



HAL
open science

Spectroscopie optique au sub-THz et au sub-Kelvin de supraconducteurs

Olivier Dupre

► **To cite this version:**

Olivier Dupre. Spectroscopie optique au sub-THz et au sub-Kelvin de supraconducteurs. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT : 2018GREAY033 . tel-02001048

HAL Id: tel-02001048

<https://theses.hal.science/tel-02001048>

Submitted on 1 Feb 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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Olivier DUPRE

Thèse dirigée par **Thierry KLEIN**

et codirigée par **Alessandro MONFARDINI**

et co-encadrée par **Florence LEVY-BERTRAND**

préparée au sein du **Laboratoire Institut Néel**
dans **l'École Doctorale Physique**

Spectroscopie optique au sub-THz et au sub-Kelvin de supraconducteurs

Thèse soutenue publiquement le **21 septembre 2018**,
devant le jury composé de :

Madame CLAIRE MARRACHE-KIKUCHI

MAITRE DE CONFERENCES, UNIVERSITE PARIS-SUD, Rapporteur

Monsieur ALAIN PAUTRAT

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION NORMANDIE,
Rapporteur

Monsieur OLIVIER BUISSON

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION ALPES,
Examineur

Monsieur RICARDO LOBO

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION PARIS,
Examineur

Monsieur DIRK VAN DER MAREL

PROFESSEUR, UNIVERSITE DE GENEVE - SUISSE, Président



Table des matières

Introduction générale	9
I Présentation des détecteurs à inductance cinétique et techniques de mesures	11
1 Présentation des détecteurs à inductance cinétique (KIDs)	13
1.1 Principe de fonctionnement	14
1.1.1 Mesure des résonances	14
1.1.2 Détermination des paramètres électriques du résonateur	15
1.1.3 Lien entre fréquence de résonance et densité superfluide	18
1.1.4 Évolution de la fréquence de résonance avec la température ou par absorption de photons	19
1.1.5 Lien entre dépendance en température de la fréquence de résonance et gap supraconducteur	20
1.2 Les détecteurs à inductance cinétique en tant qu'objets d'étude de la supraconductivité	23
1.3 Fabrication des résonateurs	24
1.3.1 Design	24
1.3.2 Microfabrication	26
1.3.3 Montage de la matrice	31
2 Instrumentation et techniques de mesures	33
2.1 Mesures de résistivité	33
2.2 Réfrigérateur à dilution optique	37
2.3 Mesures des résonances	37
2.4 Mesures optiques	38
2.4.1 L'interféromètre de Martin-Puplett	38
2.4.2 L'antenne radio-fréquences	42
2.4.3 Résumé des caractéristiques des instruments optiques	43
II Influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium	45
3 Contexte de l'étude	47
3.1 Analyse de la formule de McMillan	48

3.1.1	Préambule : théorie BCS	48
3.1.2	Présentation de la formule de McMillan	49
3.1.3	Effets du pseudo-potentiel de Coulomb μ^*	50
3.1.4	Effets de la constante de couplage électron-phonon λ	51
3.1.5	Effets de la moyenne de la fréquence des phonons ω_{log}	53
3.1.6	Influence des phonons sur la température critique dans l'aluminium : modèle de McMillan	53
3.2	Effets de proximité	54
3.2.1	Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : cas général	54
3.2.2	Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : $N_1 \simeq N_2$	56
3.2.3	Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : $V_2 = 0$	56
3.3	Fluctuations de la phase du paramètre d'ordre	57
4	Analyse des mesures de résistivité	59
4.1	Détermination de la résistance par carré à 300 K	59
4.2	Détermination de la température critique	61
4.2.1	Modélisation de la température critique en fonction de l'épaisseur	63
4.2.2	Modélisation de la température critique en fonction de l'épaisseur et de la résistance par carré	64
4.3	Détermination du champ critique	69
5	Analyse des mesures du gap supraconducteur	77
5.1	Analyse des mesures de spectroscopie optique	77
5.1.1	Critère d'évaluation du gap optique	77
5.1.2	Normalisation des courbes	78
5.1.3	Analyse des résultats	79
5.2	Analyse des mesures VNA en température	84
5.2.1	Présentation de la mesure	84
5.2.2	Méthode pour déterminer le gap radio-fréquences	85
5.2.3	Résultats	87
5.2.4	Détermination du temps de relaxation des électrons à température nulle τ_0	91

III Étude des excitations sous le gap dans des systèmes désordonnés 95

6	Étude des excitations sous le gap dans l'oxyde d'indium	97
6.1	Présentation de l'échantillon d'oxyde d'indium de cette étude	97
6.1.1	Introduction générale sur le matériau oxyde d'indium InOx	97
6.1.2	Caractéristiques de l'échantillon	98
6.2	Mise en évidence des excitations sous le gap	100
6.2.1	Spectre Martin-Puplett	100
6.2.2	Mesures avec l'antenne radio-fréquences	102
6.3	Explication du mécanisme de détection de photons d'énergie $h\nu \ll 2\Delta$	104
6.3.1	Modes de résonances	104
6.3.2	Lien entre longueur du résonateur et fréquence des photons détectés	107

6.3.3	Description microscopique du mécanisme d'absorption	108
6.4	Mesures supplémentaires	111
6.4.1	Influence de la puissance des photons incidents sur l'évolution des résonances	111
6.4.2	Influence de la température sur l'évolution des résonances sous l'effet d'une illumination de photons	112
6.4.3	Influence de l'orientation de l'antenne	112
7	Étude des excitations sous le gap dans l'aluminium granulaire	115
7.1	Échantillon H	117
7.1.1	Étude du pic à 57.2 GHz	118
7.1.2	Étude du pic à 39.2 GHz	120
7.1.3	Étude du pic à 18 GHz	121
7.2	Échantillon E	123
7.2.1	Étude du pic à 13.424 GHz	123
7.2.2	Étude du pic à 58.3 GHz	125
7.2.3	Étude du pic à 154.9 GHz	127
	Conclusion générale	131
	Résumé	133
	Summary	135
	Annexes	137
A	Annexe A : article <i>Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators</i>	139
B	Annexe B : article <i>Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator : observation of collective superconducting modes</i> . . .	147

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier très chaleureusement Florence Lévy-Bertrand pour sa patience et son dévouement à mon égard. L'énergie et le temps qu'elle a consacrés au bon déroulement de ma thèse a été primordial. Elle a toujours su trouver les mots pour me motiver dans les moments difficiles et m'encourager à donner le meilleur de moi-même. Je n'aurais probablement jamais pu aboutir aux résultats que je présente dans ce manuscrit sans son implication au quotidien. Elle m'a énormément apporté tant sur le plan scientifique que humain. Florence, un grand merci !

Ensuite, je voudrais saluer le soutien que m'a apporté Thierry Klein. Il a toujours montré un grand intérêt au travail de recherche entrepris dans cette thèse lors des discussions que l'on a eues. Il a également su me rassurer lorsque je doutais de la qualité de mon travail, notamment concernant le manuscrit.

Puis j'aimerais remercier Alessandro Monfardini, Martino Calvo et Andrea Catalano qui m'ont beaucoup aidé lors des nombreux refroidissements du cryostat pour les mesures sub-Kelvin des résonateurs supraconducteurs. Je tiens également à dire un grand merci à Johannes Goupy qui m'a formé à l'art de la fabrication en salle blanche. Il a su me faire comprendre que la casse des échantillons faisait partie du jeu, surtout en début de thèse, m'aidant à relativiser mes quelques échecs. Merci aussi à Pierre Lachkar qui m'a enseigné le maniement du PPMS, instrumentation permettant de mesurer la résistivité des échantillons jusqu'à 350 mK et sous champ magnétique.

Je voudrais également remercier Alicia Gomez pour sa collaboration très active à l'étude des couches minces d'aluminium. Son enthousiasme et sa constante bonne humeur ont été des réconforts dans les périodes difficiles. Par ailleurs, la semaine que j'ai passée dans son laboratoire de Madrid pour fabriquer des échantillons a été très enrichissante, tant sur le plan professionnel que personnel. Je remercie d'ailleurs Maite Magaz qui m'a montré le procédé qu'elle utilise pour la fabrication de résonateurs supraconducteurs, proche de celui que je connaissais mais qui diffère par certains aspects.

J'aimerais remercier Benjamin Sacépé ainsi que Thierry Grenet et Julien Delahaye pour leur collaboration concernant les études sur l'oxyde d'indium ainsi que sur l'aluminium granulaire, respectivement.

Je tiens également à adresser un clin d'oeil à Panayotis Spathis qui a été mon tuteur d'enseignement pendant la thèse. Il m'a prodigué de nombreux conseils sur la manière d'encadrer un cours à l'université. Je l'en remercie.

Pour conclure, j'aimerais saluer chaleureusement le soutien constant apporté par mes collègues doctorants : Matthias, Victor, Jorge, Hugo, Bastien, Clément, Khaled...

Merci enfin à tous ceux que je n'ai pas cités et qui m'ont apporté leur aide au cours de ces trois années enrichissantes !

Introduction générale

La supraconductivité est un état de la matière qui présente la particularité de correspondre à l'absence totale de résistance électrique et à l'expulsion de champ magnétique. Elle apparaît dans un certain nombre de matériaux lorsque ceux-ci sont refroidis en dessous de leur température de transition supraconductrice T_c , température qui est propre à chaque matériau supraconducteur. La supraconductivité se manifeste à l'échelle microscopique par la création d'un condensat de paires d'électrons, appelées paires de Cooper, qui se déplacent dans le matériau sans dissipation d'énergie.

La dimensionnalité joue un rôle fondamental dans la supraconductivité. A priori, un système bidimensionnel ne devrait pas être supraconducteur mais il existe de nombreux contre-exemples (monocouche de FeSe, interface d'oxydes. . .). L'étude des propriétés des couches minces supraconductrices est ainsi tout particulièrement intéressante.

Dans le cadre de ma thèse, j'ai étudié différents supraconducteurs en couches minces à l'aide d'une nouvelle technique de spectroscopie optique, capable de mesurer dans la gamme de fréquences 0-300 GHz avec une résolution de 1 GHz, à la température de 100 mK. Les supraconducteurs sont lithographiés sous la forme de résonateurs. Ces résonateurs sont utilisés en astrophysique notamment en tant que détecteurs de photons millimétriques. Le principe de détection réside dans la variation de la fréquence de résonance, qui est reliée à la densité d'électrons supraconducteurs, lorsque les résonateurs sont soumis à un rayonnement dans le domaine millimétrique. Pendant ma thèse, j'ai fabriqué des résonateurs à partir de différents matériaux supraconducteurs en couches minces dans le but d'en étudier les propriétés. Dans la première partie du manuscrit, je présente les résonateurs ainsi que les techniques de mesures utilisées au cours de ma thèse.

Dans la deuxième partie du manuscrit, je m'intéresse à l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium, dont l'épaisseur des échantillons va de 15 nm à 200 nm environ. L'aluminium est un matériau particulièrement attractif pour étudier l'effet de la dimensionnalité sur la supraconductivité puisque le mécanisme à l'origine de la formation des paires de Cooper est dit conventionnel : il s'agit d'un couplage électron-phonon. De plus, il est relativement facile de faire varier son épaisseur ainsi que sa micro-structure, en jouant sur la pression d'oxygène lors du dépôt, pour en faire de l'aluminium granulaire (GrAl). Dans la plupart des supraconducteurs, la température critique T_c diminue à mesure que l'épaisseur du film diminue. Ce n'est pas le cas de l'aluminium qui présente un comportement inverse. Différentes théories permettent d'expliquer ce phénomène mais, à l'heure actuelle, il n'existe aucun consensus. J'essaie d'apporter un regard nouveau en

interprétant des mesures réalisées par des techniques combinées de spectroscopie optique et de résistivité.

Dans la troisième et dernière partie du manuscrit, je présente des supraconducteurs désordonnés, à savoir de l'oxyde d'indium (InOx) et de l'aluminium granulaire (GrAl). Dans ces matériaux, je mets en évidence des excitations sous le gap supraconducteur par des mesures de spectroscopie optique. Ces excitations, dont je discute l'origine, n'ont a priori pas été observées dans les supraconducteurs conventionnels.

Première partie

Présentation des détecteurs à inductance cinétique et techniques de mesures

Chapitre 1

Présentation des détecteurs à inductance cinétique (KIDs)

Introduction Les détecteurs à inductance cinétique (KIDs) sont des résonateurs RLC fabriqués avec des matériaux supraconducteurs en couches minces déposés sur un substrat. Ils sont couplés par mutuelle inductance ou mutuelle capacitance à une ligne de transmission (aussi appelée ligne de lecture) supraconductrice, en aluminium par exemple (figure 1.1). Typiquement, les résonateurs sont compris dans des carrés dont la longueur du côté est de l'ordre de 1 mm.

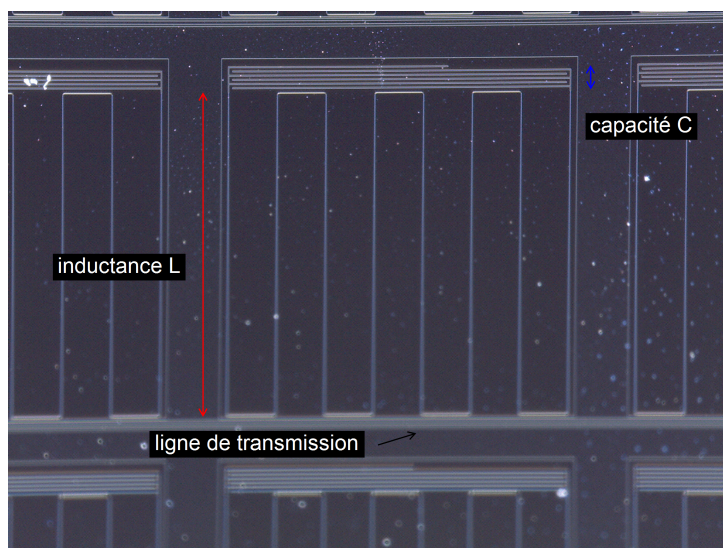


FIGURE 1.1 – Exemple de détecteur à inductance cinétique. L'inductance L prend la forme de méandres et la capacité C est un peigne de doigts. Ici, le couplage à la ligne de transmission est inductif.

Les résonateurs, tous conçus suivant le même modèle, se trouvent le long de la ligne de transmission. Chaque résonateur possède une fréquence de résonance fondamentale qui lui est propre :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$$

Lors de la fabrication, on ajuste la valeur de la capacité C en jouant sur la taille des doigts pour que chaque résonateur ait une fréquence de résonance fondamentale légèrement différente de celle de son voisin.

1.1 Principe de fonctionnement

1.1.1 Mesure des résonances

Le principe de fonctionnement des résonateurs est le suivant : on fait circuler dans la ligne de transmission un courant I_1 oscillant à une fréquence f . Ce courant induit dans l'inductance de la ligne un champ électromagnétique qui, grâce au couplage par inductance mutuelle, va être induit dans le résonateur, faisant ainsi circuler dans celui-ci un courant I_2 oscillant à la même fréquence f . On mesure la transmission $|S_{21}| = \frac{V_s}{V_e}$ en fonction de la fréquence f du courant d'excitation, avec V_s et V_e respectivement les tensions de sortie et d'entrée du circuit (figure 1.2). Les ports 1 et 2 représentent respectivement l'entrée et la sortie du circuit.

Si f est suffisamment proche de la fréquence de résonance fondamentale du résonateur f_0 (c'est-à-dire typiquement à 0.1% près), alors une partie du signal électrique est transmise dans le résonateur et on observe une chute de la transmission $|S_{21}|$ entre la sortie et l'entrée de la ligne (figure 1.2).

Comme chaque résonateur possède une fréquence de résonance qui lui est propre, on peut mesurer avec une seule ligne de transmission la réponse électrique de tous les résonateurs simultanément en balayant en fréquence : on parle de multiplexage fréquentiel (figure 1.2).

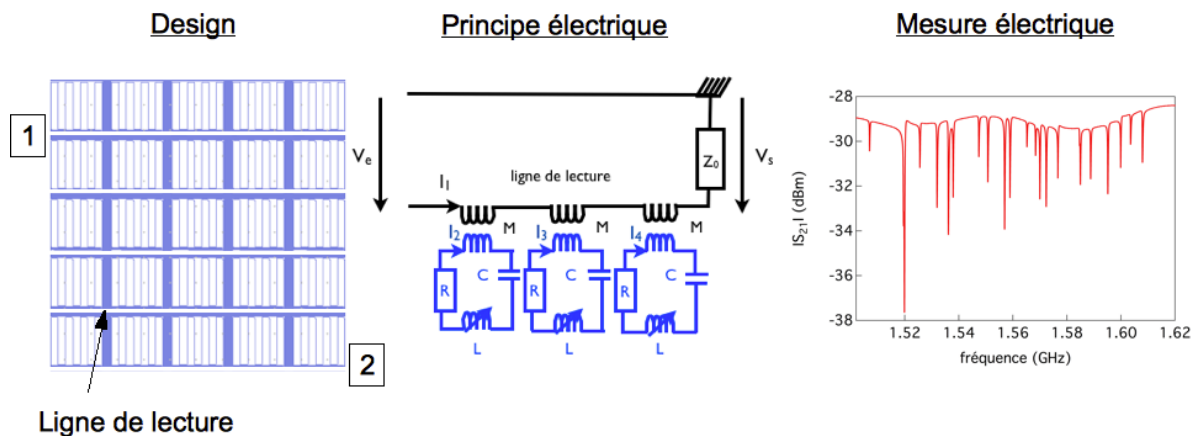


FIGURE 1.2 – Illustration du principe de fonctionnement des résonateurs. A gauche : design d’une matrice de 25 résonateurs le long d’une ligne de transmission avec le port 1 en entrée et le port 2 en sortie. Au centre : représentation schématique du circuit électrique du panel de gauche avec 3 des 25 résonateurs couplés par mutuelle inductance à la ligne de lecture. A droite : Mesure de la transmission $|S_{21}|$ en fonction de la fréquence. On observe 21 résonances, chacune caractéristique d’un résonateur du réseau représenté sur le panel de gauche. 4 des 25 résonateurs ne présentent pas de résonance, probablement à cause de problèmes lors de la fabrication.

1.1.2 Détermination des paramètres électriques du résonateur

Chaque résonateur est caractérisé par sa fréquence de résonance fondamentale f_0 ainsi que par son facteur de qualité Q . Le facteur de qualité est défini comme étant le rapport entre la fréquence fondamentale f_0 et la largeur de la résonance à mi-hauteur Δf (figure 1.3) :

$$Q = \frac{f_0}{\Delta f}$$

Le facteur de qualité se décompose en réalité en deux termes : le facteur de qualité interne Q_i , caractéristique du résonateur, ainsi que le facteur de qualité de couplage Q_c qui rend compte du couplage entre le résonateur et la ligne de lecture. Le facteur de qualité total s’exprime de la façon suivante :

$$Q^{-1} = Q_i^{-1} + Q_c^{-1}$$

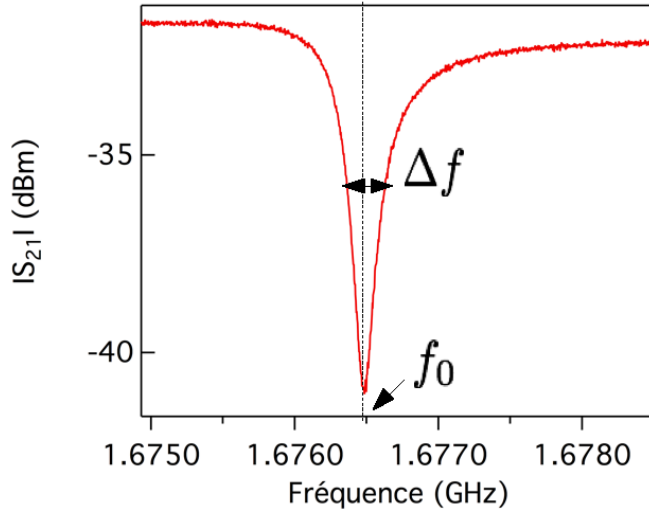


FIGURE 1.3 – Illustration d’une résonance, caractérisée par la fréquence de résonance f_0 et le facteur de qualité Q défini comme le rapport entre f_0 et Δf , largeur de la résonance à mi-hauteur.

Le facteur de qualité interne Q_i s’exprime en fonction des paramètres RLC du résonateur de la façon suivante :

$$Q_i = \frac{1}{R_s} \sqrt{\frac{L}{C}}$$

avec R_s la résistance de surface du résonateur rendant compte des phénomènes de dissipation dont les collisions des quasi-particules entre elles. Sous l’effet de la température, la dissipation augmente et le facteur de qualité interne diminue. Pour pouvoir mesurer les résonances, il faut que le facteur de qualité interne soit suffisamment élevé sinon la résonance est trop large et trop peu profonde : elle disparaît dans le bruit de la ligne de transmission. Pour limiter au maximum les phénomènes de dissipation et ainsi pouvoir mesurer les résonances, il faut que les résonateurs et la ligne de transmission soient dans l’état supraconducteur. Typiquement, la température de travail ne doit pas excéder la valeur de $T_c/3$ avec T_c la température critique du supraconducteur dont sont composés les résonateurs. On utilise un réfrigérateur à dilution hélium 3 / hélium 4 avec une ouverture optique permettant d’accéder à des températures de base de l’ordre de 50 mK.

Pour déterminer les paramètres électriques du résonateur, on exprime en fonction de la fréquence la fonction de transfert $S_{21} = \frac{V_s}{V_e}$ du circuit représenté sur la figure 1.4. Ce circuit est le même que sur le panel central de la figure 2 pour un seul résonateur, à la différence qu’on représente une impédance parasite Z_p sur la ligne de lecture pour rendre compte de l’asymétrie éventuelle de la résonance. On peut montrer que :

$$S_{21}(\omega) = \frac{1}{1 + jX + \frac{Q_i}{Q_e} \frac{1}{1 + jQ_i(\frac{\omega}{\omega_0} - \frac{\omega_0}{\omega})}}$$

avec $jX = \frac{Z_p}{Z_0}$ où $Z_0 = 50 \Omega$ est l'impédance de sortie du circuit, et $\omega_0 = \frac{1}{\sqrt{LC}}$ pulsation de résonance du résonateur.

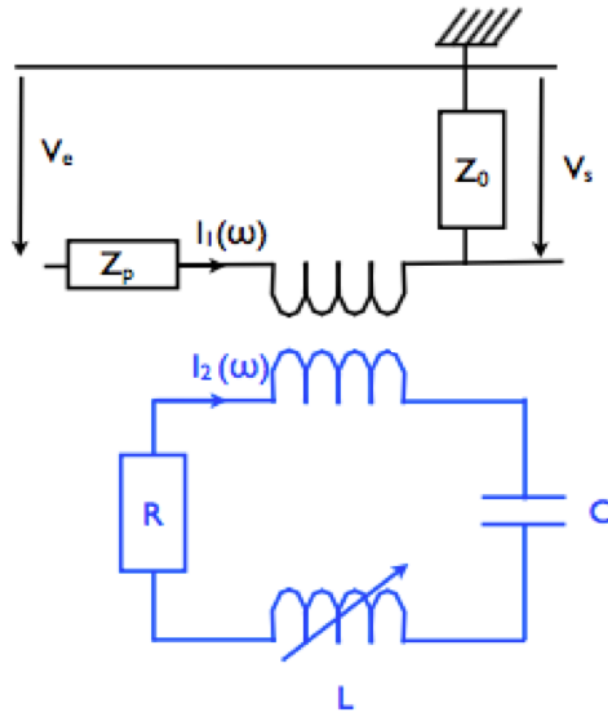


FIGURE 1.4 – Schéma d'un résonateur couplé à la ligne de lecture. Z_p est une impédance parasite de la ligne de lecture rendant compte d'une éventuelle asymétrie de la résonance.

En modélisant les données de transmission en fonction de la fréquence par le module de la formule ci-dessus, on extrait les paramètres électroniques du résonateur f_0 , Q_i , Q_c et X . Pour illustration, la figure 1.5 montre la résonance de la figure 1.3 modélisée.

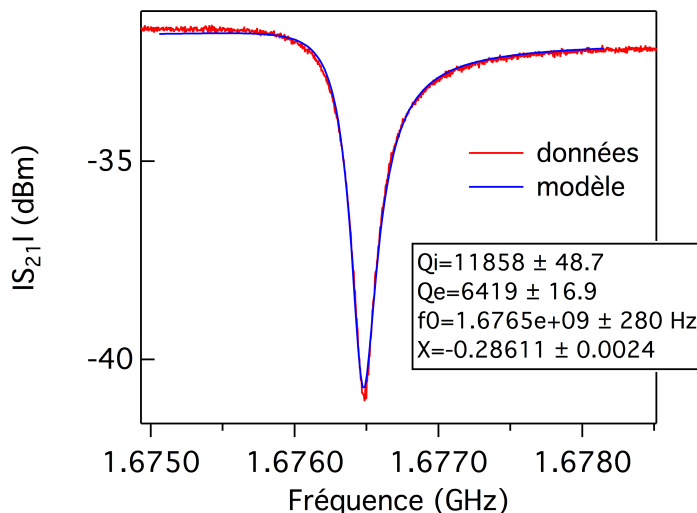


FIGURE 1.5 – Illustration de la modélisation d’une résonance pour extraire les paramètres électroniques du résonateur correspondant.

