges) épais pour des valeurs de γ grandes (faibles). Pour de faibles valeurs de γ , la fin du transfert de charges est atteint à plus faible champ magnétique et la gamme de champ magnétique où $\nu = 2$ est également plus faible. À $n_s(B=0)$ donné, dans le but d'obtenir une barre de Hall fonctionnant à faibles champs magnétiques, il faut

donc un faible γ ou un fort n_g , qui permet de diminuer n_s par effet capacitif car le graphène sur SiC est habituellement fortement dopé ($n_s > 10^{13} \text{ cm}^{-2}$).

Dans la thèse de F. Lafont [79], le modèle est appliqué à la barre de Hall 12159-3-1 mais avec une densité $n_s(B = 0) = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. La procédure décrite précédemment a été utilisée afin de trouver les paramètres n_g et γ qui permettent de déduire le mieux les données expérimentales (minimum de dissipation et $n_s(B = 0)$). Les valeurs de A et de d sont fixés et l'on détermine $\gamma = 8,56 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}/\text{eV}$ et $n_g = 1,6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Le résultat de l'évolution de la densité électronique en fonction de B est montrée sur la courbe 6.19 sur laquelle est superposée l'évolution de la résistance de Hall. L'évolution de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique et notamment la position du plateau qui s'étend à partir de $B = 5 \text{ T}$ et s'étend au delà de $B = 19 \text{ T}$, sont en accord avec l'évolution de n_s prédite par le modèle qui prévoit le début de $\nu = 2$ à partir de 5 T .

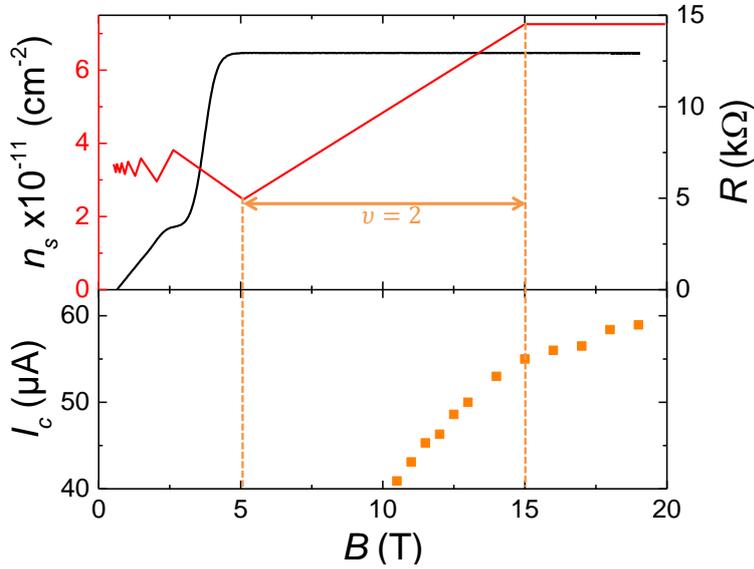


FIGURE 6.19 – Parallèle entre l'évolution de la densité, de la résistance de Hall et des courants de rupture en fonction du champ magnétique, pour la barre de Hall 12159-3-1 sans modification de la densité par décharge corona.

Sur la partie inférieure de la courbe 6.19, sont tracés les courants de rupture de la barre de Hall 12159-3-1 en fonction du champ magnétique. Bien que le minimum de R_{xx} par carré se trouve à 15 T , le courant de rupture ne fait qu'augmenter jusqu'à 20 T . Cela peut s'expliquer par la diminution de l_B avec le champ magnétique qui localise les électrons de plus en plus.

Il est intéressant d'appliquer le modèle à d'autres barres de Hall de la plaquette 12159-3 (12159-3-1, 12159-3-2 et 12159-3-p4) avec des densité électronique initiales ($B = 0$) différentes. Nous faisons l'hypothèse que la densité d'états des porteurs de la ZLG γ est constante sur la totalité de la plaquette et est insensible aux variations de densités $n_s(B = 0)$ et n_g qui est déterminé par le début du plateau. Le comportement

Plaquette	N° de la barre de Hall	Taille (μm)	n_s ($\times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)	n_g ($\times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$)	γ ($\times 10^{12} \text{ cm}^{-2}/\text{eV}$)
13051-b	1	420×100	1,8	1,278	5,536
12159-3	1	420×100	1,8	1,91	8,56
			3,3	1,6	8,56
12159-3	2	420×100	0,5	2,15	8,56
			2,6	1,88	8,56
			5,3	1,28	8,56
12159-3	p4	85×20	3,6	1,64	8,56

TABLE 6.4 – Comparaison entre les différentes valeurs de n_s , n_g et γ , pour les différentes barres de Hall.

de la résistance de Hall avec le champ magnétique est bien mimée par l'évolution de la densité électronique, pour les différentes barres de Hall et densités, les différents paramètres sont donnés dans le tableau 6.4. Un exemple est visible sur la figure 6.20 a) qui concerne la barre de Hall 12159-3-1 pour $n_s(B=0) = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Le modèle du transfert de charges s'applique bien à cette barre de Hall, avec les paramètres $\gamma = 8,56 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}/\text{eV}$ et $n_g = 1,91 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Plus la densité $n_s(B=0)$ est petite plus la densité de porteur doit être compensée par une valeur de n_g grande, conformément à ce qui est attendu dans le cas où les défauts de la ZLG sont répartis de manière homogène sur la plaquette.

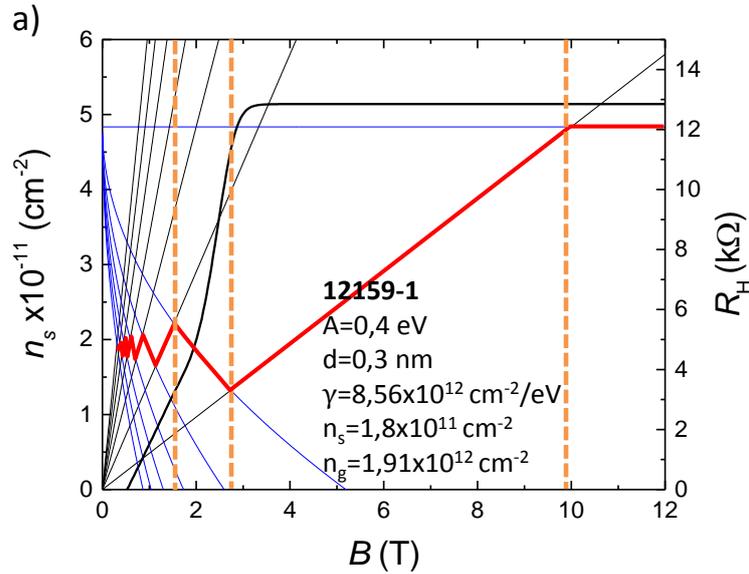


FIGURE 6.20 – a) Évolution de la densité de porteurs (rouge) pour la barre de Hall 12159-3-1 en fonction du champ magnétique, calculée pour les paramètres décrits sur la figure. La résistance de Hall mesurée en fonction du champ magnétique est en noire. La densité à champ nul est $1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (après modulation par décharge corona).

Les valeurs de n_g et de γ sont environ 35 % plus faibles dans la barre de Hall 13051-b que dans la barre de Hall 12159-3-1 pour $n_s(B=0) = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Ces

différences de valeurs modifient la gamme des champs magnétiques pour lesquels le facteur de remplissage reste entier. Dans le cas de la barre de Hall 12159-3-1 à $n_s(B = 0) = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le début du transfert de charges commence aux alentours de 3 T, comme pour la barre de Hall 13051-b, mais se termine à une valeur de champ magnétique un peu plus élevée de 10 T (contre 7,5 T pour le 13051-b). Le fait que γ soit faible dans la barre de Hall 13051-b montre que la ZLG est différente dans les deux plaquettes. Cela peut s'expliquer par le fait que le taux de dihydrogène lors de la croissance du graphène est de 44% pour la plaquette 13051-b, contre 23% pour la plaquette 12159-3. Il a été montré que l'hydrogénation permet d'une part, de saturer les liaisons pendantes donc de diminuer la densité du graphène et d'autre part, de casser les liaisons entre le graphène de la ZLG et le silicium, permettant de découpler partiellement la ZLG du substrat [92, 117]. On peut supposer que la croissance de la ZLG se fait avec moins de contraintes, permettant ainsi une croissance plus homogène. La plus faible valeur de γ dans la barre de Hall 13051-b peut être à l'origine des très forts courants de rupture. Le champ magnétique marquant le début de la quantification est largement dominée par la valeur de $n_s(B = 0)$ mais il est possible que des variations de γ permettent de moduler légèrement la valeur de ce champ magnétique pour $n_s(B = 0)$ donnée.

6.6.3 L'importance des paramètres de croissance

Les différents résultats présentés dans cette partie montrent que la ZLG est un élément important dans la quantification de l'effet Hall quantique dans le système graphène sur SiC. La technique de croissance de graphène CVD (propane/hydrogène) sur SiC apporte une source carbonée externe qui favorise et stabilise la croissance de la ZLG. De plus, l'hydrogénation permet de découpler partiellement la ZLG du substrat. Il en résulte une croissance homogène de la ZLG. Le tout permet d'obtenir une croissance de graphène favorable à l'existence d'un effet Hall quantique très robuste.

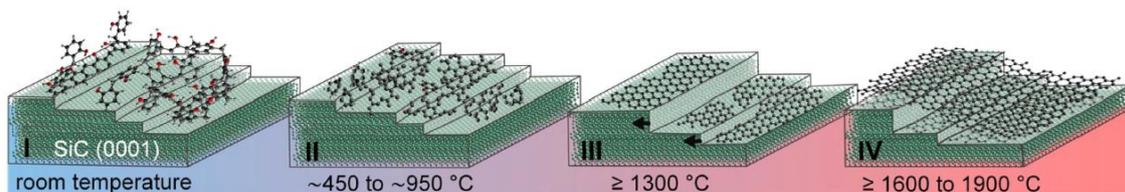


FIGURE 6.21 – Schéma de la croissance de graphène sur SiC assistée par la décomposition d'un polymère. Figure extraite de [78].

Il existe également une autre technique de croissance de graphène sur SiC, qui est cette fois assistée par un polymère carboné. Cette méthode, développée par la PTB, a également permis d'obtenir de bons résultats en métrologie en 2016 [78]. Le principe de la croissance est présenté sur la figure 6.21. Un polymère carboné (AZ5214E) est déposé sur la face silicium du substrat de SiC. L'ensemble est ensuite chauffé jusqu'à 1900°C et le polymère se décompose en même temps que la surface se reconstruit.

Les différentes caractérisations structurales montrent que le graphène recouvre entièrement le substrat. Les résines PMMA/MMA puis ZEP sont ensuite déposées en surface du graphène. Les mesures de transport sur une barre de Hall ont montré une densité en électrons relativement modérée de $7,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et une mobilité électronique de $9500 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ à 2,2 K. La densité électronique a ensuite été modifiée en illuminant la résine photosensible. À la densité électronique $n_s(B = 0) = 1,95 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, un large plateau de Hall $\nu = 2$ est présent et quantifié entre 3 T et 12 T (champ magnétique maximum de l'étude). La grande largeur du plateau peut s'expliquer par le modèle du transfert de charges. La valeur de la résistance de Hall mesurée, sur le plateau $\nu = 2$, à 4,2 K et pour un courant de $38,74 \mu\text{A}$, a été comparée à celle d'un étalon de référence en GaAs/AlGaAs. Un écart relatif de $\Delta R_H/R_H = (6 \pm 9) \times 10^{-10}$ a été mesuré à $B = 10 \text{ T}$. Les auteurs expliquent que de bonnes conditions de croissance ainsi que l'ajout d'une source de carbone externe permettent de favoriser la reconstruction de surface. Il en résulte une faible hauteur de marches du substrat ainsi qu'une absence d'anisotropie dans les propriétés de transport électronique. La croissance du graphène sur la ZLG se fait sans bi-couche mesurables par spectroscopie Raman.

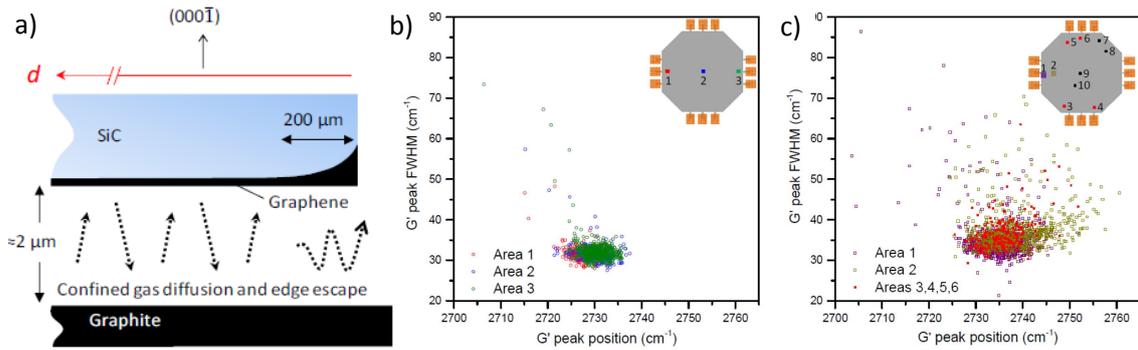


FIGURE 6.22 – a) Schéma de la croissance de graphène sur SiC réalisée au NIST. Corrélation de la FWHM du pic G' obtenu par spectroscopie Raman, pour les échantillons A (figure b)) et B (figure c)) pour différentes zones observées. Figures extraites de [138].

Un consortium de laboratoires mené par le NIST a également observé l'importance des paramètres de croissance pour la robustesse de l'effet Hall quantique [139]. Ils ont étudié du graphène épitaxié sur la face silicium d'un substrat de SiC et ont porté une attention particulière aux conditions de croissance afin d'obtenir une faible hauteur de marches atomiques du SiC pour que le graphène soit faiblement contraint et qu'il y ait peu d'anisotropie. On peut noter que lors de la croissance, le substrat de silicium est placé face à du graphite, comme représenté sur la figure 6.22 a). On peut supposer que le graphite peut jouer le rôle d'une source de carbone externe. Des mesures effectuées par spectroscopie Raman ont montré que les valeurs de la largeur totale à mi-hauteur du maximum d'une Lorentzienne (FWHM) du pic G' (en fonction de la position du pic G') sont très peu dispersées spatialement pour l'échantillon A (figure 6.22 b)), ce qui indique que le graphène est faiblement contraint mécaniquement [35,36]. Les mesures de précision ont montré que la résistance de Hall était quantifiée à 5×10^{-9} près, jusqu'à des courants de $720 \mu\text{A}$ à 3,1 K et 9 T. La densité

électronique était de $n_s = 2,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ avec une mobilité électronique $\mu = 5800 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. Dans l'échantillon B, les mesures Raman (figure 6.22 c)) montrent une plus grande dispersion spatiale des valeurs de FWHM en fonction de la position du pic G'. Ceci est interprété par des contraintes inhomogènes ainsi que la présence de bi-couches de graphène. Il en résulte un courant de rupture plus faible, ainsi que des écarts ΔR_H plus importants, la robustesse de l'effet Hall quantique est donc amoindrie. Les auteurs concluent qu'une faible hauteur de marche du substrat de SiC permet d'obtenir un graphène faiblement contraint mécaniquement, favorisant la robustesse de l'effet Hall quantique [139]. Bien que cet article ne discute pas directement de la qualité de la ZLG, les conclusions tirées pour le graphène peuvent être étendues à la ZLG car elle est à l'interface entre le graphène et le substrat, par conséquent, elle subit le même type de contrainte.

Les mesures réalisées au NIST et à la PTB montrent qu'une reconstruction de surface favorisée par la présence d'une source carbonée externe et avec de faibles hauteurs de marches atomiques, permettent d'obtenir des courants de rupture importants. On peut faire le parallèle entre ces résultats et les mesures présentées précédemment où nous avons montré que le courant de rupture est plus important dans la barre de Hall 13051-b, qui présente une valeur de gamma plus faible que les barres de Hall de la couche 12159-3. On peut supposer qu'une reconstruction de surface stabilisée et une ZLG peu contrainte permettent d'obtenir une faible valeur de gamma et un effet Hall quantique robuste.

6.7 Le modèle de saut à portée variable dans les barres de Hall 12159-3

Afin de comprendre la robustesse de l'effet Hall quantique et déterminer quels paramètres font que la barre de Hall 13051-b à une quantification plus robuste en termes de conditions expérimentales que la barre de Hall 12159-3-1, nous avons étudié la dépendance en température et en courant de la conductivité $\sigma_{xx} = R_{xx}/(R_{xx}^2 + R_H^2)$, tout d'abord sur les barres de Hall de la plaquette 12159-3 puis sur les barres de Hall 13051-b et 16545. Les mesures de R_{xx} ont été réalisées, soit avec le CCC à très basse fréquence (2 Hz), soit en régime continu pour avoir un maximum de précision et de fiabilité.

6.7.1 Effet de la température sur la conductivité

Pour la barre de Hall 12159-3-1, une étude précédente [81], a montré que la dépendance en température de σ_{xx} pouvait s'expliquer par un mécanisme de rétro-diffusion fondé sur des sauts à portée variable avec présence d'un gap de Coulomb (VRH de E-S). Sur la figure 6.23 a) est tracé $T \cdot \sigma_{xx}$ en échelle logarithmique, en fonction de $T^{-1/2}$. Dans cette représentation les données s'ajustent par des droites, ce qui montre que la dissipation à l'œuvre est bien décrite par le modèle de VRH avec présence d'un gap de Coulomb qui prédit, à $I = 0$, la dépendance de la conductivité

suivant :

$$\sigma_{xx}(T) = \sigma_{xx}^0 \exp \left[- \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/2} \right] \quad (6.11)$$

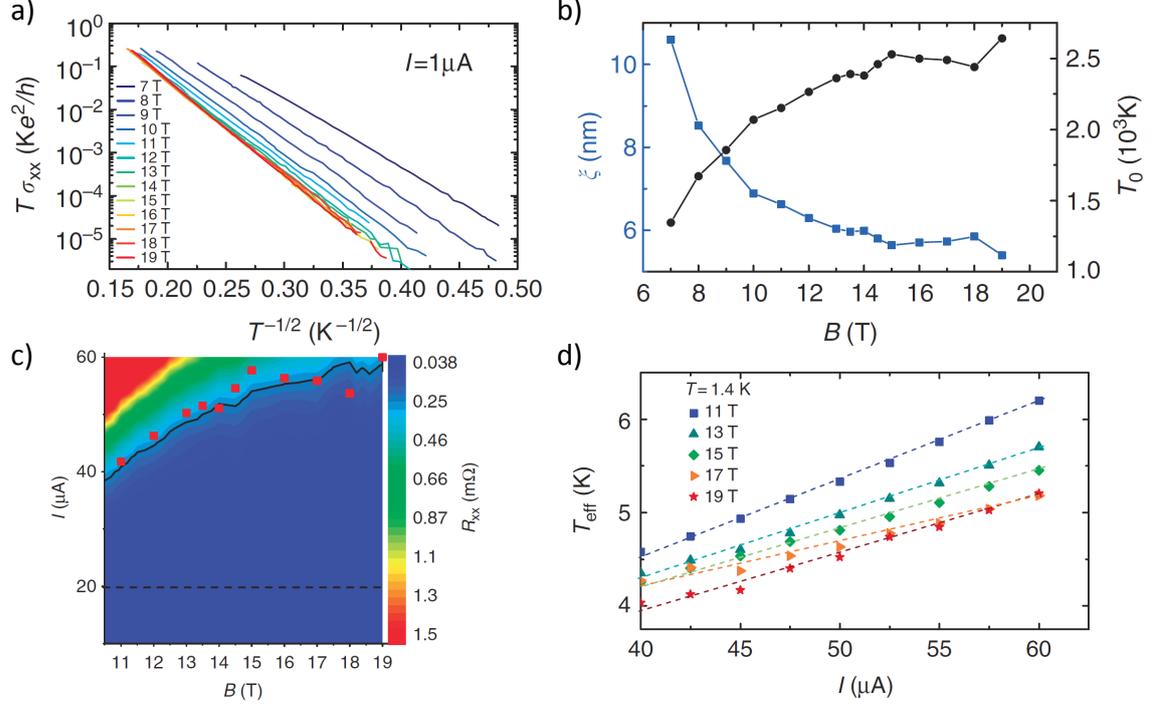


FIGURE 6.23 – a) $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour la barre de Hall 12159-3-1 à différentes densités comprises entre 7 T et 19 T pour un courant de $1 \mu\text{A}$. b) ξ et T_0 en fonction du champ magnétique B . c) Mesure de la résistance longitudinale par carré en fonction du courant de mesure et de B . Les points rouges représentent $\xi(B)^{-2}$. Le trait noir correspond au courant de rupture I_c de l'effet Hall quantique en fonction de B , défini comme le courant pour lequel $R_{xx} < 0,25 \text{ m}\Omega$. d) Température effective T_{eff} mimant l'effet du courant, en fonction du courant de mesure I , pour différents champs magnétiques. Figures extraites de [81].

Les pentes des courbes d'ajustement pour les différents champs magnétiques permettent d'extraire $T_0(B)$. La longueur de localisation $\xi(B)$ peut être obtenue à partir des valeurs des $T_0(B)$ car $\xi(B)$ et $T_0(B)$ sont reliés par la relation :

$$\xi(B) = \frac{C e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r k_B T_0(B)} \quad (6.12)$$

Les valeurs de $\xi(B)$ ont été calculées à partir de celles de $T_0(B)$ en supposant $C = 6,2$ [98] et $\epsilon_r = 7,25$, cette valeur est la moyenne entre la perméabilité diélectrique du SiC ($\epsilon_{SiC} = 10$) et celle de la PMMA ($\epsilon_{PMMA} = 4,5$). L'évolution de $T_0(B)$ ainsi que l'évolution de $\xi(B)$ sont représentées sur la figure 6.23 b) en fonction de B . $\xi(B)$ décroît fortement jusqu'à 15 T pour atteindre des valeurs inférieures à 6 nm, puis reste stable jusqu'à 19 T.

Les valeurs de la longueur de localisation sont petites, proches de la longueur magnétique. Le comportement de $\xi(B)$ avec l_B peut être étudié en calculant le rapport de ces deux grandeurs en fonction du champ magnétique. Sur la figure 6.24 a), ξ/l_b décroît avec l'augmentation du champ magnétique jusqu'à 10 T, se stabilise jusqu'à 15 T puis augmente avec le champ magnétique. Pour un facteur de remplissage proche de 2, il a été proposé que $\xi(B)$ devrait être proche du rayon cyclotron classique [39] $r_c = \hbar k_F / eB$, où k_F est le moment de Fermi. Dans le graphène, $k_F = \sqrt{\pi n_s}$ donc $r_c = l_B(B) \sqrt{\nu/2}$. Le rayon cyclotron évolue donc comme la longueur magnétique si le facteur de remplissage est constant. Le fait d'observer ξ/l_B constant dans la barre de Hall 12159-3-1, peut donc s'interpréter comme une preuve que $\nu(B)$ est constant à $\nu = 2$, de 10 à 15 T. L'augmentation de ξ/l_B de 15 T jusqu'à 19 T peut montrer la fin du transfert de charges et la sortie du plateau $\nu = 2$, ce qui est en accord avec les mesures de résistance longitudinale où le minimum est trouvé à 15 T.

Une étude complémentaire de l'évolution de $T \cdot \sigma_{xx}$ en fonction de $T^{-1/2}$ a été réalisée à différentes densités électroniques, sur la barre de Hall 12159-3-1 ainsi que sur la barre de Hall 12159-3-p4. Les résultats des mesures à $B = 14$ T sont présentés sur la figure 6.24 b). Le trait continu vert correspond à la mesure présentée sur la figure 6.23 a) à 14 T. Lorsque $T \cdot \sigma_{xx}$ est représenté en échelle logarithmique en fonction de $T^{-1/2}$, les courbes d'ajustement sont linéaires pour toutes les densités. Cela démontre que le mécanisme de dissipation est bien du VRH de type E-S, jusqu'à des températures de 40 K, quelle que soit la densité électronique.

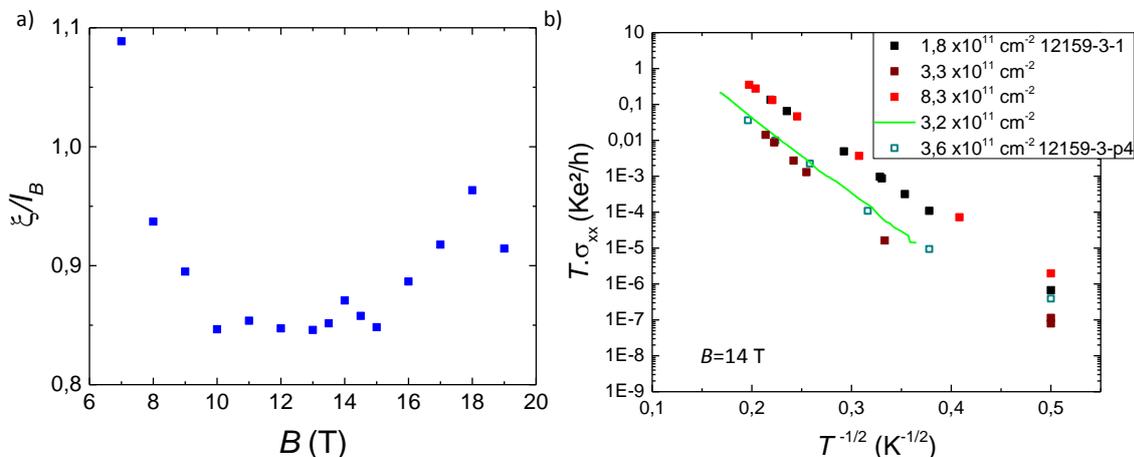


FIGURE 6.24 – a) ξ/l_B en fonction du champ magnétique pour la barre de Hall 12159-3-1 et $n_s = 3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. b) $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour différentes barres de Hall, différentes densités, à 14 T et pour un courant de $1 \mu\text{A}$. Les carrés pleins, ainsi que le trait vert, correspondent à la barre de Hall 12159-3-1 et les carrés vides le 12159-3-p4.

Les valeurs de T_0 et de ξ extraites de la conductivité de la courbe 6.24 b) (pour $B = 14$ T), que l'on notera $\xi(\sigma_{xx}(T))$, sont reportées dans le tableau 6.5. À l'exception du point à $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ qui n'est pas sur le plateau $\nu = 2$, les valeurs de T_0 diminuent avec la densité électronique tandis que la longueur de localisation augmente. En effet, dans le modèle VRH, un fort T_0 et une petite longueur de localisation indiquent un effet Hall quantique robuste en température et en courant.

L'évolution des densités de courant de rupture et de la longueur de localisation est visible sur la figure 6.25 pour la barre de Hall 12159-3-1 pour différentes densités électroniques, à $B = 14$ T et $T = 1,3$ K. La densité de courant de rupture atteint un maximum à $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, densité électronique à laquelle la longueur de localisation est minimale et vaut 4,5 nm. Les valeurs de la longueur de localisation sont faibles $\xi(\sigma_{xx}(T)) < 10$ nm pour toutes les densités électroniques. Pour la barre de Hall 12159-3-1, le minimum $\xi(\sigma_{xx}(T)) = 4,5$ nm, à $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, est sensiblement inférieur à la longueur magnétique $l_B(B = 14) = 6,855$ nm à 14 T. Ce n'est pas attendu puisque l_B constitue la taille minimale de la fonction d'onde. On peut cependant expliquer cette faible valeur par l'utilisation d'une valeur du coefficient diélectrique ϵ_r erronée, ou d'une valeur de C erronée. Dans le paragraphe 6.7.2 d'autres hypothèses seront testées.

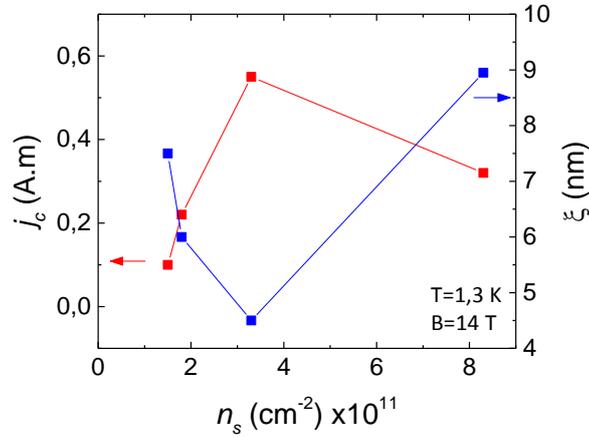


FIGURE 6.25 – Densités de courant de rupture j_c et longueurs de localisation $\xi(\sigma_{xx}(T))$ pour la barre de Hall 12159-3-1 à $B = 14$ T et $T = 1,3$ K, pour différentes densités électroniques.

N° de la barre de Hall	Taille (μm)	n_s ($\times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)	T_0 (K)	$\xi (\sigma_{xx}(T))$ (nm)
1	420×100	1,5	1900	7,5
		3,2	2500	6
		3,3	3200	4,5
		8,3	1600	8,95
p4	85×20	3,6	2100	6,7

TABLE 6.5 – Tableau récapitulant les valeurs de T_0 et de $\xi(\sigma_{xx}(T))$ pour deux barres de Hall, à différentes densités électronique et à $B = 14$ T. Les valeurs de $\xi(\sigma_{xx}(T))$ sont déterminées à partir de la figure 6.24 b).

6.7.2 Effet du courant sur la conductivité

Les travaux précédents avaient également portés sur la dépendance en courant de la conductivité. Dans le modèle VRH de E-S, le courant peut être considéré comme une température effective. La conductivité à température nulle s'écrit :

$$\sigma_{xx}(I) = \sigma_{xx}^0 \exp \left[- \left(\frac{I_0}{I} \right)^{1/2} \right] \quad \text{où} \quad I_0 = \frac{2k_B T_0 W}{e R_H \xi} \quad (6.13)$$

Nous avons renouvelé le même type de mesure sur les barres de Hall de la plaque 12159-3 mais cette fois-ci en conservant la température fixe à $T = 1,3$ K et en modifiant l'intensité du courant. Sur la figure 6.26 a) est tracé $\log(\sigma_{xx}(I))$ en fonction de $I^{-1/2}$ pour les barres de Hall 12159-3-1 et 12159-3-p4, à différentes densités électronique et à $B = 14$ T. On retrouve une très bonne linéarité des courbes d'ajustement dans cette représentation, démontrant que le modèle VRH E-S s'applique dans ces barres de Hall, dans la limite des incertitudes de mesure. À partir de la pente des courbes d'ajustement, les I_0 sont déduits pour les différentes barres de Hall et densités qui sont reportées dans le tableau 6.6. Aux densités mesurées, la valeur de I_0 la plus élevée est atteinte pour la densité électronique $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. C'est aussi la valeur de densité électronique pour laquelle la plus grande valeur de T_0 est mesurée.

À partir de l'équation 6.13 on peut trouver une relation entre la température effective T_{eff} et le courant I :

$$T_{eff} = \frac{e R_H \xi}{2k_B W_{eff}} \times I \quad (6.14)$$

où W_{eff} est la largeur typique sur laquelle la chute du champ électrique de Hall se produit. Dans une barre de Hall parfaite, sans inhomogénéités, $W_{eff} = W$ équivaut à la largeur de la barre de Hall. Le courant I agit comme une température effective T_{eff} distincte des évolutions de σ_{xx} avec la température ou le courant en considérant $\sigma_{xx}(T_{eff}) = \sigma_{xx}(I)$, où $\sigma_{xx}(I)$ est déduit des mesures de $R_{xx}(I)$ de la figure 6.23 c). La figure 6.23 d) montre la relation linéaire entre T_{eff} et I pour toutes les valeurs de B , ce qui confirme le mécanisme de VRH E-S. Il est possible d'en déduire $W_{eff} \approx 7,5 \mu\text{m}$, bien plus faible que la largeur de la barre de Hall qui est de $100 \mu\text{m}$. Cette faible largeur peut être expliquée par l'existence de nombreuses inhomogénéités présentes au niveau du substrat ou bien par les bi-couches de graphène. Dans les deux cas, elles constituent des inhomogénéités au niveau de la densité électronique, capables de modifier la circulation du courant. Des constriction favorisant l'existence de larges champs électriques locaux sont créés, ce qui explique une faible largeur effective W_{eff} .

Pour la barre de Hall 12159-3-1, la largeur effective est plus de deux fois plus faible qu'avant modification de la densité électronique par décharge corona passant de $n_s = 3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ à $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. On peut supposer que l'action du temps et les décharges corona ont apportés des inhomogénéités supplémentaires. Le tableau 6.6 récapitule les différentes largeurs effectives calculées à partir des valeurs de ξ déduites des dépendances en température pour les barres de Hall à plusieurs densités électroniques. Toutes les largeurs effectives sont du même ordre de grandeur,

N° de la barre de Hall	Taille (μm)	Densité ($\times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)	I_0 (μA)	W_{eff} (μm)
1	420×100	1,5	7750	3
		3,2	24000	7,1
		3,3	31350	3,6
		8,3	18220	7,5
p4	85×20	3,6	3140	1

TABLE 6.6 – Tableau récapitulatif des différentes barres de Hall de graphène de la plaquette 12159-3 étudiés. Dans les deux dernières colonnes sont reportées les valeurs de I_0 et de W_{eff} , pour les différentes barres de Hall et densités.

entre 3 et 7,5 μm . Ces largeurs effectives $W_{eff} (< 10 \mu\text{m})$ sont plus petites que la largeur de la barre de Hall (100 μm).

Sur le tableau 6.6, on peut voir que I_0 diminue avec la densité électronique, à l'exception du point à $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. À cette densité électronique le facteur de remplissage est supérieur à 2, la longueur de localisation est donc grande. Par conséquent il est normal d'observer une redimention de I_0 à cette densité électronique. Comme $I_0 = \frac{C_e W_{eff}}{2\pi\epsilon_0\epsilon_r R_H \xi^2}$, son évolution avec la densité électronique implique que la largeur effective W_{eff} ou ξ dépendent de $n_s(B=0)$. Nous avons montré qu'à faible valeur moyenne de densité électronique, plus d'inhomogénéités sont présentes, ce qui pourrait avoir un effet sur ces deux grandeurs. Il est donc cohérent d'observer une diminution de I_0 avec la diminution de la densité.

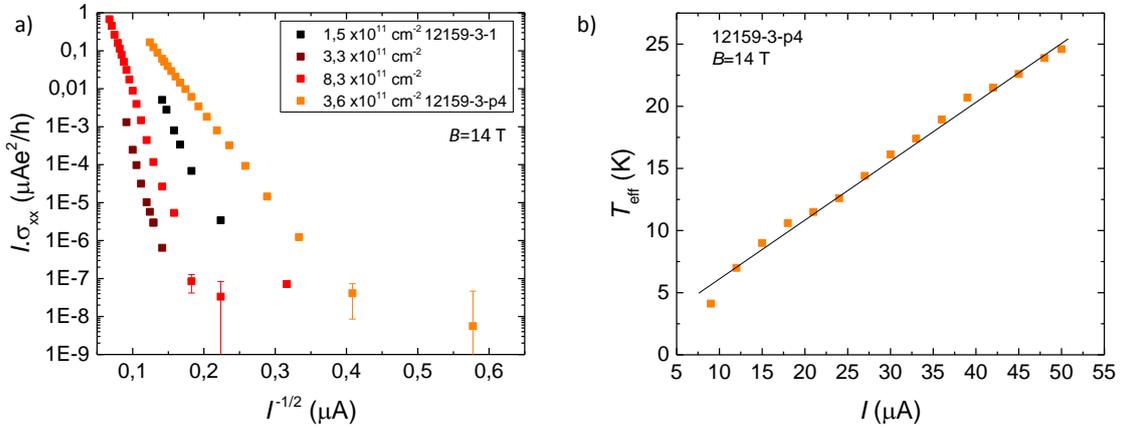


FIGURE 6.26 – a) $\log(I \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $I^{-1/2}$ pour les barres de Hall 12159-3-1 et 12159-3-p4 à $B = 14 \text{ T}$. b) T_{eff} en fonction de I pour la barre de Hall 12159-3-1, défini par $\sigma_{xx}(T_{eff}) = \sigma_{xx}(I)$ à 14 T.

Pour la barre de Hall 12159-3-p4 à la densité électronique $n_s = 3,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et à $B = 14 \text{ T}$, la relation entre T_{eff} et I est visible sur la figure 6.26 b). Elle est linéaire conformément à la relation 6.14. Il est possible d'en déduire $W_{eff} = 1 \mu\text{m}$, plus faible que la largeur de la barre de Hall (20 μm). Cette faible largeur peut être expliquée, là encore, par la présence de nombreuses inhomogénéités présentes au niveau du substrat ou bien par les bi-couches de graphène, qui induisent des inhomogénéités

au niveau de la densité électronique, ce qui explique une faible largeur effective W_{eff} .

N° de la barre de Hall	Taille (μm)	n_s ($\times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)	T_0 (K)	$\xi(\sigma_{xx}(T))$ (nm)	$\xi(W = W_{eff})$ (nm)
1	420×100	1,5	1900	7,5	240
		3,2	2500	6	80
		3,3	3200	4,5	123
		8,3	1600	8,95	104
p4	85×20	3,6	2100	6,7	680

TABLE 6.7 – Comparaison entre les différentes valeurs de ξ pour deux barres de Hall à $B = 14 \text{ T}$ et pour deux méthode de calculs. $\xi(W = W_{eff})$ est défini à partir de l'équation $\xi = \frac{2k_B T_{eff} W}{e R_H I}$, en prenant $W_{eff} = 100 \mu\text{m}$, valeur de la largeur géométrique.

Comme il est démontré sur la figure 6.23 d) et sur la figure 6.26 b) que la relation entre T_{eff} et I est bien linéaire, il est également possible de déterminer ξ à partir de $\xi = \frac{2k_B T_{eff} W}{e R_H I}$ connaissant W . Le courant de rupture augmentant avec la largeur de la barre de Hall, il est possible de faire l'hypothèse que $W = W_{eff} = 100 \mu\text{m}$. Les valeurs de $\xi(W = W_{eff})$ ainsi obtenues sont de l'ordre de la centaine de nanomètre, bien plus importantes que l_B , et sont reportées dans le tableau 6.7. À partir des valeurs de $\xi(W = W_{eff})$ et de T_0 , il est possible de déterminer que $72 < C < 200$ si $\epsilon_r = 7,25$ ou alors $0,2 < \epsilon_r < 0,6$ si $C = 6,2$ selon les différentes densités électroniques pour la barre de Hall 12159-3-1. Ces valeurs sont différentes de celles utilisées pour déterminer $\xi(\sigma_{xx}(T))$ ($C = 6,2$ et $\epsilon_r = 7,25$). On peut se demander quel est l'effet de la ZLG, des inhomogénéités et des bi-couches de graphène sur ces valeurs.

Il est fort probable que l'hypothèse $W = W_{eff} = 100 \mu\text{m}$ ne reflète pas la réalité dans ces barres de Hall, mais elle permet de donner une limite supérieure à la valeur de W_{eff} et par conséquent à ξ . En effet, des études théoriques [130] ont montré que le courant ne circule pas de manière homogène dans la totalité de la barre de Hall bien que le courant de rupture augmente avec W . En régime d'effet Hall quantique une chute de potentiel a lieu près des bords des barres de Hall, ce qui mène à de forts gradients électriques locaux. Cela a pour effet de localiser une partie du courant sur les bords de la barre de Hall, tandis qu'une partie de courant plus faible circule dans le bulk. Cela a été démontré expérimentalement dans des barres de Hall en GaAs/AlGaAs en régime d'effet Hall quantique [3, 41]. De plus, dans le cas de barres de Hall en graphène sur SiC, les bi-couches favorisent également l'existence de larges champs électriques locaux. Nous avons vu précédemment que les bi-couches occupent entre 10 et 15 % de la surface de la barre de Hall, ce qui n'est pas négligeable. Par ailleurs, des valeurs de ξ de l'ordre 100 nm ont certes été mesurées dans du graphène CVD sur métal [80] mais l'effet Hall quantique n'était pas bien quantifié. Il est peu envisageable que $\xi(\sigma_{xx}(T)) \approx 100 \text{ nm}$ en supposant $W = W_{eff}$, alors que la quantification est parfaite. La valeur de ξ la plus proche de nos expériences semble donc être $\xi(\sigma_{xx}(T))$.

6.7.3 Effet combiné de la température et du courant sur la conductivité

Sur la figure 6.27 a) est représentée $T.\sigma_{xx}$ en échelle logarithmique en fonction de $T^{-1/2}$ pour différents courants de mesure à 14 T pour la barre de Hall de petite taille 12159-3-p4. On observe que le comportement de la conductivité est identique pour les deux plus faibles courants (100 nA et 1 μ A), au regard des incertitudes de mesure. $\log(T.\sigma_{xx})$ dépend linéairement de $T^{-1/2}$ pour ces deux courants. Il est possible de décrire les données avec le modèle de VRH E-S en température et d'extraire $T_0 = 1261$ K ainsi que $\xi(\sigma_{xx}(T)) = 6,7$ nm. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles trouvées dans les barres de Hall de grande taille de la plaquette 12159-3.

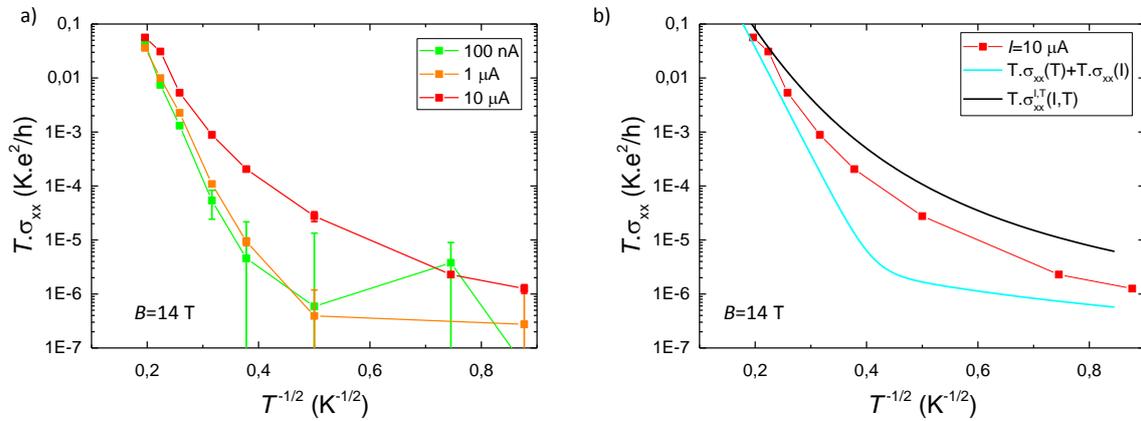


FIGURE 6.27 – a) $\log(T.\sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour la barre de Hall 12159-3-p4, pour différents courants de mesure à 14 T. b) Représentation des différents modèles utilisés afin de décrire la conductivité longitudinale mesurée à 10 μ A de la figure a). La courbe cyan est la représentation de la somme $T.\sigma_{xxE-S}(I) + T.\sigma_{xxE-S}(T)$. La courbe noire est la conductivité calculée à partir de la formule : $\sigma_{xx}^{I,T}(I, T) = \frac{\sigma_0^T}{T^*} \exp\left[-\left(\frac{T_0}{T^*}\right)^{1/2}\right]$, où $T^* = T + \frac{T_0 I}{I_0}$, $T_0 = 2100$ K et $\sigma_0^T = 350$ Ke^2/h sont extraits de la courbe en température à un courant de 1 μ A et $I_0 = 3140$ μ A de la courbe en courant figure 6.26 b).

Lorsque le courant de mesure augmente à 10 μ A, courbe rouge sur la figure 6.27 a), un écart apparaît avec les deux autres courbes, les valeurs de $\log(T.\sigma_{xx})$ sont plus élevées et $\log(T.\sigma_{xx})$ n'est pas linéaire avec $T^{-1/2}$. La conductivité n'est plus décrite par le modèle VRH E-S en température. Dans cette petite barre de Hall, le courant de rupture de l'effet Hall quantique est de 10 μ A et donc équivalent au courant de mesure. Dans ces conditions l'effet du courant de mesure ne peut être négligeable et impacte la probabilité de saut tunnel. Afin de prendre en compte à la fois l'effet du courant et de la température, nous avons essayé de décrire les points à 10 μ A par un modèle qui additionne les deux conductivités extraites du modèle VRH E-S en courant ou en température : $\sigma_{xxE-S}(I = 10 \mu\text{A}) + \sigma_{xxE-S}(T)$ avec $\sigma_0^T = 350$ Ke^2/h , $T_0 = 2100$ K, $\sigma_0^I = 2.10^{-4}$ $\mu Ae^2/h$ et $I_0 = 3140$ μ A. Le résultat est représenté par la courbe bleue sur la figure 6.27 b). Comme attendu, ce modèle est bon aux limites, lorsque soit la température, soit le courant domine fortement. Les

températures intermédiaires sont beaucoup moins bien décrites. Un écart de presque deux ordres de grandeur apparaît lors du changement de régime.

Un autre moyen de décrire cette courbe est de considérer le courant comme une température effective et d'additionner à la température du bain, cette température effective. Nous avons donc utilisé la formule $\sigma_{xx}^{I,T}(I, T) = \frac{\sigma_0^T}{T^*} \exp \left[- \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{1/2} \right]$ pour rendre compte des données, où la température devient une température effective $T^* = T + \frac{T_0 I}{I_0}$ prenant en compte le courant. Lorsque I ou T deviennent négligeables, on retrouve respectivement la formule de VRH E-S en température ou en courant (à part la valeur du pré-facteur σ_0^T ou σ_0^I respectivement). La représentation de ce modèle est représenté en noir sur la figure 6.27 b). Cette description est meilleure. À haute température, la température est largement dominante, le modèle reproduit très bien l'expérience. À basse température, la conductivité calculée est plus importante que la conductivité extraite des données expérimentales. Cet écart provient du pré-facteur σ_0 qui a été déterminé à partir de la courbe en température. Il n'est donc pas parfaitement adapté pour la partie où le courant prédomine. Ce modèle illustre, que dans le modèle VRH E-S, le courant et la température agissent de concert afin d'augmenter la probabilité de saut tunnel.

En conclusion, pour toutes les barres de Hall de la plaquette 12159-3, on observe que le modèle VRH de type E-S permet de rendre compte correctement de l'effet du courant, de la température ou des deux combinés sur la dissipation. Néanmoins, les valeurs des paramètres extraits peuvent être questionnées (W_{eff} longueur sur laquelle varie le champ électrique transverse, ξ la longueur de localisation), même si leurs évolutions avec le champ magnétique ou la densité de porteurs permettent de retrouver des manifestations du verrouillage ν ou de l'inhomogénéité de la densité de porteurs.

6.8 Le modèle de saut à portée variable dans la barre de Hall 13051-b

Les performances exceptionnelles de la barre de Hall 13051-b démontrent une capacité à conserver des valeurs de résistance longitudinale par carré faibles sur de grandes gammes de conditions expérimentales. Nous avons donc étudié la conductivité longitudinale $\sigma_{xx} = R_{xx}/(R_{xx}^2 + R_H^2)$ afin de déterminer la nature du mécanisme de dissipation présent dans cette barre de Hall.

6.8.1 Analyse de la conductivité dans le modèle VRH E-S

L'étude de la conductivité longitudinale de la barre de Hall 13051-b a été réalisée à la densité $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Sur la figure 6.28 a) est représenté $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour plusieurs champs magnétiques et pour un courant de $1 \mu\text{A}$. Ce courant est faible devant les courants de rupture, ce qui permet de négliger l'effet du courant par rapport à l'effet de température. À fort champ magnétique, l'ajustement linéaire de $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ est très bon mais nous verrons plus tard qu'il se dégrade à bas champ magnétique.

Les T_0 et ξ du modèle de VRH de E-S obtenus à partir des courbes de la figure 6.28 a) sont représentés sur la courbe 6.28 b). La température T_0 atteint un maximum

pour un champ magnétique de 8 T, une diminution très lente est ensuite amorcée. Les extrema de T_0 et de ξ sont obtenus pour des valeurs de champ magnétique de 8 T, champ auquel nous avons trouvé également les valeurs de T_c et I_c maximales. La longueur de localisation est très petite dans cette barre de Hall. Bien que les très bonnes performances de cette barre de Hall peuvent être expliquées par la très faible longueur de localisation, on doit cependant noter que cette longueur est bien plus petite que la longueur magnétique, ce qui interroge sur une limitation du modèle VRH E-S à décrire la dissipation dans cette barre de Hall.

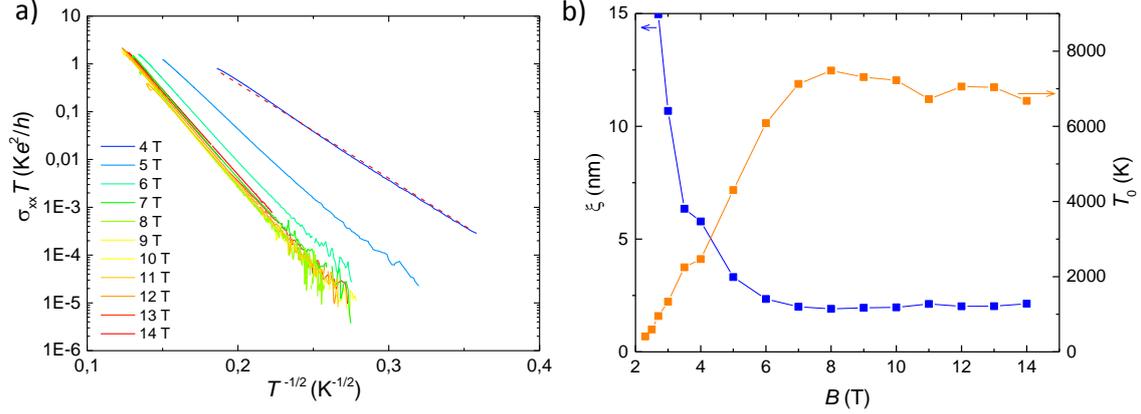


FIGURE 6.28 – a) $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour différents champs magnétiques. Les données sont bien décrites par un modèle de VRH de type Efros et Shklovskii (E-S), avec interaction électron-électron. b) En bleu, la longueur de localisation en fonction du champ magnétique. En orange, la grandeur T_0 , extrait de la courbe a), en fonction du champ magnétique.

Il est possible de déterminer la valeur W_{eff} à partir du rapport I_c/T_c et en considérant les valeurs de ξ extraites de la dépendance en température de $\sigma_{xx}(T)$. La longueur effective W_{eff} extraite du modèle VRH E-S vaut $7 \mu\text{m}$ à 8 T, ce qui est bien plus faible que la largeur de la barre de Hall qui est de $100 \mu\text{m}$. Les W_{eff} des deux barres de Hall 12159-3-1 et 13051-b avant modification de la densité par décharge corona sont similaires, $7,5 \mu\text{m}$ pour le 12159-3-1 contre $7 \mu\text{m}$ pour le 13051-b. Ces faibles écarts montrent que les inhomogénéités sont de même type dans les deux plaquettes. Ce n'est donc pas le paramètre qui est à l'origine des différences sur la robustesse en courant de l'effet Hall quantique entre les plaquettes 12159-3 et 13051-b, à moins que la valeur extraite de W_{eff} dans la barre de Hall 13051-b ne soit erronée.

La très faible valeur de ξ semble montrer une limite du modèle VRH avec un gap de coulomb pour modéliser la dissipation au moins dans la barre de Hall 13051-b. On peut supposer que les inhomogénéités présentes sont particulières et modifient le mécanisme de saut tunnel à portée variable, ce qui pourrait impacter la valeur de $C = 6,2$ qui est calculée à partir d'un modèle de percolation quantique [98]. La valeur de la perméabilité $\epsilon_r = 7,25$ peut également être mise en cause car la ZLG n'est pas prise en compte. À partir des valeurs tirées du modèle de VRH et en supposant que $\xi = l_B = 9 \text{ nm}$ à 8 T, on obtient $C = 31,6$ ou alors $\epsilon_r = 1,4$ dans

cette barre de Hall. En comparaison, une valeur de $T_0 = 12000$ K à 13 T a été trouvée par Tzalenchuk et al. [57] en utilisant le VRH de type E-S pour du graphène produit par sublimation de silicium. En supposant que $\xi = l_B = 9$ nm à 13 T, on obtient $C = 37$ ou alors $\epsilon_r = 1,2$. La ZLG ou les bi-couches de graphène pourraient avoir un effet sur ces constantes. Ces coefficients ont donc besoin d'être déterminés pour le cas particulier qu'est le graphène sur SiC où une ZLG est présente. Le modèle VRH E-S semble montrer des limitations à décrire ce type de graphène où l'effet Hall quantique est très robuste.

Effet combiné de la température et du courant sur la conductivité

On a défini le courant de rupture dans cette barre de Hall comme étant équivalent à l'apparition d'une résistance longitudinale par carré de $30 \mu\Omega$ et un écart $\Delta R_H/R_H = 1 \times 10^{-9}$. Ce niveau de dissipation équivaut à une conductivité $\sigma_{xx} = 4,65 \times 10^{-9} e^2/h$ à température donnée. Il est possible de déterminer le courant permettant d'atteindre cette conductivité en utilisant l'équation :

$$\sigma_{xx}^{I,T}(I, T) = \frac{\sigma_0^*}{T^*} \exp \left[- \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{1/2} \right] \quad \text{avec} \quad T^* = T + \frac{T_0 I}{I_0} \quad (6.15)$$

où $I_0 = (2k_B T_0 W_{eff}) / (e R_H \xi)$ et les différentes grandeurs W_{eff} , T_0 et ξ sont extraits des courbes en température et en courant aux différentes valeurs de champs magnétique. Seule la valeur de $\sigma_0^* = 1 \times 10^4 K e^2/h$ a été ajustée, en effet la valeur de σ_0^T qui est déterminée à partir de la dépendance de la conductivité en température ne permet pas de décrire correctement la dissipation où le courant a un effet important. La figure 6.29 reprend les courants de rupture de la barre de Hall 13051-b (en vert) présentés précédemment dans la partie 6.3.1, tandis que les points bleus sont calculés à partir de l'équation 6.15. La tendance générale de l'évolution du courant de rupture est bien décrite, un maximum de courant de rupture est retrouvé à 8 T puis le courant de rupture calculé diminue avec l'induction magnétique. L'évolution des courants de rupture est globalement bien décrit, à la fois en température et en champ magnétique. Le modèle VRH E-S restitue apparemment bien la cohérence des données en température et en courant et à tous les champs magnétiques.

6.8.2 Dépendance en champ magnétique de la longueur de localisation

Nous avons vu sur la figure 6.28 b) que la longueur de localisation pouvait être plus petite que la longueur magnétique. Afin d'étudier la dépendance de ξ en champ magnétique, le rapport ξ/l_B est présenté sur la figure 6.30 en fonction du champ magnétique. En dessous de 2,5 T, les électrons sont faiblement localisés et $\xi \gg l_B$. À partir de 3 T, la longueur magnétique devient plus grande que la longueur de localisation. Un minimum de ξ/l_B est atteint à 7 T puis une très légère augmentation apparaît jusqu'à 14 T, au moins.

Le fait que le rapport ξ/l_B soit bien plus petit que 1, n'est pas attendu dans un régime d'effet Hall quantique car l_B est la taille minimale de la fonction d'onde. De plus, dans la théorie de la localisation/délocalisation, en dehors du plateau $\nu = 2$, ξ

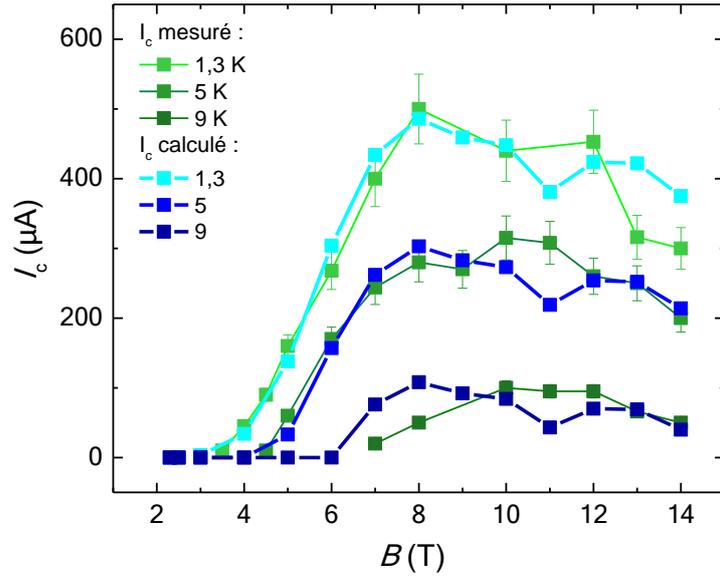


FIGURE 6.29 – En vert, courants de rupture de la barre de Hall 13051-b, en fonction du champ magnétique pour différentes températures. En bleu, les courants de rupture calculés à partir de l'équation 6.15, dans un modèle de VRH E-S.

évolue comme :

$$\xi \propto \xi_0 |\nu - \nu_c|^{-\gamma} \quad (6.16)$$

où ξ_0 dépend du désordre, $\gamma \approx 2,3$ dans un matériau bi-dimensionnel [141] et ν_c correspond au facteur de remplissage lorsque E_F est au centre d'un niveau de Landau. Cette relation a souvent été observée dans le GaAs/AlGaAs [41] et dans le graphène sur SiO₂ [8]. Dans le cas d'un désordre à faible distance, comme démontré par l'analyse de $\mu(n_s)$, il a été montré que $\xi_0 = l_B$ [39, 46] et par conséquent :

$$\frac{\xi}{l_B} \propto \nu^{-2,3} \quad (6.17)$$

Le modèle du transfert de charges ainsi que les mesures de R_{xx} et de R_H laissent penser que le facteur de remplissage n'est plus entier pour un champ magnétique supérieur à 8 T. Au delà de ce champ magnétique, on n'observe pas la remontée de ξ/l_B attendue. Sur la figure 6.30 est tracé en noir $a\nu^{-2,3}$ où $a = 1,08$ est déterminé par le fait qu'à $B = 8$ T, $\nu = 2$ et $\xi = 2$ nm.

La remontée très lente de ξ/l_B a déjà été observée dans des barres de Hall en graphène sur SiC [138] jusqu'à de très forts champs magnétiques. Un rapport ξ/l_B presque constant pourrait former une explication aux plateaux très larges observés dans le graphène sur SiC qui s'étend de 5 T jusqu'à 78 T sur la figure 6.31 a). Sur la figure 6.31 b), est tracé $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$, les courbes étant linéaires prouvent que le mécanisme de dissipation est bien décrit par le VRH de E-S. En utilisant le modèle VRH de E-S les auteurs ont extrait la longueur de localisation, visible sur la figure 6.31 c). Là encore ξ ne suit pas la loi en $\nu^{-2,3}$. Les auteurs expliquent que le transfert de charges continue au delà de ce qui est prédit par le

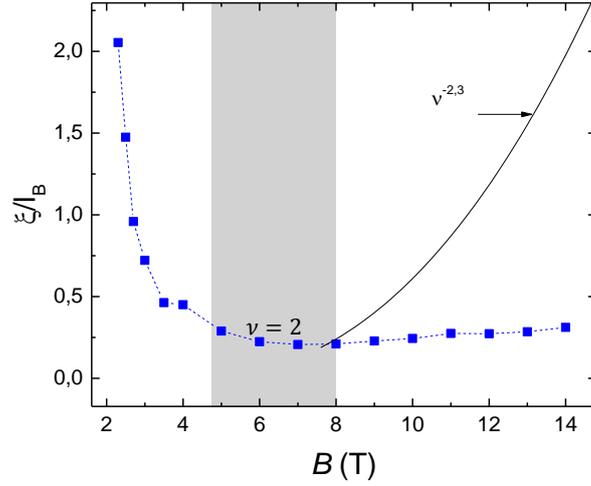


FIGURE 6.30 – ξ/l_B en fonction du champ magnétique. La zone grise correspond à la gamme de champ magnétique où $\nu = 2$ comme déduit de l’analyse avec le modèle du transfert de charges. La courbe noire correspond à l’évolution attendue en sortie de plateau selon l’équation 6.17.

modèle, des réservoirs d’électrons supplémentaires ayant des densités électroniques très élevées de l’ordre de 10^{13} cm^{-2} seraient présents et transféreraient également des charges au graphène. Ces réservoirs de forte densité électronique seraient dus aux imperfections de la résine, aux bi-couches de graphène ou à l’inhomogénéité de la ZLG [138].

Une explication supplémentaire est la suivante, on peut noter que dans le modèle de transfert de charges de Kopylov, le transfert de charges sur le plateau $\nu = 2$ se fait de manière proportionnel au champ magnétique B . Dans le cas de désordre à courte portée, l’évolution de la mobilité électronique évolue comme $\mu = 1/n_s$. De ce fait, sur le plateau $\nu = 2$ le produit μB est constant. Il ne peut donc pas y avoir de levée de dégénérescence supplémentaire avec B , même à de si forts champs magnétiques.

6.8.3 Analyse de la conductivité dans le modèle VRH Mott

En regardant plus attentivement les courbes à bas champ magnétique de la figure 6.28 a), on peut observer que les courbes pour $B < 8 \text{ T}$ ne sont pas parfaitement linéaires. En traçant $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/3}$, sur la figure 6.32 a), les courbes à faible champ magnétique $B < 8 \text{ T}$ sont plus linéaires que dans la représentation précédente. La linéarité de $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/3}$ indique que le modèle de VRH de Mott s’applique dans cette barre de Hall. Ce modèle prédit, pour $I = 0$, que la conductivité évolue avec la température comme :

$$\sigma_{xx} = \sigma_{xx}^0 \exp \left[- \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/3} \right] \quad (6.18)$$

Il apparaît donc que la conductivité n’est pas uniquement décrite par le modèle VRH de E-S ou de Mott pour la totalité des champs magnétiques. Afin de déterminer

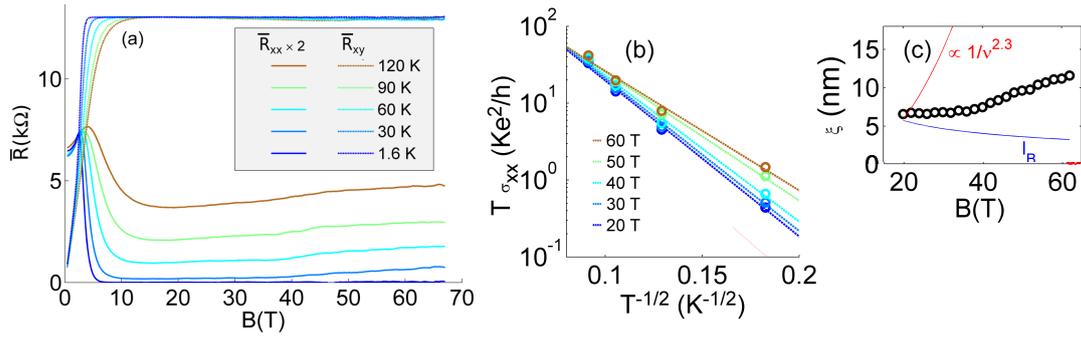


FIGURE 6.31 – a) Résistances longitudinales et transverses pour différents champs magnétiques et températures d’une barre de Hall de graphène sur SiC couvert d’une bi-couche de résine. b) $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/2}$ pour différents champs magnétiques. c) ξ en fonction de l_B avec l’évolution théorique attendue de ξ en rouge et l’évolution théorique de l_B en bleu. Figures extraites de [138].