1.1.3 Lien entre fréquence de résonance et densité superfluide

La fréquence de résonance est un paramètre essentiel puisqu’elle renseigne sur la supraconductivité du matériau dont est composé le résonateur. On peut en effet montrer que f_0 est reliée à la densité d’électrons supraconducteurs n_s . On considère le principe fondamental de la dynamique dans un supraconducteur [1] :

$$m \frac{dv_s}{dt} = -eE$$

avec m , e et v_s respectivement la masse, la charge et la vitesse des électrons supraconducteurs, et E le champ électrique.

On exprime la vitesse v_s en fonction de la densité de courant des électrons supraconducteurs $j_s = -n_s e v_s$ et on multiplie par une longueur caractéristique l ; on fait ainsi apparaître les équivalents d’un courant et d’une tension électriques :

$$\frac{ml}{n_s e^2} \frac{dj_s}{dt} = El \iff \frac{ml}{n_s e^2 S} \frac{di}{dt} = U$$

où S est une surface caractéristique.

Par analogie avec la relation entre la tension aux bornes d'une inductance U et le courant i qui la traverse i , on peut en déduire que la quantité $\frac{ml}{n_s e^2 S}$ correspond à une inductance. Il s'agit de la partie cinétique de l'inductance totale L du KID. L'inductance totale est en réalité la somme de deux composantes :

$$L = L_s + L_G$$

où L_s est donc l'inductance cinétique du KID et L_G l'inductance géométrique du KID. L_G dépend de la forme de l'inductance du résonateur. Lors de la fabrication, on ajuste le design et la longueur de l'inductance pour que la fréquence de résonance du KID soit de l'ordre du GHz, typiquement.

On vient de montrer que la fréquence de résonance était liée à la densité d'électrons supraconducteurs dans le matériau. Étudier la variation de cette fréquence de résonance renseigne sur l'évolution de n_s .

1.1.4 Évolution de la fréquence de résonance avec la température ou par absorption de photons

Lorsque l'on apporte de l'énergie au système supérieure au gap supraconducteur, qu'elle soit d'origine thermique ou due à l'absorption de photons par exemple, on excite le condensat supraconducteur. On casse alors des paires de Cooper, créant ainsi des quasi-particules. Le nombre d'électrons supraconducteurs dans le matériau diminue donc, alors l'inductance cinétique augmente et la fréquence de résonance diminue [2].

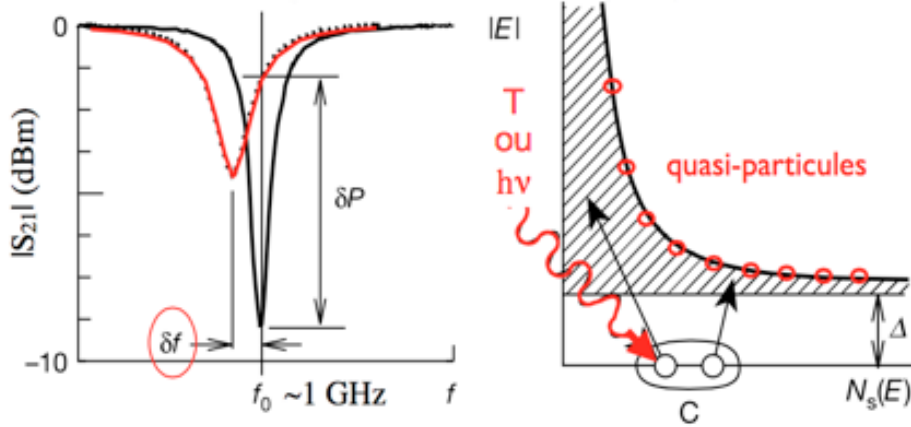


FIGURE 1.6 – Figure adaptée de la référence [2]. A gauche : variation de la fréquence de résonance δf suite à un apport d'énergie $E > 2\Delta$. La fréquence de résonance non modifiée est de l'ordre de 1 GHz. A droite : énergie des électrons en fonction de la densité d'états. L'excitation du condensat de paires de Cooper crée des quasi-particules, séparées des électrons supraconducteurs d'une énergie égale au gap Δ , ce qui induit une diminution de la fréquence de résonance.

1.1.5 Lien entre dépendance en température de la fréquence de résonance et gap supraconducteur

On va montrer que la variation de la fréquence de résonance en fonction de la température $\delta f(T)$ est reliée au gap supraconducteur Δ .

Dans la limite sale, c'est-à-dire pour des échantillons où le libre parcours moyen l est très faible devant la longueur de cohérence intrinsèque ξ_0 , l'impédance de surface du résonateur s'exprime de la façon suivante [3] :

$$Z_s = \sqrt{\frac{i\mu_0\omega}{\sigma}} \coth(\sqrt{i\mu_0\omega\sigma d}) = R_s + i\omega L_s$$

avec μ_0 la permittivité du vide, $\omega = 2\pi f$ la pulsation de résonance, d l'épaisseur de la couche, R_s et L_s respectivement la résistance de surface et l'inductance de surface du supraconducteur. $\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2$ est la conductivité optique. L'épaisseur d est équivalente au rapport surface caractéristique/longueur caractéristique de la page précédente.

Pour des films minces, c'est-à-dire lorsque $d \ll \lambda_{eff}$, avec λ_{eff} la longueur de pénétration effective renormalisée par le désordre, on peut montrer, en réalisant un développement limité de la fonction \coth , que [4] :

$$Z_s = \frac{1}{\sigma d} = \frac{1}{d} \frac{\sigma_1 + i\sigma_2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$$

Dans le cas du modèle à deux fluides, à savoir les électrons normaux de densité n_{qp} et les électrons supraconducteurs de densité n_s , la conductivité optique s'exprime de la façon suivante [4] :

$$\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2 = \frac{n_{qp}e^2\tau}{m^*} \frac{1}{1 - i\omega\tau} - i \frac{n_s e^2}{m^*\omega} = \frac{n_{qp}e^2\tau}{m^*(1 + (\omega\tau)^2)} - i \left(\frac{n_s e^2}{m^*\omega} - \frac{n_{qp}e^2\omega\tau^2}{m^*(1 + (\omega\tau)^2)} \right)$$

avec m^* la masse des électrons, τ le temps de relaxation des électrons, n_{qp} la densité de quasi-particules et n_s la densité d'électrons supraconducteurs.

Exprimons R_s et L_s en fonction de σ_1 et σ_2 :

$$R_s = \frac{\sigma_1}{(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)d}$$

et

$$L_s = \frac{\sigma_2}{(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)\omega d}$$

Or, à basse température, on a $\sigma_1 \ll \sigma_2$. Il vient :

$$R_s = \frac{\sigma_1}{\sigma_2^2 d}$$

et

$$L_s = \frac{1}{\sigma_2 \omega d}$$

À basse température, $n_{qp} \ll n_s$ et, dans le cas où $\omega\tau \ll 1$, on a :

$$\sigma_2 = \frac{n_s e^2}{m^*\omega}$$

Ainsi l'inductance cinétique s'écrit :

$$L_s = \frac{m^*}{n_s e^2 d}$$

L'inductance cinétique est proportionnelle à $1/n_s$. Si on note $\delta L_s(T) = L_s(T) - L_s(0)$ la variation d'inductance de surface à la température T par rapport à la température nulle, alors :

$$\frac{\delta L_s(T)}{L_s(0)} = -\frac{\delta n_s(T)}{n_s(0)}$$

Or, comme $f(T) = \frac{1}{\sqrt{(L_s(T)+L_G)C}}$, la variation de fréquence de résonance δf est reliée à la variation de la densité d'électrons supraconducteurs n_s , à basse température, suivant :

$$\frac{\delta f(T)}{f(0)} = -\frac{\alpha}{2} \frac{\delta L_s(T)}{L_s(0)} = \frac{\alpha}{2} \frac{\delta n_s(T)}{n_s(0)}$$

α est un paramètre rendant compte de la géométrie de l'inductance dont sont composés les détecteurs. Ce coefficient vaut $\alpha = \frac{L_s}{L_s+L_G}$ avec pour rappel L_s la partie cinétique de l'inductance et L_G la partie géométrique de l'inductance.

On vient de déterminer la relation entre la variation de la fréquence de résonance en fonction de la température $\delta f(T)$ et la variation de la densité d'électrons supraconducteurs en fonction de la température $\delta n_s(T)$, à basse température.

Dans le cadre de la théorie Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) [5], on a [6] :

$$\frac{n_s(T)}{n_s(0)} = 1 - \int_{\Delta(T)}^{+\infty} \left(-\frac{\partial f}{\partial E}\right) \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta(T)^2}} dE$$

où f est la fonction de distribution de Fermi-Dirac telle que $f(E) = \frac{1}{1+e^{\frac{E}{k_B T}}}$.

Cette relation est soumise à l'hypothèse qu'il n'y a pas d'effet autre que la température induisant du pair-breaking supplémentaire. Si par exemple des photons illuminent des résonateurs, on considère alors le cas où l'énergie de ces photons est inférieure au double du gap supraconducteur, de telle sorte que le nombre de paires de Cooper ne soit pas modifié.

On a montré que $\delta f(T)$ était relié au gap supraconducteur Δ . L'analyse des données de la variation de fréquence de résonance en fonction de la température permet d'extraire la valeur du gap à température nulle Δ_0 . On présentera plus en détails la méthode pour déterminer Δ_0 dans la partie portant sur l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium.

1.2 Les détecteurs à inductance cinétique en tant qu'objets d'étude de la supraconductivité

Les résonateurs supraconducteurs constituent des objets d'étude intéressants pour la supraconductivité. En effet, ils disposent de nombreux avantages. Tout d'abord, il est relativement simple de les fabriquer. Le processus consiste essentiellement en de la microlithographie optique qui est une technique bien maîtrisée. De plus, il est assez facile de mesurer leur réponse électronique à un courant d'excitation, comme expliqué dans la partie précédente. Or, les paramètres électroniques des résonateurs comme la fréquence de résonance fondamentale et le facteur de qualité interne étant reliés à la densité d'électrons supraconducteurs n_s comme on l'a montré précédemment, on peut déterminer quasi-directement et relativement simplement l'évolution en température de n_s .

Par ailleurs, par l'intermédiaire d'un spectromètre à transformée de Fourier que l'on présentera dans le prochain chapitre, les résonateurs permettent une mesure directe du gap supraconducteur. En effet, l'énergie minimale des photons pour laquelle on observe une modification de la fréquence de résonance des KIDs est :

$$E_0 = 2\Delta$$

avec Δ le gap supraconducteur.

E_0 correspond à l'énergie minimale qu'il faut fournir pour casser des paires de Cooper et ainsi créer des quasi-particules, faisant varier la fréquence de résonance des résonateurs. La mesure de E_0 permet donc une détermination directe de Δ .

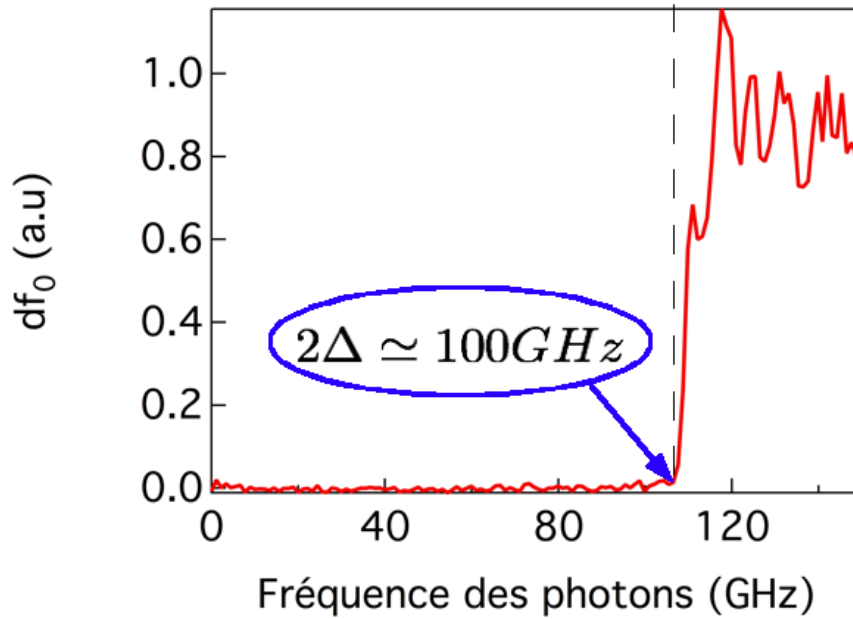


FIGURE 1.7 – Exemple de mesure du gap sur un résonateur en Aluminium de 15 nm d'épaisseur. Le graphique représente la variation de la fréquence de résonance (en unité arbitraire) en fonction de la fréquence des photons incidents. On observe un changement de f_0 à l'énergie $E_0 \simeq 100 \text{ GHz}$, correspondant à deux fois le gap supraconducteur. La résolution fréquentielle de l'interféromètre de Martin-Puplett est de l'ordre de 1 GHz.

1.3 Fabrication des résonateurs

1.3.1 Design

Avant de commencer la fabrication des résonateurs, il faut choisir un design de résonateur adéquat. En effet, suivant l'étude que l'on veut mener, on opte pour la forme de l'inductance qui convient. Le motif de Hilbert, visible sur le panel central de la figure 1.8, est par exemple particulièrement adapté pour la détection de photons puisque la forme de ses méandres permet de capter de manière équivalente les deux polarisations orthogonales de la lumière qui sont dans le plan du résonateur.

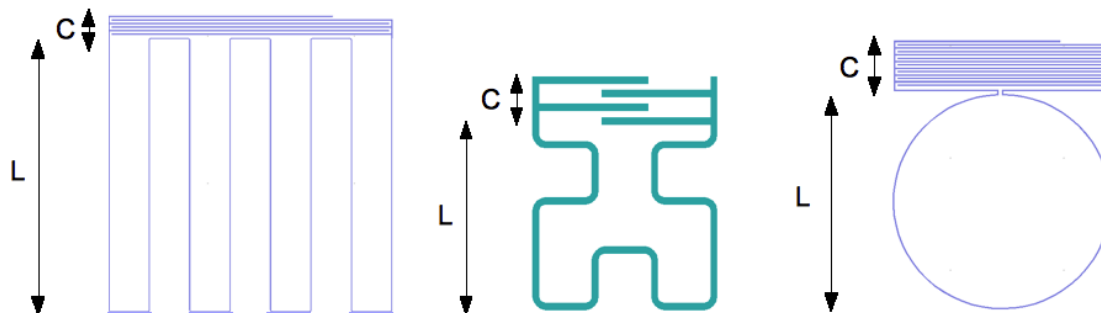


FIGURE 1.8 – Schémas de différentes géométries de résonateurs. A gauche : inductance en forme de longs méandres. Au centre : inductance en forme de Hilbert. A droite : inductance circulaire.

Ensuite, on effectue des simulations avec le logiciel Sonnet [7] dans le but de prévoir la valeur de la fréquence fondamentale f_0 à laquelle va résonner le résonateur. On veut que la fréquence de résonance soit comprise typiquement entre 1 et 3 GHz principalement pour deux raisons. Le Vectorial Network Analyzer (VNA), instrument qui mesure les résonances et qui sera présenté dans le prochain chapitre, est limité à la fréquence maximale de 9 GHz. De plus, les amplificateurs de signal que l'on possède fonctionnent essentiellement dans la gamme 0-6 GHz.

Le principe des simulations Sonnet est le suivant : on définit une boîte rectangulaire conductrice dans laquelle on insère les différentes couches du résonateur : substrat puis matériau supraconducteur qui compose l'inductance et la capacité. La couche supraconductrice est divisée en un grand nombre de carrés. Dans chacun d'eux, on considère qu'il existe un courant de surface qui y circule. On rentre en paramètres la résistance de surface par carré R_s et l'inductance cinétique par carré L_s du supraconducteur. Comme montré précédemment, L_s est directement liée à la densité de paires de Cooper. L'inductance cinétique est également liée à la partie imaginaire de l'impédance de surface du supraconducteur $Z_s = R_s + iX_s$, comme montré précédemment. Le logiciel applique la loi d'Ohm locale dans chaque carré [5] :

$$\vec{J} = \sigma \vec{E}$$

avec \vec{J} la densité de courant électrique, $\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2$ la conductivité et \vec{E} le champ électrique.

Sonnet évalue les champs électriques tangents au résonateur créés par le courant. Puis Sonnet ajuste l'intensité du courant dans chaque carré pour supprimer le champ électrique total tangent dans tout le supraconducteur [7]. Le courant dans tout le résonateur est

ainsi déterminé ; on peut tracer la transmission S_{21} entre les ports 1 et 2, respectivement entrée et sortie du circuit, en fonction de la fréquence f du courant d'excitation (figure 1.9).

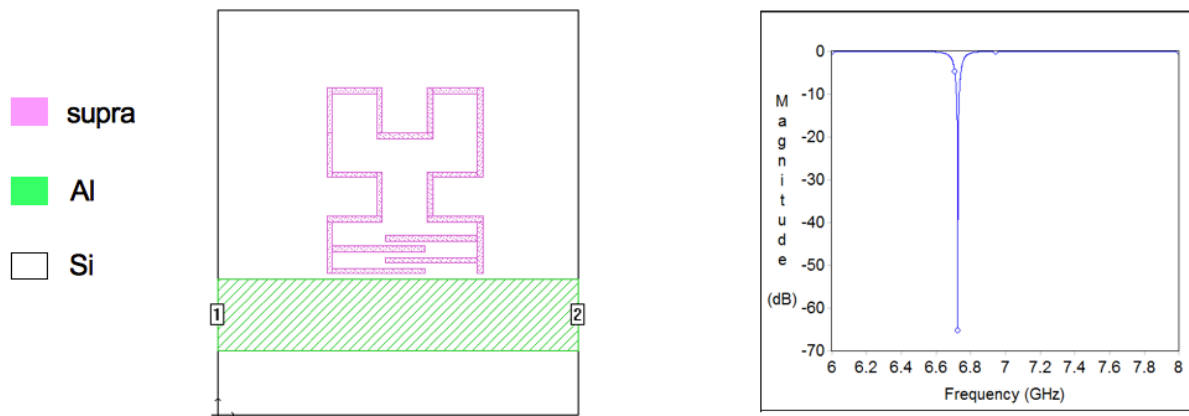


FIGURE 1.9 – À gauche : représentation du résonateur, de typiquement 1 mm de côté, avec ses différentes couches couplé à une ligne de lecture en Aluminium. À droite : transmission S_{21} obtenue par simulation électromagnétique avec le logiciel Sonnet en fonction de la fréquence f du courant d'excitation. Pour cet exemple, on a rentré en paramètres $L_s = 1 \text{ pH/carré}$ et $R_s = 1 \times 10^{-6} \text{ } \Omega/\text{carré}$.

On joue aussi sur la taille de l'inductance pour en ajuster la partie géométrique L_G jusqu'à ce qu'on obtienne la fréquence f_0 voulue, typiquement entre 1 et 3 GHz. Puis on joue sur la taille des doigts de capacité d'un résonateur à l'autre, afin que chaque KID ait une fréquence de résonance légèrement différente de son voisin (écart typique de l'ordre de 1 MHz).

Une fois qu'on connaît la forme et la taille que doivent avoir les résonateurs, on peut dessiner le masque en conséquence. Ce masque va servir à la fabrication des résonateurs.

1.3.2 Microfabrication

La fabrication de détecteurs à inductance cinétique se fait en deux étapes : d'abord la ligne de transmission, puis les résonateurs.

Fabrication de la ligne de lecture

Le substrat utilisé pour fabriquer les KIDs est du silicium monocristallin, d'épaisseur comprise entre $180 \text{ } \mu\text{m}$ et $525 \text{ } \mu\text{m}$. Le silicium est dit de haute résistivité : $\rho > 500 \text{ } \Omega.\text{cm}$.

Tout d'abord, l'oxyde natif en surface de la plaquette de silicium est gravé par de la vapeur HF (hydrogène + fluor) qui casse chimiquement les liaisons entre les atomes de silicium Si et d'oxygène O. Puis une couche de métal, typiquement 50 nm d'Aluminium, est déposée par évaporation par faisceau d'électrons. Le principe est le suivant : un filament de tungstène à haute température délivre un faisceau d'électrons. Sous l'effet d'un champ magnétique, ce faisceau se dirige avec une énergie cinétique élevée vers un creuset contenant le métal que l'on veut déposer. L'énergie cinétique des électrons entrant en collision avec le matériau se transforme en énergie thermique, ce qui conduit à l'évaporation des atomes du métal vers le substrat (figure 1.10).

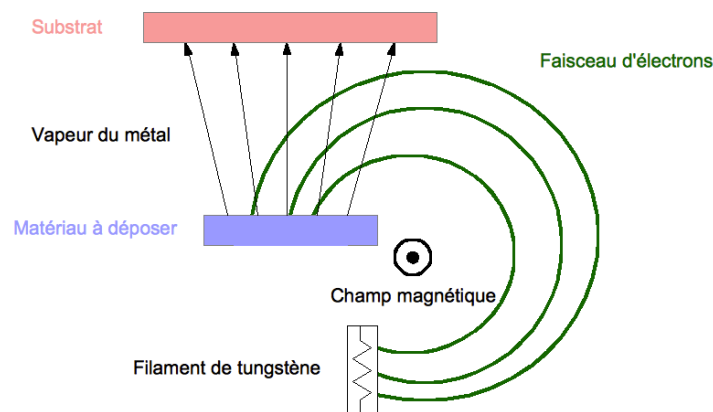


FIGURE 1.10 – Description schématique de l'évaporation par faisceau d'électrons.

La couche d'Aluminium constitue ainsi le plan de masse des résonateurs. Une couche de résine est à son tour déposée et recuite (figure 1.11).



FIGURE 1.11 – Vue en coupe schématique des différentes couches.

Ensuite, on procède à la micro-lithographie optique. Un exemple de masque est donné en figure 1.12; la couleur bleue représente les motifs et la couleur blanche les trous. On a fait un zoom sur une partie du masque pour permettre de voir distinctement la ligne de lecture.

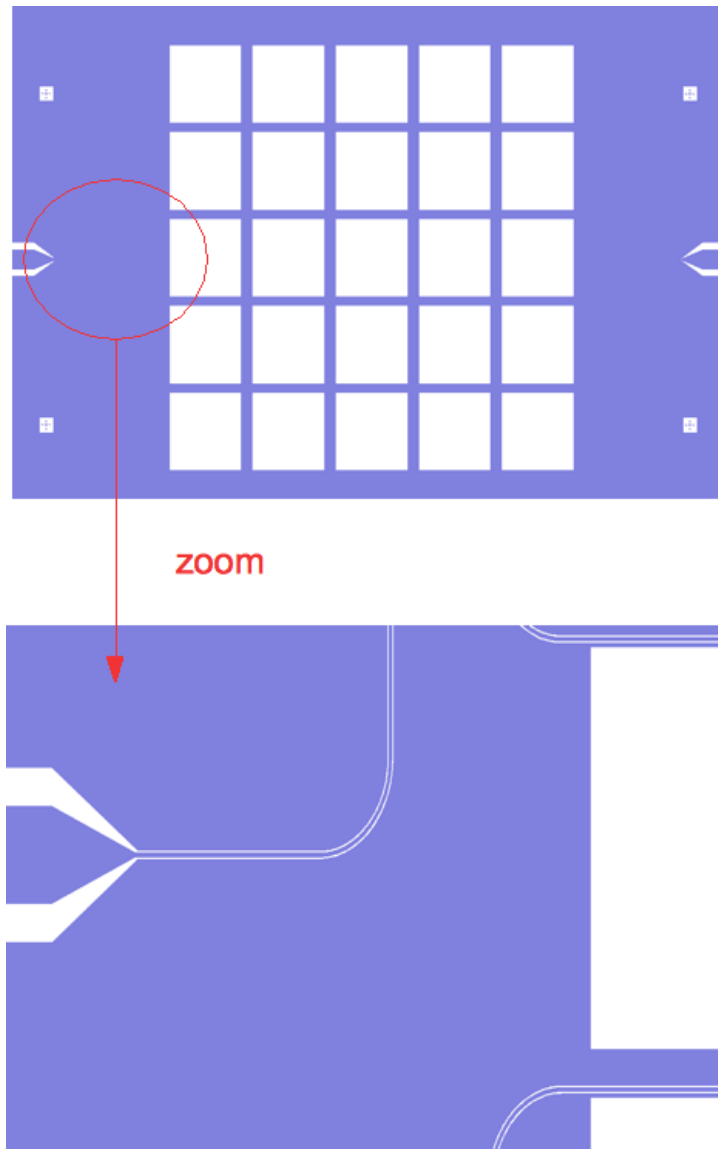


FIGURE 1.12 – Partie du masque utilisée pour fabriquer la ligne de lecture. La couleur blanche représente les trous; la couleur bleue représente les motifs.

On positionne le masque au-dessus de la plaquette de silicium qui est soumise à un rayonnement UV passant à travers le masque. Ainsi la partie de la résine qui fait face aux trous est insolée ; en revanche elle n'est pas modifiée au niveau des motifs. L'image du masque sur la plaquette est alors obtenue.

Ensuite, la plaquette est plongée dans un acide appelé développeur qui va dissoudre la partie insolée de la résine. Dans ce cas, la résine est dite positive. Dans le cas d'une résine négative, le développeur dissout la partie non insolée de la résine.

Puis on effectue une gravure de l'Aluminium en milieu humide. Un acide (AluEtch) attaque la couche d'Aluminium non protégée par de la résine, c'est-à-dire au niveau des trous. Il n'a donc aucun effet sur la couche de métal encore protégée par de la résine, soit au niveau des motifs (figure 1.13).

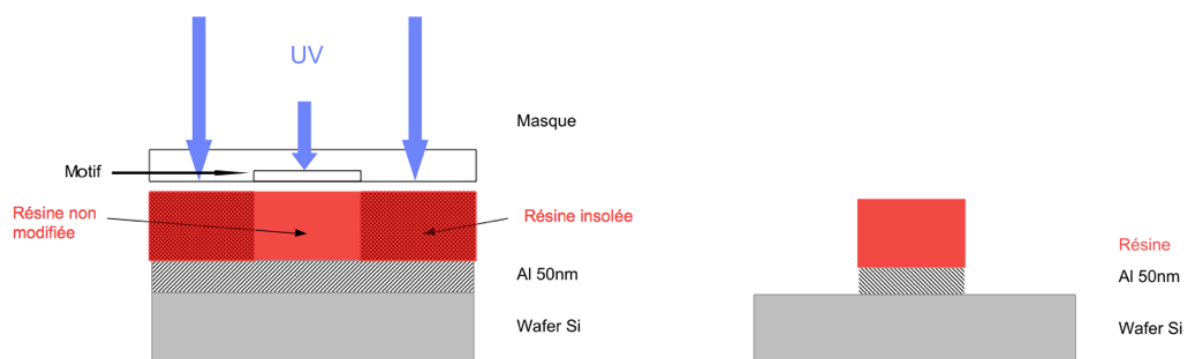


FIGURE 1.13 – En bas à gauche : insolation de la résine par rayonnement UV. En bas à droite : vue en coupe schématique de la plaquette après développement et gravure humide.

Enfin, un lift-off est réalisé, c'est-à-dire que la plaquette est plongée dans de l'acétone puis isopropanol pour enlever la résine sur la couche d'Aluminium. Comme voulu, la plaquette obtenue contient la ligne de lecture, le plan de masse et l'emplacement des résonateurs.

Fabrication des résonateurs

Il reste à fabriquer les résonateurs dans le matériau voulu, par exemple de l'Aluminium granulaire (GrAl). Pour cela, on utilise la partie du masque présentée en figure 1.14.

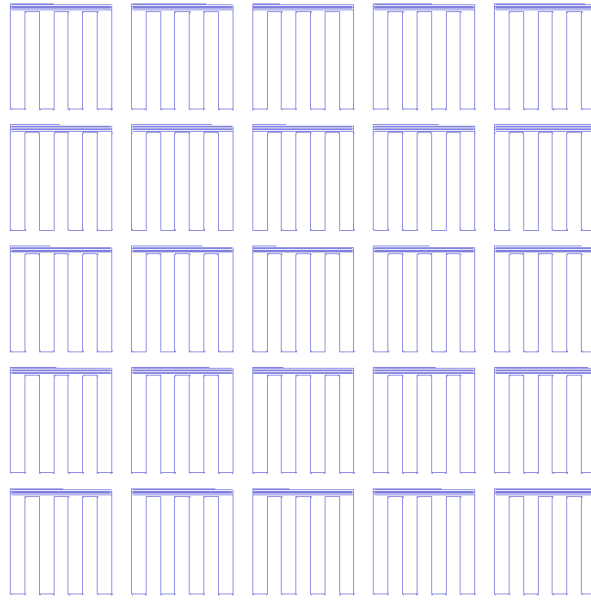


FIGURE 1.14 – Partie du masque utilisée pour fabriquer les résonateurs. La couleur blanche représente les trous ; la couleur bleue représente les motifs.

Une couche de résine est alors déposée sur la plaquette. Avant de procéder à l'insolation, on aligne la plaquette avec le masque puisqu'on veut que l'inductance et la capacité se retrouvent au niveau des emplacements des résonateurs fabriqués lors de la première étape. Cette fois-ci, une résine négative est utilisée ; seule la partie non exposée aux rayons UV va être dissoute par le développeur.

Donc après passage dans ce dernier, il n'y a plus de résine au niveau des motifs seulement, soit au niveau de l'inductance et de la capacité. Le dépôt d'Aluminium granulaire peut alors être effectué.

Enfin, le lift-off est réalisé pour enlever le GrAl aux endroits non voulus, c'est-à-dire ceux où il y a de la résine en dessous. On conserve seulement de l'Aluminium granulaire au niveau de l'inductance et de la capacité. Le réseau de résonateurs est ainsi fabriqué.

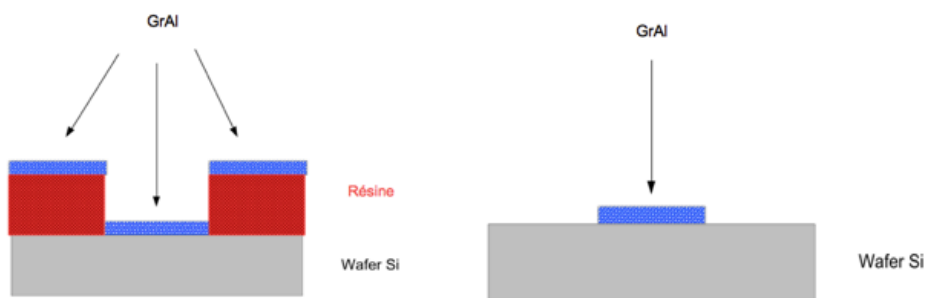
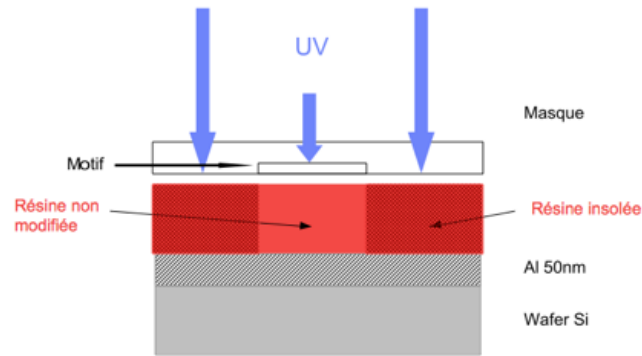


FIGURE 1.15 – En haut : insolation de la résine par rayonnement UV. En bas à gauche : vue en coupe de la plaquette au niveau d’un résonateur après lithographie et dépôt de GrAl. En bas à droite : finalisation après lift-off.

1.3.3 Montage de la matrice

Il faut désormais monter la matrice dans un porte-échantillon et connecter électriquement les deux parties. Pour cela, on micro-soude par ultrasons des fils d’Aluminium entre la partie en laiton du porte-matrice et la ligne de lecture en Aluminium du réseau de résonateurs. On utilise des fils d’Aluminium car on veut un matériau supraconducteur à 100 mK environ afin de s’affranchir des pertes par effet Joule lorsqu’on va faire circuler un courant dans la ligne.

La matrice est maintenant électriquement connectée et prête à être montée dans le réfrigérateur à dilution pour être mesurée.

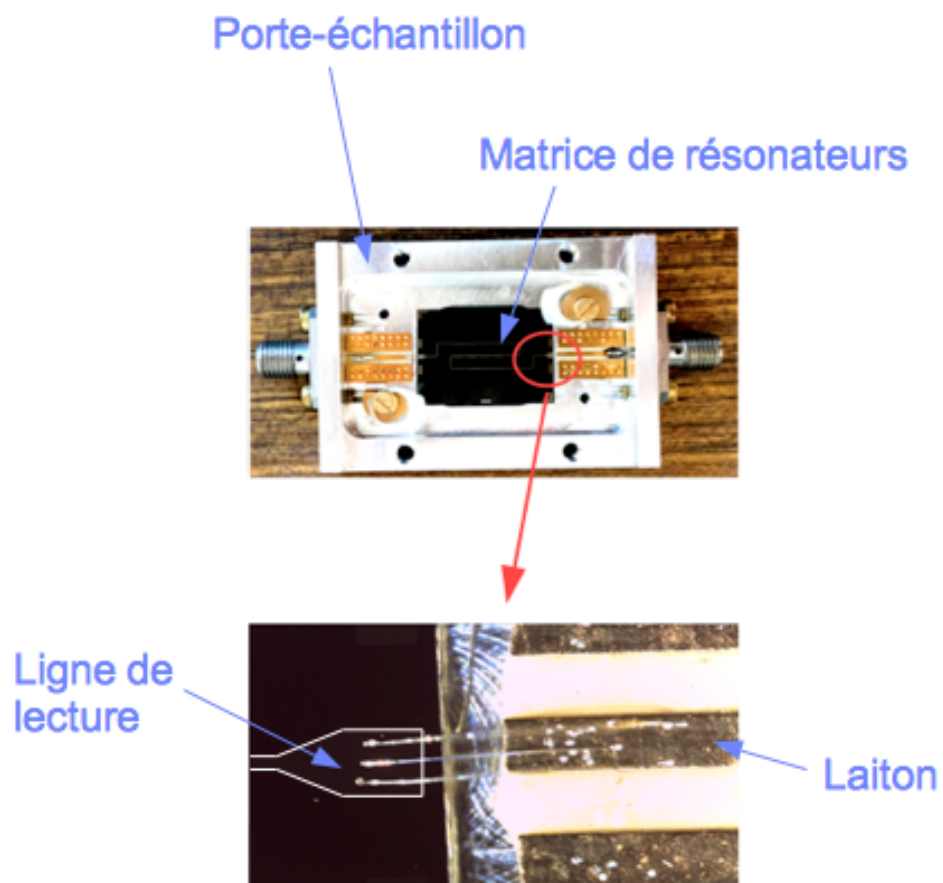


FIGURE 1.16 – En haut : photo d’une matrice de résonateurs montée dans le porte-échantillon. En bas : zoom sur la connexion électrique entre la ligne de lecture et la partie conductrice du porte-échantillon, composée de laiton. Le contour de la ligne de la lecture est représenté en blanc pour des raisons de visibilité.

Chapitre 2

Instrumentation et techniques de mesures

2.1 Mesures de résistivité

Objectif Les mesures de résistivité permettent de caractériser les matériaux supraconducteurs dont sont composés les résonateurs. L'étude de l'évolution en température de la résistance d'un supraconducteur permet ainsi d'en déterminer sa température critique T_c . Par ailleurs, les mesures de $R(T)$ sous champ magnétique renseignent sur la valeur du champ critique H_c (si le supraconducteur est de type I) ou H_{c2} (si le supraconducteur est de type II). Ces grandeurs supraconductrices, entre autres, sont au cœur de l'étude sur l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium.

Instrumentation Ces mesures sont réalisées grâce à un Physical Property Measurement System (PPMS) de la compagnie Quantum Design. Le PPMS est composé d'une bobine supraconductrice permettant de créer un champ magnétique dont l'intensité peut aller jusqu'à 9 T. Le PPMS dispose d'une option permettant de faire circuler de l' ^3He , refroidissant l'échantillon jusqu'à 350 mK. La plage de températures accessibles est 350 mK-350 K.

Description Les mesures de résistivité sont faites en 4 fils. On donne en figure 2.1 la photo d'un échantillon connecté à son porte-échantillon, prêt à être mesuré au PPMS. On a réalisé un zoom sur l'échantillon pour montrer sa forme. Il est composé de méandres de largeur $10\ \mu\text{m}$. L'intérêt de ce design par rapport à un simple rectangle est d'augmenter la résistance de l'échantillon et donc de gagner en précision de mesure.

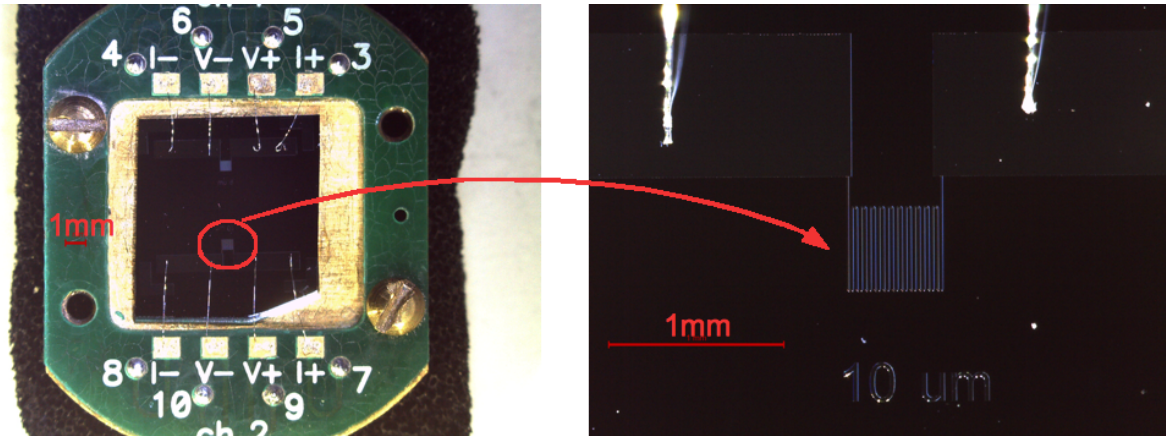


FIGURE 2.1 – Photo d'un échantillon connecté à son porte-échantillon en 4 fils et zoom sur le design de l'échantillon, formé de méandres dont la largeur vaut ici $10\ \mu\text{m}$. Ce design permet par rapport à un simple rectangle d'augmenter la résistance de l'échantillon, améliorant ainsi la précision de mesure.

On donne en figure 2.2 un exemple de mesure de résistance en fonction de la température autour de la transition métal/supraconducteur d'un échantillon d'aluminium. L'objectif est d'extraire la température de transition supraconductrice T_c . On discute trois critères d'évaluation de la température critique. En a), on considère le seuil de la transition et l'incertitude est donnée par l'écart en température entre le seuil et le point précédent. En b), on considère le milieu de la transition et l'incertitude est donnée par l'écart en température entre le milieu et le seuil de la transition. En c), on considère le sommet de la transition et l'incertitude est donnée par l'écart en température entre le pic et le point suivant. Toutes les incertitudes dépendent de la résolution de la mesure faite au PPMS et de l'échantillon.

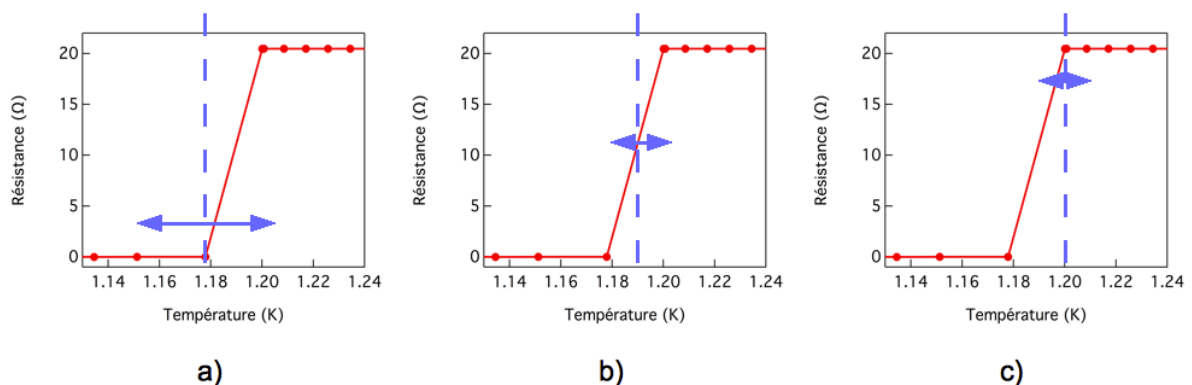


FIGURE 2.2 – Exemple de détermination de la température critique par différents critères. a) en considérant le seuil de la transition. b) en considérant le milieu de la transition. c) en considérant le pic de la transition.

On donne en figure 2.3 un exemple de mesures de détermination du champ critique d'une couche mince d'aluminium. On procède à deux types de mesures :

a) à champ constant, on mesure en fonction de la température la résistance de l'échantillon puis on détermine la température de transition supraconductrice.

b) à température constante, on mesure en fonction du champ magnétique la résistance de l'échantillon puis on détermine à quelle valeur de champ a lieu la transition supraconductrice.

Pour déterminer les valeurs de température critique et de champ critique, on considère le milieu des transitions car ces derniers sont très raides : 20 mK environ pour les mesures a) et 20 Oe environ pour les mesures b) (voir figure 2.3). La barre d'erreur sur ces valeurs est donnée par la largeur des transitions.

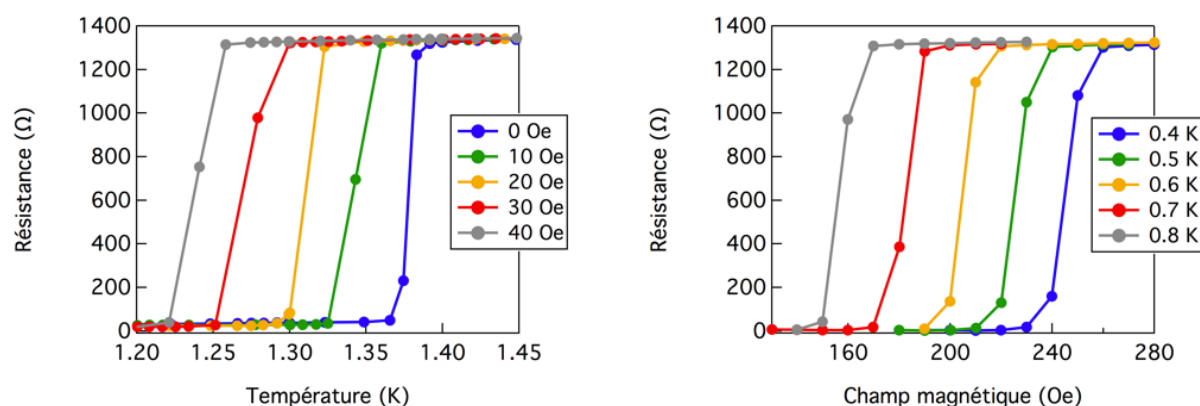


FIGURE 2.3 – Exemples des deux types de mesures qui permettent la détermination du champ critique en fonction de la température. Panel de gauche : évolution en température de la résistance de l'échantillon, à champ magnétique constant. Panel de droite : évolution en champ magnétique de la résistance de l'échantillon, à température constante.

On peut tracer pour illustration le champ critique ainsi déterminé en fonction de la température (figure 2.4).

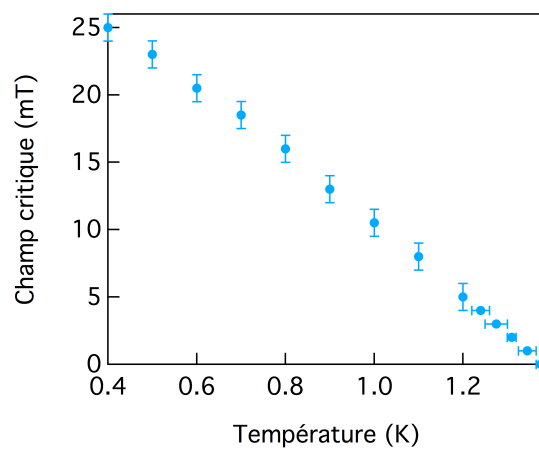


FIGURE 2.4 – *Exemple d'évolution en température du champ critique dans la couche mince d'aluminium*

2.2 Réfrigérateur à dilution optique

Comme présenté dans le chapitre sur les détecteurs à inductance cinétique, pour mesurer les propriétés des résonateurs supraconducteurs, il faut travailler à une température maximale de $T_c/3$, sinon la dissipation est tellement importante que les résonances disparaissent dans le bruit de la ligne de transmission. T_c est la température critique du supraconducteur qui compose les résonateurs. Pour l'aluminium pur par exemple, la température critique est de l'ordre de 1.2 K [35]. Pour refroidir les résonateurs, on les monte dans un réfrigérateur à dilution $^3H_e / ^4H_e$ pouvant atteindre la température de 60 mK. Le lecteur peut se référer à la thèse de F. Martin [8] s'il souhaite avoir des informations sur le fonctionnement d'une telle instrumentation.

Ce système présente plusieurs intérêts, notamment de fournir un refroidissement continu et de fonctionner sans création de champ électromagnétique. Un champ magnétique pourrait affaiblir voire détruire la supraconductivité des détecteurs à inductance cinétique. Le cryostat que l'on utilise est un réfrigérateur à dilution optique. Il est composé de différents écrans dotés de filtres passe-bandes dans le domaine millimétrique. On veut éviter au maximum un apport de chaleur extérieur lié au rayonnement.

2.3 Mesures des résonances

Dispositif expérimental La mesure des résonances se fait à l'aide d'un Vectorial Network Analyzer (VNA). Le courant oscillant à la fréquence f est délivré par l'entrée du VNA (port 1) et circule dans la ligne de lecture de l'échantillon, qui se trouve dans le cryostat refroidi à 60 mK. On récupère le courant en sortie du VNA (port 2). On mesure la transmission $|S_{21}|$ qui est le module de la fonction de transfert du circuit, rapport des tensions de sortie (port 2) et d'entrée (port 1) du circuit. A la sortie de l'échantillon, le signal est amplifié par un amplificateur à froid, situé dans le cryostat, dont les performances sont optimales dans la gamme 1-3 GHz. Dans cette fenêtre de fréquences, il assure un gain de +30dBm et permet une meilleure visibilité des résonances. C'est pour cette raison que, lors des simulations électromagnétiques Sonnet, on ajuste la longueur des détecteurs à inductance cinétique pour qu'ils aient une fréquence de résonance comprise entre 1 et 3 GHz. La plage de fréquences que le VNA est capable de délivrer est 9 kHz-9 GHz. Le phénomène électrique à l'origine des résonances des détecteurs à inductance cinétique est expliqué en détails dans le chapitre sur la présentation des résonateurs.

On mesure l'évolution des résonances lorsque les résonateurs sont soumis à un changement de température ou à une illumination de photons provenant d'une source lumineuse. La source prend la forme de deux instruments optiques aux caractéristiques différentes et complémentaires, que l'on présentera dans la suite : l'interféromètre de Martin-Puplett et l'antenne radio-fréquences.

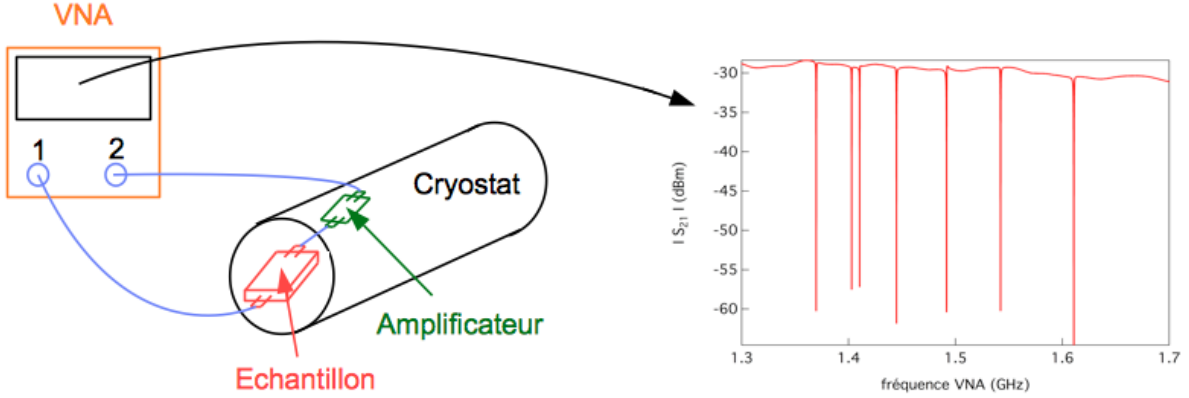


FIGURE 2.5 – A gauche : description schématique du dispositif expérimental. A droite : exemple de mesure des résonances avec l’observation de 7 résonances.

2.4 Mesures optiques

2.4.1 L’interféromètre de Martin-Puplett

Principe de fonctionnement

L’interféromètre de Martin-Puplett est un spectromètre à transformée de Fourier. Il nous permet de mesurer la variation de fréquence de résonance des résonateurs en fonction de l’énergie des photons illuminant les résonateurs. La description du principe de fonctionnement de l’interféromètre de Martin-Puplett est reprise du Supplementary Material de l’article *Circuit Quantum Electrodynamics of Granular Aluminum Resonators*, arXiv :1802.01859 (2018) de N. Maleeva et al [9], dont je suis co-auteur. L’interféromètre de Martin-Puplett est schématisé en figure 2.6. Le signal optique provient de deux sources différentes : l’une est à 300 K et l’autre à la température de l’azote liquide : 77 K. Ces sources sont considérées comme des corps noirs à leur température respective. Le signal optique provenant de ces corps noirs est modulé en amplitude grâce à un polariseur tournant P1 dans le but de réaliser une détection synchrone. Le polariseur P1 tourne sur lui-même à une fréquence w_p , ce qui engendre en sortie de P1 un faisceau possédant deux polarisations orthogonales. Le faisceau passe dans une grille séparatrice, constituée d’un assemblage de fils d’or parallèles, à 45 degrés par rapport à l’axe optique. La composante du faisceau parallèle aux fils de la séparatrice est transmise vers un miroir en coin fixe. La composante du faisceau perpendiculaire aux fils de la séparatrice est réfléchiée vers un autre miroir en coin, mobile quant à lui. Les miroirs en coin réfléchissent les faisceaux lumineux en renversant leur polarisation de 90 degrés. Le miroir mobile peut se translater d’une distance dx , créant une différence de marche optique entre les deux faisceaux $\delta = 2dx$, occasionnant une différence de phase $d\phi = 2\pi\frac{\delta}{\lambda}$ donnant lieu à des interférences. Les deux polarisations ont fait une rotation de 90 degrés par rapport au moment où elles

ont rencontré la séparatrice pour la première fois. Lorsque ces deux faisceaux repassent par la séparatrice, celui qui a été transmis la première fois est maintenant réfléchi et celui qui a été réfléchi est maintenant transmis. Les deux faisceaux rencontrent alors un polariseur P2 placé devant le cryostat. Seule la polarisation orthogonale est transmise au cryostat, en passant par une lentille à 300 K.