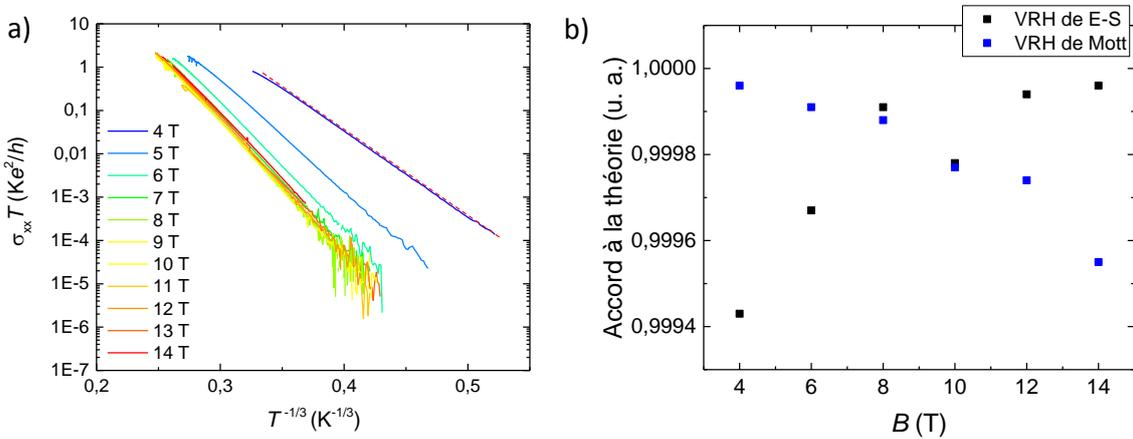


FIGURE 6.32 – a) $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ en fonction de $T^{-1/3}$, ajustés par un modèle de VRH de Mott, où les interactions coulombiennes sont écrantées. b) Accord entre les données expérimentales de la dépendance en température de σ_{xx} et les modèles VRH E-S (noir) et VRH mott (bleu). Un accord de 1 correspond à une correspondance de 100%.

le modèle décrivant le mieux la conductivité pour chaque champs magnétiques, nous avons utilisé la méthode des moindres carrés pour réaliser un ajustement entre les données et les modèles. Les accords de ces différents ajustements sont représentés sur la figure 6.32 b). Il en ressort qu’à faible champ magnétique, en dessous de 6 T, l’ajustement entre l’expérience et le modèle de Mott est meilleur que celui par le modèle de E-S, tandis qu’à fort champ magnétique, le modèle de E-S est plus adapté. Un croisement entre les deux modèles s’opère à 8 T. Il apparaîtrait donc que le mécanisme de dissipation présent dans cette barre de Hall évoluerait avec le champ magnétique. Le transfert de charges étant supposé actif jusqu’au champ magnétique de 8 T comme le suggère l’analyse de courant de rupture $I_c(B)$, on peut supposer qu’il induit un écrantage de l’interaction coulombienne. Au delà de 8 T, le transfert de charges est terminé, l’interaction coulombienne n’est plus écrantée, le modèle de VRH de E-S devient donc dominant.

Le modèle de Mott décrit également la barre de Hall 16545. La figure 6.33 a) montre que $\log(T \cdot \sigma_{xx})$ est linéaire lorsque la température est exprimée en $T^{-1/3}$ à 14 T. Le modèle VRH de Mott est plus adapté pour décrire le comportement de la conductivité dans cette barre de Hall qui a une densité électronique $n_s = 3,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ et des courants de ruptures supérieurs à $800 \mu\text{A}$. Il serait intéressant de pouvoir augmenter le champ magnétique au delà de cette valeur de 14 T, pour voir si le régime VRH de E-S est visible à plus fort champ magnétique. On peut remarquer que les deux barres de Hall 13051-b et 16545, qui ont les courants de rupture les plus élevés, peuvent être décrit par le VRH de Mott, ce qui suggère un environnement diélectrique particulier et donc peut être un rôle de la ZLG.

Le modèle de Mott permet de décrire le mécanisme de VRH dans le graphène lorsque l'interaction coulombienne est écrantée, par l'effet d'une grille par exemple. Ce mécanisme de dissipation a déjà été observé dans du graphène sur SiO_2/Si [8]. Le modèle de VRH de Mott a permis de reproduire fidèlement la conductivité dans cette barre de Hall. Cela a également été le cas pour du graphène obtenu par sublimation du silicium d'un substrat SiC ou le modèle de Mott a été observé comme dominant à basse température [6].

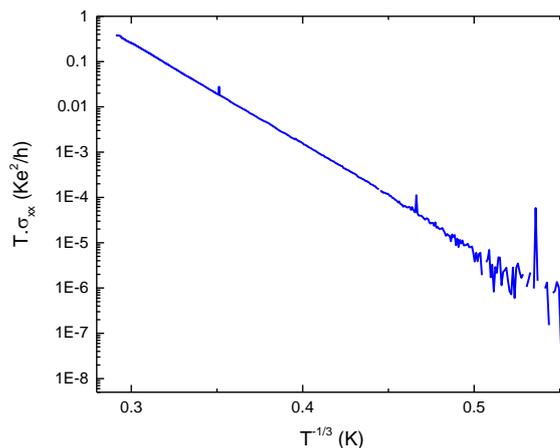


FIGURE 6.33 – $\log(\sigma_{xx}T)$ en fonction de $T^{-1/3}$, pour la barre de Hall 16545 à 14 T et 1,3 K.

6.9 Le facteur de couplage entre ΔR_H et R_{xx}

L'écart de la valeur de la résistance de Hall à la valeur quantifiée est relié à l'augmentation de la résistance longitudinale par carré. Il existe donc une relation entre ΔR_H et R_{xx} . Cette relation empirique $\Delta R_H = \alpha R_{xx}$ a été observée dans de nombreuses barres de Hall bi-dimensionnelles tel que le GaAs/AlGaAs [41, 61] et dans le graphène [81]. Dans la majorité des cas, le coefficient α est inférieur à 1 en valeur absolue. De manière générale, le couplage entre ΔR_H et R_{xx} est relié à l'écart à l'orthogonalité de la configuration de mesure de tension par rapport à la direction de propagation du courant. Le premier mécanisme proposé afin d'expliquer ce couplage fût présenté par Van der Wel *et al.* [133]. Ils proposent une explication

à ce couplage en pointant le fait que la largeur des bras de tension n'est pas nulle. Du fait de la nature chirale des états de bords, la chute de potentiel mesurée par le détecteur de tension ne définit pas une direction parfaitement orthogonale aux bords de la barre de Hall et donc à la direction de propagation du courant. Cette non-orthogonalité mène à un écart à la valeur quantifiée. En effet, lors de la mesure de la tension V_{Mes} au niveau des bras de tension (flèche rouge sur la figure 6.34 a)), en plus de la tension de Hall (représentée par la flèche jaune sur la figure 6.34 a)), une fraction de résistance longitudinale est également mesurée (flèche jaune sur la figure 6.34 a)). Ce couplage suit la relation :

$$\Delta R_H = R_H - R_K/2 = (V_{Mes} - V_H)/I = (W_b/W)R_{xx} = \alpha_{geo}R_{xx} \quad (6.19)$$

où W est la largeur de la barre, tandis que W_b est la largeur du bras de tension. En métrologie, un rapport W_b/W valant $1/8$ peut convenablement limiter ce couplage. Un point important qu'il faut noter est que le coefficient de couplage ne dépend pas du champ magnétique, $\alpha_{geo}(B) = \alpha_{geo}(-B)$. Comme on peut le voir sur la figure 6.34 a), lorsqu'on change la direction du champ magnétique, le sens de propagation des états de bords change également. De fait, la tension de Hall change de signe et la fraction de tension longitudinale mesurée change de signe également. Il en résulte que l'écart de résistance conserve le même signe.

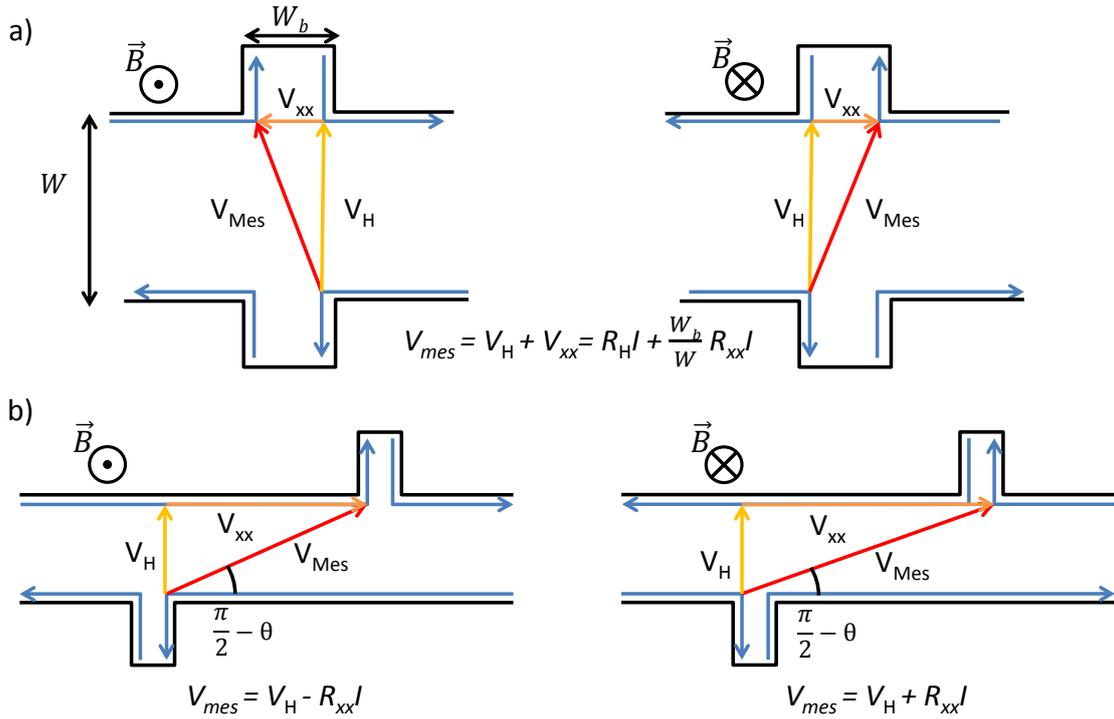


FIGURE 6.34 – a) Représentation schématique du mécanisme de couplage entre R_{xx} et R_H , lié à l'effet de la largeur finie des bras, insensible à l'orientation du champ magnétique. b) Représentation schématique d'une géométrie de barre de Hall menant à un couplage entre R_{xx} et R_H sensible à la direction du champ magnétique.

Un autre type de couplage est également envisagé par van der Well et al.. Ce couplage apparaît quand le courant circulant dans la barre de Hall est dévié d'un

angle θ de la trajectoire parallèle aux bords de la barre de Hall. Dans ce cas, il y a également une absence d'orthogonalité entre la propagation du courant et la configuration de mesure. Il est possible de représenter schématiquement l'effet de cette non orthogonalité en se plaçant dans le référentiel de la propagation du courant. On peut alors schématiser la géométrie de la barre de Hall comme présentée sur la figure 6.34 b). Ce type couplage est facilement identifiable en inversant la polarité du champ magnétique car le signe du coefficient change avec la direction du champ magnétique $\alpha_{inhomogene}(B) = -\alpha_{inhomogene}(-B)$. En effet, comme on peut le voir sur la figure 6.34 b), si la tension de Hall change de signe avec la direction du champ magnétique, la fraction de tension longitudinale ne change pas de signe.

6.9.1 Le facteur de couplage dans la plaquette 13051-b

Afin de déterminer le mécanisme de couplage entre ΔR_H et R_{xx} de la barre de Hall 13051-b, nous avons effectué des mesures de résistance longitudinale par carré sur la barre de Hall 13051-b en régime alternatif en utilisant le CCC et une détection synchrone afin de réaliser des mesures rapides, selon le schéma de la figure 5.8 du chapitre 4. La température, ou le courant, a été ensuite augmentée afin de mesurer l'évolution de R_{xx} par carré avec T et I .

Dans un second temps, nous avons mesuré la résistance de Hall. Pour ces mesures, la tension de Hall du graphène est comparée à la tension d'une résistance étalon de 100Ω , via le pont de comparaison. Dans le but de réaliser des mesures en régime alternatif, le détecteur de zéro EMN11 est remplacé par un amplificateur bas-bruit de type Celians EPC1 qui est lui-même connecté à une détection synchrone. Les mesures sont réalisées à $1 \mu A$ et à une fréquence de 2 Hz. Pour le protocole de mesure, la fraction de courant dévié ϵ (cf.5.2.3) permettant d'observer une différence de tension nulle entre la tension de la résistance de 100Ω et la résistance de Hall à basse température est trouvée et fixée pour le temps de la mesure. La température, ou le courant, sont ensuite augmentés afin de mesurer cette fois-ci ΔR_H qui est déduit de la mesure de tension ΔV détectée par le couple Celians EPC1 et détection synchrone.

Les variations de température sont lentes, environ 1 K/min afin que la plaquette ait le temps de se thermaliser. Le pont de comparaison permet de mesurer des écarts ΔR_H de la résistance de Hall jusqu'à la dizaine d'ohm, ce qui correspond approximativement à une température de 40 K pour cette barre de Hall. Sur la figure 6.35 a), il est possible d'observer le résultat de ce type de mesure pour la barre de Hall 13051-b à la densité $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Les écarts de la résistance de Hall par rapport à la valeur quantifiée $\Delta R_{H-G} = R_{H-G} - R_{H-GaAs}$ sont représentés en rouge tandis que la résistance longitudinale par carré est en noire. Les deux résistances sont tracées en fonction de la température. Les mesures de la figure 6.35 a) sont faites entre 1,3 et 40 K, à un courant de $1 \mu A$. La résistance de Hall a été mesurée sur la paire de contact centrale et à un champ magnétique de 5 T. À cette valeur de champ magnétique, la température critique ($T_c = 5 \text{ K}$) est relativement faible et permet d'observer la sortie de la très bonne quantification à des températures relativement faibles. Comme il est attendu, la résistance longitudinale n'est plus nulle lorsque la température augmente, et de la même manière, la résistance de Hall s'écarte de la valeur quantifiée, cela est bien mis en évidence sur la figure 6.35 a). Il est possible

de déterminer le coefficient de couplage en traçant le couple de point $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} par carré, réalisé à la même température (figure 6.35 b)). La courbe rouge reprend les données de la courbe 6.35 a) et permet d'extraire un coefficient de couplage $\alpha = -0,25$. La courbe bleue reprend le même protocole de mesure avec les mêmes conditions expérimentales à la différence du champ magnétique qui vaut maintenant -5 T. En inversant le champ magnétique, le coefficient de couplage vaut $+0,25$, seul le signe a donc changé.

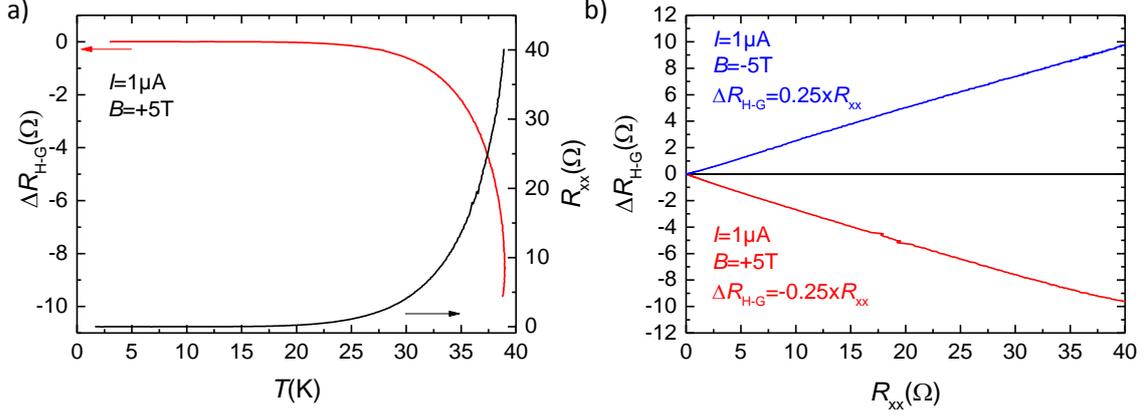


FIGURE 6.35 – a) Ecart de la résistance de Hall par rapport à la valeur quantifiée dans le graphène $\Delta R_{\text{H-G}} = R_{\text{H-G}} - R_{\text{H-GaAs}}$ et résistance longitudinale par carré R_{xx} en fonction de la température, mesurée à $+5$ T avec un courant de $1\mu\text{A}$. $R_{\text{H-G}}$ est mesurée à partir de la paire centrale. b) $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} (résultats de la figure a) en rouge. La courbe bleue représente une mesure similaire mais avec inversion du champ magnétique.

Nous avons vu précédemment qu'il existait deux principaux types de phénomènes menant à un couplage entre R_{xx} par carré et R_{H} . Le couplage géométrique, qui est dû à la largeur finie des bras, donne un coefficient α_{geo} tel que :

$$\Delta R_{\text{H}} = \alpha_{\text{geo}}(\pm B)R_{xx} = \frac{20 \mu\text{m}}{100 \mu\text{m}}R_{xx} \quad (6.20)$$

soit un couplage attendu de $0,2$. On s'attend à trouver un écart de ΔR_{H} systématiquement négatif lorsque ΔR_{xx} augmente, ce qui n'est pas le cas. Sur la figure 6.35 b), il y a une symétrie parfaite lorsque le champ magnétique est inversé. Le couplage géométrique est donc négligeable dans cette barre de Hall.

L'autre couplage $\alpha_{\text{inhomogene}}$ est dû aux inhomogénéités de la densité de porteurs ou au désordre présent dans la barre de Hall, l'inversion du champ magnétique doit également inverser le signe du couplage :

$$\alpha_{\text{inhomogene}}(+B) = -\alpha_{\text{inhomogene}}(-B) \quad (6.21)$$

Van der Well et al. [133] proposent une modélisation simple prenant en compte une déviation du courant ce qui mène à un couplage. Dans le cas du graphène sur SiC, les marches du substrat pourraient apporter des modifications des propriétés locales de conduction du graphène. En particulier si les marches sont des points de nucléation privilégiés pour les bi-couches de graphène et leurs donnent une direction

de croissance privilégiée. Ces bi-couches pourraient obliger le courant à circuler de manière non-parallèle aux bords de la barre de Hall. La relation de couplage induit par la déviation du courant s'écrit :

$$\Delta R_H = \sin(\theta) R_{xx} \quad (6.22)$$

où θ est l'angle entre la barre de Hall et la déviation du courant.

Des mesures de caractérisation optique ainsi que les images AFM et LEEM, figure 6.6 a) et b), ont permis de déterminer l'orientation des marches par rapport à l'orientation de la barre de Hall, cet angle est d'environ $\theta = -14^\circ$. Avec un angle de -14° , le coefficient calculé de couplage vaut $\alpha = -0,24$, ce qui correspond au coefficient mesurée.

Des mesures complémentaires réalisées sur les autres paires de contacts de tension de Hall et pour un courant de mesure de $1 \mu\text{A}$, figure 6.36 a), montrent que cette valeur de couplage n'est pas homogène sur la totalité de la barre de Hall. La paire centrale (B-F) ainsi que la paire latérale (C-E) ont le même comportement caractérisé par un facteur de couplage de $-\text{sign}(B) \times 0,25$ (selon le sens du champ magnétique), alors que l'autre paire latérale (A-G) le coefficient est plus élevé et vaut $-\text{sign}(B) \times 0,45$. Ce résultat pourrait laisser penser que des inhomogénéités orientées avec un angle différent, c'est-à-dire à -27° par rapport à la barre de Hall, seraient présentes sur ce côté de la barre, ce qui n'a pas été prouvé.

Un résultat similaire a déjà été observé dans du graphène obtenu par décomposition thermique d'un substrat de SiC par Janssen et al. [58]. Les auteurs avaient observé un couplage qui changeait de signe avec l'inversion du champ magnétique, ainsi que des valeurs de couplage différents pour les différentes paires de contact de tension utilisées pour réaliser les mesures. Les auteurs avaient supposé que le couplage était dû aux inhomogénéités présentes dans la barre de Hall de graphène. Ils avaient également observé des valeurs de couplage différentes en fonction de la densité, passant d'un couplage $\alpha = 0,166$ pour une densité électronique $n_s = 4,6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ décroissant avec l'augmentation de n_s pour finalement atteindre $\alpha = 0,005$ pour $n_s = 9,1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. L'explication donnée par les auteurs était que l'augmentation de la densité électronique diminue les inhomogénéités et par conséquent le couplage [58].

Des mesures de la paire centrale (B-F) à différents champs magnétiques, entre 4 T et 14 T (figure 6.36 b)) montrent que la valeur du coefficient de couplage reste stable en fonction du champ magnétique. Le coefficient de couplage est de $-0,2$ à 4 T et vaut $-0,3$ pour les autres champs magnétiques. Des non-linéarités sont observées pour des valeurs de champs magnétiques de 10 T et 14 T. Des mesures de ΔR_{H-G} et de R_{xx} ont été réalisées à champ magnétique fixe de 5 T et pour différents courants de mesure allant de $1 \mu\text{A}$ jusqu'à $50 \mu\text{A}$, pour la paire centrale (B-F) (figure 6.36 c)). Les courbes de 1 et $50 \mu\text{A}$ présentent un coefficient de couplage de $-0,35$ tandis que les autres courants induisent un coefficient de couplage plus faible de l'ordre de $-0,2$. Les mesures de couplage obtenues par variation de la température et du courant donnent des valeurs de couplage similaires, de l'ordre de $-0,3$ pour un champ magnétique positif.

Sur les deux figures 6.36 b) et c), plusieurs courbes ne sont pas linéaires, comme par exemple la courbe à 14 T sur la figure b). On peut rappeler que le modèle de transfert de charges de Kopylov permet de calculer que $\nu = 2$ entre 2,5 et 8 T. Une

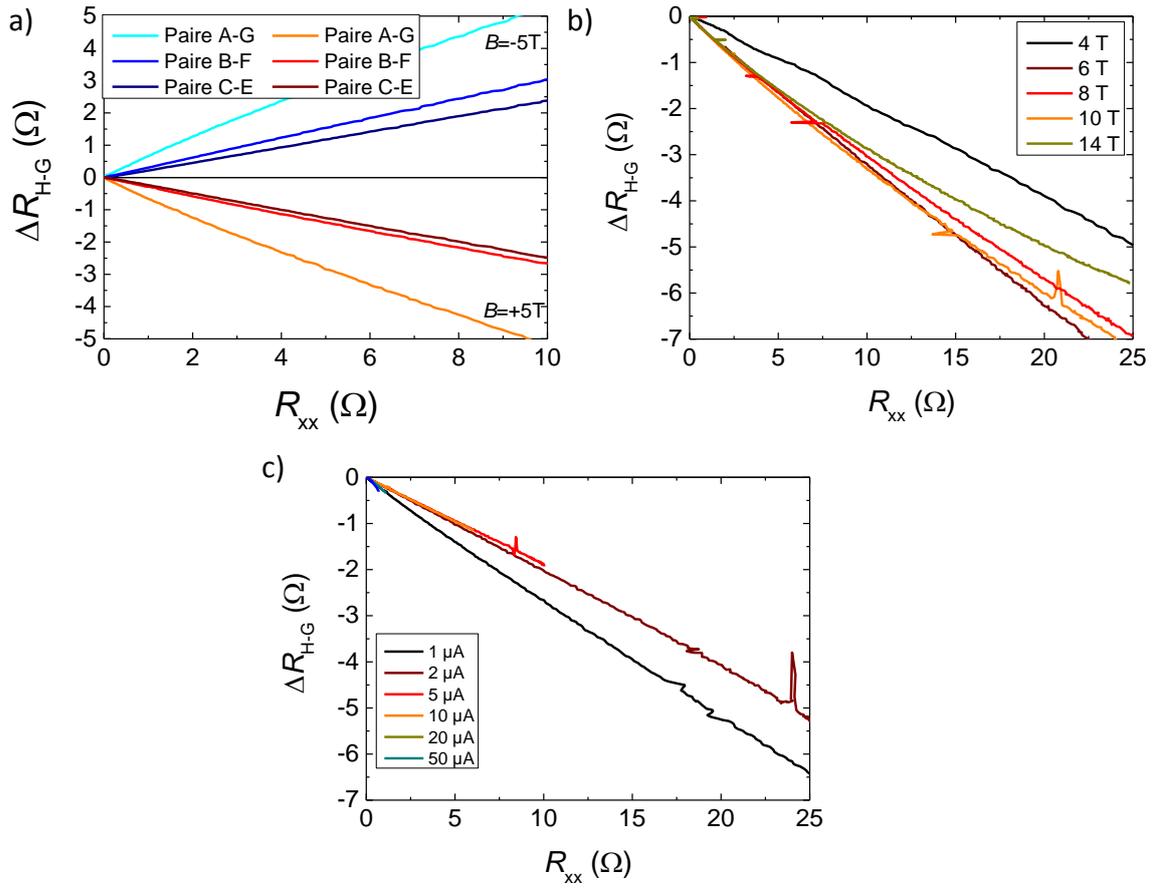


FIGURE 6.36 – Mesures de couplage pour la barre de Hall 13051-b. a) $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} pour les trois paires de contacts de Hall de la barre de Hall à un champ magnétique de ± 5 T, un courant de $1 \mu\text{A}$ et une température de $1,3$ K. b) $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} par carré pour la paire centrale pour différents champs magnétiques. c) $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} pour la paire centrale à $1,3$ K et 5 T, pour différents courants de mesure.

hypothèse est que les courbures peuvent apparaître lorsque le facteur de remplissage n'est pas entier. Une autre hypothèse qui pourrait amener à ce type de courbure est une mauvaise thermalisation de la plaquette. Il n'est pas possible pour l'instant de confirmer l'une ou l'autre des hypothèses. Les doutes sur la bonne thermalisation ainsi que les fortes incertitudes liés aux mesures réalisées en régime alternatif ne nous permettent pas non plus de conclure précisément sur une valeur précise du couplage, si ce n'est qu'il est bien inférieur à 1, probablement proche de 0,3, et que son signe change avec la polarité de champ magnétique. On peut donc dire que le modèle du couplage géométrique dû à la largeur finie des bras de tension n'est pas dominant dans cette barre de Hall. Le modèle simple des états de bords est mis en défaut. On peut supposer que cela peut être dû à de l'inhomogénéité dans les bras de tension. Le modèle simple où le couplage serait déterminé par les marches du substrat et les bi-couches de graphène, donne approximativement le bon ordre de grandeur de la valeur du coefficient ainsi que le bon signe du coefficient de couplage avec le champ magnétique.

6.9.2 Le facteur de couplage dans la plaquette 12159-3

La détermination de l'évolution de ΔR_H par rapport à R_{xx} pour les barres de Hall de la plaquette 12159-3-1 a été réalisée à différentes températures ou courants pour augmenter le niveau de dissipation. Afin de s'affranchir de la possible mauvaise thermalisation de la plaquette lors des variations de température, nous avons réalisé les mesures de ΔR_{H-G} et de R_{xx} en régime continu et à température fixe pendant la mesure. Ces mesures ont été faites sur la barre de Hall 12159-3-1. L'étude précédente de cette barre de Hall, avait donné un coefficient de couplage de $-0,67$ pour tous les champs magnétiques positifs compris entre $+10$ et $+19$ T [81], la densité était alors de $n_s = 3,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. L'angle entre les marches et la barre de Hall est de -45° . Si le modèle régissant le coefficient de couplage à l'œuvre était lié aux marches du substrat le coefficient de couplage proche devrait être de $-0,7$ pour un champ magnétique positif, ce qui est très proche de la valeur observée. Des mesures à différentes densités électroniques ont été faites afin d'être comparées avec les résultats précédents.

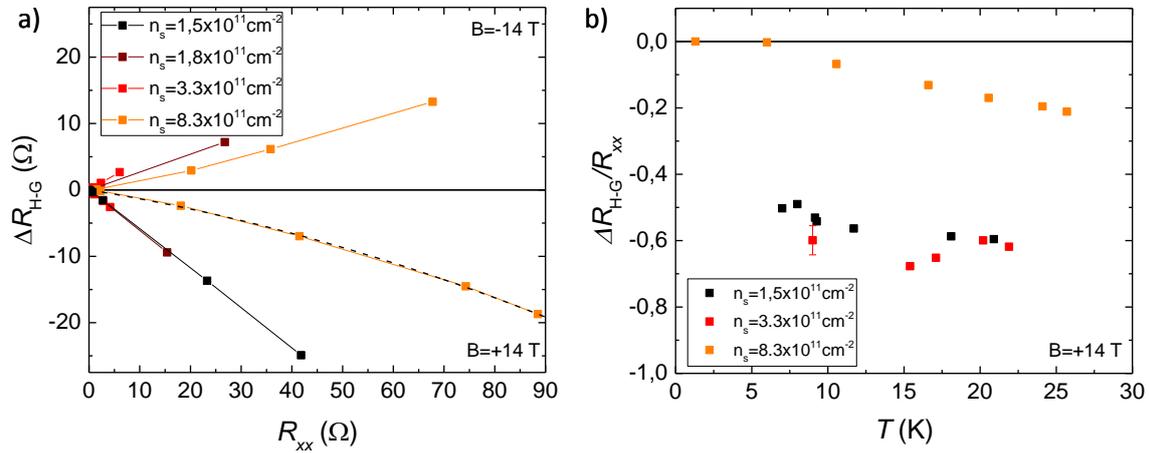


FIGURE 6.37 – a) ΔR_{H-G} en fonction de R_{xx} pour la barre de Hall 12159-3-1 à différentes densités. Les mesures sont réalisées en modifiant la température, en régime continu à $1 \mu\text{A}$ et ± 14 T. b) $\Delta R_{H-G}/R_{xx}$ en fonction de la température pour les barres de Hall 12159-3-1 pour différentes densités. Les mesures ont été réalisées à ± 14 T et un courant de $1 \mu\text{A}$.

Sur la figure 6.37 a) ΔR_{H-G} est tracé en fonction de R_{xx} à 14 T, $1 \mu\text{A}$ et pour différentes densités. La mesure à la densité $n_s = 1,8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ donne un couplage de $-0,6$ pour un champ magnétique positif. Pour la polarité opposée, le coefficient est plus faible et vaut $+0,3$ ce qui peut laisser penser à une contribution géométrique en plus de la contribution des inhomogénéités. À la densité $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, très proche de l'étude précédente [81], le couplage est également de $-0,6$ pour un champ magnétique positif. Ce coefficient est trouvé symétrique avec l'inversion du champ magnétique et vaut donc $+0,6$ pour un champ magnétique négatif. Pour $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le couplage est symétrique avec le champ magnétique. En prenant une valeur de coefficient de couplage moyenne on déduit un coefficient de couplage valant $-\text{sign}(B) \times 0,17$, très différent des autres densités électroniques. On peut expliquer

cette valeur de couplage plus petite soit par la densité électronique importante ce qui confirmerait que α décroît lorsque la densité électronique augmente, comme observé par le NPL [58], soit par le fait que le facteur de remplissage est plus grand que 2 à cette densité électronique et à ce champ magnétique. De plus, à cette densité électronique, une non-linéarité est présente, la courbe en pointillée sur la figure 6.37 a) est un ajustement suivant l'équation : $\Delta R_{\text{H-G}} = \alpha R_{xx} + \beta R_{xx}^2$.