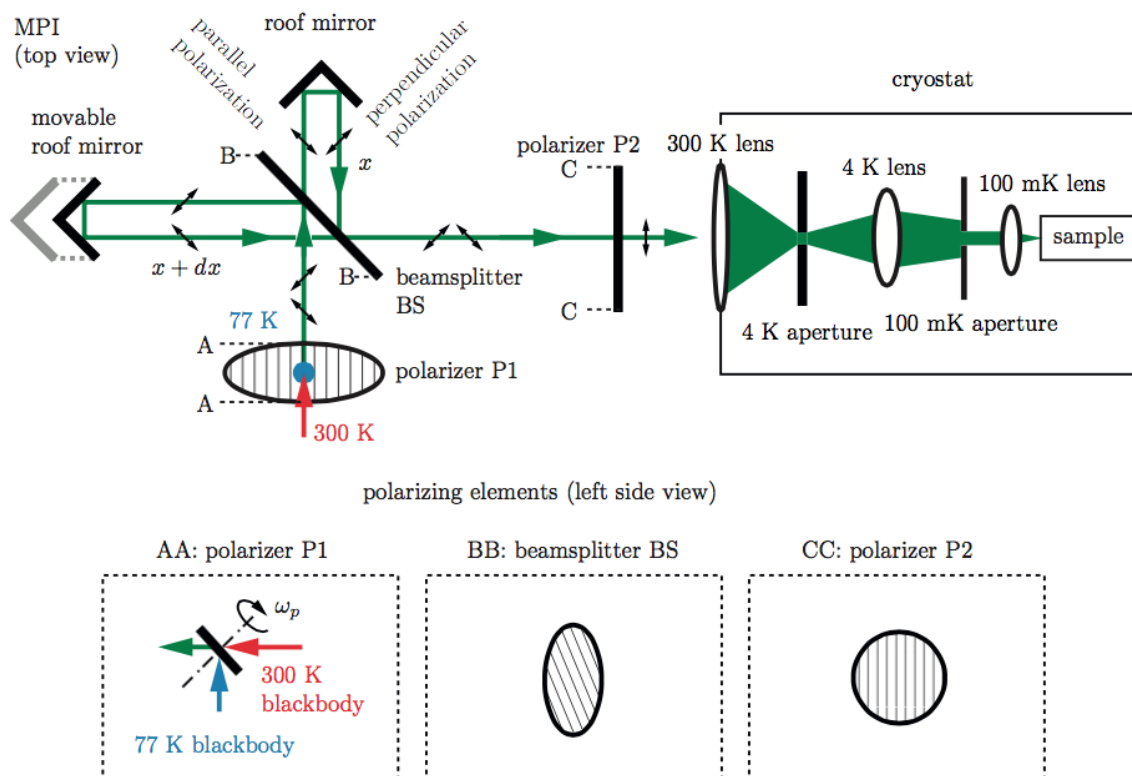


FIGURE 2.6 – Schéma de l'interféromètre de Martin-Puplett, extrait de l'article [9].

L'intérêt de l'interféromètre de Martin-Puplett par rapport à un spectromètre à transformée de Fourier de type vertex de la compagnie Bruker par exemple réside dans le fait qu'il peut couvrir tout le domaine millimétrique et sub-millimétrique, grâce à la nature de sa grille séparatrice [10]. L'or est le seul matériau qui assure 50% de réflexion et 50% de transmission dans le domaine millimétrique sans aucune absorption.

Interférogramme et spectre

L'intensité du faisceau arrivant sur les résonateurs pour une longueur d'onde vaut :

$$I(\delta) \propto I_0(\lambda)(1 + \cos(2\pi \frac{\delta}{\lambda}))$$

Lorsqu'on intègre sur toutes les longueurs d'onde, on obtient un exemple d'interférogramme présenté en figure 2.7. Le maximum de l'interférogramme se situe à l'origine, soit pour une différence de marche optique nulle, car dans cette configuration les différentes longueurs d'onde interfèrent de manière constructive exclusivement. Pour une différence de marche non nulle, il y a des interférences constructives et destructives. Après calcul de la transformée de Fourier de l'interférogramme, on obtient le spectre présenté en figure 2.7. On a tracé la variation de la fréquence de résonance des résonateurs en fonction de la fréquence des photons incidents. Comme expliqué lors du chapitre sur la présentation des résonateurs supraconducteurs, dans le cas standard ces derniers absorbent les photons d'énergie supérieure à 2Δ , modifiant la densité de quasi-particules dans le supraconducteur et la fréquence de résonance. Les spectres Martin-Puplett permettent ainsi une mesure directe du gap supraconducteur.

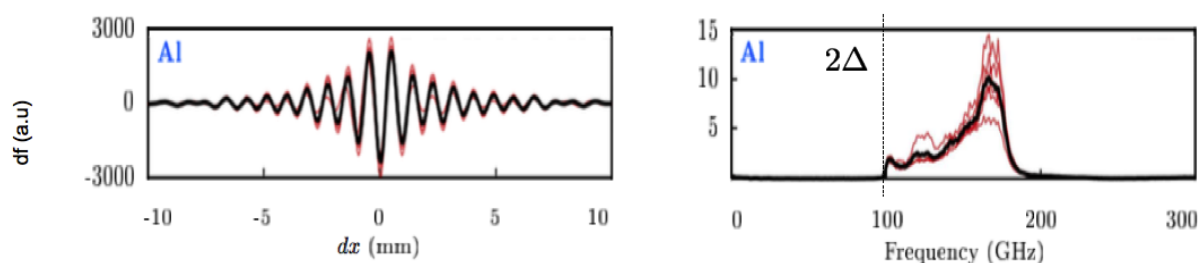


FIGURE 2.7 – *A gauche : exemple d'interférogramme sur un échantillon d'aluminium. On a tracé la variation de fréquence de résonance des résonateurs en fonction du déplacement du miroir mobile. A droite : spectre obtenu par la transformée de Fourier de l'interférogramme de gauche. La transition donne la valeur de deux fois le gap supraconducteur 2Δ . Les courbes rouges sont les données récoltées sur plusieurs résonateurs et la courbe noire représente la moyenne.*

Caractéristiques de l'instrument

L'interféromètre de Martin-Puplett est un instrument optique large bande. La fréquence maximale de photons arrivant sur les résonateurs est liée au pas p de déplacement du miroir mobile suivant :

$$f_{max} = \frac{c}{2p}$$

avec c la vitesse de la lumière dans le vide.

Si on considère un pas de $10 \mu m$, on obtient $f_{max} = 15 THz$. L'interféromètre de Martin-Puplett est ainsi capable de couvrir une gamme allant de 0 jusqu'à plusieurs THz. En pratique, on place devant les résonateurs un filtre passe-bas qui coupe les fréquences des photons ν très supérieures au double du gap supraconducteur 2Δ . Comme on va le présenter dans les chapitres suivants, on s'intéresse à déterminer la valeur de Δ dans nos échantillons ainsi qu'à observer des excitations sous le gap, lorsqu'elles sont visibles sur les spectres Martin-Puplett.

Par ailleurs, la résolution en fréquence de l'appareil f_{res} est reliée à la distance totale que peut parcourir le miroir mobile en un aller L suivant :

$$f_{res} = \frac{c}{2L}$$

Avec $L = 110 mm$, qui est la distance maximale que peut parcourir le miroir mobile de notre instrument, on obtient $f_{res} = 1.3 GHz$. La résolution en fréquence des spectres Martin-Puplett est donc de l'ordre du GHz.

Absorption de photons sous le gap

On montre dans la troisième partie de ce manuscrit que certains résonateurs, fabriqués dans un matériau supraconducteur adapté, peuvent absorber des photons ayant une énergie très inférieure à deux fois le gap supraconducteur, ce qui constitue un phénomène non standard, comme on l'expliquera dans la suite. On montre à titre d'exemple un spectre Martin-Puplett en figure 2.8 sur lequel on observe des figures d'absorption sous le gap supraconducteur, dans des résonateurs d'oxyde d'indium.

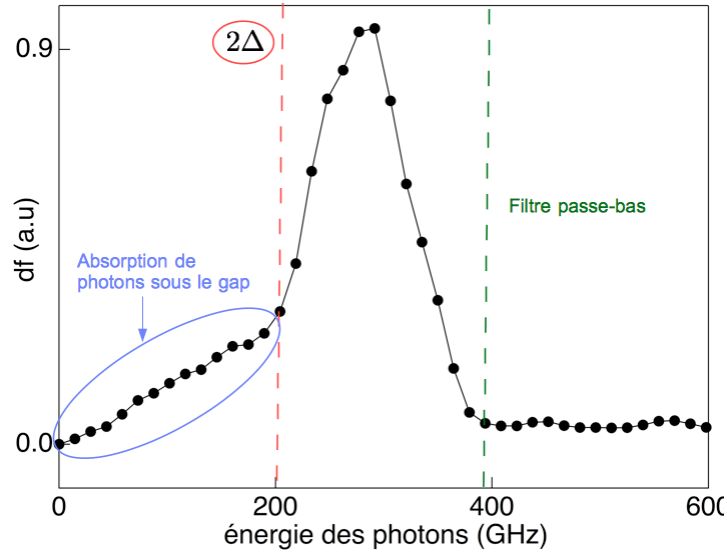


FIGURE 2.8 – Exemple de spectre illustrant l’absorption par les détecteurs à inductance cinétique de photons ayant une énergie inférieure à deux fois le gap. Un filtre passe-bas dans le cryostat empêche les photons d’énergie très supérieure à deux fois le gap d’arriver jusqu’aux résonateurs.

Pour sonder ces zones de basse énergie, on va utiliser une antenne radio-fréquences, grâce à laquelle on peut sélectionner la fréquence ainsi que la puissance des photons délivrés.

2.4.2 L’antenne radio-fréquences

Dispositif La figure 2.9 décrit le schéma du dispositif expérimental [11]. Une antenne dite papillon placée en face du cryostat illumine les détecteurs à inductance cinétique refroidis à 60 mK. L’antenne est composée de deux triangles métalliques identiques qui émettent la lumière essentiellement perpendiculairement au plan de ces triangles. La taille de l’antenne fixe la plage de fréquences que cette dernière est capable de délivrer. Une source radio-fréquences connectée à l’antenne permet de sélectionner à la fois la fréquence et la puissance des photons émis par l’antenne.

On présentera en détails le principe de la mesure lors du chapitre sur l’étude des excitations sous le gap supraconducteur dans l’oxyde d’indium.

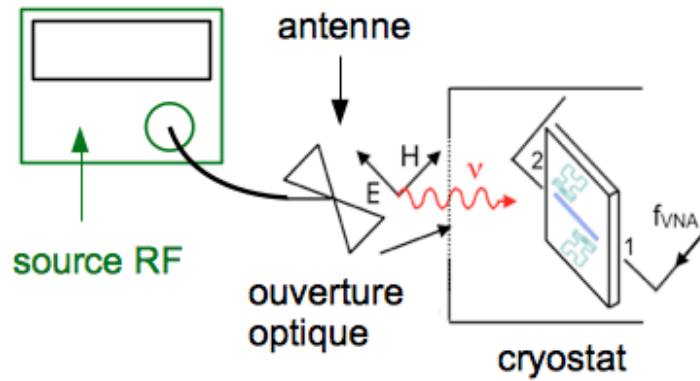


FIGURE 2.9 – Schéma du dispositif expérimental : illumination des détecteurs à inductance cinétique par une antenne radio-fréquences.

2.4.3 Résumé des caractéristiques des instruments optiques

L'interféromètre de Martin-Puplett et l'antenne radio-fréquences sont deux instruments optiques essentiels à l'étude de nos résonateurs supraconducteurs car ils possèdent des caractéristiques complémentaires, que l'on résume dans le tableau suivant :

instrument	gamme accessible	résolution fréquentielle
Martin-Puplett	plusieurs THz	1 GHz
antenne	dizaines de GHz	1 MHz

Il convient de noter que la combinaison entre réfrigérateur à dilution et ces appareils optiques ne constitue pas une instrumentation facile à mettre en place. On peut pointer le caractère original de ces techniques de mesures. Par ailleurs, la résolution fréquentielle de l'interféromètre de Martin-Puplett, de l'ordre de 1 GHz, est élevée par rapport à la plupart des instruments de spectroscopie optique fonctionnant dans le domaine du THz, qui vaut typiquement plusieurs GHz [12, 13].

Deuxième partie

Influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium

Chapitre 3

Contexte de l'étude

Présentation On s'intéresse dans cette partie aux supraconducteurs qui sont des métaux simples dans l'état normal. La plupart de ces matériaux supraconducteurs présentent une diminution de leur température critique T_c à mesure que l'épaisseur d du film se réduit. On parlera de comportement *standard*. Ce phénomène a été constaté dans le niobium, le plomb et le bismuth, notamment [14, 15]. Certains matériaux supraconducteurs tels l'aluminium, l'étain, l'indium ou encore le zinc présentent au contraire une augmentation de leur température critique à mesure que l'épaisseur du film se réduit [16, 17]. On parlera de comportement *non standard*. Cette partie détaille des explications possibles à la variation de température critique liée à l'épaisseur, sachant qu'à l'heure actuelle il n'existe pas de consensus à ce propos.

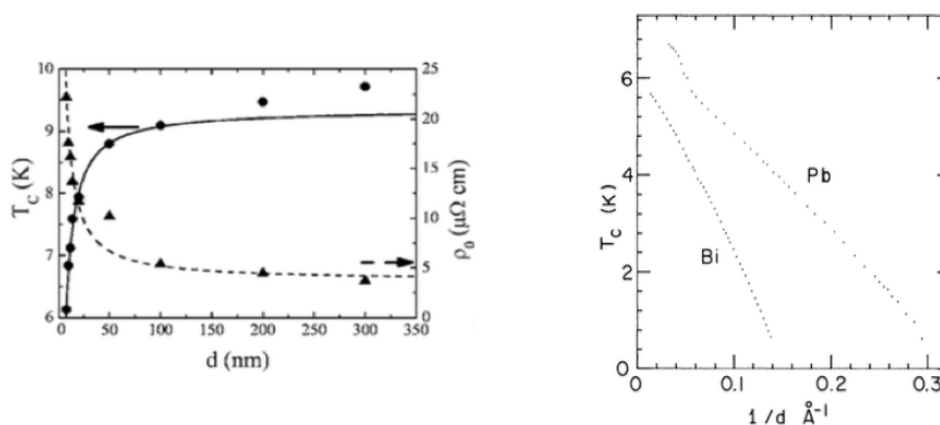


FIGURE 3.1 – D'après la référence [14], illustration du comportement *standard*. A gauche : évolution en fonction de l'épaisseur d du film de niobium de la température critique T_c (cercles) et de la résistivité résiduelle ρ_0 (triangles). A droite : évolution en fonction de l'inverse de l'épaisseur de la température critique dans des films de bismuth amorphe et de plomb normal.

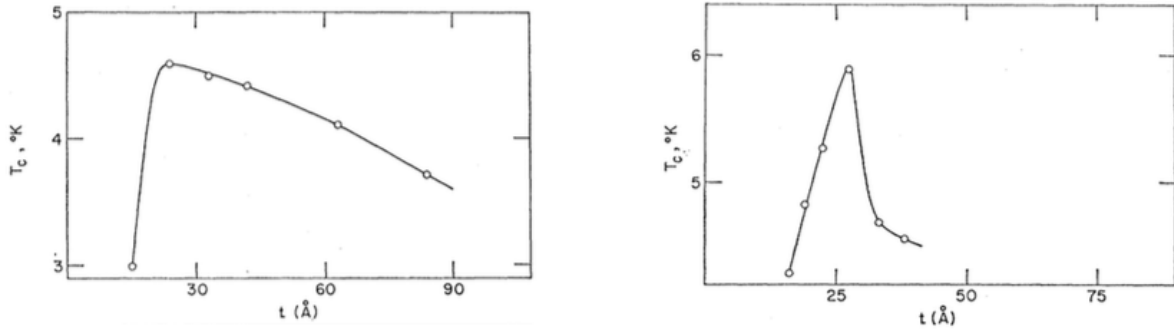


FIGURE 3.2 – D’après la référence [17], illustration du comportement non standard. Évolution en fonction de l’épaisseur de la température critique dans l’aluminium (à gauche) et dans l’étain (à droite). T_c augmente d’abord à mesure que l’épaisseur diminue, avant que le film devienne tellement mince que la supraconductivité s’affaiblisse.

3.1 Analyse de la formule de McMillan

3.1.1 Préambule : théorie BCS

Dans le cadre de la théorie BCS (Bardeen, Cooper, Schrieffer), les électrons supraconducteurs forment des paires, appelées paires de Cooper, par l’intermédiaire des phonons du cristal [6]. La figure 3.3 donne une représentation imagée de la formation d’une paire de Cooper dans ce modèle. Un électron fait osciller un ion du réseau autour de sa position d’équilibre, créant un phonon virtuel. Ce phonon attire un autre électron, ce qui crée une paire d’électrons. Dans cette théorie, les électrons d’une paire ont des spins et des impulsions opposées. La taille caractéristique d’une paire est la longueur de cohérence ξ . Les matériaux présentés ici entrent dans le cadre de la théorie BCS : on parle de supraconducteurs conventionnels.

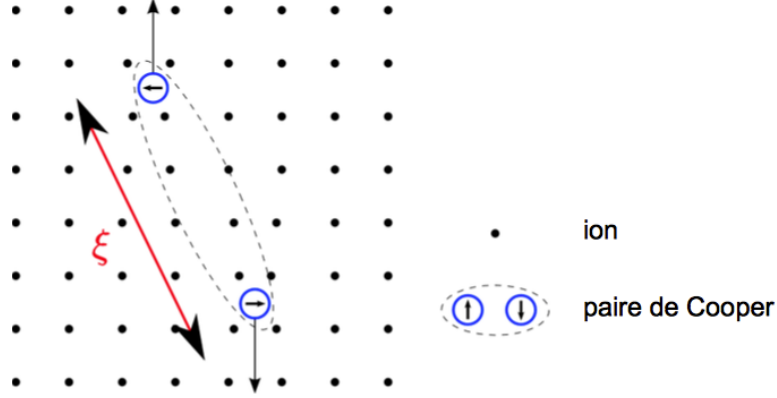


FIGURE 3.3 – D’après la référence [6], représentation schématique de la formation d’une paire de Cooper dans le cadre de la théorie BCS.

3.1.2 Présentation de la formule de McMillan

En 1969, McMillan a établi une formule exprimant la température critique d’un supraconducteur régi par la théorie de Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS) [18] :

$$T_c = \frac{\hbar\omega_{log}}{1.2k_B} \exp\left[-\frac{1.04(1 + \lambda)}{\lambda - \mu^*(1 + 0.62\lambda)}\right]$$

Le modèle de McMillan indique que la température critique dépend de trois paramètres : ω_{log} , λ et μ^* . ω_{log} joue le rôle d’une moyenne de la fréquence des phonons ; elle est définie suivant [18] :

$$\omega_{log} \propto \frac{2}{\lambda} \int_0^\infty \ln(\omega) \frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} d\omega$$

λ est la constante de couplage électron-phonon, qui s’exprime de la façon suivante :

$$\lambda = 2 \int_0^\infty \frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} d\omega$$

avec ω la fréquence des phonons, $F(\omega)$ la densité d’états des phonons et $\alpha^2(\omega)$ un terme rendant compte de l’efficacité du couplage électron-phonon.

μ^* est le pseudo-potentiel adimensionné lié à la répulsion coulombienne entre les électrons. On va détailler les effets de chaque paramètre sur la température critique. La

complexité de la formule de McMillan réside dans le fait qu'il y a compétition entre les différentes termes pour maximiser la température critique, comme on va le montrer par la suite.

3.1.3 Effets du pseudo-potentiel de Coulomb μ^*

Le pseudo-potentiel de Coulomb μ^* est le potentiel de Coulomb entre deux électrons adimensionné μ écranté par les phonons et les autres électrons. Il s'exprime de la façon suivante [18] :

$$\mu^* = \frac{\mu}{1 + \mu \ln\left(\frac{E_F}{\hbar\omega_D}\right)}$$

avec $\mu = N(E_F)U$, où $N(E_F)$ est la densité d'états électroniques au niveau de Fermi et U le potentiel de répulsion coulombienne. E_F est l'énergie de Fermi et ω_D la fréquence de Debye des phonons.

Le terme $\frac{1}{1 + \mu \ln\left(\frac{E_F}{\hbar\omega_D}\right)}$ est dû à l'écrantage de la répulsion coulombienne par les électrons libres [18].

La lecture du modèle de McMillan indique qu'une diminution du pseudo-potentiel de Coulomb conduit à une augmentation de la température critique, apportant une explication possible au comportement non standard observé dans l'aluminium par exemple. Physiquement, on comprend que plus la répulsion coulombienne entre électrons est faible devant l'attraction électron-phonon, plus la température critique est élevée. Naturellement, à l'inverse, une augmentation de μ^* conduit à une diminution de T_c . On va analyser les effets impliquant une diminution de μ^* et donc une augmentation de T_c . Naturellement, les effets inverses conduisent à une augmentation de μ^* et donc une diminution de T_c . Pour déterminer l'influence de μ^* sur la température critique, il convient de distinguer deux régimes.

a) Lorsque $\mu \ln\left(\frac{E_F}{\hbar\omega_D}\right) \ll 1$, le pseudo-potentiel de Coulomb se réduit à $\mu^* \simeq \mu$. On peut jouer sur le potentiel de Coulomb adimensionné μ via la densité d'états électronique. La diminution de ce paramètre conduit à la diminution de μ , de μ^* et donc à l'augmentation de T_c .

b) Lorsque $\mu \ln\left(\frac{E_F}{\hbar\omega_D}\right) \gg 1$, le pseudo-potentiel de Coulomb se réduit à $\mu^* \simeq \frac{1}{\ln\left(\frac{E_F}{\hbar\omega_D}\right)}$. Typiquement, $E_F \gg \hbar\omega_D$. Pour l'aluminium par exemple, $E_F \simeq 7.7 \text{ eV}$ [19] et $\hbar\omega_D \simeq 37 \text{ meV}$ [18]. On mesure ici l'effet de l'écrantage sur le potentiel de répulsion coulombienne, réduisant drastiquement celui-ci et autorisant la formation de paires de Cooper via les phonons avec $\lambda > \mu^*$. L'augmentation de l'énergie de Fermi ainsi que la diminution de la fréquence de Debye des phonons conduit à l'augmentation de la température

critique. Il semblerait que ces deux derniers paramètres jouent un rôle plus prépondérant dans l'évolution de μ^* que le paramètre μ , puisque typiquement μ^* est globalement indépendant de μ dans le cas où $E_F \gg \hbar\omega_D$.

On résume dans les tableaux suivants l'effet joué par chaque paramètre, en considérant les autres paramètres constants, sur μ^* et donc sur T_c :

a) μ faible

$N(E_F)$	U	E_F	ω_D	μ^*	T_c
↘	-	-	-	↘	↗
-	↘	-	-	↘	↗

b) μ fort

$N(E_F)$	U	E_F	ω_D	μ^*	T_c
-	-	↗	-	↘	↗
-	-	-	↘	↘	↗

On peut constater que, comme les termes E_F et ω_D sont dans un logarithme, μ^* varie potentiellement très peu. L'effet du pseudo-potentiel de Coulomb sur l'augmentation de la température critique dans les couches minces d'aluminium est ainsi rarement mis en avant pour expliquer ce phénomène. En revanche, le rôle joué par la constante de couplage électron-phonon λ est souvent cité en tant que mécanisme prépondérant [20, 21, 22, 23].

3.1.4 Effets de la constante de couplage électron-phonon λ

On rappelle que la constante de couplage électron-phonon λ s'exprime de la façon suivante [18] :

$$\lambda = 2 \int_0^\infty \frac{\alpha^2(\omega)F(\omega)}{\omega} d\omega$$

avec ω la fréquence des phonons, $F(\omega)$ la densité d'états des phonons, $\alpha^2(\omega)$ un terme rendant compte de l'interaction moyenne électron-phonon.

L'analyse de la formule de McMillan indique qu'une augmentation de la constante de couplage électron-phonon conduit à une augmentation de la température critique.

Physiquement, on comprend que plus l'attraction électron-phonon est grande devant la répulsion coulombienne entre électrons, plus la température critique est élevée. Plusieurs effets peuvent être à l'origine d'une augmentation de la constante λ . Pour étudier plus en détails l'influence de λ sur la température critique, intéressons-nous d'abord au cas particulier d'un supraconducteur conventionnel présentant un couplage électron-phonon faible, c'est-à-dire avec $\lambda \ll 1$. A priori, c'est le cas de l'aluminium [24].

a) Dans le cas BCS couplage faible, le couplage électron-phonon s'exprime de la manière suivante [18] :

$$\lambda = N(E_F)V$$

où V est le potentiel d'interaction électron-phonon. Sous l'effet d'un changement de dimensionnalité, de trois dimensions à deux dimensions, ou sous l'effet du désordre, la densité d'états au niveau de Fermi $N(E_F)$ peut être affectée, modifiant le couplage électron-phonon λ . En particulier, un renforcement de $N(E_F)$ conduit à l'augmentation de λ , et donc de T_c . **Cette explication au renforcement de la température critique dans des couches d'aluminium granulaire est proposée notamment par Parmenter et Bachar [25, 26].** L'aluminium granulaire est composé de grains d'aluminium pur supraconducteur de quelques nanomètres de diamètre, séparés par des barrières isolantes en oxyde d'aluminium $AlOx$ [25].

b) Intéressons-nous à l'influence des phonons. Pour que la température critique augmente, il faut que le terme $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ augmente, ou que l'énergie d'un phonon ω diminue. Lorsqu'un phonon voit son énergie baisser, on parle de phonon mou [22]. **L'amollissement d'un phonon est souvent citée comme mécanisme préférentiel pour expliquer l'origine de l'augmentation de la température critique dans l'aluminium en couches minces [20, 17, 22, 23].**

On résume dans les tableaux suivants l'effet joué par chaque paramètre, en considérant les autres paramètres constants, sur λ et donc sur T_c :

$N(E_F)$	V	$\alpha^2(\omega)$	$F(\omega)$	ω	λ	T_c
↗	-	-	-	-	↗	↗
-	↗	-	-	-	↗	↗
-	-	↗	-	-	↗	↗
-	-	-	↗	-	↗	↗
-	-	-	-	↘	↗	↗

3.1.5 Effets de la moyenne de la fréquence des phonons ω_{log}

Dans la formule de McMillan, la température critique est proportionnelle au terme ω_{log} . Considérons le cas où un phonon voit son énergie augmenter. On parle alors de durcissement de ce phonon. Cela a pour effet d'augmenter la moyenne des phonons ω_{log} . Comme ce terme est en préfacteur dans la formule de McMillan, la température critique augmente également. Or, on a montré précédemment que l'augmentation de T_c pouvait s'expliquer par l'amollissement d'un phonon puisque cela avait pour effet d'augmenter λ . Prenons l'exemple d'une distribution de phonons discrète avec deux phonons de fréquences $\omega_1 = 1$ et $\omega_2 = 1000$. Ici, les unités sont arbitraires. Dans un premier cas, on considère l'amollissement du phonon 1, si bien que $\omega_1 = 0.1$ et dans un deuxième cas, on considère le durcissement du phonon 2, si bien que $\omega_2 = 10000$. Calculons dans chaque cas la moyenne simple des phonons $\omega_{log} = (\omega_1 + \omega_2)/2$ ainsi que la constante de couplage $\lambda = \frac{1}{\omega_1} + \frac{1}{\omega_2}$, sachant qu'on fait l'hypothèse que $\alpha^2(\omega_{1,2})F(\omega_{1,2}) = 1$.

ω_1	ω_2	ω_{log}	λ
1	1000	500.5	1.001
0.1	1000	500.05	10.001
1	10000	5000.5	1.0001

Dans le premier cas, l'amollissement du phonon 1 conduit à une très légère diminution de ω_{log} et à une très forte augmentation de λ . L'influence de la constante de couplage sur la température critique est prédominante devant celle de la moyenne des phonons : T_c augmente. Dans le second cas, le durcissement du phonon 2 conduit à une très légère diminution de λ et à une très forte augmentation de ω_{log} . L'influence de la moyenne des phonons sur la température critique est prédominante devant celle de la constante de couplage : T_c augmente.

3.1.6 Influence des phonons sur la température critique dans l'aluminium : modèle de McMillan

Illustrons le phénomène d'amollissement des phonons, qui est le mécanisme le plus souvent avancé pour expliquer l'augmentation de T_c dans les couches minces d'aluminium. McMillan a déterminé théoriquement l'évolution de la température critique de l'aluminium en couche mince en fonction de la fréquence moyenne des phonons $\langle \omega \rangle$, reliée à ω_{log} suivant $\langle \omega \rangle \simeq 0.5 \omega_{log}$. Il a notamment considéré la densité d'états au niveau de Fermi $N(E_F)$ ainsi que la densité d'états des phonons $F(\omega)$ comme étant constantes. Il s'est intéressé aux phonons qui ont une fréquence moyenne inférieure à celle de l'aluminium bulk $\langle \omega \rangle_{bulk}$. Garland a apporté une modification au modèle de McMillan, supposant que le désordre engendré par la réduction de l'épaisseur des films d'aluminium

pouvait impacter la densité d'états des phonons $F(\omega)$. On présente en figure 3.4 l'évolution de la température critique en fonction du rapport $\langle \omega \rangle_{bulk} / \langle \omega \rangle$ selon les modèles de McMillan et Garland.

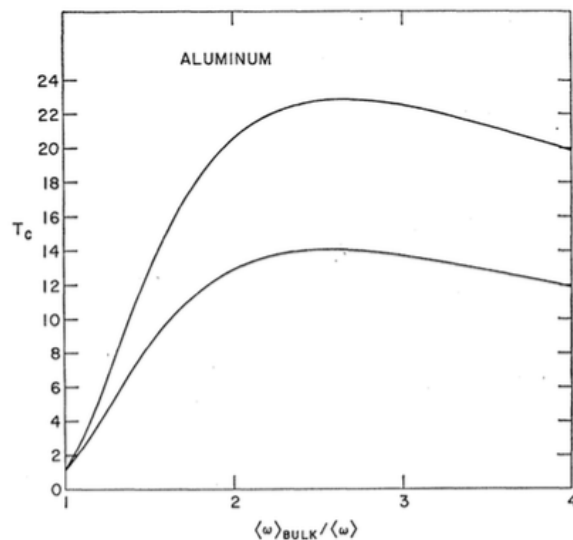


FIGURE 3.4 – D'après la référence [17], évolution de la température critique dans l'aluminium en fonction du rapport $\langle \omega \rangle_{bulk} / \langle \omega \rangle$, selon les modèles théoriques de McMillan (courbe supérieure) et Garland (courbe inférieure).

Ces deux modèles prédisent un maximum de température critique. Dans la partie de la courbe où T_c croît, le rôle joué par le gain de la constante de couplage électron-phonon λ sur l'augmentation de T_c serait dominant devant la diminution de l'énergie moyenne des phonons. Dans la partie de la courbe où T_c décroît, la diminution de l'énergie moyenne des phonons aurait un effet plus prépondérant sur l'augmentation de T_c que le renforcement du couplage électron-phonon. Le maximum de température critique prédit par McMillan est de 23 K, tandis que pour Garland $T_{c,max} = 15$ K. Ces deux valeurs sont plus élevées que le maximum de température critique observée expérimentalement dans l'aluminium : 6 K [17].

3.2 Effets de proximité

3.2.1 Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : cas général

La proximité d'un film mince avec le substrat ou encore une oxydation en surface du film peut modifier sur une certaine épaisseur la structure atomique de la couche.

On peut modéliser la couche d'épaisseur d par deux sous-couches d'épaisseurs d_1 et d_2 , respectivement (figure 3.5). On a $d = d_1 + d_2$. Typiquement, d_2 est une épaisseur fixe de l'ordre de 1 nm. Elle est déterminée de manière empirique dans du niobium par Gubin [14]. On note ξ_i la longueur de cohérence de la sous-couche i et ξ la longueur de cohérence de la couche d'épaisseur d . On a $\xi^{-1} = \xi_1^{-1} + \xi_2^{-1}$. On note l le libre parcours moyen dans le film d'épaisseur d . Enfin, on note λ_i , V_i et N_i respectivement la constante de couplage électron-phonon, potentiel de couplage et densité d'états électroniques au niveau de Fermi de la sous-couche i .

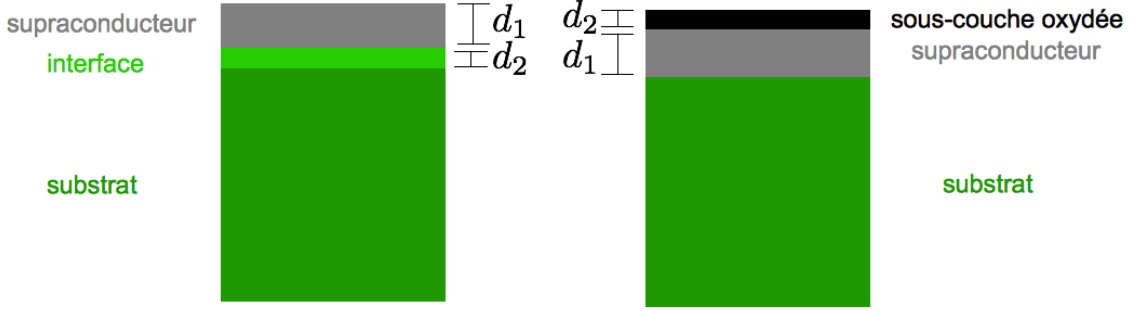


FIGURE 3.5 – Schéma d'une bi-couche supraconductrice sur son substrat. À gauche : la sous-couche 2 est à l'interface supraconducteur/substrat. À droite : la sous-couche 2 est en surface du film supraconducteur.

Dans le cas où $\xi_1 > d_1$, $\xi_2 > d_2$ et $l < \xi$ le couplage électron-phonon λ_1 est affecté par les effets de proximité et devient un couplage effectif λ_{eff} qui s'écrit [28] :

$$\lambda_{eff} = \frac{N_1^2 V_1 d_1 + N_2^2 V_2 d_2}{N_1 d_1 + N_2 d_2}$$

Sachant que $d = d_1 + d_2$, on peut réécrire le couplage effectif en fonction de d :

$$\lambda_{eff} = \frac{N_1^2 V_1 (d - d_2) + N_2^2 V_2 d_2}{N_1 (d - d_2) + N_2 d_2}$$

Analysons l'évolution du couplage effectif en fonction de d , sachant que d_2 est une épaisseur fixe. On a :

$$\frac{\partial \lambda_{eff}}{\partial d} = \frac{N_1 N_2 d_2}{(N_1 (d - d_2) + N_2 d_2)^2} (\lambda_1 - \lambda_2)$$

Le signe de $\frac{\partial \lambda_{eff}}{\partial d}$ renseigne sur l'évolution de λ_{eff} en fonction de d . Lorsque $\lambda_2 > \lambda_1$, c'est-à-dire lorsque $T_{c2} > T_{c1}$, la supraconductivité de la sous-couche 1 épaisse est

renforcée par l'interface avec la sous-couche 2 fine d'épaisseur d_2 . Cette dernière peut être de l'aluminium oxydé, avec les phonons modifiés, de telle sorte que $\lambda_2 > \lambda_1$. **Un tel effet de proximité a été proposé par Strongin [27] pour expliquer l'augmentation de température critique dans l'aluminium.**

3.2.2 Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : $N_1 \simeq N_2$

De manière générale, on suppose que les deux sous-couches satisfont à la condition $N_1 \simeq N_2 = N$ [28]. On peut réécrire λ_{eff} de la façon suivante :

$$\lambda_{eff} = \lambda_1 \left(1 - \frac{d^*}{d}\right)$$

avec $d^* = d_2 \left(1 - \frac{V_2}{V_1}\right)$.

Le signe de d^* renseigne sur l'évolution de λ_{eff} en fonction de d . Pour que le couplage effectif augmente à mesure que l'épaisseur du film diminue, il faut que $V_2 > V_1$ et donc dans le cas où $N_1 = N_2$, cela revient à $\lambda_2 > \lambda_1$. On retrouve naturellement la même condition que précédemment.

On résume l'influence des effets de proximité sur la température critique dans une couche mince :

a) Cas où $\lambda_1 < \lambda_2$, d_2 constant

d	d_1	λ_{eff}	T_c
↘	↘	↗	↗

b) Cas où $\lambda_1 > \lambda_2$, d_2 constant

d	d_1	λ_{eff}	T_c
↘	↘	↘	↘

3.2.3 Couplage électron-phonon effectif d'une bi-couche : $V_2 = 0$

A l'inverse, si $V_2 < V_1$, alors le couplage effectif diminue à mesure que l'épaisseur du film se réduit. Considérons le cas extrême où la sous-couche 2 n'est pas supraconductrice,

c'est-à-dire $V_2 = 0$, alors le couplage effectif devient :

$$\lambda_{eff} = \lambda_1 \left(1 - \frac{d_2}{d}\right)$$

Typiquement, d_2 est de l'ordre de 1 nm [14]. **Pour une couche d'épaisseur 10 nm, le couplage électron-phonon effectif est dans ce cas réduit de 10% par rapport au couplage de la sous-couche supraconductrice.**

3.3 Fluctuations de la phase du paramètre d'ordre

Le phénomène de fluctuations de la phase du paramètre d'ordre supraconducteur dans les systèmes bi-dimensionnels, c'est-à-dire avec $d < \xi$, permet d'expliquer exclusivement la diminution de température critique à mesure que l'épaisseur du film se réduit. Ainsi, elle ne peut pas constituer le mécanisme à l'origine de l'augmentation de T_c dans l'aluminium en couches minces. On ne discutera donc pas en détails de ce mécanisme ici. Pour plus de précisions, le lecteur peut se référer à la thèse de B. Sacépé [29].

Conclusion En conclusion, plusieurs mécanismes permettant d'expliquer l'augmentation de température critique dans les couches minces d'aluminium existent. Parmenter et Bachar [26, 25] avancent le renforcement de la densité d'états électroniques au niveau de Fermi dans les couches minces d'aluminium granulaire. L'explication la plus souvent citée est l'amollissement d'un phonon, conduisant à une augmentation de la constante de couplage électron-phonon et donc à l'augmentation de la température critique [22, 20, 17, 23]. Le durcissement d'un phonon peut également être à l'origine de ce phénomène ; cette théorie n'est pas habituellement mise en avant. Enfin, l'effet de proximité [27] constitue également une explication possible. Avec les données récoltées sur nos échantillons d'aluminium, on apportera dans la suite un éclairage sur cette question, en exposant quel mécanisme semble le plus s'accorder avec nos résultats et interprétations.

Chapitre 4

Analyse des mesures de résistivité

Présentation des échantillons d'aluminium Les échantillons d'aluminium étudiés ont été fabriqués par Alicia Gomez Gutierrez et son équipe au Centre d'Astrobiologie de Madrid, où j'ai fait un séjour d'une semaine. Les épaisseurs des échantillons vont de 15 nm à 194 nm (15 nm, 28 nm, 45 nm, 62 nm, 100 nm et 194 nm). L'épaisseur d est déterminée en approchant une pointe de la surface à sonder et en mesurant sa hauteur. En mesurant à différents endroits de l'échantillon, on a constaté une distribution d'épaisseurs, c'est pourquoi on considèrera dans la suite une incertitude δd autour de chaque épaisseur. On a déterminé que pour chaque échantillon, $\delta d = 2 \text{ nm}$. Par des techniques combinées de mesures de résistivité, de mesures au Vectorial Network Analyzer et de spectroscopie optique au Martin-Puplett, on détermine les grandeurs supraconductrices des différents échantillons d'aluminium. L'objectif est d'étudier l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium.

4.1 Détermination de la résistance par carré à 300 K

Comme indiqué dans le chapitre sur les techniques de mesures, les échantillons pour les mesures de résistivité sont sous forme de méandres (figure 4.1). La résistance par carré à 300 K R_s est définie par le rapport entre la résistance R et le nombre de carrés N . Le nombre de carrés est quant à lui défini par le rapport entre la longueur et la largeur de l'échantillon. La forme en méandres comparée à un rectangle simple permet ainsi d'augmenter le nombre de carrés et donc de gagner en précision lors des mesures.

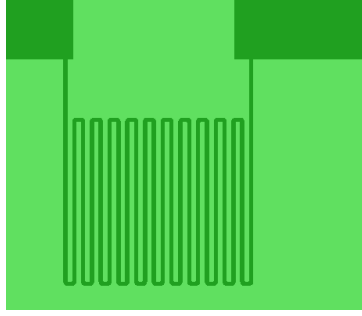


FIGURE 4.1 – *Design des échantillons pour les mesures de résistivité. Les méandres permettent d’augmenter le rapport longueur/largeur de l’échantillon, et donc le nombre de carrés.*

On peut tracer l’évolution en fonction de l’épaisseur du film d’aluminium de la résistance par carré à 300 K (figure 4.2). On retrouve le comportement déjà observé par Strongin [17], c’est-à-dire que R_s augmente à mesure que l’épaisseur du film se réduit.

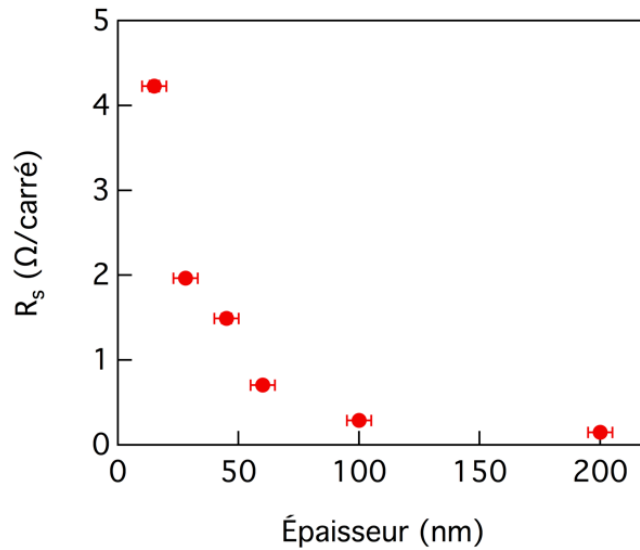


FIGURE 4.2 – *Évolution en fonction de l’épaisseur de la résistance par carré à 300 K des films d’aluminium. On retrouve le comportement observé dans [17] : la résistance par carré augmente à mesure que l’épaisseur du film se réduit.*

Ce comportement de R_s est conforme à celui que l’on attend. On peut écrire la résistance par carré selon :

$$R_s = \frac{\rho}{d} = \frac{1}{\sigma d}$$

Dans l'état normal, la conductivité σ s'exprime de la façon suivante :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m^*}$$

avec n la densité des électrons de conduction, e la charge de l'électron, τ le temps de relaxation des électrons entre deux collisions et m^* la masse effective de l'électron. Le libre parcours moyen l est relié à τ suivant : $l = v_F\tau$ avec v_F la vitesse de Fermi.

La résistance par carré R_s s'exprime alors selon :

$$R_s = \frac{m^*v_F}{ne^2ld}$$

Considérons le cas où l , n et v_F sont constants quelle que soit l'épaisseur de la couche. Alors lorsque d diminue, la résistance par carré augmente. En réalité, on montrera dans la suite que le libre parcours moyen de nos couches diminue à mesure que l'épaisseur se réduit, ce qui augmente le taux de désordre. Ceci constitue une contribution supplémentaire à l'augmentation de la résistance par carré quand l'épaisseur du film diminue.

4.2 Détermination de la température critique

On mesure la transition résistive à champ nul des couches minces d'aluminium entre état métallique et état supraconducteur, dans lequel la résistance des échantillons est nulle. La figure 4.3 montre les transitions résistives des échantillons de cette étude. On a tracé pour chaque échantillon l'évolution en température de la résistance normalisée par rapport à sa valeur juste au-dessus de T_c , prise à 1.6 K. On constate que, conformément à ce qui a déjà été observé dans l'aluminium [17], la température critique augmente à mesure que l'épaisseur du film se réduit.

Pour déterminer la température critique, on peut appliquer différents critères, comme discuté dans le chapitre sur les techniques de mesures. La figure 4.4 montre l'évolution en fonction de l'épaisseur de la température critique de tous les échantillons, déterminée suivant le critère considéré (seuil, milieu et pic de la transition). On constate que dans les barres d'erreurs, cette évolution est identique, quel que soit le critère choisi. On peut dire que les trois critères sont équivalents. Pour la suite, on choisit de donner pour valeur de la température critique le milieu de la transition.

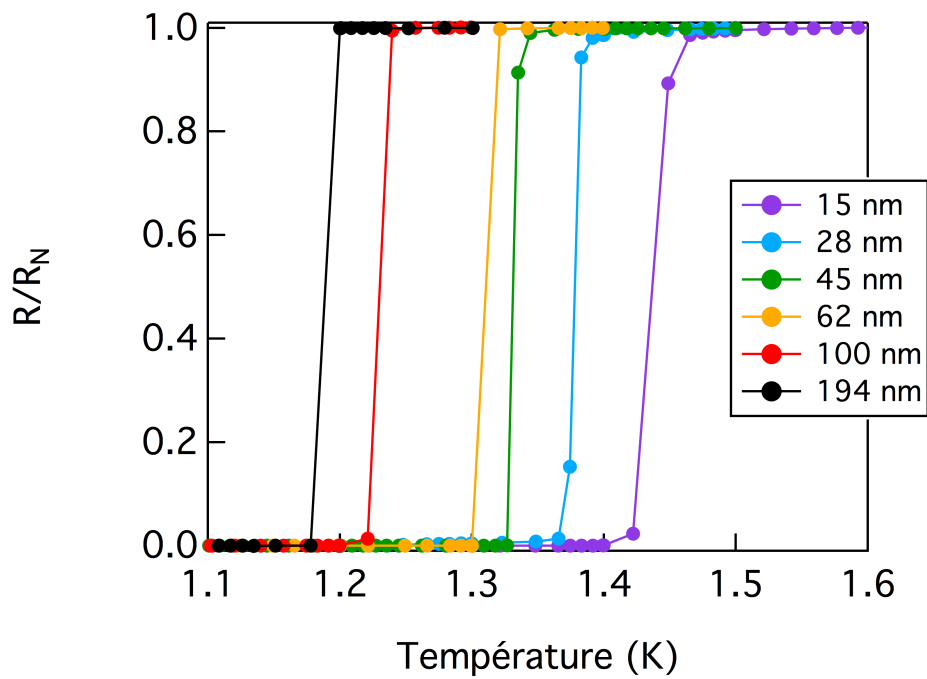


FIGURE 4.3 – Évolution en fonction de la température de la résistance normalisée par rapport à sa valeur à 1.6 K des échantillons de cette étude. On constate que la température critique augmente quand l'épaisseur diminue, conformément à ce qui a déjà été observé dans l'aluminium [17].

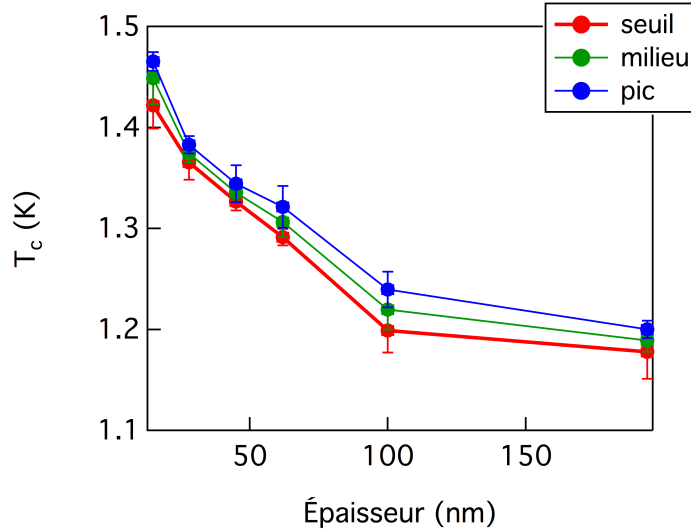


FIGURE 4.4 – Évolution en fonction de l'épaisseur de la température critique suivant les trois critères de détermination de celle-ci.

4.2.1 Modélisation de la température critique en fonction de l'épaisseur

Modèle de Chubov Chubov [30] suggère que le seul paramètre qui influe sur la température critique T_c dans ses films minces d'aluminium serait l'épaisseur d . Il propose la loi suivante :

$$T_c = T_{c,bulk}(1 + Ad^{-B})$$

où $T_{c,bulk}$ est la température critique de l'aluminium bulk, A et B sont des constantes.

Chubov montre qu'il obtient $B = 1$ et donc que la température critique de ses films d'aluminium est inversement proportionnelle à leur épaisseur.

La figure 4.5 montre l'évolution en fonction de l'épaisseur de la température critique de nos échantillons, modélisée par la formule de Chubov, en prenant $T_{c,bulk} = 1.194K$ [30]. On constate que le modèle s'accorde mal avec les données, que l'on fixe $B = 1$ ou que l'on laisse ce paramètre libre. Dans le cadre de cette étude, l'épaisseur ne semble pas être le seul paramètre influant sur la température critique.

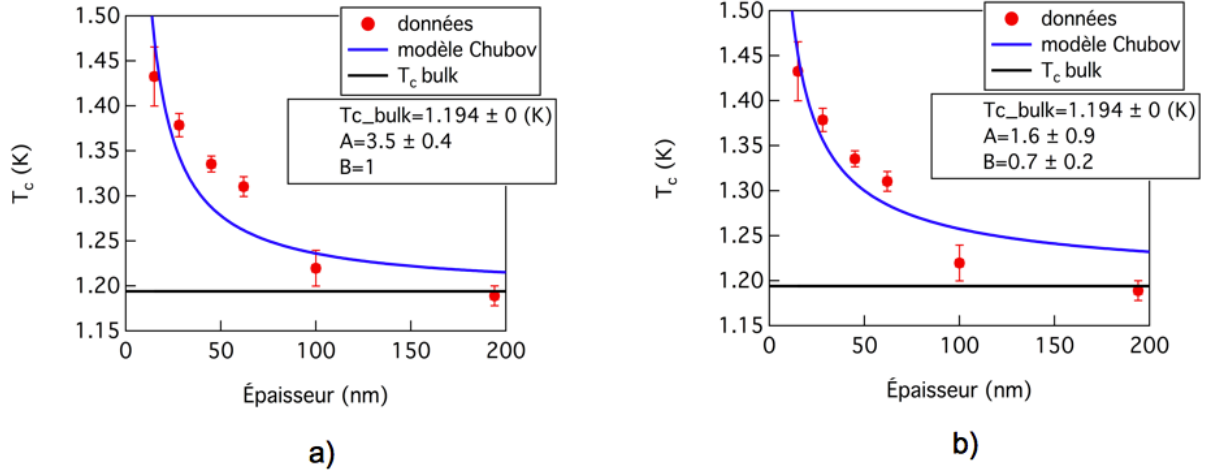


FIGURE 4.5 – Évolution en fonction de l'épaisseur de la température critique des films minces d'aluminium, modélisée par la formule de Chubov, en prenant $T_{c,bulk} = 1.194K$. a) en fixant le paramètre B à la valeur 1. b) en laissant le paramètre B libre de s'ajuster.