Dans le GaAs/AlGaAs, il est commun d'observer deux régimes. À basse dissipation $\Delta R_{\text{H-G}}$ est linéaire avec R_{xx} , un changement de régime peut s'effectuer à des niveaux de dissipation plus importants, la relation devient alors quadratique : $\Delta R_{\text{H-G}} \propto \beta R_{xx}^2$ [41], concordant avec la règle semi-circulaire [74], qui décrit la sortie du plateau de Hall en considérant que les électrons sont répartis dans deux fluides incompressibles (fluide d'électrons et fluide de trous) localisés par du désordre à courte portée [32]. Dans le cas présent, la non-linéarité apparaît quelque soit le niveau de dissipation.

Le rapport $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ en fonction de la température permet de révéler des non-linéarités de plus faible ampleur. Cette quantité a donc été tracée pour la barre de Hall 12159-3-1 à différentes densités et en fonction de la température, sur la figure 6.37 b). Cette représentation permet, pour un couple de température et courant, de montrer la relation entre $\Delta R_{\text{H-G}}$ et R_{xx} pour des niveaux de dissipation très différents. Le rapport $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ à la densité électronique $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ permet de quantifier la non-linéarité. Elle augmente fortement avec le niveau de dissipation, passant d'un couplage presque nul lorsque la température est inférieure à 6 K à plus de $-0,2$ pour 25 K. Une non-linéarité est également observée pour $n_s = 1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ bien que plus faible. À l'inverse, la courbe obtenue à la densité électronique $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ne présente pas de non-linéarité sur cette gamme de température allant de 10 à 25 K.

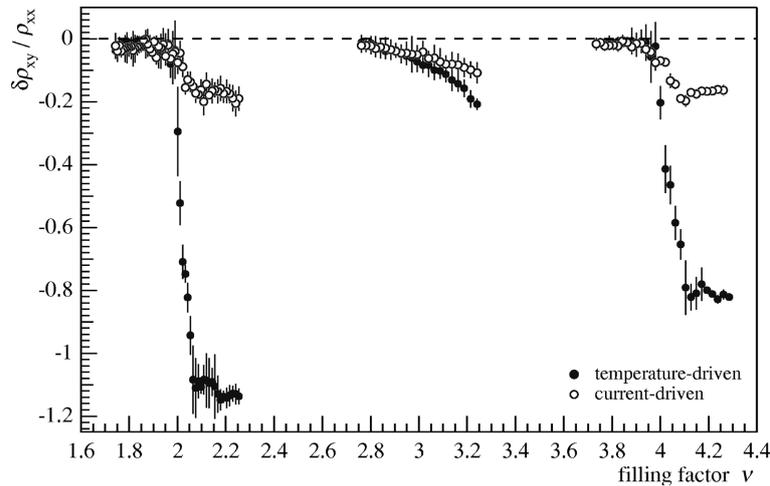


FIGURE 6.38 – $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ en fonction de ν , dans une barre de Hall en GaAs/AlGaAs pour un courant de $1 \mu\text{A}$. Courbe extraite de [41].

Grâce au modèle de transfert de charges, nous pouvons dire qu'à la densité électronique à champ nul $n_s = 3,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le facteur de remplissage vaut $\nu = 2$ à 14 T. On observe alors un couplage linéaire entre $\Delta R_{\text{H-G}}$ et R_{xx} , ainsi qu'une

parfaite symétrie avec l'inversion du champ magnétique. Pour les autres densités électroniques, le facteur de remplissage est différent de $\nu = 2$. Pour la densité la plus faible $n_s = 1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, le transfert de charges s'arrête aux alentours de 10 T, donc à 14 T $\nu < 2$. À l'inverse, pour $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $\nu > 2$. Il semble que la non-linéarité apparaît lorsque le facteur de remplissage n'est pas entier.

Une valeur de couplage différente selon la valeur de ν a déjà été observée. M. Furlan a mesuré le facteur de couplage dans une barre de Hall de GaAs/AlGaAs en fonction du facteur de remplissage ν . La figure 6.38 présente les coefficients de couplages pour différents facteurs de remplissages extraits des variations de température et de courant. Pour les mesures en température, lorsque $\nu < 2$, le couplage est faible, proche de 0, tandis que pour $\nu > 2$ le coefficient de couplage dépasse 1. L'auteur explique ces différences par la théorie de la percolation. Le potentiel de désordre n'est pas le même selon le facteur de remplissage. La circulation du courant diffère selon que ν soit plus grand ou plus petit que 2, modifiant les probabilités de rétro-diffusion [22, 31, 104].

La courbe de la figure 6.39 a) permet de comparer l'évolution de $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} sur des niveaux de dissipation identiques obtenus en modifiant soit le courant soit la température pour la barre de Hall 12159-3-1 à une densité électronique $n_s = 1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Le couplage mesuré entre $\Delta R_{\text{H-G}}$ et R_{xx} en modifiant le courant est moins fort que celui obtenu en variant la température. Les variations de courant induisent un écart de quantification plus faible pour une dissipation identique.

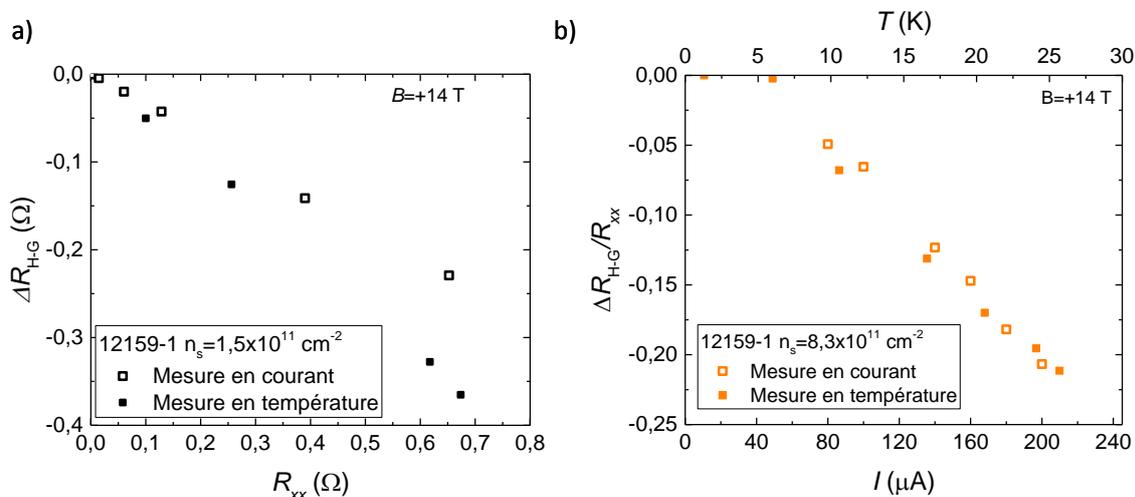


FIGURE 6.39 – a) $\Delta R_{\text{H-G}}$ en fonction de R_{xx} pour la barre de Hall 12159-3-1 à la densité $n_s = 1,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. b) $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ en fonction de la température et du courant. Les symboles vides correspondent à la mesure de $\Delta R_{\text{H-G}}$ et de R_{xx} en modifiant le courant tandis que les symboles pleins correspondent à la modification de la température.

Sur la figure 6.39 b) sont superposées les dépendances en température et en courant de $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ respectivement $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}(T)$ et $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}(I)$ pour la barre de Hall 12159-3-1 à une densité électronique $n_s = 8,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. À cette densité électronique on observe que le coefficient $\Delta R_{\text{H-G}}/R_{xx}$ est dépendant de T et de I . En choisissant des échelles adéquates, il est possible de montrer une correspondance

entre les courbes. La nature du couplage est donc identique selon que la dissipation provienne de la température ou du courant. Comme attendu, en régime de VRH-ES, le courant peut s'écrire comme une température effective. En faisant le rapport des abscisses, on déduit un rapport $T_{eff}/I = 0,12 \text{ K.A}^{-1}$. On retrouve bien le rapport T_{eff}/I calculé à partir de la comparaison des effets du courant et de la température sur R_{xx} pour la même densité électronique. Le couplage entre ΔR_{H-G} et R_{xx} ne dépend pas de la manière dont la dissipation est induite (courant ou température).

Les mesures effectuées ont permis de conclure que le coefficient de couplage entre les valeurs des résistances de ΔR_{H-G} et R_{xx} n'est pas dominé par la largeur finie des bras de tension. On mesure un coefficient de couplage qui change de signe avec la polarité de champ magnétique. Le couplage est donc bien dominé par les inhomogénéités. La relation empirique $\Delta R_{H-G} = \alpha R_{xx}$ n'est validée que lorsque $\nu = 2$ pour cette barre de Hall. La valeur du coefficient de couplage semble bien être reliée à l'angle entre les marches du substrat et l'orientation de la barre de Hall comme pour la barre de Hall 13051-b. Lorsque le facteur de remplissage n'est pas entier, des non-linéarités apparaissent.

6.10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré que la technique hybride de croissance de graphène CVD sur SiC est une technique reproductible permettant de fabriquer du graphène avec de faibles densités électroniques. La méthode de fabrication des barres de Hall permet d'obtenir des barres de Hall de grandes tailles avec de faibles résistances de contact de manière reproductible. La bi-couche de PMMA-MAA et ZEP 520a protège le graphène des possibles adatoms et permet également d'obtenir des densités électroniques de quelques 10^{11} cm^{-2} , sans illumination, permettant l'apparition d'un plateau de Hall $\nu = 2$ bien quantifié pour des champs magnétiques faibles.

La plaquette 13051-b, présente la barre de Hall ayant les propriétés les plus intéressantes pour la métrologie. Cette barre de Hall présente une faible anisotropie, une faible densité de centres diffuseurs ainsi qu'une faible densité d'états de donneurs de la ZLG (γ). Ces propriétés nous ont permis de mesurer une résistance de Hall parfaitement quantifié à 10^{-9} , en valeur relative, pour des conditions expérimentales nettement plus larges à celle d'un étalon de GaAs/AlGaAs. Cette parfaite quantification est préservée à des courants de mesure aussi important que $500 \mu\text{A}$, des températures de 10 K ou des champs magnétiques aussi faibles que 3,5 T.

Plusieurs modifications de la densité électronique ont été réalisées sur de multiples barres de Hall de graphène avec des décharges corona. Cette méthode a permis de réduire la densité électronique et de mesurer une très bonne quantification de la valeur de la résistance de Hall à des champs magnétiques inaccessibles avec la densité d'origine, en contre-partie, le courant de mesure doit diminuer afin de maintenir un niveau de quantification identique. Nous avons également montré que le mécanisme dominant de diffusion des électrons est à courte portée. Les mesures de magnéto-transport réalisées sur les barres de Hall montrent que la décharge corona apporte de l'inhomogénéité qui disparaît avec le temps. Avec les mesures d'offset de Hall à champ nul, nous avons également montré que l'anisotropie augmentent lorsque la

densité électronique est diminuée.

Le modèle de transfert de charges appliqué aux différentes barres de Hall mesurées permet de rendre compte de la grande gamme de champs magnétiques sur laquelle le facteur de remplissage est entier. Le modèle permet de décrire l'évolution du courant de rupture. Des réservoirs de donneurs en plus de la ZLG doivent probablement être présents pour conduire à des plateaux si importants. Les paramètres du modèle du transfert de charges tendent à montrer qu'une couche ZLG avec peu de donneur, est critique afin d'obtenir un régime d'effet Hall quantique robuste à faible champ magnétique. La croissance de la ZLG est un des paramètres permettant d'obtenir de l'effet Hall quantique de qualité métrologique.

Les mesures de la conductivité des différentes barres de Hall ont permis de mettre en évidence un mécanisme de dissipation de type saut à portée variable (VRH). Cependant le modèle VRH avec présence d'un gap de coulomb, qui décrit parfaitement les barres de Hall de la plaquette 12159-3, présente quelques problèmes lors de la description de la barre de Hall 13051-b. Un exemple est que ξ/l_B soit bien plus petit que 1 est une incohérence du modèle. Il est cependant possible que la ZLG, les interactions à courte portée, les inhomogénéités ainsi que l'anisotropie présente dans ces barres de Hall puissent apporter des modifications à la valeur de ϵ_r ou de C et donc de ξ . Dans la barre de Hall 13051-b, un changement de régime est observé, aux alentours de 8 T. En dessous de 8 T le modèle de VRH de Mott est dominant tandis qu'à plus fort champ magnétique c'est le modèle de VRH de E-S qui permet d'ajuster au mieux les courbes, bien que $\xi/l_B < 1$.

Les mesures des résistances de ΔR_{H-G} et R_{xx} ont montré que le couplage était dominé par les inhomogénéités et non par la largeur finie des bras de tension, mettant en défaut le modèle simple des états de bord. La valeur du coefficient de couplage semble bien être reliée à l'angle entre les marches du substrat et l'orientation de la barre de Hall. Les guides techniques des étalons en graphène sur SiC devront prendre en compte ces paramètres, ce qui n'était pas le cas pour les étalons en GaAs/AlGaAs. De plus, les mesures ont également montré que lorsque le facteur de remplissage n'était pas entier, des non-linéarités apparaissaient.

Ces résultats prouvent que le graphène CVD sur SiC est une technique qui peut encore être améliorée afin d'obtenir un étalon de résistance électrique fonctionnant à des champs magnétiques encore plus faibles. Les travaux doivent être poursuivis pour mieux comprendre la physique de ce système. Cela permettra d'optimiser les paramètres de croissance afin d'obtenir des étalons de résistance en graphène fonctionnant à des conditions d'utilisation facilitées. Il apparaît qu'une faible densité électronique, une forte mobilité électronique et une faible anisotropie sont trois paramètres facilement mesurables qui peuvent présager un effet Hall quantique robuste commençant à faible champ magnétique.

Chapitre 7

L'étalon quantique de courant programmable

7.1 La nouvelle définition

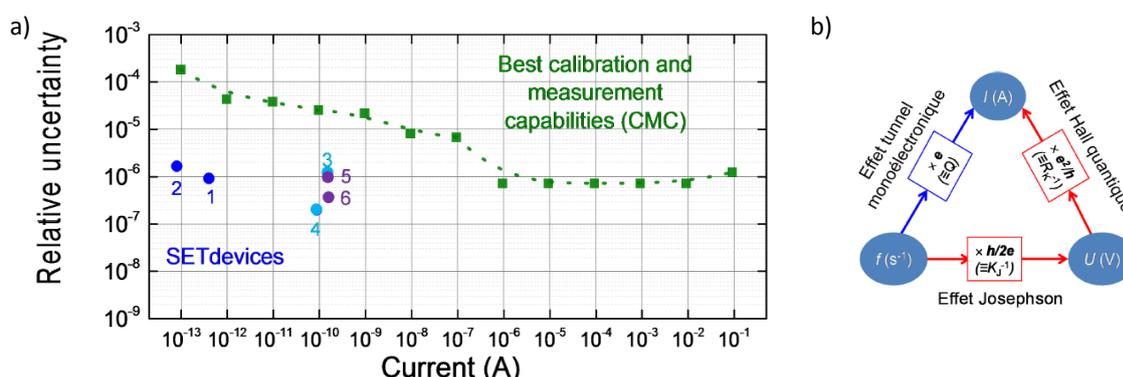


FIGURE 7.1 – a) Incertitudes relatives des meilleures performances d'étalonnage et de mesure du courant en vert [10]. Les points bleus représentent les incertitudes sur les courants générés par des pompes à électron 1) [16], 2) [70], 3) [42], 4) [126], 5) [137], 6) [37]. b) Les deux différentes voies pour réaliser un courant à partir de la fréquence f et de la charge élémentaire e . En bleu en utilisant des pompes à électron et en rouge en appliquant la loi d'Ohm à des étalons quantiques de tension et de résistance.

Comme on a pu le voir dans le premier chapitre, l'ampère est l'une des sept unités de base du SI. Dans les instituts nationaux de métrologie, l'ampère est réalisé soit en appliquant la loi d'Ohm à des étalons secondaires de tension et de résistance, soit en chargeant un étalon de capacité étalonné puis en mesurant la tension à ses bornes. Les incertitudes sur les prestations d'étalonnages sont représentées sur la figure 7.1 a), qui reprend les meilleures Capacités de Mesure et de Calibration des laboratoires nationaux de métrologie (CMC). Les incertitudes relatives sont de l'ordre de 10^{-6} pour les courants supérieurs au micro-ampère et 10^{-5} pour les courants inférieurs [10]. Ces incertitudes proviennent des incertitudes sur les étalonnages des étalons secondaires et du manque de sensibilité des techniques de mesure pour les faibles courants.

Dans le nouveau SI, l'ampère sera défini par la valeur de la charge élémentaire. Deux manières de réaliser l'ampère dans le futur SI sont représentées sur la figure 7.1 b), soit en utilisant l'effet Josephson puis l'effet Hall quantique, soit en utilisant l'effet tunnel mono-électronique. Depuis plus d'une vingtaine d'années, la communauté scientifique a déployé beaucoup de moyens afin de contrôler la charge élémentaire et ainsi fabriquer des pompes à électrons délivrant un courant $I_p = n_Q Q f_p$, où n_Q est le nombre de charges $Q \equiv e$ manipulées et f_p est la fréquence de pompage. Les dispositifs qui ont donné les meilleurs résultats en terme de courant généré ainsi que d'exactitude sont les pompes à technologie semi-conductrice, soit en GaAs soit en silicium. Sur la figure 7.1, les points bleus correspondent aux résultats obtenus avec des pompes à électrons. Les points 1 et 2 correspondent à des pompes métalliques, présentées dans le chapitre 1, les points 3 et 4 à des pompes GaAs/AlGaAs et les points 5 et 6 à des pompes Si.

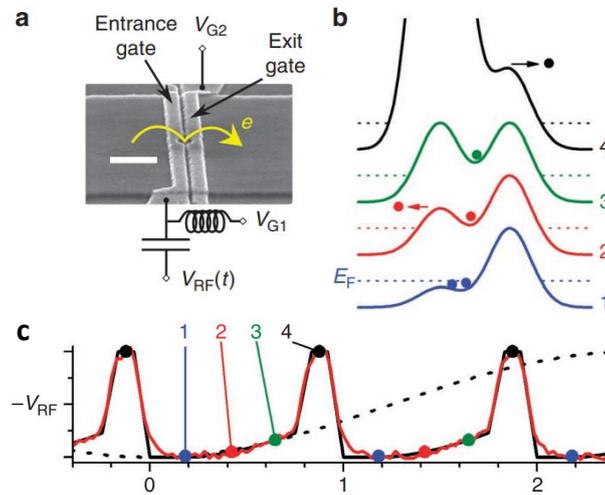


FIGURE 7.2 – a) Image MEB d'une pompe à électron GaAs/AlGaAs. b) Profil du potentiel durant les différentes étapes du cycle de pompage. c) La forme de la tension de grille V_{G1} en fonction du temps. Images extraites de [42].

Les pompes GaAs/AlGaAs sont fabriquées à partir d'un fil semi-conducteur en GaAs/AlGaAs, plus fin qu'un micromètre, sur lequel sont disposées plusieurs grilles permettant de moduler des barrières tunnels afin de réaliser un quantum dot (QD). Une image MEB d'une pompe à électrons est visible sur la figure 7.2 a) [42]. Pour qu'il y ait un courant circulant à travers la pompe, les tensions des grilles sont ajustées dynamiquement afin de laisser passer un seul électron par cycle. Un schéma de l'évolution du profil de potentiel en fonction du temps est présenté sur la figure 7.2 b). La tension de grille V_{G1} diminue de sorte que les charges de la source puissent passer dans le QD. Le potentiel V_{G1} augmente ensuite afin que le QD soit isolé et ne contienne que $n = 1$ électron. L'évolution de V_{G1} est dans un premier temps assez lent, afin d'expulser tous les électrons sauf un. Dans la seconde partie du cycle, la barrière V_{G1} augmente rapidement bien au dessus de V_{G2} pour expulser l'électron dans le drain. Durant tout le processus, la tension de sortie V_{G2} est fixe, seule la tension d'entrée V_{G1} varie dans le temps. Ces différentes étapes constituent

un cycle qui va être répété à la fréquence f_p afin de générer un courant $I_p = nQf_p$. La parfaite quantification de cette pompe à électrons a été démontrée avec une incertitude relative de $1,2 \times 10^{-6}$ pour un courant de 150 pA, à 0,3 K et 14 T. Ces résultats sont représentés sur la figure 7.1 b) par le point 3.

Une deuxième pompe à électrons est présentée sur la figure 7.3 a) [126]. Elle est également fabriquée à partir d'un fil semi-conducteur en GaAs/AlGaAs sub-micrométrique, sur lequel sont disposées deux grilles permettant de moduler les barrières tunnels. La fréquence de fonctionnement est de 545 MHz, ce qui équivaut à un courant $I_p = 87,4$ pA. L'écart relatif entre le courant généré et le courant théorique en fonction de la tension de grille V_2 est présentée sur la figure 7.3 c). La courbe verte est une courbe théorique permettant de déterminer le point d'inflexion ainsi que la région où le courant généré est indépendant des paramètres de contrôle externe. Cette région est encadrée en pointillés noirs. Elle définit la gamme des tensions V_2 pour lesquelles la pompe délivre exactement $n = 1$ électron par cycle. Cette courbe est déterminée par le modèle de décroissance en cascade [67, 68] qui permet de calculer la probabilité qu'ont les électrons de sortir du quantum dot lors de la variation de la barrière tunnel V_1 en fonction de la tension V_2 qui est fixe durant un cycle. Ce modèle permet d'optimiser la tension V_2 afin de minimiser les erreurs. Dans cet exemple un courant de 87,4 pA (545 MHz) a été démontré quantifié avec une incertitude relative de $0,2 \times 10^{-6}$ à 100 mK et 16 T [126]. Ce résultat est représenté sur la figure 7.1 b) par le point 4. Lorsque la fréquence augmente, les écarts augmentent également, passant à $0,32 \times 10^{-6}$ pour 1 GHz.

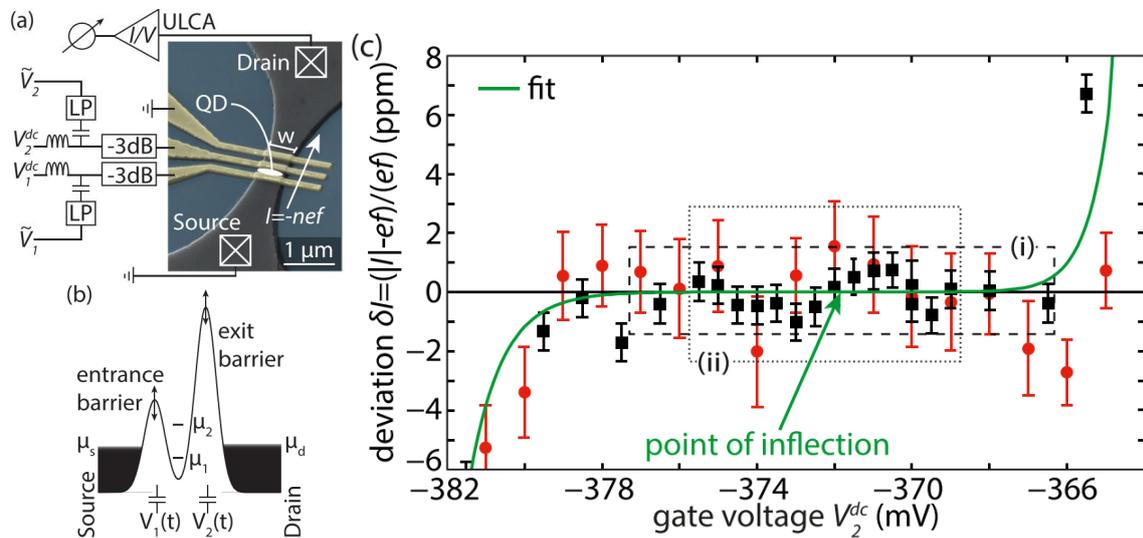


FIGURE 7.3 – a) Image MEB d'une pompe à électrons GaAs/AlGaAs, ainsi que le schéma de l'expérience. b) Schéma du profil de potentiel formant le quantum dot qui est défini par les deux grilles. c) Marche de courant obtenue en modifiant la tension de grille V_2 . Images extraites de [126].

Les pompes silicium sont composées d'un canal très fin, presque mono-dimensionnel, en silicium sur lequel sont disposées deux grilles afin de réaliser un quantum dot (QD) (figure 7.4 a)). Le cycle utilisé pour générer un courant est le même que celui décrit

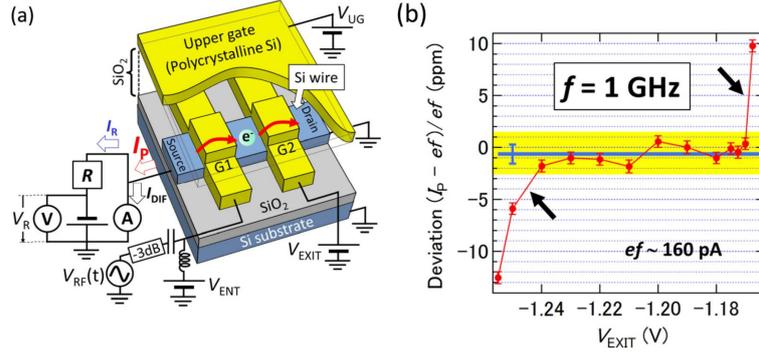


FIGURE 7.4 – a) Schéma d’une pompe à électron Si, ainsi que le schéma de l’expérience. b) Marche de courant obtenue en modifiant la tension de grille V_{EXIT} . Images extraites de [137].

pour la pompe GaAs/AlGaAs : la tension d’entrée V_{ENT} est modulée temporellement tandis que la tension de sortie V_{EXIT} est fixe. Un courant de 160 pA a été démontré quantifié avec une incertitude relative de $0,9 \times 10^{-6}$ à une température maintenue entre 1 et 2 K et sans champ magnétique par l’équipe de A. Fujiwara [137]. La marche de courant en fonction de la tension de grille de sortie V_{EXIT} est visible sur la figure 7.4 b). Ces résultats sont représentés sur la figure 7.1 b) par le point 5.

Quelque soit la pompe à électron, son exactitude est limitée par la nature stochastique du processus de saut tunnel qui engendre des erreurs de transfert. La probabilité de saut tunnel non souhaité augmente avec le courant délivré, c’est-à-dire avec la fréquence de pompage. Plusieurs équipes ont donc décidé de fabriquer des dispositifs capables de compter et de corriger ces erreurs : ces pompes sont dites auto-référencées. Le dispositif, fabriqué par Fricke *et al* [40] (figure 7.5 a)), est composé d’un canal en GaAs/AlGaAs, de 3 pompes connectées en série, (P1, P2 et P3) et de deux transistors mono-électroniques (SET) qui servent de détecteurs (D1 et D2). Le pompage d’électrons dans ce système se fait en émettant un pulse de tension très court de 25 ns. Ces pulses sont décalés dans le temps afin que l’électron puisse passer de la pompe P1 à la pompe P2 et ainsi de suite, ces pulses sont représentés par les traits (i), (ii) et (iii) dans la figure 7.5 b). Sur les courbes des détecteurs D1 et D2, il est possible de suivre l’avancée de l’électron. Afin de mesurer le nombre d’erreurs, deux pulses successifs sont émis sur les trois pompes simultanément, étapes (iv) et (v). Si, comme sur la figure, les détecteurs ne montrent aucune déviation du signal, alors aucune erreur n’est survenue. Un cas de mesure réelle présentant une erreur est montré sur la figure 7.5 c). Dans ce cas, D1 et D2 mesurent tous deux le passage d’une charge lors des étapes (i)-(iii), seulement D2 indique une charge supplémentaire lors des étapes (iv)-(v) (montré par la double flèche noire). Afin d’identifier cette erreur et la corriger, les auteurs ont déterminé trois scénarios possibles : (1) P3 n’a pas réussi à pomper une charge, (2) P1 et P2 ont pompé une charge supplémentaire, ou (3) P1 et P2 ont pompé 2 charges supplémentaires et P3 une charge supplémentaire. Les probabilités associées à ces événements sont présentées dans le tableau de la figure 7.5 c). Il apparaît que la pompe P3 a 99,99% de chance d’avoir loupé un électron. Après la détection des erreurs, il est possible de corriger la valeur

du courant. Ce principe de correction d'erreur a été démontré pour une fréquence de pompage d'environ 30 Hz. La mise en œuvre à des fréquences supérieures reste à démontrer.

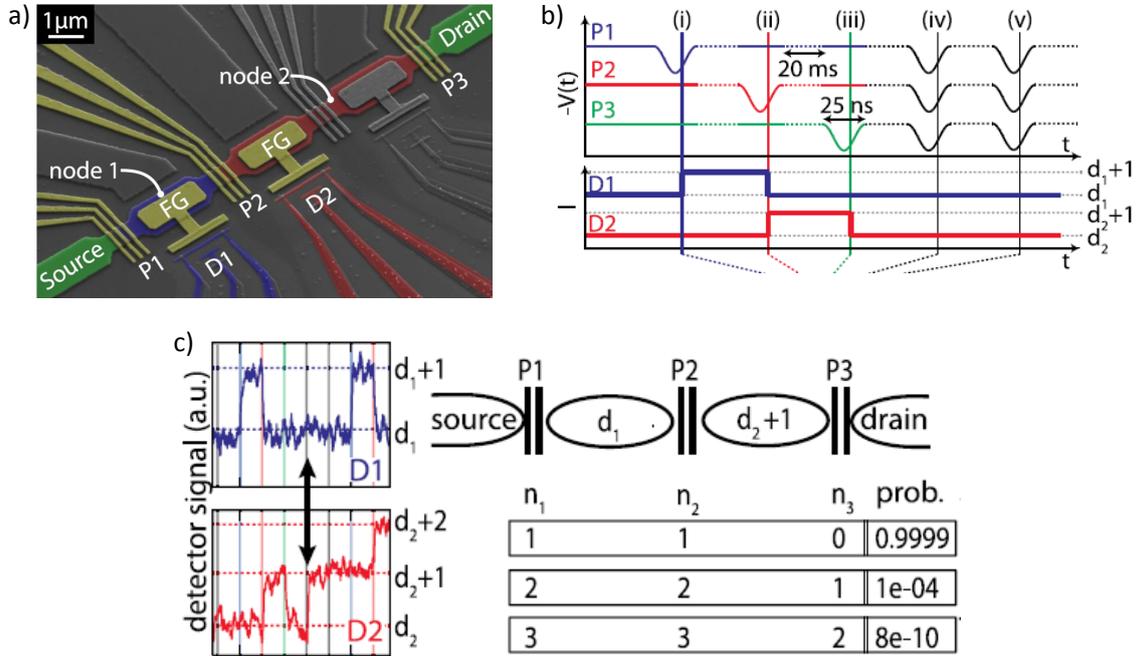


FIGURE 7.5 – a) Image MEB d'une pompe à électron GaAs/AlGaAs. b) Les différentes étapes du cycle de pompage et du système de détection des erreurs. c) Analyse d'une erreur typique, détectée par la différence des signaux des deux détecteurs. [40].