4.2.2 Modélisation de la température critique en fonction de l'épaisseur et de la résistance par carré

Modèle de Ivry Ivry [31] a reporté des mesures de température critique faites sur différents matériaux désordonnés en couches minces. Certains, comme Chubov, suggèrent que T_c ne dépende que de l'épaisseur. D'autres suggèrent que la température critique serait essentiellement influencée par le taux de désordre. Ivry propose un modèle semble-t-il universel rendant compte de l'évolution de T_c notamment dans des films minces désordonnés, proches de la transition supraconducteur-isolant. Il considère que l'épaisseur d ainsi que la résistance par carré R_s juste au-dessus de T_c influencent tous deux la température critique. Dans le cas de Chubov, le libre parcours moyen l , la densité électronique n ainsi que la vitesse de Fermi v_F sont constantes quelle que soit l'épaisseur de la couche. Pour ses échantillons, la résistance par carré R_s est proportionnelle à $\frac{1}{d}$. R_s et d ne sont dans ce cas pas indépendants et l'épaisseur seule suffit pour rendre compte de l'évolution de la température critique dans ses couches minces. Dans le cas où le taux de désordre varie en fonction de l'épaisseur, R_s et d ne sont plus des paramètres indépendants et, selon Ivry, ils doivent être tous les deux pris en compte pour analyser l'évolution de la température critique dans les couches minces.

La loi proposée par Ivry est la suivante :

$$dT_c = AR_s^{-B}$$

où A et B sont des constantes.

Il convient de noter tout d'abord que si on considère le cas où R_s n'influe pas sur la température critique, c'est-à-dire si $B = 0$, alors on retrouve l'évolution de T_c en $\frac{1}{d}$ observée par Chubov dans ses échantillons.

Dans son étude, Ivry montre deux aspects remarquables. Le premier réside dans le fait que cette loi semble s'accorder avec les données récoltées dans un grand nombre de supraconducteurs en couches minces différents, d'où son caractère qualifié d'universel. Il a rassemblé les études menées sur une trentaine de supraconducteurs très divers. Il y a des matériaux purs, en limite sale où $l \ll \xi_0$, proches de la transition supraconducteur-isolant, des supraconducteurs de type I, de type II... La figure 4.6 illustre la diversité des matériaux présentés par Ivry. Ce dernier a tracé la dépendance en R_s du produit dT_c en échelle log-log. On peut constater la relation de proportionnalité dans l'ensemble des échantillons étudiés.

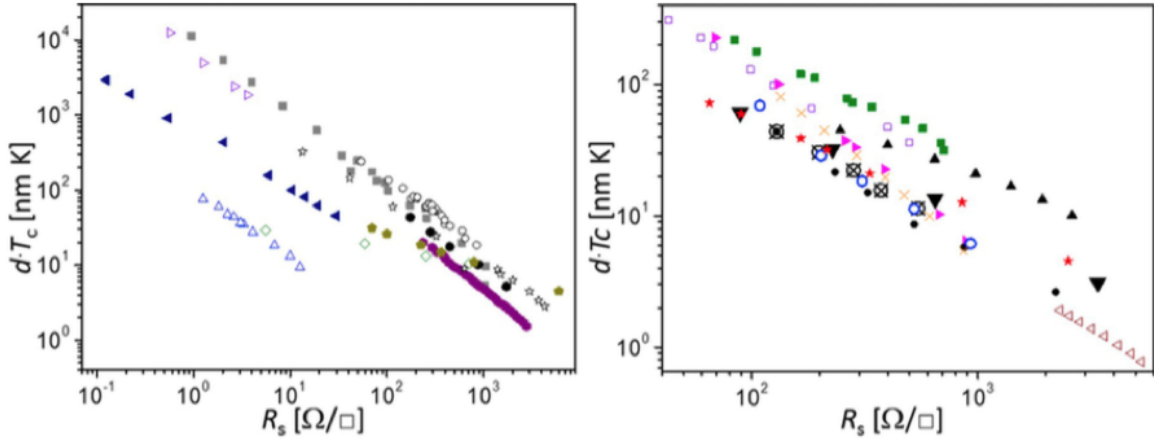


FIGURE 4.6 – D'après la référence [31], illustration du caractère universel de la loi de Ivry avec l'existence de la relation de proportionnalité entre $\log(dT_c)$ et $\log(R_s)$ dans un certain nombre de matériaux : NbN, Mo, Bi, Pb, Al (pentagones vert kaki et losanges vert clair sur la figure de gauche), Nb, TiN, Nb₃Ge, MoGe, ReW.

Le second aspect est a priori encore plus surprenant. Le modèle de Ivry semble compatible aussi bien avec le plomb par exemple qu'avec l'aluminium, bien que le comportement de la température critique de ces deux matériaux en fonction de l'épaisseur soit complètement opposé. On propose de modéliser nos données sur les films minces d'aluminium par la formule de Ivry et de comparer avec les données d'autres études portant également sur l'aluminium.

La figure 4.7 montre l'évolution du produit épaisseur \times température critique en fonction de la résistance par carré des films minces d'aluminium, modélisée par la formule de

Ivry. Dans les barres d'erreur, on peut considérer que le modèle s'accorde avec les données de manière satisfaisante. On obtient pour le coefficient B une valeur de 0.48 ± 0.05 . Cette valeur est à comparer avec celle extraite d'autres études menées sur l'aluminium en couche mince.

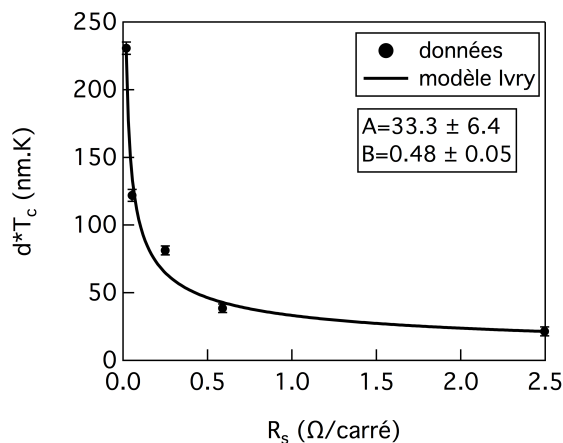


FIGURE 4.7 – Évolution en fonction de la résistance par carré du produit épaisseur \times température critique, modélisée par la formule de Ivry.

On reporte en figure 4.8 l'évolution du produit épaisseur \times température critique en fonction de la résistance par carré juste au-dessus de T_c , modélisée par la formule de Ivry. Cette figure présente les données de deux études différentes (Cohen & Abeles [32] ainsi que Strongin [17]) sur des films minces d'aluminium.

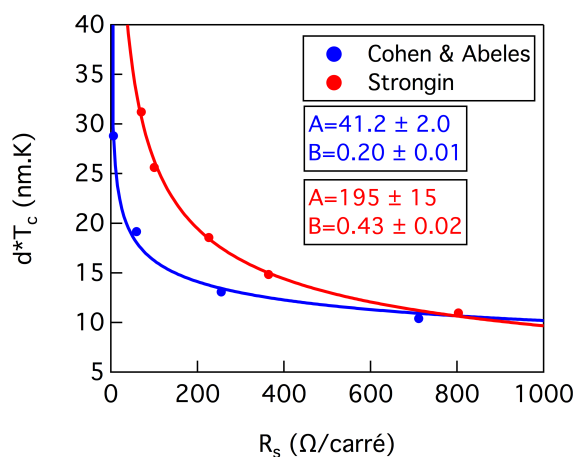


FIGURE 4.8 – Évolution en fonction de la résistance par carré du produit épaisseur \times température critique, modélisée par la formule de Ivry, des échantillons de Cohen & Abeles (en bleu) et Strongin (en rouge).

Les conditions de dépôt de l'aluminium ne sont pas les mêmes d'une étude à l'autre. Dans le cas de Cohen & Abeles, l'évaporation s'est faite sur substrat à la température comprise entre 100 et 300 K, à une pression partielle d'oxygène allant de 3×10^{-5} à 10^{-4} Torr, avec une vitesse de dépôt de 2.5 nm.s^{-1} . Dans le cas de Strongin, l'évaporation s'est faite sur substrat refroidi à température cryogénique, à une pression partielle d'oxygène allant de 5×10^{-7} à 1.5×10^{-6} Torr, avec une vitesse de dépôt de 1 nm.s^{-1} . Ces différences de conditions de dépôt permettent a priori d'expliquer pourquoi, à épaisseurs de films équivalentes, la résistance par carré dans le cas de Cohen & Abeles est plus élevée que dans le cas de Strongin, ce qui d'après le modèle de Ivry influe sur la température critique. La pression partielle d'oxygène notamment joue un rôle sur le taux de désordre dans la couche mince. On rappelle que, à épaisseur fixe, la résistance par carré R_s est inversement proportionnelle au libre parcours moyen l . Lorsque le taux de désordre varie, l varie et R_s également. On donne à titre d'exemple les caractéristiques de deux échantillons, un de chaque étude, avec des épaisseurs équivalentes. Pour nos couches, la pression partielle d'oxygène lors du dépôt était de 10^{-8} Torr environ.

étude	épaisseur (nm)	R_s ($\Omega/\text{carré}$)	T_c (K)
Cohen & Abeles	4.5	711	2.31
Strongin	4.23	226	4.42

Ces différences expliquent pourquoi l'évolution du produit $d \times T_c$ en fonction de R_s n'est pas identique d'une étude à l'autre, conduisant à une valeur du coefficient B différente. Dans le cas de Cohen & Abeles, le modèle de Ivry donne $B = 0.20 \pm 0.01$ et dans le cas de Strongin, on obtient $B = 0.43 \pm 0.02$.

On constate que la valeur de B obtenue dans le cas de notre étude est la plus élevée par rapport à celle extraite des mesures de Cohen & Abeles ainsi que de Strongin. Ceci correspond à la pression partielle d'oxygène la plus faible lors du dépôt. A l'inverse, la valeur de B extraite des mesures de Cohen & Abeles est la plus faible, correspondant aux conditions de dépôt avec la pression d'oxygène la plus élevée. **On constate une certaine relation entre la valeur de B et le taux de désordre des échantillons : B augmente quand le désordre diminue. Par ailleurs, d'après Ivry, il semblerait que l'aluminium présente une valeur de B comptant comme l'une des plus faibles parmi tous les matériaux recensés, pour la plupart desquels $B \simeq 1$.** On va montrer qu'il est intéressant de relever cette information. Considérons une variation δT_c de température critique liée à une variation δd d'épaisseur et à une variation δR_s de résistance par carré, alors après dérivation de la loi de Ivry :

$$\frac{\delta T_c}{T_c} = -\frac{\delta d}{d} - B \frac{\delta R_s}{R_s}$$

D'après Ivry, dans tous les matériaux analysés, une diminution de l'épaisseur du film ($\delta d < 0$) conduit à une augmentation de la résistance par carré ($\delta R_s > 0$). Pour expliquer

une augmentation de la température critique (soit $\delta T_c > 0$) quand d diminue, il y a compétition entre les termes $-\frac{\delta d}{d} > 0$ et $-B\frac{\delta R_s}{R_s} < 0$.

Le paramètre B joue un rôle majeur dans cette compétition. Deux cas sont à distinguer.

a) B est grand de telle sorte que le terme $-B\frac{\delta R_s}{R_s}$ domine devant le terme $-\frac{\delta d}{d}$ et la température critique diminue quand l'épaisseur diminue. Il s'agit du cas que l'on a qualifié précédemment de *standard* car il s'agit du plus répandu (plomb, niobium...).

b) B est petit de telle sorte que le terme $-\frac{\delta d}{d}$ domine devant le terme $-B\frac{\delta R_s}{R_s}$ et la température critique augmente quand l'épaisseur diminue. Il s'agit du cas que l'on a qualifié de *non standard* et qui concerne l'aluminium.

Ceci permet d'expliquer le caractère universel de la loi de Ivry. Suivant l'article de ce dernier, on peut réécrire la loi de Ivry pour faire une analogie avec la formule de McMillan :

$$T_c = \frac{A}{d} e^{-B \ln(R_s)}$$

Pour rappel, la formule de McMillan est :

$$T_c = \frac{\hbar\omega_{log}}{1.2k_B} \exp\left[-\frac{1.04(1+\lambda)}{\lambda - \mu^*(1+0.62\lambda)}\right]$$

avec ω_{log} qui joue le rôle d'une fréquence moyenne des phonons, λ la constante de couplage électron-phonon et μ^* le pseudo-potentiel de répulsion coulombienne écrantée par les électrons libres.

On peut identifier les termes en pré-facteur de l'exponentielle ainsi que les termes en argument de l'exponentielle. Il vient :

$$1) \quad \frac{A}{d} \Leftrightarrow \frac{\hbar\omega_{log}}{1.2k_B}$$

$$2) \quad B \ln(R_s) \Leftrightarrow \frac{1.04(1+\lambda)}{\lambda - \mu^*(1+0.62\lambda)}$$

1) Lorsque d diminue, A/d augmente et T_c augmente.

2) Lorsque d diminue, R_s augmente, $B \ln(R_s)$ augmente et T_c diminue.

D'après l'analyse qui vient d'être menée, il semblerait que, puisque dans l'aluminium B est petit [31], le terme $\frac{A}{d}$ domine et soit celui qui joue un rôle dans le renforcement de la température critique dans l'aluminium en couche mince. **Une diminution de l'épaisseur serait à relier avec une augmentation de la fréquence moyenne logarithmique des phonons ω_{log} . D'après cette analyse de nos données inspirée de l'article de Ivry, l'augmentation de température critique dans l'aluminium en couche mince s'expliquerait donc par un durcissement des phonons. A priori, ceci ne constitue pas une explication habituelle dans la littérature, comme montré dans le chapitre précédent sur le contexte de cette étude.**

4.3 Détermination du champ critique

On cherche à déterminer en fonction de la température le champ critique des échantillons, champ au-delà duquel la supraconductivité est détruite. Comme discuté dans le chapitre sur les techniques de mesures, on procède à deux types de mesures :

a) à champ constant, on mesure en fonction de la température la résistance de l'échantillon puis on détermine la température de transition supraconductrice.

b) à température constante, on mesure en fonction du champ magnétique la résistance de l'échantillon puis on détermine à quelle valeur de champ a lieu la transition supraconductrice.

Pour déterminer les valeurs de température critique et de champ critique, on considère le milieu des transitions. La barre d'erreur sur ces valeurs est donnée par la largeur des transitions.

La figure 4.9 représente l'évolution en température du champ critique de nos échantillons d'aluminium. Comme pour la température critique, le champ magnétique critique augmente à mesure que l'épaisseur d du film d'aluminium se réduit.

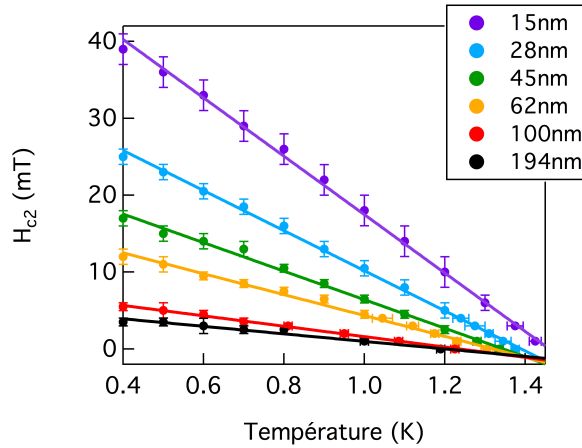


FIGURE 4.9 – Évolution en température du champ critique de chaque échantillon. Le trait continu est la modélisation par la formule de Ginzburg-Landau.

L'aluminium pur est un supraconducteur de type I [33]. D'après la littérature, la longueur de cohérence intrinsèque ξ_0 vaut 1600 nm et la longueur de pénétration de London $\lambda_L(0)$ vaut 16 nm [33]. En limite sale, c'est-à-dire lorsque le libre parcours moyen l est très inférieur à ξ_0 , la longueur de cohérence ξ ainsi que la longueur de pénétration magnétique λ sont renormalisées par l [5]. Cette renormalisation conduit à des valeurs effectives de ξ et λ , appelées respectivement ξ_{eff} et λ_{eff} . On appelle $\kappa = \frac{\lambda_{eff}}{\xi_{eff}}$ le facteur permettant de déterminer si le supraconducteur est de type I ou de type II. Lorsque $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$, le supraconducteur est de type I. Sinon, il est de type II.

Quand l diminue, la longueur de pénétration effective λ_{eff} augmente, au contraire de la longueur de cohérence effective ξ_{eff} . L'augmentation du taux de désordre fait augmenter le rapport κ , c'est pourquoi on suppose dans un premier temps que les échantillons sont de type II. On va déterminer la longueur de cohérence effective ξ_{eff} à partir des données de H_{c2} en fonction de la température. La théorie de Ginzburg-Landau [5] prévoit la dépendance en température du champ critique H_{c2} près de T_c , pour un supraconducteur de type II :

$$H_{c2}(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{eff}^2} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)$$

avec $\phi_0 = 2 \times 10^{-15} \text{ Wb}$ le quantum de flux magnétique.

On modélise les données de $H_{c2}(T)$ par la formule de Ginzburg-Landau, en contraignant la valeur de T_c à celle déterminée par les mesures de $R(T)$. Les ajustements sont présentés en figure 4.9. On extrait de cette modélisation la valeur de ξ_{eff} pour chaque échantillon (figure 4.10).

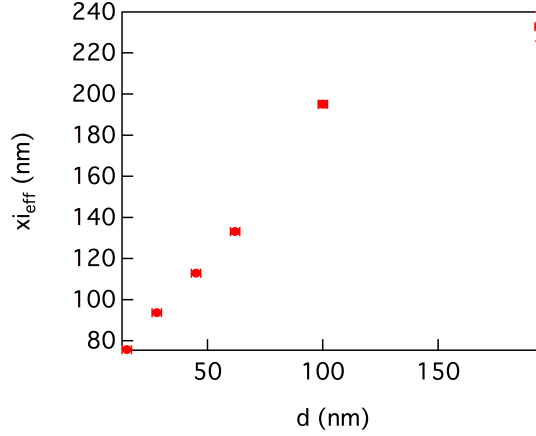


FIGURE 4.10 – Évolution en fonction de l'épaisseur des échantillons de la longueur de cohérence effective ξ_{eff} .

On remarque que la longueur de cohérence effective diminue à mesure que l'épaisseur se réduit (figure 4.10). A partir de ξ_{eff} , on va déterminer le libre parcours moyen l ainsi que la longueur de pénétration magnétique effective λ_{eff} . D'après la théorie de Ginzburg-Landau, près de T_c en limite sale, c'est-à-dire $l \ll \xi_0$, la longueur de cohérence effective est liée au libre parcours moyen selon :

$$\xi_{eff} = 0.855\sqrt{\xi_0 l}$$

et la longueur de pénétration magnétique effective est liée au libre parcours moyen selon :

$$\lambda_{eff} = \lambda_L(0)\sqrt{\frac{\xi_0}{1.33l}}$$

On peut ainsi déterminer l puis λ_{eff} en fonction de l'épaisseur des échantillons.

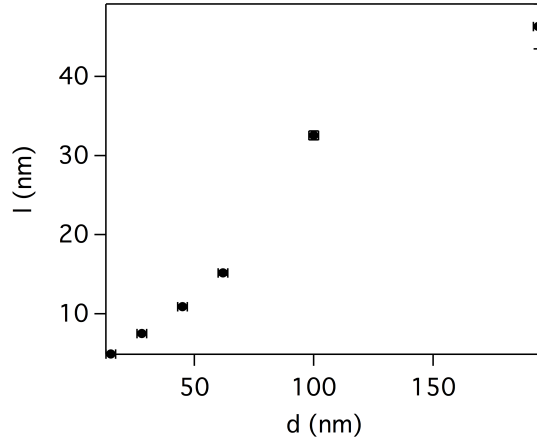


FIGURE 4.11 – Évolution en fonction de l'épaisseur des échantillons du libre parcours moyen l .

On remarque que le libre parcours moyen diminue à mesure que l'épaisseur du film se réduit (figure 4.11). Cette évolution indique que le taux de désordre augmente quand d diminue. On constate par ailleurs que l prend des valeurs de quelques dizaines de nm, très largement inférieures à $\xi_0 = 1600 \text{ nm}$. L'hypothèse préalable indiquant que les échantillons sont en limite sale, c'est-à-dire $l \ll \xi_0$, est confirmée.

On peut comparer les valeurs de l extraites par détermination de la longueur de cohérence effective avec celles obtenues via la résistance par carré R_s . On rappelle que :

$$R_s = \frac{m^* v_F}{n e^2 l d}$$

On a donc :

$$l = \frac{m^* v_F}{n e^2 d R_s}$$

Pour avoir une idée de l'ordre de grandeur, on considère que $m^* = 9.1 \times 10^{-31} \text{ kg}$. La littérature [19] indique que, dans l'aluminium, $v_F = 1.6 \times 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ et $n = 6 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$. On montre en figure 4.12 la comparaison entre les deux valeurs de l , en fonction de l'épaisseur. On constate que l'ordre de grandeur est identique, ce qui est cohérent.

On peut déterminer le temps de relaxation des électrons entre deux collisions τ à partir de la relation :

$$\tau = \frac{l}{v_F}$$

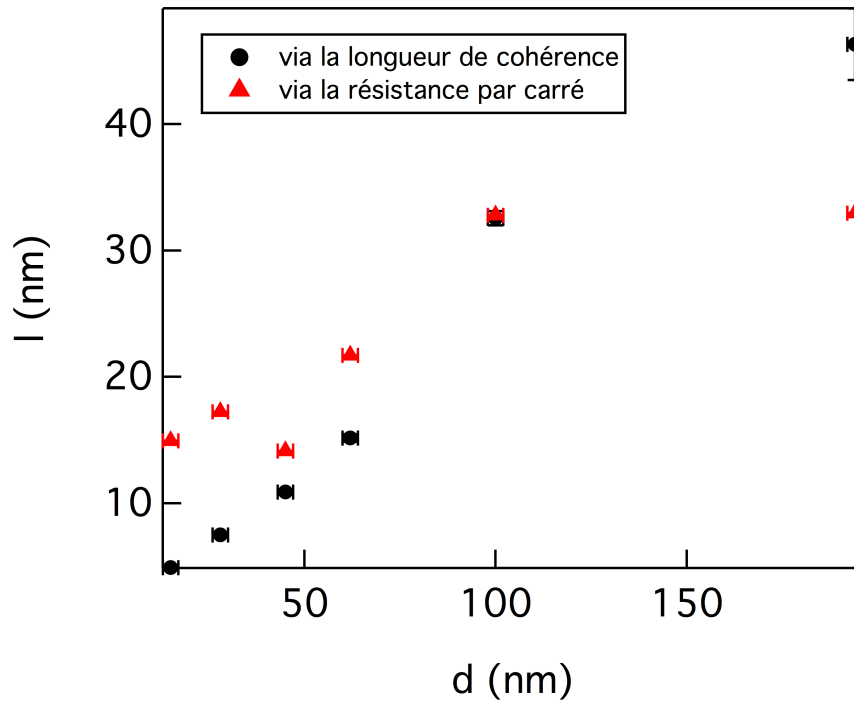


FIGURE 4.12 – Évolution en fonction de l'épaisseur des échantillons du libre parcours moyen, extrait de deux manières différentes.

En considérant que v_F ne varie pas avec l'épaisseur, on peut déterminer la valeur de τ dans nos échantillons. Le temps de relaxation des électrons varie de 3 fs pour le film d'épaisseur 15 nm à 28 fs pour la couche d'épaisseur 194 nm. Cet ordre de grandeur est tout-à-fait cohérent avec celui obtenu par P. Diener dans le matériau TiN [4].

On trace en figure 4.13 l'évolution en fonction de l'épaisseur de la longueur de pénétration effective.

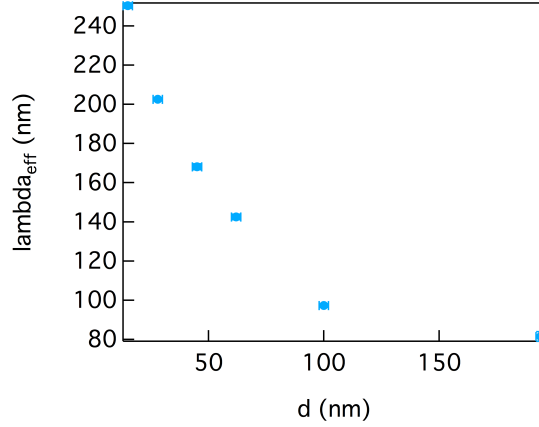


FIGURE 4.13 – Évolution en fonction de l'épaisseur des échantillons de la longueur de pénétration magnétique λ_{eff} .

À mesure que l'épaisseur du film se réduit, la longueur de pénétration effective augmente (figure 4.13). Il s'agit du comportement inverse par rapport à la longueur de cohérence effective. On peut à présent déterminer le facteur κ pour confirmer ou non l'hypothèse indiquant que les échantillons seraient de type II (figure 4.14).