Les pompes sont capables de générer des courants assez élevés, de l'ordre de la centaine de pico-ampères, cependant la physique de ces systèmes est difficile à modéliser et par conséquent il est difficile d'obtenir des critères de quantification fiables. C'est pourquoi les pompes à électrons ne constituent pas, à ce jour, des étalons quantiques opérationnels de courant. La figure 7.1 b) montre une autre manière de produire un courant proportionnel à la charge élémentaire : utiliser les étalons quantiques de courant et de résistance afin de générer un courant moyen exact.

7.2 Le principe de fonctionnement

L'autre manière de générer un courant directement proportionnel à la charge élémentaire est d'appliquer la loi d'Ohm à des étalons quantiques de tension et de résistance respectivement basés sur l'effet Josephson et l'effet Hall quantique. Le courant généré est proportionnel à $(R_K K_J)^{-1} \equiv e/2$. Le principe de l'expérience présenté dans la suite est de générer un courant quantifié en appliquant la loi d'Ohm avec une précision métrologique. Cette partie de l'expérience consiste à réaliser le circuit primaire représenté en bleu sur la figure 7.6. Le circuit secondaire, en rouge sur la figure 7.6, correspond à l'amplification du courant quantifié avec un gain G .

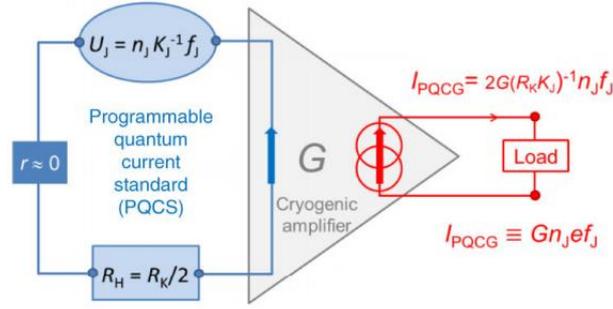


FIGURE 7.6 – Principe de fonctionnement du générateur quantique programmable de courant.

Cette partie servira également à tester la valeur du courant ainsi qu'à réaliser des étalonnages d'un ampèremètre commercial.

7.2.1 Le circuit primaire

L'étalon de tension Josephson

Dans le but de réaliser l'ampère, plusieurs réseaux de jonction Josephson programmables 1 V (PJVS pour Programmable Josephson Voltage Standard), fonctionnant à une fréquence $f_J \simeq 70$ GHz, ont été utilisés. Le PJVS est arrangé en segments ayant un nombre de jonctions Josephson 2^p où p est un entier et l'indice du segment. Chaque segment peut être indépendamment polarisé, par un système de sources de courant pilotés grâce à un ordinateur découplé optiquement du circuit électrique, afin d'ajuster la tension à $150 \mu\text{V}$ près entre 0 et 1 V. Sur la figure 7.8 a) est représentée la tension générée par le PJVS qui vaut 0 V ou 1 V selon le courant de polarisation. Un segment non-polarisé (marche de Shapiro $n=0$) agit comme un court-circuit parfait, alors qu'un segment polarisé ($n=1$) génère une tension donnée par :

$$U_J = n_J K_J^{-1} f_J = n_J \frac{h}{2e} f_J \quad (7.1)$$

où n_J est le nombre de jonctions polarisées sur la marche de Shapiro $n = \pm 1$. Sur la photo figure 7.7 a) on peut voir un réseau Josephson SINIS (Supraconducteur=Nb Isolant=AlOx Normal=Al Isolant Supraconducteur) de 7168 jonctions subdivisées en plusieurs segments reliés en série selon la séquence 256/512/3072/2048/1024/128/1/1/2/4/8/16/32/64 jonctions (réseau PJVS # A). Deux réseaux PJVS # B et PJVS # ref ont également été utilisés et sont subdivisés en segments de 4096/2048/1024/512/256/128/1/1/2/4/8/16/32/64 jonctions. Pour le réseau PJVS # ref, seulement certains segments seront utilisés avec un maximum de 1920 jonctions polarisées. Le tableau suivant récapitule les principales caractéristiques des différents réseaux utilisés lors de l'expérience : où I_C est le courant critique, ΔI_{Bias} est l'amplitude en courant de la marche de tension et P_{RF} est la puissance radio-fréquence envoyée dans le réseau. Avant et après utilisation des réseaux Josephson comme étalons de tension, il est nécessaire de vérifier la taille des marches $n = 0$ et

	PJVS#A	PJVS#B	PJVS#ref
I_C (mA)	1,4	1,6	3,5
ΔI_{Bias} (mA) @ $n = 0$	0,6	1,1	3,1
ΔI_{Bias} (mA) @ $n = 1$	0,6	0,8	1,0
$I_{mid.}$ (mA)	2,4	3,65	4,4
n_J	7168	8191	1920
f (GHz)	70	70,111	70
P_{RF} (mW)	30	10	65

TABLE 7.1 – Caractéristiques des différents réseaux Josephson utilisés.

$n = 1$, de repérer les valeurs de courant de leurs centres ainsi que de vérifier leurs platitudes. Une caractéristique I-V (figure 7.8 a)) est systématiquement faite pour vérifier les propriétés des marches avant et après utilisation des réseaux.

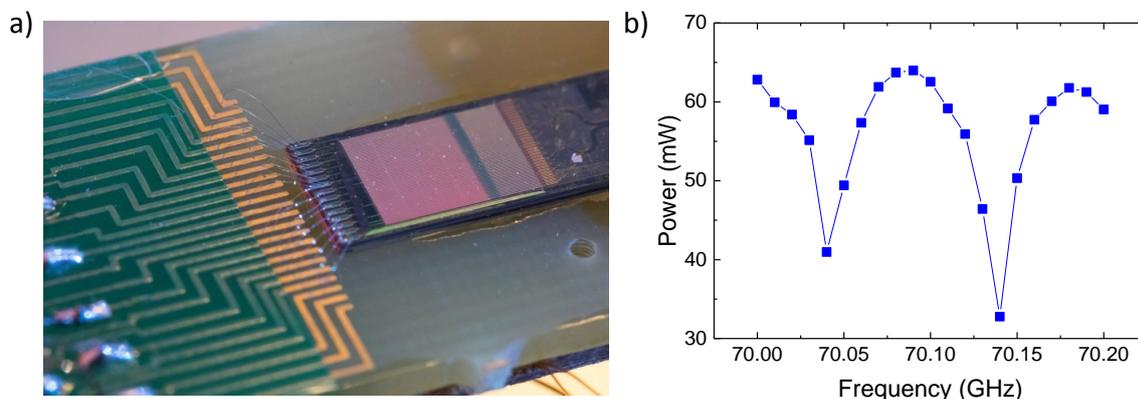


FIGURE 7.7 – a) Photo d'un réseau Josephson SINIS de 7168 jonctions. b) Puissance transmise en fonction de la fréquence, autour de 70 GHz, en sortie de canne.

Les étalons quantiques de tension (photographie de la figure 7.7 a)), sont plongés dans des bains d'hélium liquide à 4,2 K. Ils sont protégés des champs magnétiques extérieurs grâce à un blindage CRYOPERM. La puissance radio-fréquence envoyée sur l'étalon est synthétisée par un synthétiseur micro-onde "MMWF" qui est référencé par un signal à 10 MHz, généré par un étalon de fréquence au rubidium asservi par GPS. La canne est dimensionnée afin de limiter les réflexions de l'onde radio-fréquence à 70 GHz, pour qu'un maximum de puissance soit transmise au réseau Josephson, en bas de la canne, comme représenté figure 7.7 b). Très récemment, une résistance faisant office de chauffage a été placée en bas de la canne près du réseau, de sorte à pouvoir facilement faire transiter le réseau, d'un état supraconducteur à 4,2 K, à un état normal à une température supérieure à la température critique du niobium qui est de 9,2 K. Cela permet d'expulser les vortex de flux magnétiques qui peuvent entrer à l'intérieur du supraconducteur suite au passage du courant ou à divers bruits électriques. La transition de l'état normal vers l'état supraconducteur permet de retrouver une quantification parfaite de la marche de tension.

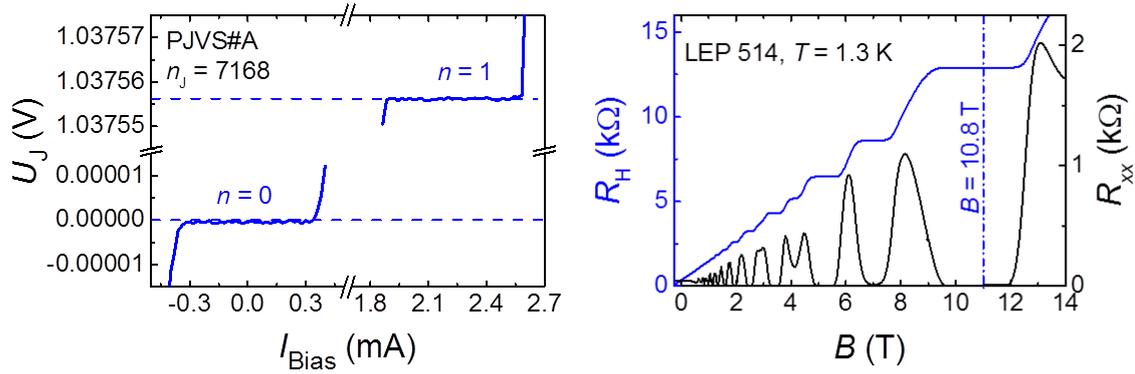


FIGURE 7.8 – a) Courbe $U_J(I_{bias})$ d'un réseau Josephson. Les marches $n = 0$ et 1 lorsque la totalité des jonctions sont polarisées. b) Courbes de magnéto-résistance d'un étalon en GaAs/AlGaAs. Le minimum de R_{xx} est à 10,8 T.

L'étalon de résistance GaAs/AlGaAs

L'étalon de résistance est fondé sur une hétérostructure semiconductrice en GaAs/AlGaAs en forme de barre de Hall (LEP514). Il a été fabriqué au Laboratoire Electronique de Philips [107] et a toutes les caractéristiques d'un étalon selon le guide technique métrologique [25]. Le minimum de résistance longitudinale ($R_{xx} \leq 10 \mu\Omega$) est atteint pour 10,8 T à 1,3 K et des courants de mesure inférieurs à $60 \mu A$ comme présenté sur la figure 7.8 b). Dans ces conditions, la résistance de Hall vaut $R_K/2$ avec une incertitude inférieure à 1×10^{-10} . L'échantillon est homogène et tous ces contacts sont inférieurs à $0,1 \Omega$.

La connexion entre les étalons

Nous avons vu précédemment que les étalons quantiques, pris séparément, fonctionnaient parfaitement. Il faut maintenant prendre des précautions au niveau des connexions entre les étalons, afin d'avoir un courant circulant dans la boucle primaire, $I_{PQCS} = 2n_J f_J (R_K K_J)^{-1}$. Ce courant pourra être utilisé comme courant de référence pour asservir une source externe. Dans le cas simple d'une connexion entre le réseau Josephson et la barre de Hall, la résistance des câbles ($r = 4 \Omega$), aurait pour conséquence de modifier la valeur de la résistance connectée au réseau Josephson. Le courant vaudrait alors $I_{PQCS} = U_J / (R_H + 2r)$ où r ne peut pas être connu avec une grande exactitude. Pour remédier à ce problème, les propriétés de l'effet Hall quantique ont été utilisées afin de procéder à une multiple connexion [24, 109]. Le modèle électrique Ricketts et Kemeny [116] permet, grâce à une combinaison de sources de tension et de résistances, de reproduire les propriétés électriques des barres de Hall à plusieurs terminaux. Une barre de Hall à 8 terminaux est schématisée dans ce modèle sur la figure 7.9 a). Chaque résistance vaut $R_K/2$ et chaque générateur de tension délivre une tension $V = -(i + j)R_K/2$. Sur cet exemple, les différents fils connectent la barre de Hall en quatre points et forment une double connexion. Cette

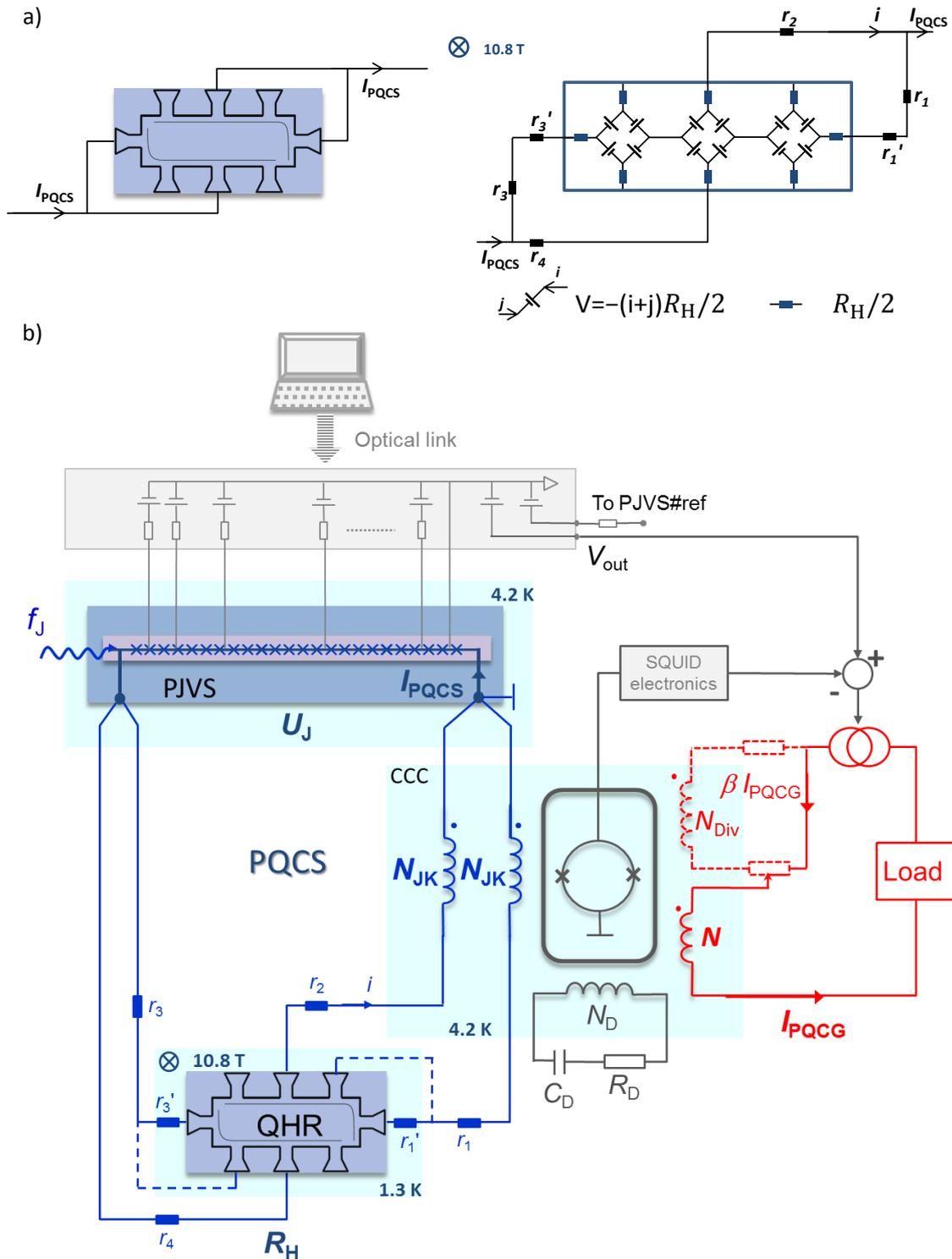


FIGURE 7.9 – a) Schéma de la double connexion dans le symbolisme de Ricketts et Kemeny. Les résistances noires représentent les résistances des câbles, tandis que les bleus symbolisent l'effet Hall quantique sur le plateau $\nu = 2$. Chaque générateur génère une tension $V = -(i + j)R_H/2$. b) Schéma des connexions du générateur quantique de courant (PQCG pour Programmable Quantum Current Generator). En traits pleins bleus, la boucle primaire. Si on rajoute un câble, symbolisé par les tirets bleus, on obtient la triple connexion "locale". En rouge, la boucle secondaire. Les parties en bleu clair symbolisent une température inférieure ou égale à 4,2 K.

représentation de la barre de Hall suppose que la résistance longitudinale soit négligeable. La chiralité des canaux de bord imposée par le champ magnétique définit les règles de circulation de courant dans l'échantillon. Ainsi, le courant I_{PQCS} (PQCS pour Programmable Quantum Current Source) circule en majorité dans le câble de résistance $(r_1 + r'_1)$ (typiquement 4Ω), ce qui donne lieu à une chute de potentiel $(r_1 + r'_1) \times (I_{\text{PQCS}} - i)$, où i est un petit courant qui circule dans le second fil de connexion. On rappelle qu'en régime d'effet Hall quantique, la résistance mesurée en deux fils vaut R_{H} . La loi des mailles donne :

$$(r_1 + r'_1)(I_{\text{PQCS}} - i) = (R_{\text{H}} + r_2)i \quad (7.2)$$

ce qui mène à :

$$i = \frac{r_1 + r'_1}{r_1 + r'_1 + r_2 + R_{\text{H}}} I_{\text{PQCS}} \quad (7.3)$$

Comme R_{H} est très supérieur à la somme des résistances $r_1 + r'_1 + r_2$, on peut approximer la chute de potentiel associée à $(r_1 + r'_1)r_2/R_{\text{H}} \times I_{\text{PQCS}}$ qui va s'ajouter à $R_{\text{H}} \times I_{\text{PQCS}}$. La correction relative à la résistance est $(r_1 + r'_1)r_2/R_{\text{H}}^2$ valant typiquement 9×10^{-8} . Cette correction est bien plus faible que $(r_1 + r'_1)/R_{\text{H}}$, typiquement 3×10^{-4} pour une connexion unique. La triple connexion permet de réduire encore la valeur des corrections. Certaines mesures ont été faites avec une double ou une triple connexion (lignes en pointillés sur la figure 7.9 b), afin de réduire encore la contribution des câbles de connexion. Dans tous les cas, le courant I_{PQCS} peut s'écrire comme :

$$I_{\text{PQCS}} = \frac{U_{\text{J}}}{R_{\text{H}}}(1 - \alpha) = 2n_{\text{J}}(K_{\text{J}}R_{\text{K}})^{-1}f_{\text{J}}(1 - \alpha) \quad (7.4)$$

où α est une petite correction calculable en mesurant toutes les résistances des fils ainsi que des connexions. Dans notre expérience $\alpha = 2,99 \times 10^{-7}$ avec une incertitude $u_{\alpha} = 3 \times 10^{-9}$ dans le cas de la double connexion et $\alpha = 2,2 \times 10^{-7}$ avec une incertitude $u_{\alpha} = 2,59 \times 10^{-9}$ dans le cas de la triple connexion locale, schématisée par les fils en pointillés bleu sur la figure 7.9 b). Pour diminuer au maximum les courants de fuite, les mêmes précautions que pour la comparaison de résistance sont prises. Les câbles connectés à l'effet Hall quantique, de potentiel haut et de potentiel bas sont isolés et écrantés par une tresse mise à la terre. Les câbles ont une forte isolation électrique d'environ $r_{\text{L}} = 1 \text{ T}\Omega$ puis sont torsadés entre eux. En prenant ces précautions et en connectant le point bas du réseau Josephson à la terre, les courants de fuites aux bornes de l'étalon sont redirigés vers la terre. Ainsi, le courant circulant dans la résistance de Hall est le même que celui circulant dans les enroulements du CCC. L'écart relatif sur le courant quantifié, dû aux fuites résiduelles aux bornes du CCC, est de l'ordre de $(r_1 + r'_1)/r_{\text{L}} \approx 4 \times 10^{-12}$.

Le dernier élément de la boucle primaire présentée sur la figure 7.2.1 b) est le CCC. L'exactitude du PQCG repose sur la détection et l'amplification avec un gain G du courant quantifié total. Pour cela, les fils issus de la multiple connexion sont chacun connecté à un enroulement du CCC, de même nombre de tours N_{JK} . Cette astuce permet de sommer puis d'amplifier la totalité des courants circulant dans les enroulements du CCC, c'est-à-dire le courant quantifié I_{PQCS} .

7.2.2 Le circuit secondaire

La détection ainsi que l'amplification du courant quantifié est un point critique. Il faut pouvoir détecter le courant sans pour autant briser la quantification. Pour cela, le CCC est l'outil parfait puisque la détection se fait par couplage magnétique, sans perturber le courant I_{PQCS} . Un troisième enroulement est utilisé dont le nombre de tours N peut aller de 1 à 4130 (figure 7.9 b)). Cet enroulement est connecté à une source de courant bas bruit sur batterie qui est asservie par la tension de sortie du SQUID ce qui permet d'annuler le nombre d'ampères.tours total selon $N_{JK}I_{PQCS} - NI_{PQCG} = 0$. Il en résulte que le courant généré est $I_{PQCG} = G.I_{PQCS}$ où $G = N_{JK}/N$ est le gain d'amplification. Le gain est le paramètre principal permettant d'ajuster la valeur du courant généré sur 6 ordres de grandeur, de la dizaine de milliampère jusqu'à la dizaine de nano-ampère. Une modulation fine est possible en modifiant la fréquence Josephson f_J ou le nombre de jonctions Josephson n_J utilisées.

Une autre manière de faire est d'utiliser un pont diviseur de courant (DC) pour dériver une fraction β du courant dans un quatrième enroulement du CCC de nombre de tours N_{Div} (typiquement $N_{Div}=16$ tours)(figure 7.9 b)). Dans ce cas, le gain peut se réécrire :

$$G_\beta = \frac{N_{JK}}{N + \beta N_{Div}} \quad (7.5)$$

où β peut varier de $\pm 5 \times 10^{-5}$ et est déterminé avec une incertitude $u_\beta = 0,5 \times 10^{-9}$. Sur la figure 7.9 b), la source de courant externe est pré-réglée par une tension V_{out} afin de limiter les erreurs causées par le gain d'amplification fini de l'électronique du SQUID. Cette tension est générée simultanément à la tension Josephson, ce qui permet au CCC de toujours détecter un nombre d'ampères.tours presque nul lors des alternances on-off de courant. Dans ces conditions, nous avons montré que l'erreur relative de quantification du générateur PQCG, due au gain fini en boucle ouverte du SQUID, était inférieure à $0,5 \times 10^{-9}$.

7.2.3 Stabilité, bruit et exactitude

Le bruit du courant I_{PQCG} est principalement causé par le bruit du courant I_{PQCS} ainsi que par le bruit du SQUID du CCC. Ce bruit peut s'exprimer sous la forme :

$$\frac{S_I^{PQCG}}{I_{PQCG}}(f) = \frac{\gamma_{CCC}}{N_{JK}n_Jef_J} \times S_\phi(f) \quad (7.6)$$

où $S_\phi(f)$ est le bruit détecté par le SQUID et $\gamma_{CCC} = 8 \mu\text{A.tour}/\phi_0$ est la sensibilité du CCC. Utiliser un grand nombre de jonctions Josephson ou des enroulements de grands nombres de tours N_{JK} est donc favorable à l'amélioration du rapport signal sur bruit. $S_\phi(f)$ est composé du bruit du SQUID $S_{SQUID}(f)$, du bruit Johnson-Nyquist de l'étalon de résistance ainsi que du bruit externe $S_{ext}(f)$ couplé au CCC. Toutes ces sources de bruit se manifestent dans le circuit primaire. $S_\phi(f)$ s'écrit donc :

$$S_\phi(f) = \sqrt{S_{SQUID}(f)^2 + \left(\frac{4k_B T}{R_H}\right) \left(\frac{N_{JK}}{\gamma_{CCC}}\right)^2 + S_{ext}(f)^2} \quad (7.7)$$

où $T = 1,3$ K est la température de l'échantillon de résistance GaAs/AlGaAs. La densité de bruit en flux magnétique générée par l'étalon de résistance quantique est de $1 \mu\phi_0/\text{Hz}^{1/2}$. Cette valeur est bien inférieure au niveau de bruit de base mesuré par le SQUID lorsqu'il est couplé au CCC, sans enroulement connecté, qui vaut approximativement $10 \mu\phi_0/\text{Hz}^{1/2}$ (en dehors des résonances mécaniques), comme observé sur la figure 7.10 (courbe noire).

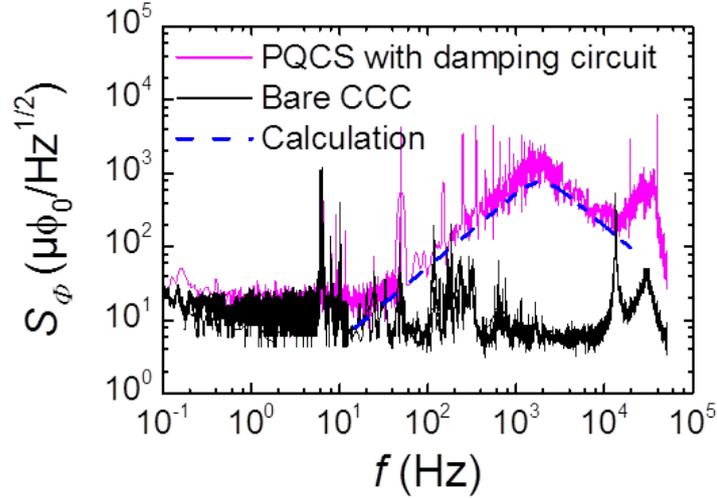


FIGURE 7.10 – En noir, la densité spectrale de bruit du CCC uniquement dans le mode de contre-réaction interne. En rose, le CCC est connecté au circuit PQCS ainsi qu’au circuit d’amortissement mais sans la source de courant externe. Les pointillés bleus représentent le niveau de bruit généré par le circuit d’amortissement causé par le bruit de Johnson-Nyquist de la résistance R_D .

Les trois dispositifs quantiques : l'étalon quantique de résistance, le réseau Josephson ainsi que le CCC, sont placés dans des cryostats différents et reliés par de longs câbles à température ambiante. Bien que les câbles soient blindés, une partie du bruit est captée et transmise au CCC. Dans le but d'avoir un gain suffisant, mais également pour avoir une plus grande sensibilité dans la détection du courant, le nombre de tours du CCC a été augmenté au maximum (129 tours) permettant la stabilité de fonctionnement du SQUID. Un gain important amplifie en effet les bruits captés par la grande longueur des câbles ce qui conduit à exciter les résonances du CCC. Pour conserver le SQUID stable, il a été nécessaire de rajouter un circuit d'amortissement sur un cinquième enroulement du CCC, de nombre de tours $N_D = 1600$ tours et d'inductance $L_D \simeq 70$ mH. Ce dispositif est constitué d'une résistance $R_D \simeq 1$ k Ω en série avec une capacité $C_D \simeq 100$ nF. Ce circuit d'amortissement permet d'amortir l'amplification des bruits aux fréquences de résonance du CCC. Cela permet de stabiliser le CCC et le SQUID bien que le niveau de bruit à fréquence intermédiaire soit bien supérieur à celui du CCC seul, comme représenté en violet sur la figure 7.10. Ce bruit supplémentaire est expliqué par le bruit Johnson-Nyquist qui vient de la résistance R_D placée à température ambiante $T_D = 300$ K. L'amplitude théorique de ce bruit (représentée en tiretés bleus sur la

courbe) est donnée par :

$$|S_{\phi}^D(f)| = \frac{N_D C_D 2\pi f \sqrt{4k_B T_D R_D}}{\gamma_{CCC} \sqrt{(1 - L_D C_D (2\pi f)^2)^2 + (R_D C_D 2\pi f)^2}}. \quad (7.8)$$

Pour des fréquences basses entre 0,1 Hz et 6 Hz, le bruit de l'ensemble PQCS avec le circuit d'amortissement, reste constant et faible, avec un niveau d'environ $20 \mu\phi_0/\text{Hz}^{1/2}$, qui est quand même supérieur à celui du CCC seul. Un peu de bruit externe est donc bien capté. Il est possible de déduire que le niveau de bruit blanc relatif sur le courant généré par le PQCG est $S^A(I_{\text{PQCG}}) = 3.6 \times 10^{-8}/\text{Hz}^{1/2}$ à basses fréquences (entre 0,1 Hz et 6 Hz). Cela permet d'envisager l'obtention d'incertitudes de type A inférieures à 10^{-8} pour un temps de mesure raisonnable. En dessous de 0,1 Hz, le bruit remonte en $1/f^{1/2}$, ce qui est attendu pour le SQUID à basse fréquence.

Quant aux incertitudes de type B, elles viennent principalement des incertitudes sur les corrections de câbles u_{α} et sur l'étalonnage du diviseur de courant u_{β} , les autres contributions étant négligeables. On peut calculer l'incertitude standard relative $u_{\text{PQCG}}^B \approx \sqrt{u_{\alpha}^2 + (u_{\beta} \times N_{\text{DIV}}/N)^2}$. Le tableau 7.2 présente le budget complet des incertitudes de type B sur le courant du PQCG, exprimées en valeurs relatives. Selon l'utilisation ou non du diviseur de courant étalon (DC), l'incertitude totale

Contributions	u (10^{-9})	Sensibilité	u_{PQCG}^B (10^{-9})
Correction de câble	$u_{\alpha} = 2,5$	1	2,5
Contre-réaction	$< 0,5 \times 10^{-9}$	1	$< 0,5 \times 10^{-9}$
Exactitude CCC	$< 1 \times 10^{-10}$	1	$< 1 \times 10^{-10}$
QHRS	$< 1 \times 10^{-10}$	1	$< 1 \times 10^{-10}$
Fuite de courant	$< 1 \times 10^{-11}$	1	$< 1 \times 10^{-11}$
Fréquence	$< 1 \times 10^{-11}$	1	$< 1 \times 10^{-11}$
Diviseur de courant (DC)	$u_{\beta} = 0.5$	N_{Div}/N	$0.5 \times N_{\text{Div}}/N$
Total (sans DC)			2,5
Total (avec DC)			8,4 ($N = 1$)

TABLE 7.2 – Budget d'incertitude relative de type B du PQCG.

varie de $8,4 \times 10^{-9}$ (avec DC) à $2,5 \times 10^{-9}$ (sans DC). Finalement, l'incertitude totale combinée est donnée par $u_{\text{PQCG}} = \sqrt{u_{\text{PQCG}}^A{}^2 + u_{\text{PQCG}}^B{}^2}$.

Sur la figure 7.11 a) sont représentées des alternances de courant, on-off pour un courant nominal proche de 1,11 mA obtenu pour $n_J = 3073$, $N_{\text{JK}} = 129$, et $N = 4$. Les créneaux sont réguliers montrant la reproductibilité et le faible bruit du courant I_{PQCG} . La figure 7.11 b) présente trois marches de courant aux valeurs $I_{\text{Meas}} \sim 1,1$ mA, 0,37 mA et 0,18 mA respectivement obtenues pour 3072, 1024 et 512 jonctions Josephson polarisées. Les trois marches sont bien aux valeurs attendues et centrées sur le même courant de polarisation. Elles mettent en évidence une reproductibilité du courant à quelques 10^{-6} près en variant le courant de polarisation I_{Bias} . La largeur en courant des marches est identique avec celle des marches de tension du réseau, ce qui confirme le bon état de quantification de la tension Josephson. L'indépendance du courant de sortie en fonction de I_{Bias} constitue un critère de quantification.

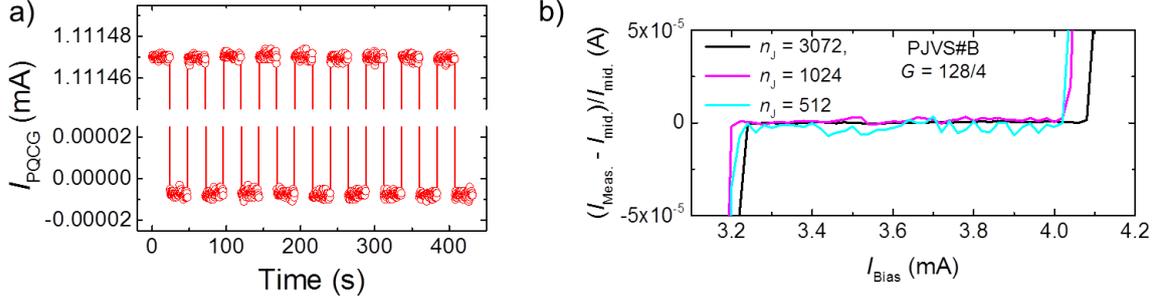


FIGURE 7.11 – a) Série de créniaux (on-off) du courant $I_{PQCG} \approx 1,1$ mA enregistré par un ampèremètre numérique, obtenue pour $n_J = 3073$, $N_{JK} = 129$, et $N = 4$. b) Écart relatif entre le courant mesuré I_{Meas} et le courant au centre de la marche I_{Mid} en fonction du courant de polarisation I_{Bias} pour $n_J = 3072$, 1024, et 512 jonctions du réseau PJVS#B.

7.3 Résultats expérimentaux

7.3.1 Les mesures d'exactitude

La vérification des critères de quantification des étalons de résistance et de tension est une étape nécessaire afin de pouvoir générer un courant quantifié. La seconde étape est de vérifier que le courant généré est lui aussi quantifié. Pour cela un courant I_{PQCG} , dans la gamme du milliampère, est produit en utilisant un premier PJVS# A et un QHRS. Ce courant est ensuite comparé à sa valeur théorique $2G_\beta n_J (R_K K_J)^{-1} \times f_J (1 - \alpha)$.

La mesure du courant I_{PQCG} se fait en utilisant un détecteur de zéro EMN31 qui mesure la différence de potentiel ΔV , qui s'établit entre la tension aux bornes d'une résistance étalon R_{100} de résistance nominale de 100 Ω alimenté par le courant I_{PQCG} de référence, et la tension V_J^{ref} générée par un second réseau PJVS# ref. Le schéma de la comparaison est présenté sur la figure 7.12 a). La résistance étalon est calibrée avec une incertitude relative de $2,5 \times 10^{-9}$. Les deux réseaux Josephson et le pilotage de la source de courant sont synchronisés de sorte que l'EMN 31 mesure toujours une faible tension. Les courants I_{PQCG} et V_J^{ref}/R_{100} sont ajustés en sélectionnant les bons nombres de jonctions Josephson à polariser ainsi que le gain du CCC G_β . Nous avons décidé de ne pas modifier la fréquence des deux PJVS qui est de 70 GHz, qui est la fréquence optimale pour les deux réseaux, pour toute la durée de l'expérience. La modification de la fréquence ne devrait pas poser de problème. Cependant des écarts supérieurs à 10^{-8} ont été observés mais qui pourraient être expliqués par la mise en évidence de réflexions anormalement élevées sur le PJVS # ref, du fait de la modification de la fréquence. De nouvelles investigations devront être faites dans le but de modifier l'expérience afin de rendre la modification de la fréquence fiable.

Un équilibre est obtenu entre le courant I_{PQCG} et V_J^{ref}/R_{100} pour une certaine valeur de gain G_{β_0} où β_0 est la fraction de courant permettant l'équilibre. Le rapport V_J^{ref}/R_{100} est parfaitement connu en terme du produit $(R_K K_J)^{-1}$. L'exactitude du PQCG est ensuite définie par l'écart relatif entre le courant mesuré

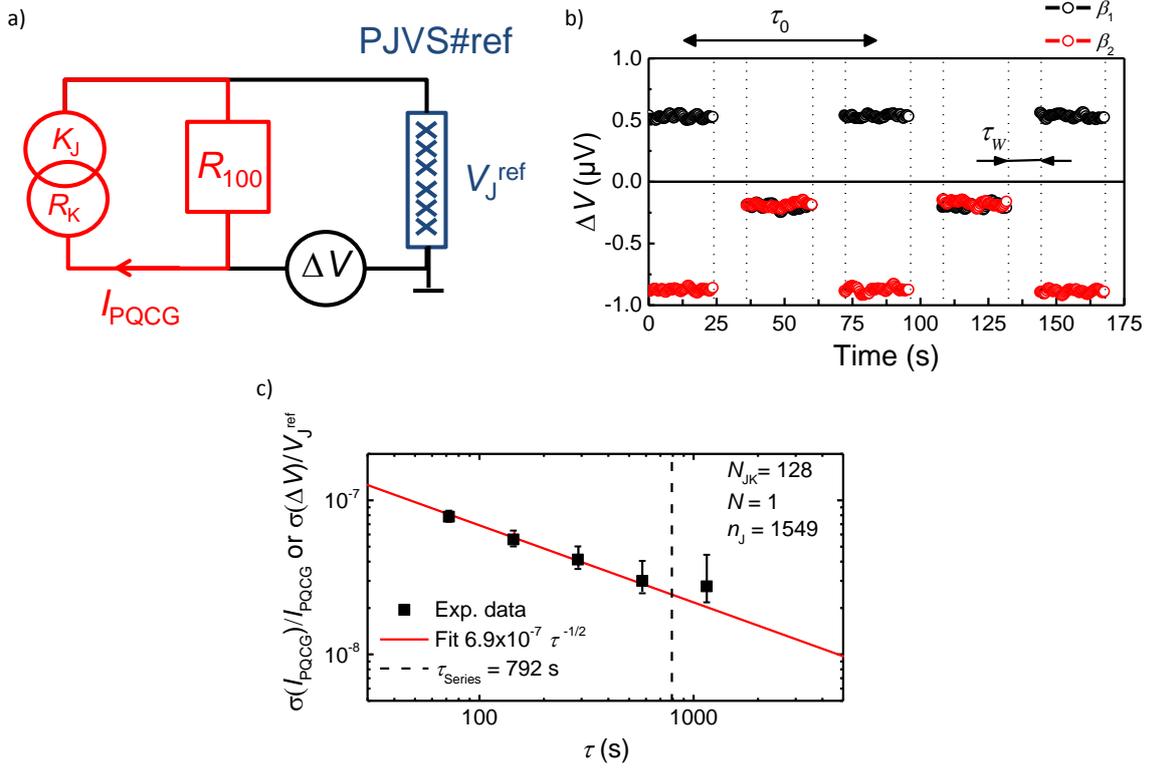


FIGURE 7.12 – a) Schéma du dispositif expérimental. b) Tension mesurée aux bornes du détecteur de zéro pour deux séries de créneaux (on-off) obtenues pour deux réglages, β_1 (points noirs) et β_2 (points rouges) du diviseur de courant. La durée d'un cycle on-off-on est $\tau_0 = 72$ s. Le temps d'attente après changement de la valeur du courant et avant enregistrement des données est $\tau_w = 12$ s. c) Écart relatif d'Allan du courant I_{PQCG} calculé à partir d'une série de 49 cycles on-off-on en fonction du temps τ .

$I_{PQCG} = V_J^{\text{ref}}/R_{100}$ et le courant attendu $G_{\beta_0} I_{PQCS}$ calculé à partir de β_0 , tel que :

$$\frac{\Delta I_{PQCG}}{I_{PQCG}} = \frac{(I_{PQCG} - G_{\beta_0} I_{PQCS})}{I_{PQCG}} \quad (7.9)$$

En pratique, on choisit deux valeurs β_+ et β_- qui encadrent β_0 . Ces deux valeurs induisent respectivement deux différences de tension ΔV_+ et ΔV_- . Ces deux fractions permettent de remonter à la réelle fraction donnant l'équilibre grâce à la relation :

$$\beta_0 = \beta_- + (\beta_+ - \beta_-) \times \frac{|\Delta V_-|}{|\Delta V_+| + |\Delta V_-|} \quad (7.10)$$

Pour mesurer ces deux tensions de manière précise, une série de 11 cycles on-off de courant est effectuée, comme illustré sur la figure 7.12 b). Ces cycles permettent de soustraire les tensions d'offset et de supprimer les bruits en $1/f$ du CCC aux fréquences de répétition des cycles $f < 1/\tau_0$, ou $\tau_0 = 72$ s est la durée d'un cycle on-off-on. Le bruit de la mesure est analysé grâce à une variance d'Allan. Sur la figure 7.12 c), la variance d'Allan σ suit une relation en $\tau^{-1/2}$, ce qui signifie que le bruit est blanc sur un temps de mesure d'une durée d'au moins 792 s (11 cycles

d'une mesure classique). Cela justifie l'utilisation du calcul de l'écart type sur la moyenne pour évaluer les incertitudes de type A. Par exemple, pour $n_J = 1549$, l'incertitude de type A sur la mesure de la tension ΔV vaut $2,5 \times 10^{-8}$ en valeur relative de la tension V_J^{ref} . À l'incertitude de type A, il faut ajouter l'incertitude de type B. Ces incertitudes viennent principalement des incertitudes sur β_1 et β_2 , sur les corrections des câbles ainsi que sur l'étalonnage de la résistance R_{100} . Au final, l'incertitude totale relative sur la valeur du courant I_{PQCG} généré pour un nombre de jonctions $n_J = 3072$, pour un temps de mesure de 1600 s reste inférieure à 10^{-8} .

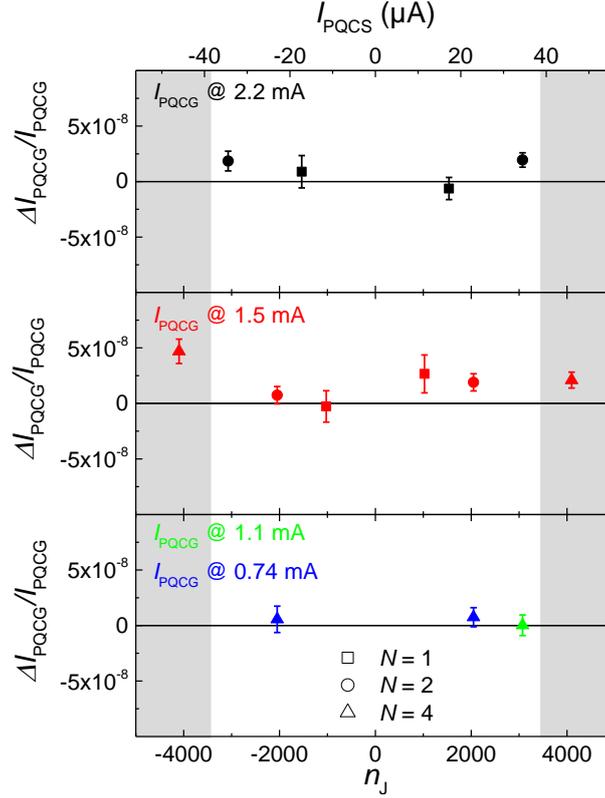


FIGURE 7.13 – $\Delta I_{\text{PQCG}}/I_{\text{PQCG}}$ en fonction de n_J (ou I_{PQCS}) pour différentes valeurs du courant (à la fois positives et négatives) générées par le PQCG dans la gamme du mA, en utilisant différentes valeurs de N . Les barres d'erreurs expriment des incertitudes combinées avec un écart-type (1σ).

La figure 7.13 présente l'écart relatif de la valeur du courant à la valeur théorique calculée $\Delta I_{\text{PQCG}}/I_{\text{PQCG}}$ en fonction du nombre n_J de jonctions Josephson du réseau PJVS# A polarisées. La génération d'un même courant I_{PQCG} , pour différentes valeurs de n_J , est obtenue en variant le nombre N de tours pour maintenir le rapport n_J/N constant. L'absence d'écart significatif entre les valeurs de deux courants supposés identiques, mais générés avec des nombres de n_J , c'est à dire avec des courants primaires I_{PQCS} différents, constitue une confirmation du bon état de quantification des différents étalons quantiques et du bon fonctionnement du générateur de courant. C'est un critère de quantification de l'étalon de courant. Dans notre expérience, les écarts relatifs mesurés restent inférieurs à 2×10^{-8} , tant que $n_J \leq \pm 3074$ et pour $\pm 0,74 \leq I_{\text{PQCG}} \leq 2,2$ mA.

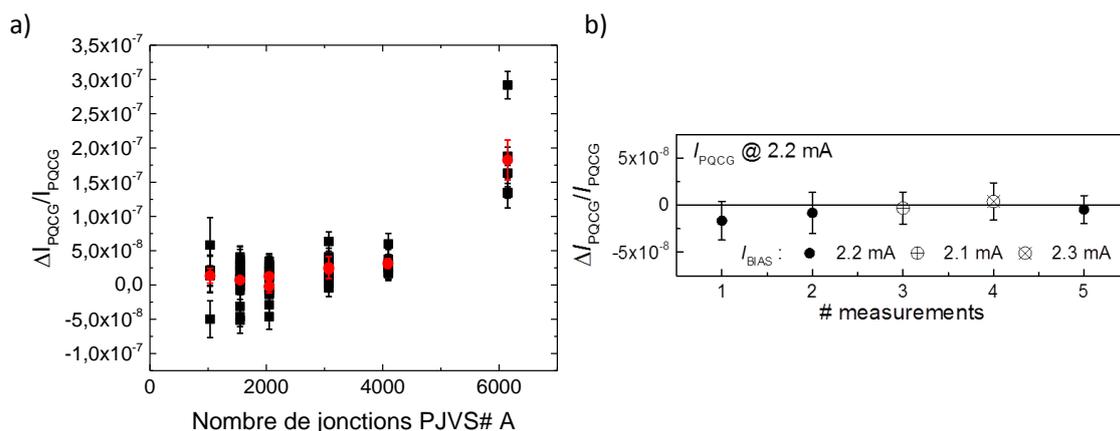


FIGURE 7.14 – a) $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG}$ en fonction du nombre de jonctions polarisées du réseau Josephson PJVS# A. Les points rouges correspondent aux moyennes des différentes mesures. b) Mesure de reproductibilité en fonction du temps. Les 5 mesures ont été réalisées sur une période de 4 heures. Le courant nominal généré est de 2,2 mA. Plusieurs gammes de courants de polarisation du réseau Josephson PJVS# A ont été utilisées.

Pour $n_j = 6144$ une quantification du courant avec une incertitude inférieure à 10^{-7} n'a jamais pu être observée. Pour des valeurs de jonctions supérieures ou égales à 4098, des écarts pouvant aller jusqu'à 2×10^{-7} sont apparus. Un effet similaire, bien que plus faible, a été observé occasionnellement après plusieurs heures de mesure pour $n_j \leq 4098$. Une augmentation de la dispersion des valeurs mesurées est également observée. L'origine de ces écarts n'est pas clairement comprise à l'heure actuelle : nous avons confirmé la parfaite quantification des étalons de tensions PJVS# A et PJVS# ref, ainsi que de l'étalon de résistance. Cela permet d'exclure une perte de la quantification de la tension ou de la résistance. Il apparaît que, plus le nombre de jonctions utilisées est faible, plus les effets observés le sont aussi. La figure 7.14 a) présente les écarts de quantification de la valeur du courant en fonction du nombre de jonctions n_j du PJVS# A (donc de la tension du PJVS# A). Un nombre de jonctions de 6144 correspond à une tension de 0,89 V. La figure montre une augmentation de la dispersion des points avec le nombre de jonctions. Ces écarts disparaissent lorsque le réseau PJVS# A est réchauffé à température ambiante puis refroidi à la température de l'hélium liquide, pour $n_j \leq 3074$. Cela pourrait laisser penser à une altération de la supraconductivité des plots supraconducteurs du réseau PJVS# A due à la circulation du courant I_{PQCS} . L'ajout de plots supraconducteurs supplémentaires, aux extrémités du réseau, permettraient de connecter les fils de tension et de courant sur des plots supraconducteurs différents.

Pour illustrer la reproductibilité temporelle du courant $I_{PQCG} = 2,2 \text{ mA}$ avec un faible nombre de jonctions, ici 3074 et $N_{JK} = 129$, une succession de mesures, sur quatre heures, a été tracée sur la courbe 7.14 b). Elle montre qu'il n'y a pas d'écart à 10^{-8} près. Cette figure montre également l'indépendance de I_{PQCG} avec le courant de polarisation I_{Bias} , variant de plus ou moins 0,1 mA autour du centre de la marche

de Shapiro à 2,2 mA. Cela reflète la parfaite quantification de la marche de Shapiro. On vérifie donc à nouveau que le critère de quantification fondé sur l'indépendance du courant avec I_{Bias} est vérifié.

Nous avons vérifié que le passage de la double connexion à la triple connexion locale représentée par les traits en pointillés bleus sur la figure 7.9 b), se fait sans problème. Le courant généré vaut bien $I_{PQCG} = G \frac{U_J}{R_H} (1 - \alpha)$, la valeur de la correction α passe de $\alpha = 2,99 \times 10^{-7} \pm 3 \times 10^{-9}$ pour la double connexion à $\alpha = 2,2 \times 10^{-7} \pm 2,59 \times 10^{-9}$ pour la triple connexion. Ainsi l'écart relatif mesuré en une acquisition, pour $n_J = 2049$ est de $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG} = -7 \times 10^{-9} \pm 1,6 \times 10^{-8}$ en double connexion, et passe à $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG} = 1,3 \times 10^{-8} \pm 1,8 \times 10^{-8}$ en triple connexion locale. Il n'y a pas de désaccord à l'incertitude de mesure près.

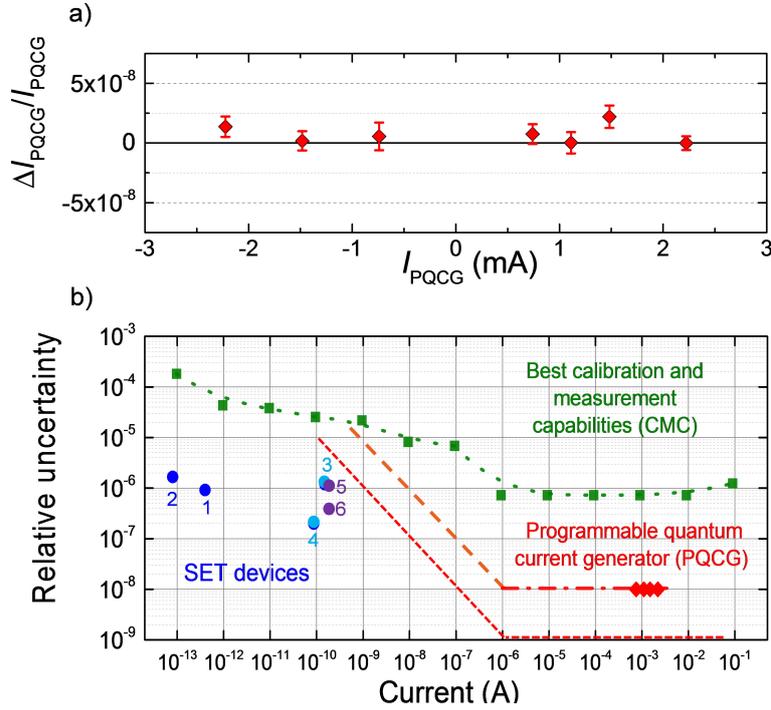


FIGURE 7.15 – a) $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG}$ en fonction du courant dans la gamme du milliampère. b) Comparaison des incertitudes relatives pour des courants générés par le PQCG et celles de l'état de l'art regroupant les meilleurs CMC (Calibration and Measurement Capabilities) (vert) et les meilleurs résultats des pompes à électrons (bleu). La courbe en tirets-pointillés correspond aux incertitudes du PQCG dans la gamme de $1 \mu A$ à 10 mA. Les losanges rouges correspondent aux courants pour lesquels des mesures d'exactitudes ont été réalisées. La courbe en tirets orange correspond aux incertitudes du générateur de courant attendues pour $I \leq 1 \mu A$. La courbe en tirets courts rouges correspond aux incertitudes du générateur de courant espérées à l'issue de futures améliorations.

En moyennant tous les écarts mesurés $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG}$ de la figure 7.13 obtenus pour $n_J \leq 3074$, il a été possible de réaliser la figure 7.15 a). Aucun écart significatif de $\Delta I_{PQCG}/I_{PQCG}$, supérieur à 1×10^{-8} , n'a été mesuré sur toute la gamme de courant considéré. L'écart type expérimental des écarts est de 8×10^{-9} tandis que

la moyenne pondérée vaut $(6 \pm 6) \times 10^{-9}$. Ces résultats démontrent l'exactitude de la quantification du PQCG en terme du produit $(K_J \times R_K)^{-1} \equiv e/2$ avec une incertitude relative de 10^{-8} dans la gamme du milliampère, ce qui est cohérent avec le bilan d'incertitude que nous avons établi.

La valeur du courant I_{PQCG} ne dépend pas uniquement de la valeur de I_{PQCS} . Il dépend également de la valeur du gain $G = N_{\text{JK}}/N$, où N_{JK} est fixé et N peut varier entre 1 et 4130, soit sur quatre ordres de grandeur. Le gain est connu avec une grande exactitude, on peut donc le faire varier tout en préservant l'exactitude si $n_J \leq 3074$. Le courant I_{PQCS} reste alors inférieur à $35 \mu\text{A}$, ce qui est proche de la valeur d'utilisation courante de l'étalon de résistance en AlGaAs/GaAs. Cela ne limite pourtant pas la valeur du courant généré I_{PQCG} . De plus, la densité de bruit en courant S_I/I ne dépend pas du gain G mais seulement de n_J . Si on prend le maximum de jonctions Josephson possibles $n_J = 3074$, le rapport signal sur bruit est le meilleur possible. On en déduit que le PQCG peut générer des courants de $1 \mu\text{A}$ jusqu'à 10 mA avec une incertitude de 1×10^{-8} en valeur relative, comme illustré sur la figure 7.15 b). Dans cette gamme de courant, les meilleurs capacités de calibration et de mesure étaient légèrement meilleures que 1×10^{-6} en valeur relative. L'étalon quantique programmable améliore donc cet état de l'art de presque deux ordres de grandeur. Les courants générés par le PQCG sont bien supérieurs à ceux générés par les pompes à électrons (6 ordres de grandeurs) et leurs incertitudes relatives sont plus de 10 fois inférieures.

7.3.2 Le PQCG pour la traçabilité du courant

Après avoir montré que le PQCG était un étalon quantique de courant exact, il était important, de l'utiliser en condition réelle d'étalonnage d'un appareil commercial, en l'occurrence un ampèremètre numérique (HP3458A). Il s'agissait notamment de mettre à l'épreuve les critères de quantification déjà évoqués. La connexion entre l'ampèremètre et le PQCG nécessite une capacité très haute isolation de filtrage pour éliminer les bruits numériques émis par l'ampèremètre qui déstabilisent le fonctionnement du SQUID. Une auto-calibration est réalisée avant chaque série de mesure sur un même calibre. L'appareil a été étalonné pour des courants allant de 10 mA à 100 nA . Pour cela le gain G a été changé ($N_{\text{JK}} = 128$ et N variant de 1 à 4130). Le nombre de jonctions Josephson, $n_J \leq 3072$, a été choisi aussi grand que possible pour optimiser le rapport signal/bruit. Deux critères de quantification vérifiables sans avoir besoin d'un étalon extérieur ont été testés. Le premier est l'indépendance du courant généré avec le courant de polarisation des jonctions du réseau Josephson. Cette propriété est illustrée par les figures 7.11b) et 7.14b). Le second critère de quantification est l'indépendance de la valeur du courant généré en modifiant le nombre de jonctions n_J . Il permet de vérifier qu'il n'y a pas de perte de quantification qui peut apparaître lors d'une utilisation prolongée de plusieurs heures ou jours, sur des valeurs élevées de n_J .

La figure 7.16 présente l'écart relatif entre le courant mesuré I_{Meas} et le courant quantifié $I_{\text{PQCG}} = GI_{\text{PQCS}}$ pour différentes gammes de courant comprises entre 100 nA et 10 mA . Chaque mesure est obtenue à partir de huit cycles on-off-on, soit à peu près 15 minutes de mesure. L'incertitude correspond à l'écart type expérimental sur la moyenne sur une série de huit cycles. Sur le calibre 1 mA , figure 7.16 b), plusieurs

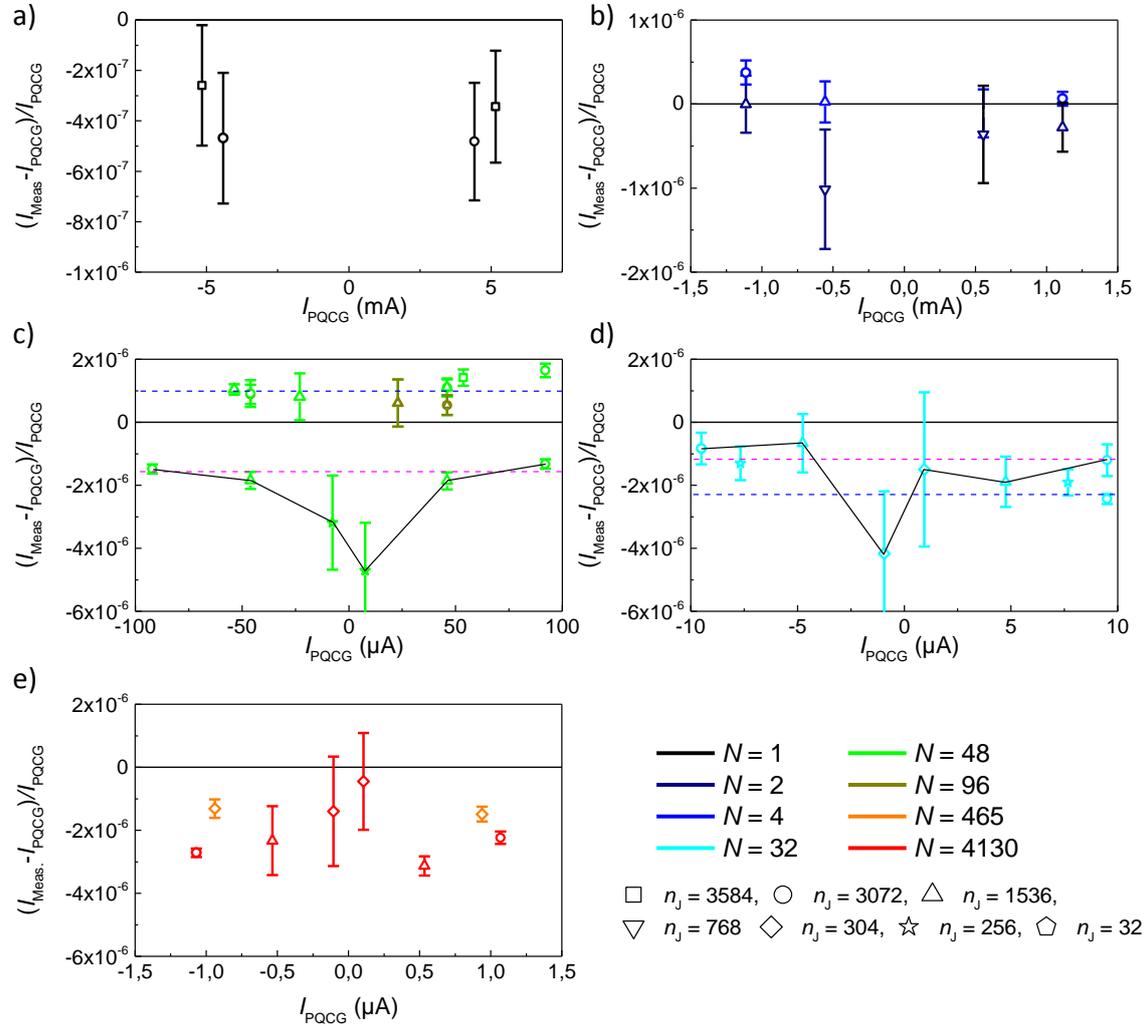


FIGURE 7.16 – Ecart relatif de I_{Meas} par rapport à I_{PQCG} en fonction de I_{PQCG} . Cinq calibres de l'ampèremètre ont été calibrés, du plus haut calibre 10 mA, en haut à gauche, jusqu'à 1 μA en bas à gauche. Les différents symboles représentent différents nombre de jonctions Josephson polarisées. Chaque nombre d'enroulements N du CCC utilisés pour modifier le gain est représenté par une couleur différente. Sur les calibres de 100 et de 10 μA , deux auto-calibrations de l'appareil ont été réalisées. Les mesures reliées entres-elles par un trait noir sont les mesures faites après la seconde auto-calibration. Les traits en pointillés bleus représentent les moyennes pondérés des mesures après la première auto-calibration et en magenta après la seconde calibration.

valeurs de courant I_{PQCG} dans la gamme du milliampère de l'ampèremètre sont générés de deux manières différentes, soit en polarisant n_J jonctions avec un gain G où $N = 4$, soit la moitié des jonctions $n_J/2$ mais avec un gain deux fois plus fort à $N = 2$. Aucun écart significatif au regard des barres d'incertitudes de mesure n'est observé. Cela confirme que le courant généré par le PQCG est bien indépendant de la valeur de I_{PQCS} , tant qu'elle reste inférieure à $35 \mu\text{A}$. Les mesures les plus précises montrent que l'ampèremètre est exact et linéaire à une incertitude relative près de 5×10^{-7} dans la gamme du mA. Ces performances sont meilleures que les spécifications données par le constructeur qui sont : 10×10^{-6} de lecture $+4 \times 10^{-6}$ due au calibre, pour la gamme 1 mA. On peut voir sur le guide technique que les performances de l'appareil se dégradent avec la diminution des calibres. Pour un même calibre, on peut également observer que l'incertitude de mesure est plus grande en bas de calibre. On retrouve cette augmentation de l'incertitude, liée à une diminution du rapport signal sur bruit, sur la figure 7.16 e) pour le calibre 1 μA : une incertitude relative de $\sim 2 \times 10^{-6}$ en bas de calibre tandis qu'en haut de calibre l'incertitude n'est que de $\sim 2 \times 10^{-7}$.

Afin d'observer l'action de l'auto-calibration de l'appareil sur les mesures, nous avons réalisé deux auto-calibrations sur les calibres 100 μA (figure 7.16 c)) et 10 μA (figure 7.16 d)), donnant donc deux séries de mesures par calibre. La première série de mesure est représentée par les points non reliés. Pour le calibre 100 μA (figure 7.16 c)), la moyenne pondérée des écarts est de l'ordre de $+1 \times 10^{-6}$ et est tracée en pointillé bleu. La seconde série de mesure, obtenue après une nouvelle auto-calibration, est représentée par les points reliés par le trait plein noir. La moyenne pondérée des écarts vaut -2×10^{-6} et est représentée en pointillé magenta. Un écart entre les deux moyennes pondérées de plus de $2,5 \times 10^{-6}$ est visible. Pour le calibre 10 μA (figure 7.16 d)) l'écart entre les deux séries de mesure est moins important et n'est que de 1×10^{-6} . Les écarts donnés, après différentes auto-calibrations, sont inférieurs aux spécifications du constructeur. D'autre part, l'auto-calibration n'a pas d'effet sur le niveau d'incertitude de type A. Enfin, dans tous les cas, les mesures montrent que l'appareil est linéaire pour tous les calibres allant de 10 mA à 1 μA .