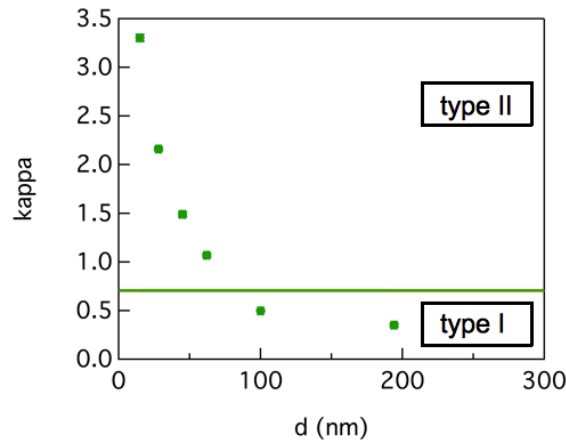


FIGURE 4.14 – Évolution en fonction de l'épaisseur des échantillons du facteur κ . La ligne horizontale est la constante $\frac{1}{\sqrt{2}}$, représentant la limite type I / type II.

Les échantillons les plus fins ($d \leq 62 \text{ nm}$) seraient effectivement de type II. En revanche, les échantillons les plus épais ($d \geq 100 \text{ nm}$) seraient de type I. La théorie de Ginzburg-Landau prédit l'évolution en température du champ critique H_c d'un supraconducteur de type I, près de T_c :

$$H_c(T) = 1.73H_c(0)\left(1 - \frac{T}{T_c}\right)$$

La champ critique à température nulle vaut :

$$\mu_0 H_c(0) = \frac{\phi_0}{\sqrt{\frac{2}{3}\pi^2 \xi_0 \lambda_L(0)}}$$

avec μ_0 la perméabilité du vide.

En prenant comme valeurs pour $\xi_0 = 1600 \text{ nm}$ et $\lambda_L(0) = 16 \text{ nm}$, on obtient un champ critique théorique pour l'aluminium de type I $H_c(0) = 9.7 \text{ mT}$. Si on extrapole linéairement les champs critiques à $T=0$ des échantillons d'épaisseurs 100 nm et 194 nm, on obtient des champs critiques de 8.4 mT et 6.3 mT, respectivement (figure 4.15). Cette extrapolation linéaire constitue une sur-évaluation car la théorie de Ginzburg-Landau prédit une saturation du champ critique pour des températures inférieures à $T_c/3$. Malgré cette sur-évaluation, on ne retrouve pas la valeur théorique du champ critique de l'aluminium pur à 0 K. On constate par ailleurs une différence de valeurs entre les deux échantillons, alors que le champ critique $H_c(0)$ est théoriquement constant. On peut supposer que cette différence s'explique par le fait que les deux échantillons sont proches de la limite type I/type II mais seraient encore de type II. Le désordre fait donc passer nos couches d'aluminium de supraconducteurs de type I à supraconducteurs de type II, comme supposé au départ.

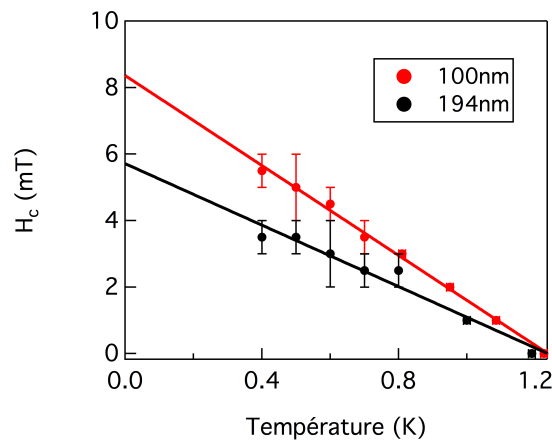


FIGURE 4.15 – Évolution en fonction de la température du champ critique H_c des échantillons de type I 100 nm et 194 nm, modélisée par la formule issue de la théorie de Ginzburg-Landau.

Chapitre 5

Analyse des mesures du gap supraconducteur

Introduction Dans ce chapitre, on présente les mesures du gap supraconducteur de nos couches minces d'aluminium. On montrera dans quelle mesure elles permettent d'avoir des informations sur l'origine de l'augmentation de température critique dans des films minces d'aluminium. On détermine le gap par deux techniques différentes : par spectroscopie optique et par analyse de l'évolution en température de la fréquence de résonance. Le gap obtenu par spectroscopie optique, dont il est question dans la première partie de ce chapitre, est appelé gap optique Δ_{opt} .

5.1 Analyse des mesures de spectroscopie optique

5.1.1 Critère d'évaluation du gap optique

On donne en figure 5.1 deux exemples de spectres Martin-Puplett, obtenus pour les échantillons d'épaisseurs 15 nm et 194 nm. A la lecture de ces courbes, on constate qu'il est difficile d'estimer la largeur des transitions, particulièrement pour le film d'épaisseur 194 nm. Le pic de la transition n'est pas toujours évident à déterminer puisqu'il y a parfois des diminutions de la variation de fréquence de résonance δf dans la transition et non une augmentation monotone jusqu'au pic. Pour déterminer la valeur du gap optique, on considère le seuil de la transition et l'incertitude autour de cette valeur est donnée par l'écart entre le seuil et le point précédent qui se trouve dans le plateau $\delta f = 0$. Ce critère d'évaluation semble le plus fiable et le plus précis, étant donné les difficultés à estimer la largeur des transitions.

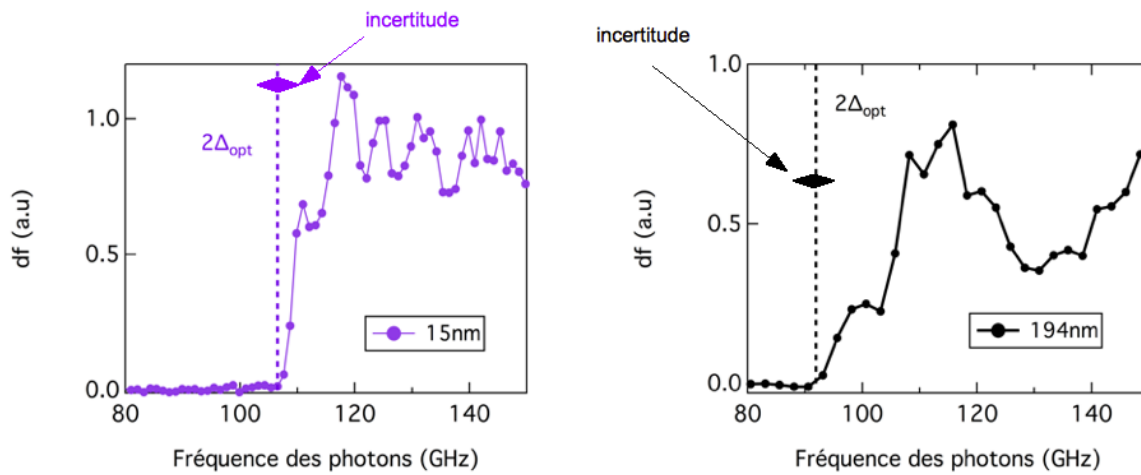


FIGURE 5.1 – *Illustration du critère d'évaluation du gap optique, en considérant le seuil de la transition.*

5.1.2 Normalisation des courbes

En pratique, on place devant les résonateurs un filtre passe-bas qui coupe les fréquences des photons grandes devant $2\Delta_{opt}$. La transition est la partie du spectre qui nous intéresse ici : on cherche à déterminer la valeur du gap optique pour chaque échantillon de cette étude. Tous les échantillons sont mesurés avec le même filtre. On normalise l'axe des ordonnées des courbes pour que la forme de la fréquence de coupure due au filtre passe-bas soit identique. **L'axe des abscisses en GHz est obtenu par transformée de Fourier du déplacement du miroir mobile en mm. Seul l'axe des ordonnées est en unité arbitraire.** La figure 5.2 montre un exemple de trois spectres obtenus au Martin-Puplett, normalisés suivant le critère énoncé ci-dessus.

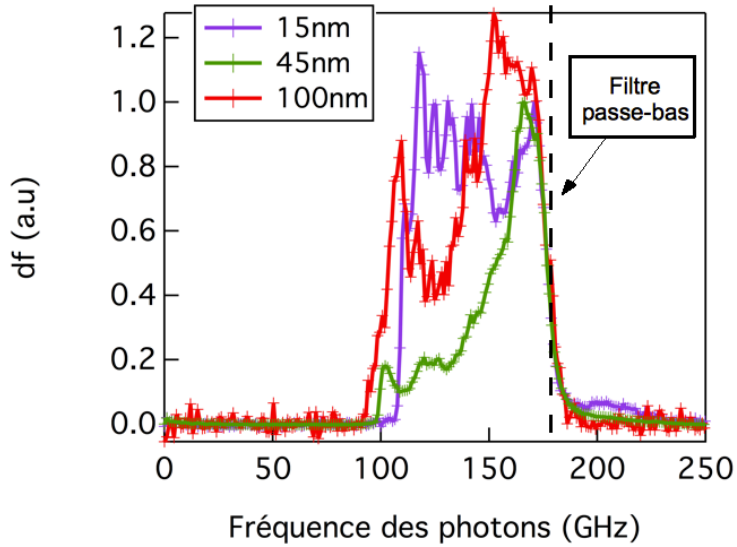


FIGURE 5.2 – Exemple de trois spectres obtenus au Martin-Puplett. Les courbes sont normalisées de telle sorte que la fréquence de coupure du filtre passe-bas tombe au même endroit.

Le détail de la forme des courbes obtenues au Martin-Puplett n'est pas discuté dans cette thèse. Seule la lecture directe du gap supraconducteur nous intéresse ici. La réponse optique des résonateurs dépend entre autres des interférences de Fabry-Pérot, du filtre passe-bas, du rayonnement de la source utilisée (corps noir), de la diffraction/absorption par les instruments optiques...

5.1.3 Analyse des résultats

On donne en figure 5.3 les spectres MP obtenus pour chaque échantillon de cette étude. On représente également par une ligne en pointillés la position du seuil de la transition. À la lecture de ces courbes, on constate que plus l'épaisseur du film d'aluminium est petite, plus le gap optique est élevé. Ce comportement est identique à celui observé pour la température critique lors des mesures de résistivité.

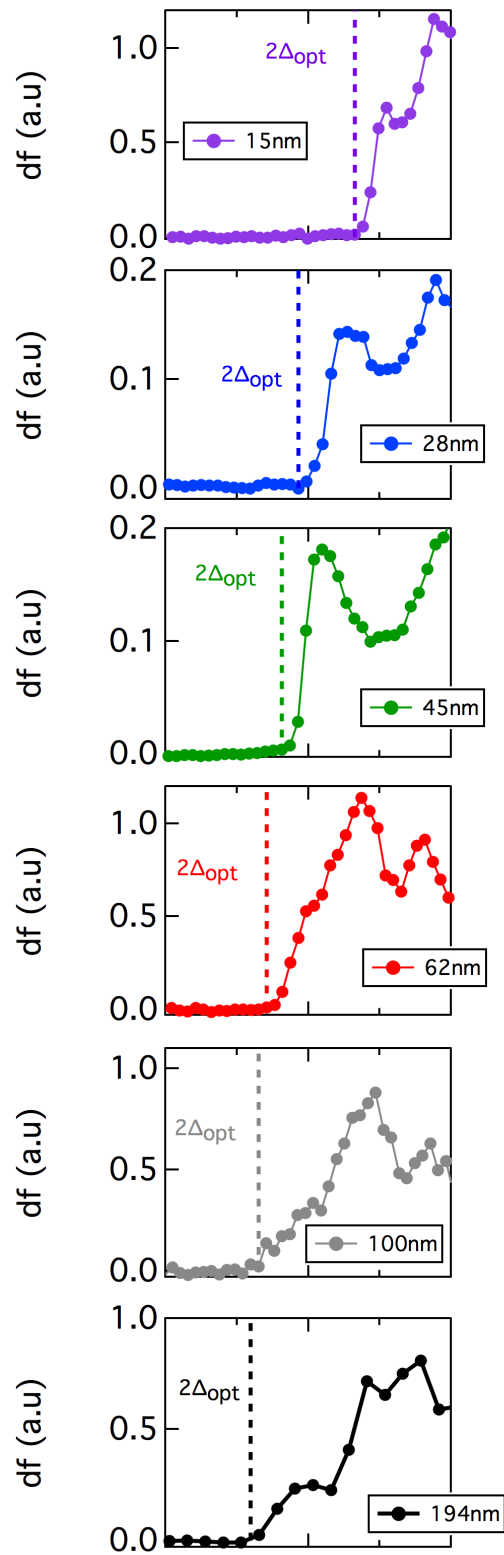


FIGURE 5.3 – Spectres des échantillons de cette étude.

Avant de tracer l'évolution du gap optique en fonction de l'épaisseur de nos échantillons, on le convertit en K en appliquant la relation suivante :

$$\Delta_{T,opt} = \frac{h \times 2\Delta_{\nu,opt}}{2k_B}$$

où h est la constante de Planck, k_B est la constante de Boltzmann, $2\Delta_{\nu,opt}$ est la fréquence d'illumination à laquelle s'effectue la transition et $\Delta_{T,opt}$ est le gap optique converti en K.

De même pour l'incertitude autour de la valeur du gap en K :

$$\delta\Delta_{T,opt} = \frac{h \times \delta(2\Delta_{\nu,opt})}{2k_B}$$

Pour rappel l'incertitude en GHz $\delta(2\Delta_{\nu,opt})$ est donnée par l'écart entre le seuil de la transition et le point qui se trouve dans le plateau $\delta f = 0$.

On donne en figure 5.4 l'évolution du gap optique en fonction de l'épaisseur des échantillons.

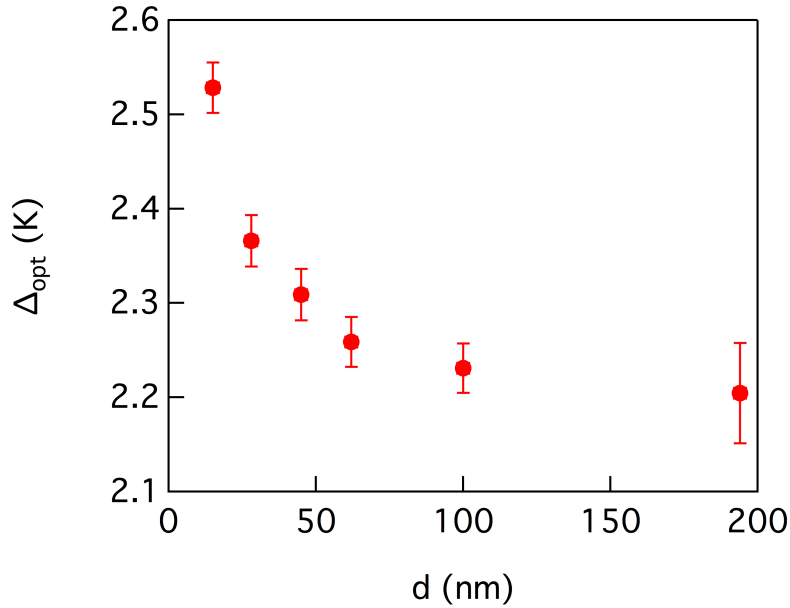


FIGURE 5.4 – Évolution du gap optique des échantillons en fonction de l'épaisseur.

L'augmentation du gap pour des films d'aluminium de plus en plus fins a déjà été constaté par Court et al [34]. Ces derniers ont mesuré par effet tunnel le gap supracon-

ducteur de jonctions $Al - Al_2O_3 - Al$ en fonction de l'épaisseur de la couche d'aluminium, allant de 5 nm à 30 nm. On compare en figure 5.5 le gap optique que l'on a obtenu avec le gap tunnel obtenu par Court. Les films d'aluminium dans cette étude ont été déposés sur un substrat se trouvant à deux températures différentes : 293 K et 173 K. Le fait de déposer les couches sur substrat refroidi a pour conséquence de modifier la structure des grains d'aluminium en diminuant leur taille [34]. Par rapport à nos données, il est intéressant de constater que le gap tunnel d'épaisseur 30 nm est très proche du gap optique de notre échantillon d'épaisseur 28 nm. Par ailleurs, on a représenté sur le même graphique le gap de l'aluminium bulk [35]. On remarque que le gap optique semble tendre vers une valeur supérieure au gap de l'aluminium bulk. Cela peut paraître surprenant a priori puisque les mesures de résistivité montrent une température critique (1.19 K) pour l'échantillon 194 nm très proche de la température critique de l'aluminium bulk, variant de 1.194 K [30] à 1.2 K [24] selon les sources.

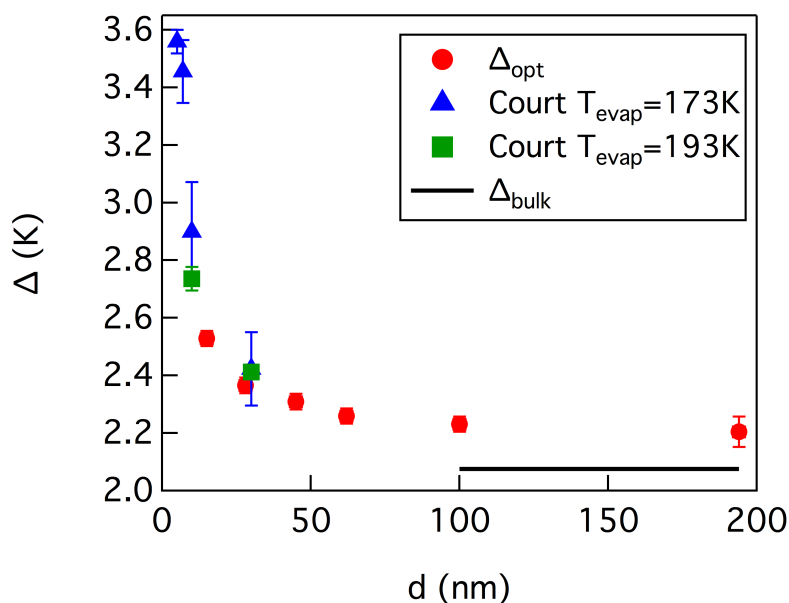


FIGURE 5.5 – Évolution du gap optique et du gap tunnel extrait des mesures de Court [34] en fonction de l'épaisseur. La ligne noire représente le gap de l'aluminium bulk [35].

D'après la littérature, l'aluminium est a priori un supraconducteur obéissant à la théorie Bardeen-Cooper-Schrieffer (BCS) en couplage faible [24]. La théorie BCS prévoit un lien direct entre le gap supraconducteur à température nulle (exprimé en K) et la température critique [5] :

$$\Delta(0) = \alpha \times T_c$$

Dans le cas d'un couplage faible, $1.76 \leq \alpha \leq 2$. A priori, $\alpha = 1.76$ pour l'aluminium

[24]. Comme le gap optique des échantillons d'épaisseurs 100 nm et 194 nm est plus élevé que le gap de l'aluminium bulk [35], on peut supposer que nos couches présentent un ratio entre gap et température critique plus grand que 1.76. On va calculer la valeur de ce ratio pour l'ensemble de nos échantillons. Sachant que l'on a déterminé le gap optique en considérant le seuil des transitions sur les spectres Martin-Puplett, on évalue ici la température critique également au seuil des transitions des courbes de $R(T)$. L'incertitude $\delta\alpha$ autour de la valeur de α est donnée par :

$$\delta\alpha = \frac{\delta\Delta_{opt}}{T_c} + \frac{\Delta_{opt}\delta T_c}{T_c^2}$$

On donne en figure 5.6 l'évolution de ce ratio en fonction de l'épaisseur des échantillons.

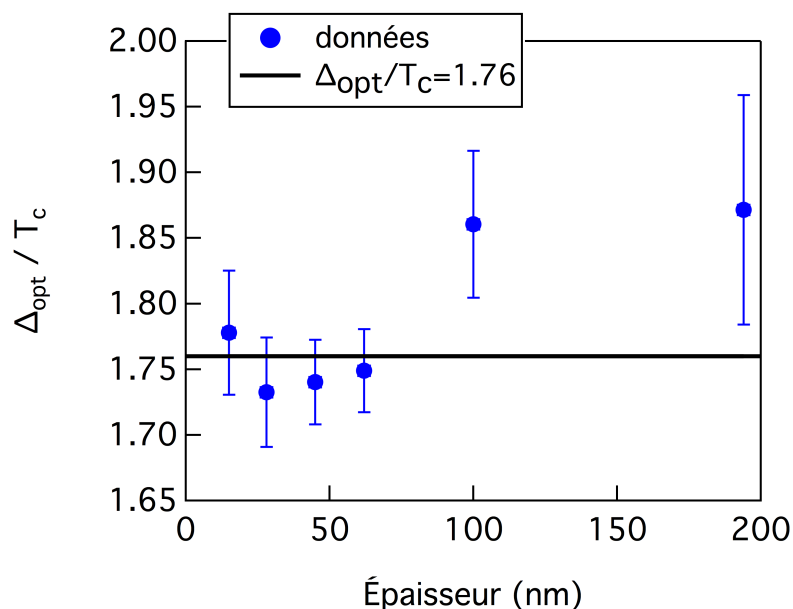


FIGURE 5.6 – Évolution du ratio Δ_{opt}/T_c en fonction de l'épaisseur des échantillons. La ligne noire représente la valeur de ce ratio extrait de la littérature : 1.76.

Dans les barres d'erreur, il semblerait que les films les plus minces présentent effectivement une valeur de ratio gap sur température critique de 1.76, conformément à la littérature [24]. On ne s'explique pas les valeurs de gap élevées par rapport au gap bulk que l'on obtient pour les deux échantillons les plus épais. On peut cependant constater que les barres d'erreur sont grandes ($\alpha = 1.86 \pm 0.06$ pour l'échantillon 100 nm et $\alpha = 1.87 \pm 0.09$ pour l'échantillon 194 nm).

Pour les films les plus minces uniquement, c'est-à-dire pour $d \leq 62$ nm, on peut dire à la lecture de la courbe 5.6 que la valeur du ratio α entre gap supraconducteur et

température critique est constante, dans les barres d'erreur. **D'après Carbotte [36], page 1067, il semblerait que, lorsque α est maintenu constant à mesure que l'épaisseur du film se réduit, l'augmentation de la température critique serait liée à un durcissement des phonons. Ceci serait en accord avec l'interprétation faite lors du chapitre sur les mesures de résistivité.**

5.2 Analyse des mesures VNA en température

5.2.1 Présentation de la mesure

Dans cette partie, on s'intéresse aux mesures des résonances à l'aide du Vectorial Network Analyzer (VNA) en fonction de la température. Lorsque la température augmente, de l'énergie thermique est apportée aux détecteurs à inductance cinétique. Cela brise des paires de Cooper, modifiant la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité des détecteurs [2] (figure 5.7). On va montrer que la variation de la fréquence de résonance des détecteurs en fonction de la température $\delta f(T)$ est liée au gap supraconducteur Δ . Ceci constitue une autre technique par rapport à la spectroscopie optique pour accéder à Δ . Voyons si, comme précédemment, on retrouve pour les films minces un ratio gap sur température critique constant.

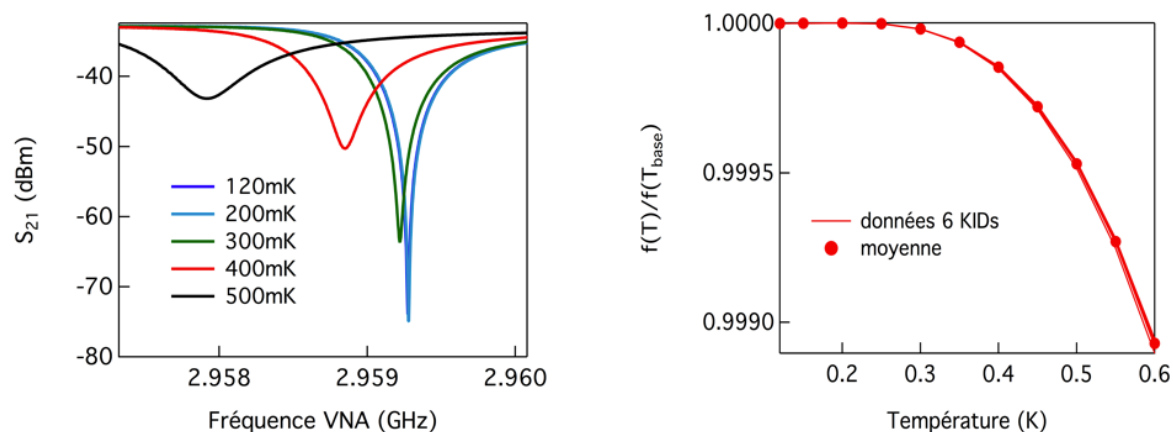


FIGURE 5.7 – Illustration de l'évolution en température de la fréquence de résonance des détecteurs. A gauche : transmission S_{21} en fonction de la fréquence du signal délivré par le VNA, à différentes températures. On observe le décalage et l'élargissement de la résonance synonymes d'une diminution de la fréquence de résonance et du facteur de qualité, respectivement. A droite : évolution en température de la fréquence de résonance normalisée par rapport à la température de base pour plusieurs détecteurs (KIDs). Les traits représentent les données de 6 KIDs et les cercles pleins la moyenne sur ces 6 KIDs.

Le gap supraconducteur que l'on extrait par les mesures VNA en température sera appelé gap radio-fréquences Δ_{RF} .

5.2.2 Méthode pour déterminer le gap radio-fréquences

On a montré dans le chapitre sur la présentation des détecteurs à inductance cinétique que le gap supraconducteur était relié à la variation de fréquence de résonance en fonction de la température. On détaille ici comment extraire le gap radio-fréquences Δ_{RF} à partir des données de $\delta f(T)$.