Pour le calibre de 10 mA, la figure (7.16 a) représente la calibration de l'ampèremètre pour les plus forts courants générés par le PQCG, soit 5,1 mA et 4,4 mA. Les écarts relatifs obtenus pour $n_J = 3584$ et 3072 sont respectivement $(-3 \pm 1, 6) \times 10^{-7}$ et $(-4, 75 \pm 1, 7) \times 10^{-7}$. De manière générale, une incertitude relative de mesure de $\sim 2 \times 10^{-7}$ est obtenue sur tous les hauts de calibre, pour $n_J = 3072$ et N variant de 1 à 4130. Ces incertitudes sont présentées sur la figure 7.17 a), pour tous les calibres allant de 1 μA à 10 mA (points bleus). Les points rouges correspondent aux incertitudes relatives déterminées lorsque l'ampèremètre est déconnecté. Les deux séries de mesure ayant des incertitudes similaires, on peut en conclure que le paramètre limitant lors de l'étalonnage est le bruit de l'ampèremètre et non celui du PQCG, ce qui est bien en accord avec les estimations de bruit de type A du PQCG.

Cependant, pour $n_J \leq 1536$, le bruit du PQCG semble être supérieur au bruit de l'ampèremètre dans le calibre du milliampère : pour un courant donné, lorsque le nombre de jonctions Josephson diminue de moitié, les incertitudes de mesure augmentent d'un facteur 2, jusqu'à quelque 10^{-7} (figure 7.16 b)). Ce n'est cependant pas le cas pour le calibre 1 μA lorsque n_J est divisé d'un facteur 10 (figure 7.16 e)). Cela peut s'expliquer par la forme du bruit du PQCG présentée figure 7.17 b) (courbe

noire) et par la bande passante en fréquence de l'appareil qui dépend du calibre. En effet, une capacité de 100 nF est connectée à l'entrée de l'ampèremètre, ce qui crée un filtre passe-bas lorsqu'elle est combinée à la résistance d'entrée de l'appareil. Les fréquences de coupure f_c décroissent sur les calibres de faible courant : $f_c = 16$ kHz pour le calibre 1 mA (résistance d'entrée de 100 Ω) et $f_c = 35$ Hz pour le calibre 1 μ A (résistance d'entrée de 45,2 k Ω). Le filtre atténue donc fortement le bruit généré à moyenne fréquence par le circuit d'amortissement pour les faibles calibres. Pour le calibre ≤ 1 μ A, le niveau de bruit est très inférieur à son propre bruit (courbe noire). Rappelons que le circuit d'amortissement apporte beaucoup de bruit autour de 1000 Hz, il est utile pour amortir la résonance du CCC, permettant ainsi de réaliser des mesures.

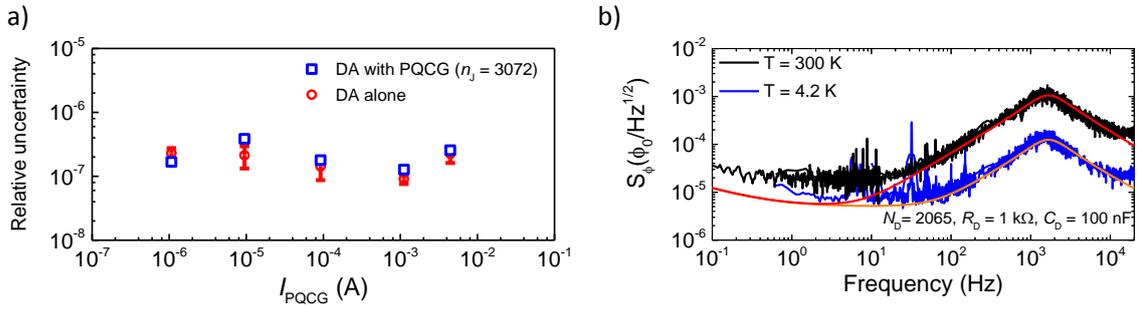


FIGURE 7.17 – a) Incertitude relative du courant mesuré lorsque l'ampèremètre est connecté au PQCG (carrés bleus) et de l'ampèremètre numérique uniquement (cercles rouges) en fonction de I_{PQCG} sur quatre décades de courant. Les barres d'erreurs expriment des incertitudes avec un écart-type (1σ). b) Bruit du CCC avec circuit d'amortissement en fonction de la fréquence. La courbe noire représente le niveau de bruit avec le circuit d'amortissement à température ambiante, correspondant à la configuration des mesures présentées. La courbe bleu présente le circuit d'amortissement refroidit à la température de l'hélium liquide. Les courbes rouge et orange sont les simulations du bruit généré par le CCC, prenant en compte le bruit des différents dispositifs composant le PQCG, ainsi que le bruit de Johnson-Nyquist de la résistance du circuit d'amortissement.

Le bruit généré par le circuit d'amortissement est principalement le bruit Johnson-Nyquist [64, 102] de la résistance R_D . Il est possible de le diminuer en plaçant la résistance à basse température. La courbe bleue de la figure 7.17 b), représente le bruit du système, la résistance R_D étant placée dans l'hélium liquide à $T = 4,2$ K. Une diminution du bruit d'un facteur 10 est observée entre les courbes obtenues à 300 K et 4,2 K. Les courbes expérimentales sont bien ajustées par les courbes rouge et orange, qui sont obtenues par des simulations du bruit selon la formule $S_\phi = \sqrt{S_\phi^D(f)^2 + S_\phi^{SQUID}(f)^2}$, où $S_\phi^D(f)$ est calculé avec un nombre de tours $N_D = 2065$, une induction $L_D = 90$ mH, une résistance $R_D = 1$ k Ω et une capacité $C_D = 100$ nF. La courbe rouge simule le dispositif d'amortissement pour R_D placée à 300 K tandis que pour la courbe orange, R_D est à une température de 4,2 K. Une amélioration du PQCG semble donc pouvoir être atteinte en plaçant R_D à basse température.

7.4 Conclusion et perspectives

En partant de la loi d'Ohm, nous avons développé un étalon quantique de courant à partir des étalons quantiques de tension Josephson et de résistance de Hall. Il est ainsi possible de profiter des avantages des étalons quantiques qui sont universels et reproductibles. Le générateur quantique de courant (PQCG) peut générer des courants sur une gamme de valeurs allant de 100 nA à 5 mA, qui sont parfaitement quantifiés en terme de $(R_K K_J)^{-1} \equiv e/2$ avec une incertitude relative de 10^{-8} . Si on compare cette manière de générer du courant aux CMCs, on peut conclure que le PQCG est cent fois plus exact que les meilleurs générateurs de courant dans la gamme étudiée. Le PQCG, contrairement aux pompes à électrons, possède des critères de quantification qui permettent de valider la bonne quantification du courant pendant la phase d'étalonnage, sans avoir besoin d'étalons extérieurs supplémentaires. Il nous a donc été possible d'utiliser le PQCG pour réaliser l'étalonnage d'un ampèremètre digital commercial avec des incertitudes de mesure records, seulement limitées par l'appareil testé.

Le PQCG est le premier étalon quantique qui permet de mettre en œuvre la nouvelle définition de l'ampère, en terme de la charge élémentaire e , avec une incertitude de 10^{-8} dans le futur SI. Cette incertitude peut être améliorée par plusieurs modifications plus ou moins simples à mettre en œuvre. Pour l'instant, le nombre de tours N_{JK} était limité à des valeurs inférieures à 160. Au delà, le bruit détecté est trop important et le système n'est plus stable. Comme nous l'avons démontré, le fait de placer la résistance du circuit d'amortissement à basse température permet de réduire le bruit de Johnson-Nyquist d'un facteur dix, augmentant de fait la stabilité du SQUID. Cela pourrait permettre d'augmenter le nombre de tours N_{JK} du même facteur, passant ainsi de 160 à 1600. La sensibilité de la détection du courant serait ainsi augmentée d'un facteur dix. Augmenter le nombre de jonctions Josephson permettrait d'augmenter le courant I_{PQCS} et ainsi d'augmenter le rapport signal sur bruit au niveau de la détection du courant. Pour cela, il faut comprendre pourquoi un grand nombre de jonctions tend à faire perdre la quantification du courant. Mettre en place une triple connexion au niveau de l'étalon de résistance de Hall permettrait de diminuer l'impact des résistances de câbles : α serait alors négligeable et il ne serait plus nécessaire de mesurer la résistance des câbles et de soustraire la correction associée au courant, simplifiant la mise en œuvre de l'étalon de courant. Pour cela, il faudrait que le réseau Josephson possède des plots de connexion supplémentaires et le CCC devrait posséder un enroulement supplémentaire pour sommer les trois courants résultants de la triple connexion.

Ces améliorations devraient permettre de réduire les incertitudes sur le courant généré. On peut espérer obtenir une incertitude relative de 10^{-9} dans la gamme allant de 1 μ A à 10 mA et valant 10^{-8} pour un courant de 100 nA, comme illustré sur la figure 7.15 b). Il est également possible de tirer profit de l'étalon quantique de résistance en graphène pour simplifier les conditions d'utilisation [115] : en augmentant les températures, diminuant les champs magnétiques et augmentant le courant I_{PQCS} pouvant circuler dans l'échantillon.

Conclusion et perspectives

Un des objectifs de cette thèse était d'étudier le graphène produit par CVD sur SiC dans le but de réaliser un étalon de résistance électrique à partir de l'effet Hall quantique. Nous avons démontré que cette technique de croissance permet de fabriquer du graphène de très bonne qualité de manière reproductible, ce qui est nécessaire pour la métrologie. La méthode de fabrication des échantillons permet d'obtenir des barres de Hall de grandes tailles avec de faibles résistances de contact, des mobilités électroniques satisfaisantes et des dopages électroniques faibles. Le maintien des échantillons de graphène à très basse température conserve parfaitement ses propriétés électroniques, même sur des échelles de temps supérieures à deux années. Les deux barres de Hall majoritairement étudiées ont montré une parfaite quantification de la résistance de Hall avec un très grand plateau de Hall qui s'étend sur plus de 10 T grâce à un transfert de charge de la ZLG vers le graphène.

La barre de Hall 12159-3-1 présente des caractéristiques d'utilisation proches de celles d'un étalon de GaAs/AlGaAs. Dans le but d'atteindre de plus faibles champs magnétiques, nous avons utilisé des décharges corona, modifiant ainsi de façon réversible la densité électronique. Cela a permis de mesurer une bonne quantification de la valeur de la résistance de Hall à des valeurs de champs magnétiques inaccessibles avec la densité d'origine. Dans la barre de Hall 13051-b, nous avons mesuré une résistance de Hall parfaitement quantifiée pour des conditions expérimentales nettement plus accessibles que celles d'un étalon en GaAs/AlGaAs. Cette parfaite quantification a été préservée à des courants de mesure aussi importants que 500 μA , des températures de 10 K ou des champs magnétiques aussi faibles que 3,5 T.

Bien que des mesures de la résistance de Hall ont montré une très bonne quantification dans ces deux barres de Hall, nous avons montré qu'elles ont des propriétés différentes, comme la très grande différence de la valeur du courant de rupture qui est bien plus élevé dans la barre de Hall 13051-b. Les études structurales (LEEM, AFM, ...) n'ont pas permis de trouver de différences majeures entre ces deux plaquettes. Nous avons donc étudié les mécanismes de dissipation afin d'essayer de trouver un critère pouvant les différencier. La conductivité de la barre de Hall 12159-3-1 est parfaitement décrite par le modèle VRH de type E-S avec gap de coulomb. Alors que pour la barre de Hall 13051-b, il apparaît que le mécanisme de dissipation évolue avec le champ magnétique. Pour les faibles champs magnétiques, c'est-à-dire lorsque le transfert de charge a lieu entre la ZLG et le graphène, le modèle décrivant le mieux la conductivité est le VRH de type Mott. Au delà de 8 T, lorsque le transfert de charge est terminé, le modèle décrivant la conductivité est le VRH de type E-S. De plus, la longueur de localisation déduite par le modèle VRH E-S est bien plus petite que la longueur magnétique, ce qui montre une limitation du modèle pour décrire

cette barre de Hall, des travaux supplémentaires seront nécessaires pour comprendre cela. Nos travaux, ainsi que ceux des autres laboratoires, tendent à montrer que la ZLG joue un rôle important dans la robustesse de l'effet Hall quantique. Il serait intéressant de réaliser des mesures structurales plus fines de type STM afin d'étudier les caractéristiques de la ZLG. Pour autant, la mobilité et la résistance de Hall à champ nul semblent être des indicateurs de la robustesse de l'effet Hall quantique.

Les mesures entre les résistances longitudinales et de Hall ont montré qu'un couplage était présent dans ces barres de Hall. Contrairement aux étalons en GaAs/AlGaAs, le couplage n'est pas déterminé par la largeur finie des bras de tension. Dans nos barres de Hall, le couplage est dominé par de l'inhomogénéité et est relié à l'angle entre les marches du substrat et l'orientation de la barre de Hall. Les guides techniques pour la réalisation d'étalon en graphène sur SiC devront prendre en compte cette particularité.

Un test d'universalité a été réalisé entre le graphène de la plaquette 13051-b et le GaAs/AlGaAs, donnant un écart relatif entre la valeur de la résistance de Hall dans le graphène et dans le GaAs/AlGaAs $\Delta R_H/R_H = (-0,9 \pm 8,2) \times 10^{-11}$ [115]. Ce résultat apporte une vérification de l'universalité de l'effet Hall quantique avec une incertitude jamais atteinte. Ce résultat supporte le fait que l'effet Hall quantique est universel et vaut $R_H = h/(ie^2)$ indépendamment du matériau utilisé. Pour aller plus loin, il serait intéressant de réaliser un test d'universalité en comparant la valeur de la résistance de Hall dans le graphène à trois autres étalons en GaAs/AlGaAs grâce à un pont de Wheatstone. Le pont de Wheatstone est composé de deux barres de Hall en série qui sont en parallèle avec deux autres barres de Hall en série, comme présenté sur la figure 7.18. Les différentes barres de Hall sont connectées avec la technique de la multiple connexion, permettant de diminuer fortement l'impact de la résistance des câbles. Le principe du pont de Wheatstone est de polariser en tension le pont et de mesurer le courant de déséquilibre à l'aide du CCC [120]. Si toutes les résistances sont exactement identiques, la tension de déséquilibre est nul. L'avantage de ce dispositif de mesure est la très grande exactitude. Il serait possible de faire une comparaison directe des valeurs des résistances de Hall avec une incertitude relative de quelques 10^{-12} . Un test d'universalité à ce niveau d'incertitude renforcerait encore plus la confiance dans la robustesse et le caractère universel de l'effet Hall quantique, ce qui conforterait l'évolution du nouveau SI.

La démocratisation des réfrigérateurs à tube pulsé, sans hélium liquide, ainsi que l'utilisation d'étalons de résistance en graphène, permettraient de simplifier et de diminuer le coût de l'utilisation d'un étalon fonctionnant à une température supérieure à 4 K, le rendant ainsi plus accessible. Les champs magnétiques nécessaires au fonctionnement de l'étalon sont encore trop élevés pour utiliser un aimant permanent (≈ 1 T) mais il est probable que cet objectif sera atteint prochainement. La modulation de la densité électronique est un point crucial pour obtenir une bonne quantification de la résistance de Hall à bas champ magnétique. Nous avons montré que la méthode de décharge corona apporte des inhomogénéités au niveau de la densité électronique ce qui est incompatible avec la métrologie. Le dépôt de grille est une méthode qui devrait permettre de modifier la densité électronique sans apporter d'inhomogénéité supplémentaire. Il est cependant difficile de réaliser des dépôts isolants sur de grandes surfaces, recouvrant la totalité de la barre de Hall. Durant ma thèse, nous avons déposé un isolant HFO₂ sur plusieurs barres de Hall mais des

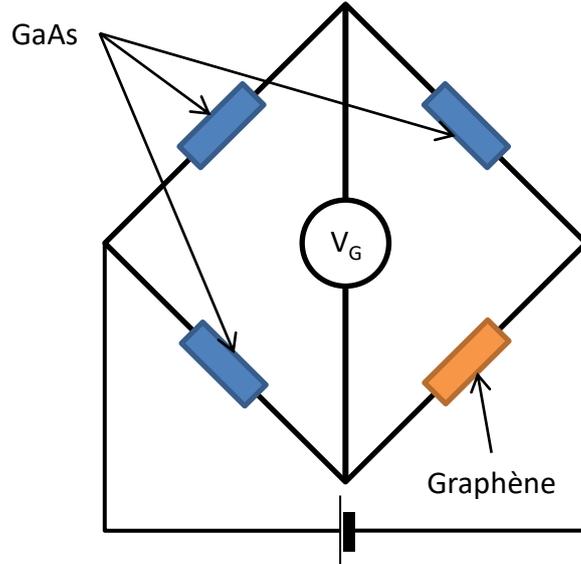


FIGURE 7.18 – Schéma de principe d'un pont de Wheatstone constitué de trois barres de Hall en GaAs et d'une barre de Hall en graphène.

fuites de courant ont été mesurées sur la totalité des barres couvertes. La méthode n'a pas encore abouti mais elle reste une piste sérieuse pour la modulation de la densité électronique.

Il sera également intéressant d'approfondir d'autres techniques de croissance, comme par exemple celle par CVD sur métal. Cette méthode permet maintenant de fabriquer de larges mono-cristaux de graphène. Le transfert du graphène sur un substrat SiO_2/Si est toujours problématique à cause du grand nombre d'impuretés chargées. Une alternative serait d'utiliser un substrat en nitrure de bore hexagonal (hBN) qui est atomiquement plat et qui ne possède que très peu de liaisons pendantes et d'impuretés chargées. Des échantillons de graphène déposé sur un substrat hBN ont permis de mesurer des mobilités électroniques pouvant atteindre $350000 \text{ cm}^{-2}\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ [7]. Cette mobilité électronique est obtenue près du point de neutralité de charge et à 1,6 K. Le nitrure de bore hexagonal de très bonne qualité est pour l'instant produit par exfoliation mécanique. La taille des mono-couches exfoliées est donc micrométrique. Cependant, les techniques de croissance par CVD sur métal permettent aujourd'hui d'obtenir des couches de grandes dimensions [17, 73]. La combinaison de ces deux techniques permettrait de fabriquer de larges couches de graphène ayant de très hautes mobilités électroniques.

Dans la dernière partie de cette thèse, nous avons démontré qu'il était possible de réaliser l'ampère avec une grande exactitude en appliquant la loi d'Ohm aux étalons quantiques de tension et de résistance. Après avoir testé le bon fonctionnement de tous les dispositifs quantiques séparément, nous les avons combinés afin de réaliser une source de courant quantique universelle et versatile, le PQCG. La combinaison de ces deux étalons ainsi qu'un comparateur de courants permet de générer et d'utiliser un courant I_{PQCG} proportionnel à la charge élémentaire et à la fréquence Josephson avec l'incertitude relative requise pour la métrologie électrique de 10^{-8} pour des

courants allant de $1 \mu\text{A}$ jusqu'à 5 mA . Ce générateur quantique de courant réalise donc la première mise en pratique de la future définition de l'ampère avec une incertitude relative de 10^{-8} .

Cela n'a pu être possible que grâce à la multiple connexion qui permet de s'affranchir des incertitudes des liaisons entre l'étalon de tension et l'étalon de résistance. Nous avons également démontré l'utilité du circuit d'amortissement qui a permis de stabiliser le SQUID. La bonne quantification du courant a été démontrée en mesurant la tension d'une résistance de 100Ω parcouru par le courant I_{PQCG} en la comparant avec la tension générée par un autre réseau Josephson programmable. Nous avons défini différents critères de quantification qui peuvent certifier la bonne quantification du courant généré. Nous avons notamment utilisé ce courant pour réaliser l'étalonnage d'un ampèremètre avec des incertitudes de mesure record.

Des améliorations de l'étalon sont envisagées, comme la réduction du bruit qui a été démontrée en plaçant la résistance du circuit d'amortissement à $4,2 \text{ K}$, ce qui devrait permettre d'augmenter la sensibilité de détection du courant I_{PQCS} . Une autre évolution possible est la mise en œuvre de la triple connexion qui devrait permettre de diminuer les corrections de câble et de simplifier l'exploitation du PQCG. Ces modifications devraient permettre de diminuer les incertitudes relatives sur le courant jusqu'à 10^{-9} .

Cet étalon quantique permet d'envisager une nouvelle métrologie de l'ampère, sous réserve de développer des étalons de transfert stables, des amplificateurs et des diviseurs très bas bruits de petits courants, comme l'ULCA [29,30] développé par la PTB. En étant utilisé comme un diviseur de courant, cet appareil pourrait permettre de faire le lien entre les très faibles courants des pompes à électrons et le courant généré par le PQCG. Cela permettrait de comparer indirectement le courant des pompes à électrons avec les effets Hall quantique et Josephson avec une incertitude relative de 10^{-8} et ainsi tester la théorie décrivant le blocage de Coulomb, l'effet Hall quantique et l'effet Josephson : c'est l'expérience du triangle métrologique.

Il est également possible d'utiliser le circuit primaire incluant l'étalon Josephson et l'étalon de résistance pour fabriquer un ampèremètre quantique (PQA-Programmable Quantum Ammeter) [109]. Son principe de fonctionnement repose sur la comparaison directe du courant à étalonner avec le courant de référence I_{PQCS} via le CCC. Cet ampèremètre quantique pourrait permettre d'étalonner un dispositif mono-électronique par rapport à $(R_K \times K_J)^{-1}$ [42, 63, 126], comme représenté sur la figure 7.19 a). Le courant quantifié I_{PQCS} est directement comparé avec le courant généré par un dispositif mono-électronique via un CCC dédié à grand nombre de tours (10000 ou 20000). Sur la figure 7.19 a), le CCC est le détecteur de courant. Il est placé dans le même cryostat que le dispositif mono-électronique afin de n'avoir que des petites distances de câbles à très basses températures, ce qui limiterait le bruit et permettrait d'obtenir de meilleures incertitudes que les expériences menées précédemment, par exemple au LNE [27]. La réduction du bruit est un bon moyen d'améliorer les incertitudes de mesure de l'expérience. Cependant, tant que les dispositifs mono-électroniques ne progresseront pas, à la fois dans l'intensité du courant, l'exactitude, la reproductibilité et dans la compréhension de leur physique, le triangle sera impossible à fermer avec les incertitudes voulues (10^{-8}).

Une autre possibilité d'évolution de l'expérience serait de remplacer le réseau Josephson programmable par un réseau fonctionnant en mode pulsé. Ce type de réseau

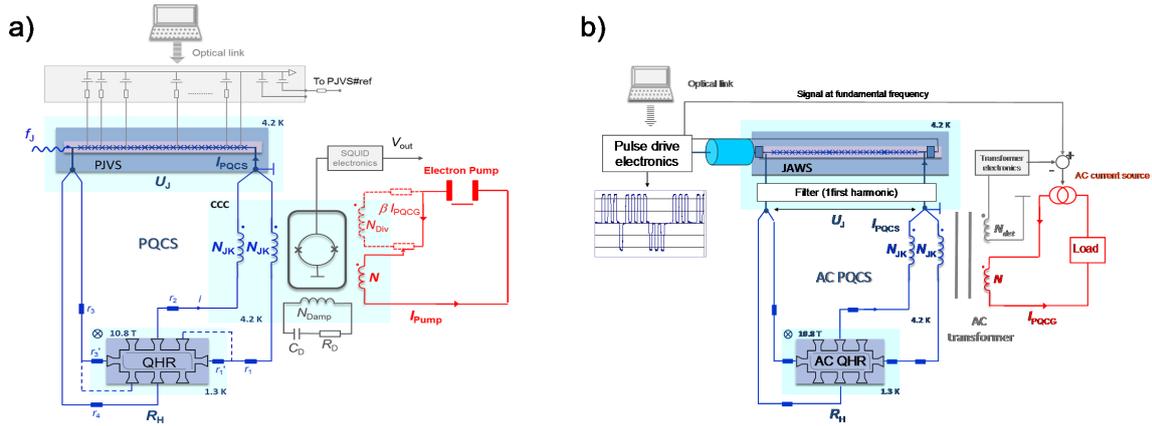


FIGURE 7.19 – a) Principe d'étalonnage d'une pompe à électrons en utilisant l'ampèremètre quantique programmable (PQA). b) Principe du générateur quantique programmable de courant alternatif. Schémas extraits de [108].

permet de générer un pulse de tension sinusoïdale quantifiée à partir d'un code de pulses hyperfréquences et après filtrage basse fréquence [9, 72]. En utilisant un étalon de résistance à effet Hall quantique fonctionnant en régime alternatif [2] ainsi qu'un transformateur AC [71], le PQCG pourrait générer un courant quantifié alternatif directement relié à la charge élémentaire. Le schéma de principe est représenté sur la figure 7.19 b). Une incertitude de l'ordre de 10^{-7} semble possible à atteindre. Cette évolution permettrait de réaliser des étalonnages de courants alternatifs en améliorant l'état de l'art des incertitudes de 2 ordres de grandeur. Une évolution vers l'alternatif semble inaccessible aujourd'hui pour les dispositifs mono-électroniques actuels.

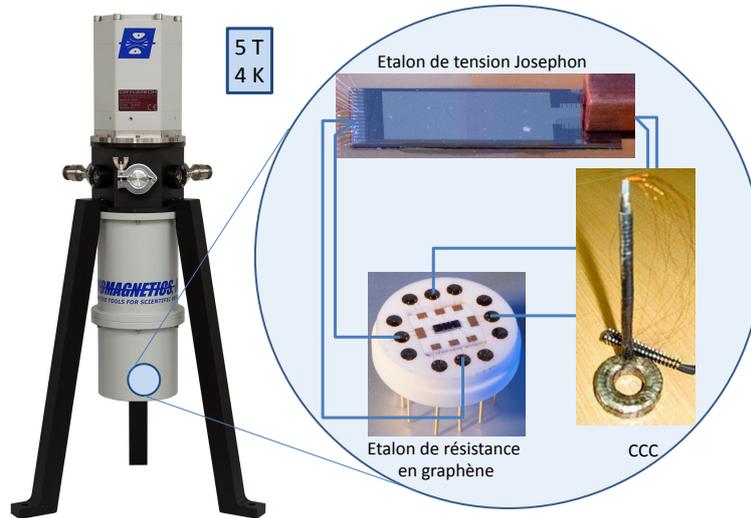


FIGURE 7.20 – Schéma du calibrateur quantique fonctionnant dans un système cryomagnétique à tube pulsé. Photographie du réfrigérateur à tube pulsé extraite de [1].

Dans le but de faciliter la mise en pratique de cet étalon, le refroidissement des étalons de tension et de résistance pourrait être réalisé dans un seul réfrigérateur

à tube pulsé, sans apport d'hélium liquide grâce au graphène. Nous avons vu que l'étalon de résistance en graphène pouvait fonctionner à des champs magnétiques plus faibles, à partir de 3,5 T, et des températures plus hautes, jusqu'à 10 K. Le CCC, ainsi que le réseau Josephson, fonctionnent tous deux à la température de l'hélium liquide, soit 4,2 K. On peut donc envisager de mettre tous ces dispositifs dans un même système cryogénique. Une représentation d'un tel système est schématisé sur la figure 7.20. Ce dispositif pourrait alors réaliser la tension, la résistance et donc le courant. Ce dispositif constituerait alors un calibrateur/multimètre quantique universel et pratique, fondé sur l'effet Hall quantique et l'effet Josephson, réalisant le volt, l'ohm, et l'ampère à partir de h et e uniquement. Avec des développements supplémentaires ce multimètre permettrait également de réaliser le farad par la mise en œuvre de la relation $RC\omega = 1$. Ce dispositif disposerait alors de toutes les unités électriques. La balance de Kibble pourrait également s'appuyer sur l'étalon de tension et de résistance de ce calibrateur pour réaliser le kilogramme.

Le nouveau SI s'appuie sur les constantes h et e qui vont définir le kilogramme et l'ampère. Mes travaux, d'une part le test d'universalité de l'effet Hall quantique et d'autre part, la réalisation de la future définition de l'ampère à une incertitude relative de 10^{-8} , confirment que les étalons quantiques de résistance et de tension constituent deux piliers de la mise en œuvre du futur SI. Ce rôle central devrait pousser le développement de ces étalons ainsi que leurs combinaisons entre eux dans une forme d'ingénierie quantique afin de réaliser des dispositifs toujours plus ambitieux.

Bibliographie

- [1] <https://www.cryomagnetics.com/5-tesla-table-top-magnet-system/>.
- [2] F. J. Ahlers, B. Jeanneret, F. Overney, J. Schurr, and B. M. Wood. Compendium for precise ac measurements of the quantized hall resistance. *Metrologia*, 46 :R1, 2009.
- [3] E. Ahlswede, P. Weitz, J. Wei, K. v. Klitzing, and K. Eberl. Hall potential profiles in the quantum hall regime measured by a scanning force microscope. *Physica B*, 298 :562, 2001.
- [4] F. Ahmet, A.J. Bestwick, J.R. Williams, L. Balicas, K. Watanabe, T. Taniguchi, and D. Goldhaber-Gordon. Composite fermions and broken symmetries in graphene. *Nat. Commun.*, 2014.
- [5] J. A. Alexander-Webber, A. M. R. Baker, T. J. B. M. Janssen, A. Tzalenchuk, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, R. Yakimova, B. A. Piot, D. K. Maude, and R. J. Nicholas. Phase space for the breakdown of the quantum hall effect in epitaxial graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :096601, 2013.
- [6] J. A. Alexander-Webber, J. Huang, D. K. Maude, T.J.B.M. Janssen, A. Tzalenchuk, V. Antonov, T. Yager, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, R. Yakimova, and R. J. Nicholas. Giant quantum hall plateaus generated by charge transfer in epitaxial graphene. *Sci. Rep.*, 6 :30296, 2016.
- [7] L. Banszerus, M. Schmitz, S. Engels, J. Dauber, M. Oellers, F. Haupt, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. Beschoten, and C. Stampfer. Ultrahigh-mobility graphene devices from chemical vapor deposition on reusable copper. *Science advance*, 1, 2015.
- [8] K. Bennaceur, P. Jacques, F. Portier, P. Roche, and D. C. Glattli. Unveiling quantum hall transport by efros-shklovskii to mott variable-range hopping transition in graphene. *Phys. Rev. B*, 86 :085433, 2012.
- [9] S. P. Benz, S. B. Waltman, A. E. Fox, P. D. Dresselhaus, A. Rufenacht, J. M. Underwood, L. A. Howe, R. E. Schwall, and C. J. Burroughs. One-volt josephson arbitrary waveform synthesizer. *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 25 :1300108, 2015.
- [10] BIPM. *Calibration and Measurement Capabilities Electricity and Magnetism : DC Current*. Key comparison database, 2016.
- [11] BIPM. *The International System of units (SI)*. <http://www.bipm.org/en/si/>, Sèvres, 8th edition, 2006.
- [12] M. Buttiker. Absence of backscattering in the quantum hall effect in multi-probe conductors. *Phys. Rev. B*, 38 :9375, 1988.

- [13] M. Buttiker. Transmission probabilities and the quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 62 :229, 1989.
- [14] M. Buttiker, Y. Imry, R. Landauer, and S. Pinhas. Generalized many-channel conductance formula with application to small rings. *Phys. Rev. B*, 31 :6207, 1985.
- [15] M. E. Cage, R. F. Dziuba, B. F. Field, E. R. Williams, S. M. Girvin, A. C. Gossard, D. C. Tsui, and R. J. Wagner. Dissipation and dynamic nonlinear behavior in the quantum hall regime. *Phys. Rev. Lett.*, 51 :1374, 1983.
- [16] B. Camarota, H. Scherer, M.W. Keller, S.V. Lotkov, G. Willenberg, and J. Ahlers. Electron counting capacitance standard with an improved five-junction R-pump. *Metrologia*, 49 :8–14, 2012.
- [17] S. J. Cartamil-Bueno, M. Cavalieri, R. Wang, S. Hourri, S. Hofmann, and H. S. J. van der Zant. Mechanical characterization and cleaning of cvd single-layer h-bn resonators. *npj 2D Materials and Applications*, 1(16), 2017.
- [18] C. Berger, Z. Song, T. Li, X. Li, A. Y. Ogbazghi, R. Feng, Z. Dai, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First, and W. A. de Heer. Ultrathin epitaxial graphite : 2d electron gas properties and a route toward graphene-based nanoelectronics. *J. Phys. Chem. B*, 108 :19912, 2004.
- [19] J.S Chang, Lawless A.L., and Yamamoto T. Corona discharge processes. *IEEE Transaction on Plasma science*, 19, 1991.
- [20] C. Chaubet, A. Raymond, and D. Dur. Heating of two-dimensional electrons by a high electric field in a quantizing magnetic field : Consequences in landau emission and in the quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 52 :11178, 1995.
- [21] J.-H. Chen, C. Jang, M. Ishigami, S. Xiao, W.G. Cullen, E.D. Williams, and M.S. Fuhrer. Diffusive charge transport in graphene on sio₂. *Solid State Communications*, 149(27) :1080 – 1086, 2009. Recent Progress in Graphene Studies.
- [22] N. R. Cooper and J. T. Chalker. Coulomb interactions and the integer quantum hall effect : Screening and transport. *Phys. Rev. B*, 48 :4530–4544, Aug 1993.
- [23] M.A. Cotteret. *Métrologie et enseignement*. PhD thesis, Université Paris 8, 2003.
- [24] F. Delahaye. Series and parallel connection of multiterminal quantum hall-effect devices. *J. Appl. Phys.*, 73 :7914, 1993.
- [25] F. Delahaye and B. Jeckelmann. Revised technical guidelines for reliable dc measurements of the quantized hall resistance. *Metrologia*, 40 :217, 2003.
- [26] F. Delahaye and D. Reymann. Progress in resistance ratio measurements using a cryogenic current comparator at lcie. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 34 :316, 1985.
- [27] L. Devoille, B. Steck, N. Feltin, B. Chenaud, S. Sassine, S. Djordjevic, O. Séron, and F. Piquemal. Quantum metrological triangle experiment at LNE : measurements on a three-junction R-pump using a 20 000 :1 winding ratio cryogenic current comparator. *Meas. Sci. Technol.*, 23, 2012.

- [28] B. Douçot and V. Pasquier. Physics in strong magnetic field. *Séminaire Poincaré 2 :25 years of Quantum Hall Effect (QHE)*, page 17, 2004.
- [29] D. Drung, C. Krause, U. Becker, H. Scherer, and F.J. Ahlers. Ultrasatable low-noise current amplifier : A novel device for measuring small electric currents with high accuracy. *Rev. Sci. Instrum.*, 86 :024703, 2015.
- [30] D. Drung, C. Krause, S. P. Giblin, S. Djordjevic, F. Piquemal, O. Séron, F. Rengnez, M. Götz, E. Pesel, and H. Scherer. Validation of the ultrastable low-noise current amplifier as travelling standard for small direct currents. *Metrologia*, 52 :756, 2015.
- [31] Qinghong Du, Hongqi Xu, P. Ramvall, and P. Omling. Two different regimes of electron transport in a two-dimensional electron gas at high magnetic fields. *Phys. Rev. B*, 55 :R7355–R7358, Mar 1997.
- [32] A. M. Dykhne and I. M. Ruzin. Theory of the fractional quantum hall effect : The two-phase model. *Phys. Rev. B*, 50 :2369–2379, Jul 1994.
- [33] A. L. Efros and B. I. Shklovskii. Coulomb gap and low temperature conductivity of disordered systems. *J. Phys. C*, 8 :L49–L51, 1975.
- [34] K. V. Emtsev, A. Bostwick, K. Horn, J. Jobst, G. L. Kellogg, L. Ley, J. L. McChesney, T. Ohta, S. A. Reshanov, J. Rohrl, E. Rotenberg, A. K. Schmid, D. Waldmann, H. B. Weber, and T. Seyller. Towards wafer-size graphene layers by atmospheric pressure graphitization of silicon carbide. *Nat. Mater.*, 8 :203, 2009.
- [35] J. Rohrl et al. Raman spectra of epitaxial graphene on sic(0001). *Appl. Phys. Lett.*, 92(201918), 2008.
- [36] Z. H. Ni et al. Raman spectroscopy of epitaxial graphene on a sic substrate. *Phys. Rev. B*, 77(115416), 2008.
- [37] Zhao et al. *ArXiv :1703.04795v1*, 2017.
- [38] F. Evers and A. Mirlin. Anderson transitions. *Reviews of Modern Physics*, 80 :1355, 2008.
- [39] M. M. Fogler, A. Yu. Dobin, and B. I. Shklovskii. Localization length at the resistivity minima of the quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 57 :4614, 1998.
- [40] L. Fricke, M. Wulf, B. Kaestner, F. Hohls, P. Mirovsky, B. Mackrodt, R. Dolata, T. Weimann, K. Pierz, U. Siegner, and H. W. Schumacher. Self-referenced single-electron quantized current source. *Phys. Rev. Lett.*, 112 :226803, 2014.
- [41] M. Furlan. Electronic transport and the localization length in the quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 57 :14818, 1998.
- [42] S. P. Giblin, M. Kataoka, J. D. Fletcher, P. See, T. J. B. M. Janssen, J. P. Griffiths, G. A. C. Jones, I. Farrer, and D. A. Ritchie. Towards a quantum representation of the ampere using single electron pumps. *Nat. Commun.*, 3 :930, 2012.
- [43] A. J. M. Giesbers, G. Rietveld, E. Houtzager, U. Zeitler, R. Yang, K. S. Novoselov, A. K. Geim, and J. C. Maan. Quantum resistance metrology in graphene. *Appl. Phys. Lett.*, 93 :222109, 2009.

- [44] A. J. M. Giesbers, U. Zeitler, L. A. Ponomarenko, R. Yang, K. S. Novoselov, A. K. Geim, and J. C. Maan. Scaling of the quantum hall plateau-plateau transition in graphene. *Phys. Rev. B*, 80(241411(R)), 2009.
- [45] M. O. Goerbig. Electronic properties of graphene in a strong magnetic field. *Rev. Mod. Phys.*, 83 :1193, 2011.
- [46] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Variable range hopping as the mechanism of the conductivity peak broadening in the quantum hall regime. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :3796, 1993.
- [47] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Activated conductivity in the quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :1150, 1994.
- [48] J. Guignard, D. Leprat, D. C. Glattli, F. Schopfer, and W. Poirier. Quantum hall effect in exfoliated graphene affected by charged impurities : Metrological measurements. *Phys. Rev. B*, 85 :165420, 2012.
- [49] E. H. Hall. On a new action of the magnet on electric currents. *American Journal of Mathematics*, 2(3) :287–292, 1879.
- [50] Zheng Han, Amina Kimouche, Dipankar Kalita, Adrien Allain, Hadi Arjmandi-Tash, Antoine Reserbat-Plantey, Laëtitia Marty, Sébastien Pairis, Valérie Reita, Nedjma Bendiab, Johann Coraux, and Vincent Bouchiat. Homogeneous optical and electronic properties of graphene due to the suppression of multilayer patches during cvd on copper foils. *Adv. Funct. Mater.*, 24 :964, 2014.
- [51] A. Hartland, K. Jones, J. M. Williams, B. L. Gallagher, and T. Galloway. Direct comparison of the quantized hall resistance in gallium arsenide and silicon. *Phys. Rev. Lett.*, 66 :969, 1991.
- [52] O. Heinonen, P. L. Taylor, and S. M. Girvin. Electron-phonon interactions and the breakdown of the dissipationless quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 30 :3016, 1984.
- [53] B. Jabakhanji, A. Michon, C. Consejo, W. Desrat, M. Portail, A. Tiberj, M. Paillet, A. Zahab, F. Cheynis, F. Lafont, F. Schopfer, W. Poirier, F. Bertran, P. Le Fèvre, A. Taleb-Ibrahimi, D. Kazazis, W. Escoffier, B. C. Camargo, Y. Kopelevich, J. Camassel, and B. Jouault. Tuning the transport properties of graphene films grown by cvd on sic(0001) : Effect of in situ hydrogenation and annealing. *Phys. Rev. B.*, 89 :085422, 2014.
- [54] M. Janben and O. Vihweger. *Introduction to the theory of the Integer Quantum Hall Effect*. Wiley & Sons, New York, 1994.
- [55] T. J. B. M. Janssen, N.E. Fletcher, R. Goebel, J.M. Williams, A. Tzalenchuk, R. Yakimova, S. Kubatkin, S. Lara-Avila, and V.I. Falko. Graphene, universality of the quantum hall effect and redefinition of the si system. *New J. Phys.*, 13 :093026, 2011.
- [56] T. J. B. M. Janssen, S. Rozhko, I. Antonov, A. Tzalenchuk, J. M. Williams, Z. Melhem, H. He, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, and R. Yakimova. Operation of graphene quantum hall resistance standard in a cryogen-free table-top system. *2D Materials*, 2 :035015, 2015.

- [57] T. J. B. M. Janssen, A. Tzalenchuk, R. Yakimova, S. Kubatkin, S. Lara-Avila, S. Kopylov, and V. I. Fal'ko. Anomalously strong pinning of the filling factor $\nu = 2$ in epitaxial graphene. *Phys. Rev. B*, 83 :233402, 2011.
- [58] T. J. B. M. Janssen, J. M. Williams, N. E. Fletcher, R. Goebel, A. Tzalenchuk, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, and V. I. Fal'ko. Precision comparison of the quantum hall effect in graphene and gallium arsenide. *Metrologia*, 49 :294, 2012.
- [59] B. Jeckelmann, A. D. Inglis, and B. Jeanneret. Material, device, and step independence of the quantized hall resistance. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 44 :269, 1995.
- [60] B. Jeckelmann and B. Jeanneret. High-precision measurements of the quantized hall resistance :experimental conditions for universality. *Phys. Rev. B*, 55(13124), 1997.
- [61] B. Jeckelmann and B. Jeanneret. The quantum hall effect as an electrical resistance standard. *Rep. Prog. Phys.*, 64 :1603, 2001.
- [62] B. Jeckelmann, A. Rufenacht, B. Jeanneret, F. Overney, A. von Campenhause, and G. Hein. Optimization of qhe-devices for metrological applications. *IEEE TRans. Instrum. Meas.*, 50 :218, 2001.
- [63] X. Jehl, B. Voisin, T. Charron, P. Clapera, S. Ray, B. Roche, M. Sanquer, S. Djordjevic, L. Devoille, R. Wacquez, and M. Vinet. Hybrid metal-semiconductor electron pump for quantum metrology. *Phys. Rev. X*, 3(021012), 2013.
- [64] J. B. Johnson. Thermal agitation of electricity in conductors. *Phys. Rev.*, 32 :97–109, Jul 1928.
- [65] B.D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Phys. Lett.*, 1 :251, 1962.
- [66] B. Jouault, N. Camara, B. Jabakhanji, A. Caboni, C. Consejo, P. Godignon, DK. Maude, and J. Camassel. Quantum hall effect in bottom-gated epitaxial graphene grown on the c-face of sic. *Appl. Phys. Lett.*, 100 :052102, 2012.
- [67] B. Kaestner and V. Kashcheyevs. Non-adiabatic quantized charge pumping with tunable-barrier quantum dots : a review of current progress. *Rep. Prog. Phys.*, 78 :103901, 2015.
- [68] V. Kashcheyevs and B. Kaestner. Universal decay cascade model for dynamic quantum dot initialization. *Phys. Rev. Lett.*, 104(186805), 2010.
- [69] M.W. Keller, A.L. Eichenberger, J.M. Martinis, and N.M. Zimmermann. A capacitance standard based on counting electrons. *Science*, 285 :1706, 1999.
- [70] M.W. Keller, N. M. Zimmermann, and A. L. Eichenberger. Uncertainty budget for the nist electron counting capacitance standard, eccs-1. *Metrologia*, 44 :505, 2007.
- [71] B. P. Kibble and G. H. Rayner. *Coaxial AC Bridges*. Adam Hilger Ltd, Bristol, 1984.
- [72] O. F. Kieler, R. Behr, R. Wendisch, S. Bauer, L. Palafox, and J. Kohlmann. Towards a 1 v josephson arbitrary waveform synthesizer. *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 25 :1400305, 2015.

- [73] Ki Kang Kim, Allen Hsu, Xiaoting Jia, Soo Min Kim, Yumeng Shi, Mario Hofmann, Daniel Nezich, Joaquin F. Rodriguez-Nieva, Mildred Dresselhaus, Tomas Palacios, and Jing Kong. Synthesis of monolayer hexagonal boron nitride on cu foil using chemical vapor deposition. *Nano Letters*, 12(1) :161–166, 2012.
- [74] Steven Kivelson, Dung-Hai Lee, and Shou-Cheng Zhang. Global phase diagram in the quantum hall effect. *Phys. Rev. B*, 46 :2223–2238, Jul 1992.
- [75] K.V. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper. New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized hall resistance. *Phys. Rev. Lett.*, 45 :494, 1980.
- [76] S. Kopylov, A. Tzalenchuk, S. Kubatkin, and V. I. Falco. Charge transfer between epitaxial graphene and silicon carbide. *Appl. Phys. Lett.*, 97 :112109, 2010.
- [77] I. Y. Krasnopolin, R. Behr, and J. Niemeyer. Highly precise comparison of Nb/Al/AlOx/Al/AlOx/Al/Nb josephson junction arrays using a SQUID as a null detector. *Phys. Rev. Lett.*, 15(1034), 2002.
- [78] M. Kruskopf, D. M. Pakdehi, K. Pierz, S. Wundrack, R. Stosch, T. Dziomba, M. Gotz, J. Baringhaus, J. Aprojanz, C. Tegenkamp, J. Lidzba, T. Seyller, F. Hohls, F.-J. Ahlers, and H. W. Schumacher. Comeback of epitaxial graphene for electronics : large-area growth of bilayer-free graphene on sic. *2D Materials*, 3 :041002, 2016.
- [79] F. Lafont. *Quantum Hall effect in graphene for resistance metrology : Disorder and quantization*. Ph.D. thesis, Université Paris 11, Paris, April 2015.
- [80] F. Lafont, R. Ribeiro, Z. Han, S. Roche, V. Bouchiat, F. Schopfer, and W. Poirier. Anomalous dissipation mechanism and hall quantization limit in polycrystalline graphene grown by chemical vapor deposition. *Phys. Rev. B*, 90 :115422, 2014.
- [81] F. Lafont, R. Ribeiro-Palau, D. Kazazis, A. Michon, O. Couturaud, C. Consejo, T. Chassagne, M. Zielinski, M. Portail, B. Jouault, F. Schopfer, and W. Poirier. Quantum hall resistance standards from graphene grown by chemical vapour deposition on silicon carbide. *Nature Communications*, 6 :6806, 2015.
- [82] S. Lara-Avila, K. Moth-Poulsen, R. Yakimova, T. Bjornholm, V. Falco, A. Tzalenchuk, and S. Kubatkin. Non-volatile photochemical gating of an epitaxial graphene/polymer heterostructure. *Adv. Mater.*, 23 :878, 2011.
- [83] A. Lartsev, T. Yager, T. Bergsten, A. Tzalenchuk, T. J. B. M. Jansen, R. Yakimova, S. Lara-Avila, and S. Kubatkin. Tuning carrier density across dirac point in epitaxial graphene on sic by corona discharge. *Appl. Phys. Lett.*, 105, 2014.
- [84] J.-H. Lee, E. K. Lee, W.-J. Joo, Y. Jang, B.-S. Kim, J. Y. Lim, S.-H. Choi, S. J. Ahn, J. R. Ahn, M.-H. Park, C.-W. Yang, B. L. Choi, S.-W. Hwang, and D. Whang. Wafer-scale growth of single-crystal monolayer graphene on reusable hydrogen-terminated germanium. *Science*, 344(286), 2014.
- [85] X. Li, X. Wu, M. Sprinkle, F. Ming, M. Ruan, Y. Hu, C. Berger, and W. A. de Heer. Top- and side-gated epitaxial graphene field effect transistors. *Physica status solidi (a)*, 2010.

- [86] K. S. Novoselov & A. K. Geim M. I. Katsnelson. Chiral tunnelling and the Klein paradox in graphene. *Nature Physics*, 385 :620–625, 2006.
- [87] J. Martin, N. Akerman, G. Ulbricht, T. Lohmann, J. H. Smet, K. Von Klitzing, and A. Yacoby. Observation of electron hole puddles in graphene using a scanning single electron transistor. *Nature Physics*, 2007.
- [88] C. Mattevi, H. Kim, and H. Chhowalla. A review of chemical vapor deposition of graphene on copper. *Journal of Materials Chemistry*, 10, 2011.
- [89] D.E. McCumber. Effect of ac impedance on dc voltage-current characteristics of superconductor weak-link junctions. *J. Appl. Phys.*, 39 :3113, 1968.
- [90] Y. M. Meziani, C. Chaubet, S. Bonifacie, A. Raymond, W. Poirier, and F. Piquemal. Behavior of the contacts of quantum hall effect devices at high currents. *J. Appl. Phys.*, 96 :404, 2004.
- [91] A. Michon, S. Vézian, A. Ouerghi, M. Zielinski, T. Chassagne, and M. Portail. Direct growth of few-layer graphene on 6h-sic and 3c-sic/si via propane chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 97 :171909, 2010.
- [92] A. Michon, S. Vezian, E. Roudon, D. Lefebvre, M. Zielinski, T. Chassagne, , and M. Portail. Effects of pressure, temperature, and hydrogen during graphene growth on sic(0001) using propane-hydrogen chemical vapor deposition. *Journal of Applied Physics*, 113(203501), 2013.
- [93] I.M. Mills, P.J. Mohr, T.J. Quinn, B.N. Taylor, and E.R. Williams. Redefinition of the kilogram, ampere, kelvin and mole : a proposed approach to implementing CIPM recommendation 1. *Metrologia*, 43 :227–246, 2006.
- [94] M. J.T. Milton, J. M. Williams, and S. J. Bennett. Modernizing the SI : towards an improved, accessible and enduring system. *Metrologia*, 44 :356–364, 2007.
- [95] P. J. Mohr, D. B. Newell, B. N. Taylor, and E. Tiesinga. Data and analysis for the CODATA 2017 special fundamental constants adjustment. *Metrologia*, 55 :125–146, 2018.
- [96] M. Monteverde, C. Ojeda-Aristizabal, R. Weil, K. Bennaceur, M. Ferrier, S. Guéron, C. Glattli, H. Bouchiat, J. N. Fuchs, and D. L. Maslov. Transport and elastic scattering times as probes of the nature of impurity scattering in single-layer and bilayer graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :126801, Mar 2010.
- [97] N. F. Mott. Conduction in non-crystalline materials. *Philos. Mag.*, 26 :1015, 1972.
- [98] V. L. Nguen. Two-dimensional hopping conduction in a magnetic field. *Sov. Phys. Semicond.*, 18 :207, 1984.
- [99] W. Norimatsu and M. Kusunoki. Epitaxial graphene on sic0001 : advances and perspectives. *Phys.Chem.Chem.Phys.*, 16(3501), 2014.
- [100] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, S. V. Dubonis I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene. *Nature*, 438 :197, 2005.
- [101] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov. Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*, 306 :666, 2004.

- [102] H. Nyquist. Thermal agitation of electric charge in conductors. *Phys. Rev.*, 32 :110–113, Jul 1928.
- [103] Y. Ono. Localization of electrons under strong magnetic fields in a two-dimensional system. *Journal of the Physical Society of Japan*, 51 :237–243, 1982.
- [104] J. Oswald, G. Span, and F. Kuchar. Universality in the crossover between edge-channel and bulk transport in the quantum hall regime. *Phys. Rev. B*, 58 :15401–15404, Dec 1998.
- [105] E. Pallecchi, F. Lafont, V. Cavaliere, F. Schopfer, D. Maily, W. Poirier, and A. Ouerghi. High electron mobility in epitaxial graphene on 4h-sic(0001) via post-growth annealing under hydrogen. *Sci. Rep.*, 4 :4558, 2014.
- [106] K. Panos, R. R. Gerhardts, J. Weis, and K. von Klitzing. Current distribution and hall potential landscape towards breakdown of the quantum hall effect : a scanning force microscopy investigation. *New J. Phys.*, 16(113071), 2014.
- [107] F. Piquemal, G. Genevès, F. Delahaye, J. P. André, J. N. Patillon, and P. Frijlink. Report on a joint bipm-euromet project for the fabrication of qhe samples by the lep. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, 42 :264, 1993.
- [108] W. Poirier. Mécanique quantique : une révolution en métrologie électrique. *HDR*, 2017.
- [109] W. Poirier, F. Lafont, S. Djordjevic, F. Schopfer, and L. Devoille. A programmable quantum current standard from the josephson and the quantum hall effects. *J. Appl. Phys.*, 115 :044509, 2014.
- [110] W. Poirier and F. Schopfer. Resistance metrology based on the quantum hall effect. *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, 172 :207, 2009.
- [111] D. G. Polyakov and B. I. Shklovskii. Universal prefactor of activated conductivity in the quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :150, 1995.
- [112] A. Pruisken. Universal singularities in the integral quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :1297, 1988.
- [113] T. J. Quinn. News from the bipm. *Metrologia*, 26 :69, 1989.
- [114] T. J. Quinn. News from the BIPM. *Metrologia*, 26 :69–74, 1989.
- [115] R. Ribeiro-Palau, F. Lafont, J. Brun-Picard, D. Kazazis, A. Michon, F. Cheynis, O. Couturaud, C. Consejo, B. Jouault, W. Poirier, and F. Schopfer. Quantum hall resistance standard in graphene devices under relaxed experimental conditions. *Nature Nano.*, 10(965-971), 2015.
- [116] B. W. Ricketts and P. C. Kemeny. Quantum hall effect devices as circuit elements. *J. Phys. D*, 21 :483, 1988.
- [117] C. Riedl, C. Coletti, T. Iwasaki, A. A. Zakharov, and U. Starke. Quasi-free-standing epitaxial graphene on sic obtained by hydrogen intercalation. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :246804, 2009.
- [118] C. Riedl, C. Coletti, and U. Starke. Structural and electronic properties of epitaxial graphene on sic(0001) : a review of growth, characterization, transfer doping and hydrogen intercalation. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 43 :374009, 2010.

- [119] S. Das Sarma, S. Adam, E. H. Hwang, and E. Rossi. Electronic transport in two-dimensional graphene. *Rev. Mod. Phys.*, 83 :407, 2011.
- [120] F. Schopfer and W. Poirier. Quantum resistance standard accuracy close to the zero-dissipation state. *J. Appl. Phys.*, 114 :064508, 2013.
- [121] H. Seppa. The ratio error of the overlapped-tube cryogenic current comparator. *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, IM-39 :689–697, 1990.
- [122] S. Shapiro. Josephson currents in superconducting tunneling : the effect of microwaves and another observations. *Phys. Rev. Lett.*, 11 :80–82, 1963.
- [123] T. Shen, W. Wu, Q. Yu, C. A. Richter, R. Elmquist, D. Newell, and Y. P. Chen. Quantum hall effect on centimeter scale chemical vapor deposited graphene films. *Appl. Phys. Lett.*, 99(232110), 2011.
- [124] B. I. Shklovskii. *Hopping conduction in semiconductors subjected to a strong electric field*, volume 6, pages 1964–1967. 12 edition, 6 1973.
- [125] I. Shlimak and M. Pepper. Two-dimensional variable-range hopping conductivity : Influence of the electron-electron interaction. *Philosophical Magazine Part B*, 81(9) :1093–1103, 2001.
- [126] F. Stein, D. Drung, L. Fricke, H. Scherer, F. Hohls, C. Leicht, M. Götz, C. Krause, R. Behr, E. Pesel, K. Pierz, U. Siegner, F. J. Ahlers, and H. W. Schumacher. Validation of a quantized-current source with 0.2 ppm uncertainty. *Appl. Phys. Lett.*, 107 :103501, 2015.
- [127] Shinichi Tanabe, Yoshiaki Sekine, Hiroyuki Kageshima, Masao Nagase, and Hiroki Hibino. Carrier transport mechanism in graphene on sic(0001). *Phys. Rev. B*, 84 :115458, Sep 2011.
- [128] M. Thomas, D. Ziane, P. Pinot, R. Karcher, A. Imanaliev, F. Pereira Dos Santos, S. Merlet, F. Piquemal, and P. Espel. A determination of the planck constant using the Ine kibble balance in air. *Metrologia*, 2017.
- [129] A.M. Thompson and D.G. Lampard. A new theorem in electrostatics with applications to calculable standards of capacitance. *Nature*, 177 :888–890, 1956.
- [130] D. J. Thouless. Topological interpretations of quantum hall conductance. *J. Math. Phys.*, 35 :5362, 1994.
- [131] A. Tzalenchuk, S. Lara-Avila, A. Kalaboukhov, S. Paolillo, M. S. Syvajarvi, R. Yakimova, O. Kazakova, T. J. B. M. Janssen, V. Falko, and S. Kubatkin. Towards a quantum resistance standard based on epitaxial graphene. *Nature Nanotechnology*, 5 :186, 2010.
- [132] V. Umansky, M. Heiblum, Y. Levinson, J. Smet, J. Nubler, and M. Dolev. Mbe growth of ultra-low disorder 2deg with mobility exceeding $35 \cdot 10^6 \text{cm}^2/\text{v s}^{-1}$. *Journal of Crystal Growth*, 311 :1658–1661, 2009.
- [133] W. van der Wel, C. J. P. M. Harmans, and J. E. Mooij. A geometric explanation of the temperature dependence of the quantised hall resistance. *J. Phys. C : Solid State Physics*, 21 :L171, 1988.
- [134] D. Waldmann, J. Jobst, F. Speck, T. seyler, M. Krieger, and H.B. Weber. Bottom-gated epitaxial graphene. *Nature materials*, 2011.

- [135] H. Wang, H. Zhao, G. Hu, S. Li, H. Su, and J. Zhang. Graphene based surface plasmon polariton modulator controlled by ferroelectric domains in lithium niobate. *scientific reports*, 2015.
- [136] M. Woszczyna, M. Friedemann, M. Gotz, E. Pesel, K. Pierz, T. Weimann, and F. J. Ahlers. Precision quantization of hall resistance in transferred graphene. *Appl. Phys. Lett.*, 100 :164106, 2012.
- [137] G. Yamahata, S. P. Giblin, M. Kataoka, T. Karasawa, and A. Fujiwara. Gigahertz single-electron pumping in silicon with an accuracy better than 9.2 parts in 10^7 . *Appl. Phys. Lett.*, 109 :013101, 2016.
- [138] M. Yang, O. Couturaud, W. Desrat, C. Consejo, D. Kazazis, R. Yakimova, M. Syväjärvi, M. Goiran, J. Béard, P. Frings, M. Pierre, A. Cresti, W. Escoffier, and B. Jouault. Puddle-induced resistance oscillations in the breakdown of the graphene quantum hall effect. *Phys. Rev. Lett.*, 117 :237702, 2016.
- [139] Y. Yang, G. Cheng, P. Mende, I. G. Calizo, R. M. Feenstra, C.-W. Liu, C. Chuang, C.-I. Liu, G. R. Jones, A. R. H. Walker, and R. E. Elmquist. Epitaxial graphene homogeneity and quantum hall effect in millimeter-scale devices. *Carbon*, 115 :229–236, 2017.
- [140] M. Yi and Z. Shen. A review on mechanical exfoliation for scalable production of graphene. *Journal of Materials Chemistry A*, 2012.
- [141] D. Yoshioka. *The quantum Hall effect*. Springer, 1998.
- [142] Y. B. Zhang, Y. W. Tan, H. Stormer, and P. Kim. Experimental observation of the quantum hall effect and berry’s phase in graphene. *Nature*, 438 :201, 2005.

Titre : Une nouvelle génération d'étalons quantiques fondée sur l'effet Hall quantique

Mots clefs : Effet Hall Quantique, Graphène, Métrologie

Résumé : Le futur Système International d'unités, fondé sur des constantes fondamentales, va permettre de profiter pleinement des étalons quantiques de résistance, de courant et de tension qui sont reliés à la constante de planck et à la charge élémentaire.

Dans cette thèse, nous avons développé et étudié un étalon de résistance fondé sur l'effet Hall quantique (EHQ) dans du graphène obtenu par dépôt chimique en phase vapeur (propane/hydrogène) sur substrat de carbure de silicium. Nous avons réussi à montrer, pour la première fois, qu'un étalon de résistance en graphène pouvait fonctionner à des conditions expérimentales plus pratiques que son homologue en GaAs/AlGaAs, c'est-à-dire à des températures plus élevées ($T \simeq 10$ K), des champs magnétiques plus faibles ($B \simeq 3,5$ T) et des courants de mesures plus importants ($I \simeq 500 \mu\text{A}$). Dans une optique de compréhension et d'améliora-

tion, nous avons analysé la reproductibilité du processus de fabrication de barres de Hall, testé une méthode de modification de la densité électronique et étudié les mécanismes de dissipation en régime d'EHQ.

Dans une seconde partie, nous avons démontré qu'il était possible de réaliser une source de courant quantique programmable et versatile, directement reliée à la charge élémentaire, en combinant les deux étalons quantiques de tension et de résistance dans un circuit quantique intégrant un comparateur cryogénique de courant. Des courants ont ainsi pu être générés dans une gamme allant de $1 \mu\text{A}$ jusqu'à 5 mA avec une incertitude relative jamais atteinte de 10^{-8} . Nous avons également prouvé que cet étalon de courant, réalisant la nouvelle définition de l'ampère, pouvait être utilisé pour étalonner un ampèremètre.

Title : A new generation of quantum standards based on the quantum Hall effect

Keywords : Quantum Hall Effect, Graphene, Metrology

Abstract : The future International System of Units, based on fundamental constants, will allow to take full advantage of the quantum standards of resistance, current and voltage that are linked to the planck constant and the elementary charge only.

In this thesis, we have developed and studied a resistance standard based on the quantum Hall effect in graphene obtained by chemical vapor deposition (propane/hydrogen) on silicon carbide substrate. For the first time we were able to show that a graphene resistance standard could operate at more practical experimental conditions than its counterpart in GaAs/AlGaAs, ie at higher temperatures ($T \simeq 10$ K), weaker magnetic fields ($B \simeq 3.5$ T) and larger measurement currents ($I \simeq 500 \mu\text{A}$).

From an understanding and improvement perspective, we have analyzed the fabrication process of the Hall bar and its reproducibility, tested a method to modify the electronic density, and investigated the quantum Hall effect dissipation mechanisms.

In a second part, we have demonstrated that it was possible to realize a programmable and versatile quantum current source from the elementary charge, by combining the two quantum standards of voltage and resistance in a quantum circuit integrating a cryogenic current comparator. Currents were generated in the range from $1 \mu\text{A}$ to 5 mA , with a relative uncertainty never achieved before of 10^{-8} . We have also showed that this current standard, realizing the new definition of the ampere, could be used to calibrate an ammeter.