On a montré précédemment que la variation de fréquence $\delta f(T)$ de résonance était reliée à la variation de densité d'électrons supraconducteurs $\delta n_s(T)$ suivant :

$$\frac{\delta f(T)}{f(0)} = \frac{\alpha \delta n_s(T)}{2 n_s(0)}$$

avec α un paramètre rendant compte de la géométrie de l'inductance dont sont composés les résonateurs.

Comme vu dans le chapitre sur la présentation des détecteurs à inductance cinétique, cette relation est soumise aux conditions de limite sale et de film mince. Elles s'écrivent respectivement $l \ll \xi_0$ et $d < \lambda_{eff}$, où l est le libre parcours moyen, ξ_0 longueur de cohérence intrinsèque, d l'épaisseur et λ_{eff} la longueur de pénétration effective renormalisée par le libre parcours moyen. Vérifions l'hypothèse de limite sale de nos échantillons. On a déterminé lors du chapitre sur l'analyse des mesures de résistivité le libre parcours moyen l de nos couches. Cette grandeur varie de 5 nm environ pour le film le plus mince à 45 nm environ pour le film le plus épais. Or, la longueur de cohérence intrinsèque de l'aluminium vaut $\xi_0 = 1600 \text{ nm}$ [33]. L'hypothèse de limite sale est validée. Vérifions l'hypothèse de limite 2D pour nos échantillons. On compare l'épaisseur de nos échantillons à la longueur de pénétration effective déterminée précédemment dans le chapitre sur l'analyse des mesures $R(T)$.

d (nm)	λ_{eff} (nm)	limite 2D
15	250	oui
28	203	oui
45	168	oui
62	142	oui
100	97	non
194	82	non

Les films d'épaisseur inférieure ou égale à 62 nm peuvent être considérés comme étant

bi-dimensionnels, au contraire des films d'épaisseurs 100 nm et 194 nm. Cela correspond à ce que l'on attend, puisque pour rappel on a mesuré une température critique pour les échantillons 100 nm et 194 nm très proche de la température critique de l'aluminium bulk. Dans le cas général, pour un film d'épaisseur d quelconque, on ne peut pas relier de manière simple la variation de fréquence de résonance $\delta f(T)$ avec la variation de la densité d'électrons supraconducteurs $\delta n_s(T)$ comme pour un film mince. Cette relation découle de l'impédance de surface du supraconducteur Z_s [3], donnée dans le chapitre sur la présentation des détecteurs à inductance cinétique. Si la condition $\lambda_{eff} < d$ n'est pas vérifiée, on ne peut pas faire de développement limité pour exprimer simplement Z_s en fonction de la conductivité optique σ .

Pour déterminer le gap radio-fréquences des échantillons d'épaisseurs 100 nm et 194 nm, on considèrera qu'il s'agit de couches minces, en sachant qu'il existera une certaine erreur sur la valeur qu'on obtient.

Poursuivons la méthode permettant de déterminer le gap radio-fréquences. On a montré précédemment que [6] :

$$\frac{n_s(T)}{n_s(0)} = 1 - \int_{\Delta(T)}^{+\infty} \left(-\frac{\partial f}{\partial E}\right) \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta(T)^2}} dE$$

où f est la fonction de distribution de Fermi-Dirac telle que $f(E) = \frac{1}{1+e^{\frac{E}{k_B T}}}$.

Il reste à exprimer la dépendance en température du gap supraconducteur $\Delta(T)$. Dans le cas d'un gap isotrope s-wave, c'est-à-dire ouvert tout autour de la surface de Fermi, le gap s'exprime en fonction de la température de la façon suivante (avec une très bonne approximation de l'ordre de 1%) [37] :

$$\Delta(T) = \Delta_0 \tanh\left(\frac{\pi T_c}{\Delta_0} \sqrt{\frac{T_c}{T} - 1}\right)$$

où Δ_0 est le gap supraconducteur à température nulle. C'est ce paramètre que l'on cherche à déterminer.

Ainsi, la méthode est la suivante : on calcule la dépendance en température du gap supraconducteur en supposant que l'aluminium présente un gap isotrope s-wave. Pour ce faire, on rentre en paramètres la température critique déterminée par les mesures de $R(T)$; c'est donc un paramètre non ajustable. On rentre également en paramètre le gap à température nulle Δ_0 qui lui est un paramètre ajustable : c'est la grandeur qu'on cherche à déterminer. Puis on calcule la dépendance en température de la densité d'électrons supraconducteurs $n_s(T)$. Enfin, on calcule la dépendance en température de la variation de fréquence de résonance $\delta f(T)$ en rentrant comme paramètre α . Le coefficient α est déterminé par simulations électromagnétiques avec le logiciel Sonnet pour un échantillon. Puis,

sachant que plus l'épaisseur est grande, plus α diminue, on contraint α dans une fenêtre de valeurs. On compare nos données au modèle pour déterminer le gap à température nulle Δ_0 . Pour résumer, on rentre comme paramètres dans la modélisation :

- T_c (non ajustable) et Δ_0 (ajustable) pour calculer $\Delta(T)$ puis $n_s(T)$
- α (ajustable) pour calculer $\delta f(T)$ et relier cette quantité aux données.

5.2.3 Résultats

On donne en figure 5.8 l'évolution de la fréquence de résonance normalisée par rapport à celle à la température de base en fonction de la température, pour tous les échantillons. On modélise ces données en suivant le processus explicité précédemment pour en extraire le gap supraconducteur Δ_{RF} . On donne également dans le tableau suivant les paramètres extraits des ajustements.

d (nm)	α^{fit}	T_c (K)	Δ_{RF} (K)	Δ_{opt} (K)
15	0.95 +- 0.08	1.449	3.05 +- 0.01	2.528 +- 0.027
28	0.349 +- 0.002	1.374	2.965 +- 0.006	2.366 +- 0.027
45	0.225 +- 0.001	1.335	2.801 +- 0.010	2.309 +- 0.027
62	0.0957 +- 0.001	1.306	2.70 +- 0.01	2.259 +- 0.026
100	0.030 +- 0.001	1.219	2.48 +- 0.01	2.231 +- 0.026
194	0.021 +- 0.001	1.189	2.48 +- 0.01	2.204 +- 0.053

Les données sont la moyenne sur un certain nombre de résonateurs étudiés parmi les 10 que compte chaque échantillon : 7 résonateurs pour le film 15 nm, 7 pour le 28 nm, 8 pour le 45 nm, 8 pour le 62 nm, 7 pour le 100 nm et 6 pour le 194 nm. On peut remarquer que la modélisation pour le film d'épaisseur 15 nm n'a pu être réalisée que jusqu'à 400 mK, ce qui constitue la température la plus basse parmi tous les échantillons. Cela est surprenant a priori puisqu'il s'agit de la couche ayant la température critique la plus élevée. Les résonances devraient vraisemblablement exister jusqu'à une température minimale de $T_c/3$, donc on devrait pouvoir modéliser les données du film 15 nm jusqu'à la température la plus haute par rapport aux autres couches. On constate qu'il n'y a pas vraiment de cohérence à ce sujet puisque, pour l'échantillon 100 nm par exemple, on peut suivre la fréquence de résonance jusqu'à 500 mK alors que pour l'échantillon 194 nm, on peut la suivre jusqu'à 600 mK. On ne s'explique pas vraiment ces singularités.

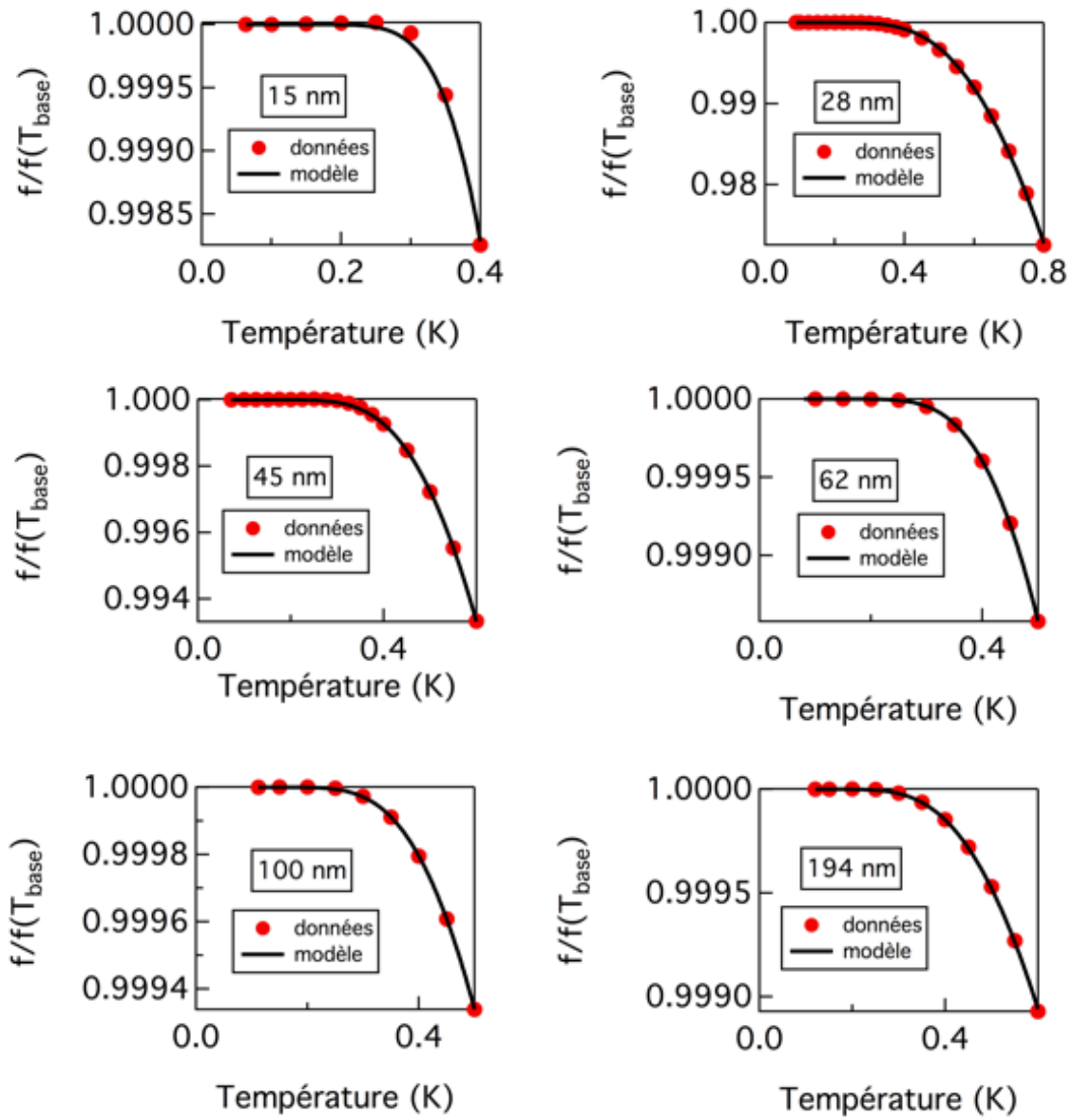


FIGURE 5.8 – Évolution de la fréquence de résonance normalisée par rapport à celle à la température de base en fonction de la température et modélisation de ces données.

On peut tracer la dépendance du gap radio-fréquences en fonction de l'épaisseur (figure 5.9).

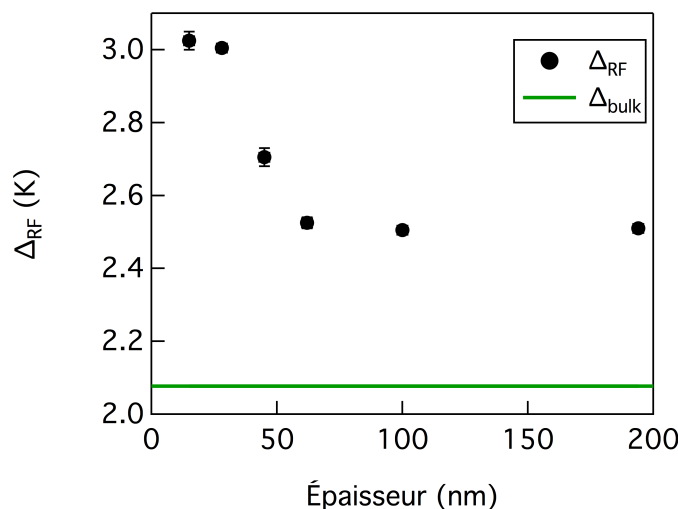


FIGURE 5.9 – Évolution du gap radio-fréquences en fonction de l'épaisseur. La ligne verte représente le gap de l'aluminium bulk dans le cas d'un couplage faible $\Delta_{bulk} = 1.76 \times T_{c,bulk}$.

Le gap radio-fréquences augmente à mesure que l'épaisseur des films diminue. Il s'agit du même comportement que celui déjà observé pour la température critique et le gap optique. Il semblerait que, à grande épaisseur, le gap radio-fréquences converge vers une valeur supérieure à celle de l'aluminium bulk. Il convient de noter que, pour extraire le gap radio-fréquences des échantillons 100 nm et 194 nm, on a appliqué une méthode a priori valable pour des films minces ($d < \lambda_{eff}$) uniquement. Il est difficile d'évaluer l'erreur sur la valeur du gap radio-fréquences obtenu pour ces deux échantillons. Pour les films plus fins remplissant parfaitement les conditions d'application du modèle, on peut avoir une plus grande confiance dans la valeur du gap radio-fréquences extrait.

On constate que le gap extrait par modélisation des données δf en fonction de la température (i.e Δ_{RF}) est différent du gap déterminé par mesures optiques (i.e Δ_{opt}), comme le montre la figure 5.10. Cela est a priori surprenant.

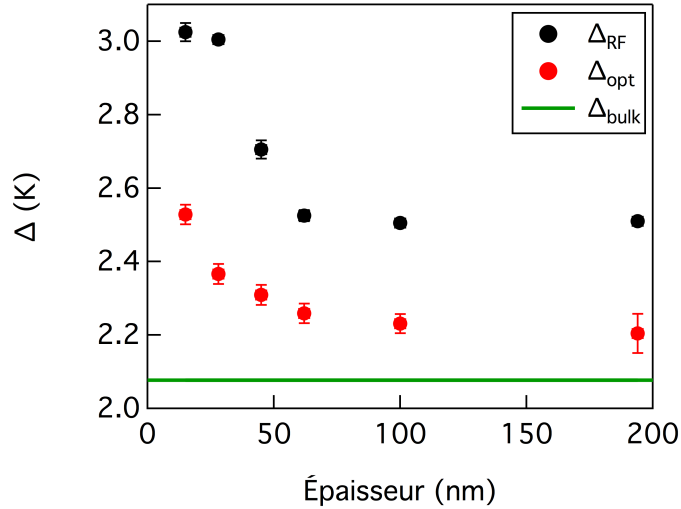


FIGURE 5.10 – Évolution du gap radio-fréquences et du gap optique en fonction de l'épaisseur. La ligne verte représente le gap de l'aluminium bulk dans le cas d'un couplage faible $\Delta_{bulk} = 1.76 \times T_{c,bulk}$.

Traçons à présent l'évolution du rapport Δ_{RF}/T_c en fonction de l'épaisseur d . On obtient la figure 5.11. On constate que, dans les barres d'erreur, on peut considérer Δ_{RF}/T_c comme constant en fonction de l'épaisseur. Bien que les valeurs des gaps soient différentes, il semblerait donc que l'on conserve le caractère constant du ratio gap sur température critique en fonction de d pour les couches les plus minces. On peut mener pour le gap radio-fréquences le même raisonnement que pour le gap optique. **Le fait d'avoir un rapport Δ/T_c constant indiquerait d'après Carbotte [36], page 1067, que l'origine de l'augmentation de T_c dans l'aluminium serait un durcissement de phonons. Cela va dans le sens des conclusions précédentes de cette étude.**

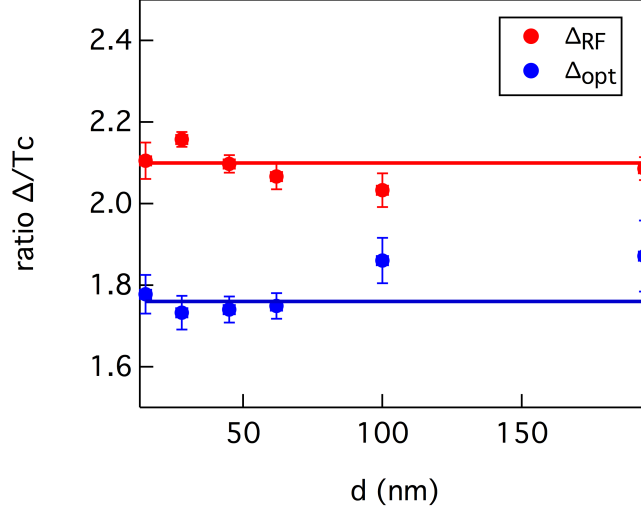


FIGURE 5.11 – Évolution du ratio gap sur température critique en fonction de l'épaisseur, pour le gap optique et le gap radio-fréquences. La ligne bleue représente la valeur du ratio dans le cas d'un couplage faible : 1.76. La ligne rouge représente un ratio de 2.1.

5.2.4 Détermination du temps de relaxation des électrons à température nulle τ_0

L'étude de l'évolution en température des résonances permet de déterminer, outre le gap supraconducteur Δ , le temps de relaxation des électrons à température nulle τ_0 . Le facteur de qualité interne du résonateur Q_i est relié à la variation de sa fréquence de résonance δf suivant [4] :

$$\frac{1}{Q_i(T)} = -8\pi\tau_0\delta f(T)$$

Cette relation est soumise à la condition $\omega\tau_0 \ll 1$, avec $\omega = 2\pi f$ la pulsation de résonance. Pour rappel, on a montré lors du chapitre sur les mesures de résistivité que l'on obtenait des valeurs de τ dans l'état normal de l'ordre de quelques fs. Il s'agit du même ordre de grandeur que pour le matériau TiN étudié dans un article de P. Diener [4]. Ici, il faut comparer ω avec τ_0 . Considérons qu'on a effectivement $\omega\tau_0 \ll 1$, puis déterminons τ_0 pour confirmer si l'hypothèse est validée ou non. On donne en figure 5.12 un exemple de détermination du temps de relaxation des électrons à température nulle en traçant l'évolution de $1/Q_i(T)$ en fonction de $-\delta f(T)$ pour un résonateur d'un échantillon.

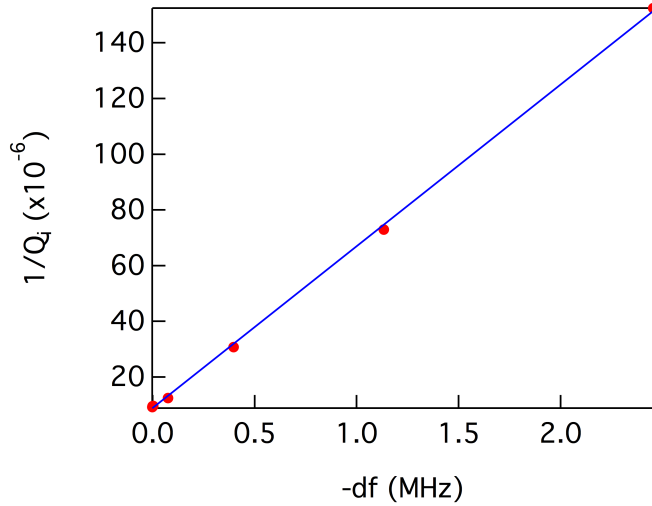


FIGURE 5.12 – Évolution en fonction de l'opposé de la variation de fréquence de résonance de l'inverse du facteur de qualité interne. La détermination de la pente, qui vaut $8\pi\tau_0$, permet d'extraire le temps de relaxation des électrons à température nulle.

Pour chaque échantillon, on fait l'étude sur l'ensemble des résonateurs possibles puis on fait la moyenne pour déterminer τ_0 . Il arrive que l'on ne dispose pas assez de points pour extraire la valeur de τ_0 de manière satisfaisante car il est parfois difficile de modéliser les résonances à des températures pour lesquelles la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité interne varient sensiblement. Pour certains échantillons, la moyenne porte sur une dizaine de résonateurs étudiés, pour d'autres sur quelques résonateurs.

On constate par ailleurs que le temps de relaxation des électrons à température nulle dépend de la puissance du courant de lecture délivré par le Vectorial Network Analyzer (VNA), comme le montre la figure 5.13 que l'on a obtenue. Plus la puissance est élevée, plus τ_0 est faible. Cela correspond à ce que l'on attend puisque, plus l'intensité du courant qui circule dans le résonateur est élevée, plus la durée entre deux collisions successives d'un électron est courte.

La courbe 5.13 ne permet malheureusement pas de se faire une idée sur l'évolution en fonction de l'épaisseur de τ_0 . On aurait aimé relier cette information avec la dépendance en d de τ , temps de relaxation dans l'état normal, qui pour rappel diminue à mesure que l'épaisseur du film se réduit (c.f chapitre sur les mesures de résistivité). Il aurait été souhaitable de comparer les évolutions pour constater si elles sont identiques ou non, l'idée étant de discuter du taux de désordre en fonction de l'épaisseur. On peut en revanche constater que les valeurs de τ_0 sont de l'ordre de quelques ps, tout comme la valeur obtenue par Diener dans son échantillon de TiN [4]. De plus, un temps de relaxation de quelques ps est tout-à-fait conforme aux supraconducteurs conventionnels [5], c'est-à-dire obéissant à la théorie BCS, comme c'est le cas de l'aluminium [24]. Notons enfin que l'hypothèse $\omega\tau_0 \ll 1$ est vérifiée puisque $\omega\tau_0 \simeq 10^{-3} - 10^{-2}$.

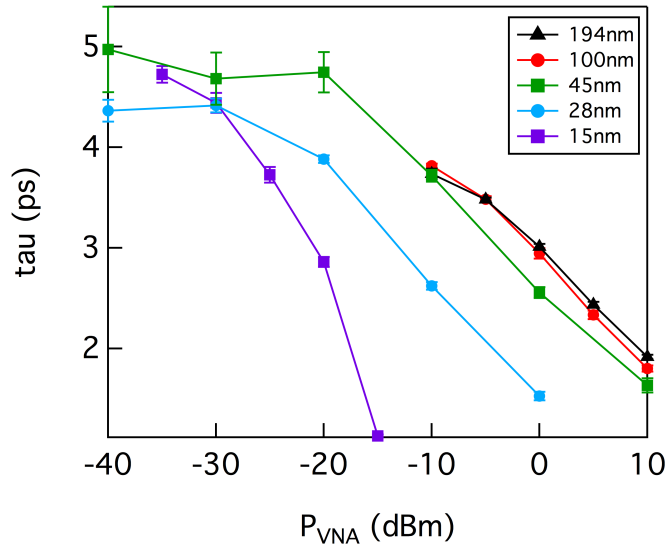


FIGURE 5.13 – Évolution en fonction de la puissance du courant envoyé par le VNA du temps de relaxation des électrons à température nulle.

Conclusion Par des techniques combinées de mesures de résistivité et de spectroscopie optique, on apporte un éclairage sur l'augmentation de la température critique dans nos couches minces d'aluminium. Grâce à une analogie entre le modèle de Ivry [31] et la formule de McMillan [18], on interprète ce phénomène comme étant lié à un durcissement des phonons, ce qui ne constitue pas une explication habituellement citée. L'amollissement des phonons est souvent le mécanisme mis en avant [22, 20, 21, 23]. De plus, le caractère constant du rapport gap supraconducteur sur température critique en fonction de l'épaisseur est, d'après Carbotte [36], un indice supplémentaire en faveur d'un durcissement des phonons.

Troisième partie

Étude des excitations sous le gap dans des systèmes désordonnés

Chapitre 6

Étude des excitations sous le gap dans l'oxyde d'indium

Introduction Ce chapitre s'appuie sur l'article *Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators* de O. Dupré, A. Benoît, M. Calvo, A. Catalano, J. Goupy, C. Hoarau, T. Klein, K. Le Calvez, B. Sacépé, A. Monfardini et F. Lévy-Bertrand, publié pendant cette thèse dans le journal *Superconductor Science and Technology* **30** 045007 [11]. L'article ainsi que son Supplementary Material sont visibles en annexe A.

On sait que, dans un supraconducteur, le spectre en énergie du condensat des paires de Cooper a un gap 2Δ qui est l'énergie minimale nécessaire pour exciter le condensat. En principe, seuls des photons avec une énergie $h\nu > 2\Delta$ peuvent exciter le condensat en brisant des paires de Cooper et créant ainsi des quasi-particules dans le matériau. De manière inattendue, on a observé dans des systèmes désordonnés, à savoir l'oxyde d'indium et l'aluminium granulaire, des pics d'absorption de photons avec une énergie de l'ordre de la dizaine de GHz, très inférieure à 2Δ . Dans ce chapitre, on apporte une explication à ce phénomène en s'appuyant sur des mesures faites dans l'oxyde d'indium.

6.1 Présentation de l'échantillon d'oxyde d'indium de cette étude

6.1.1 Introduction générale sur le matériau oxyde d'indium InOx

L'oxyde d'indium est un matériau qui, suivant son taux de désordre, présente un comportement supraconducteur ou isolant [38, 39]. Dans l'article [38], les échantillons les plus purs présentés sont supraconducteurs pour $T \leq T_c \simeq 3 K$. Lorsque le système devient plus désordonné, la température critique diminue, jusqu'à un taux de désordre critique où le matériau devient isolant [38, 39].

6.1.2 Caractéristiques de l'échantillon

L'échantillon d'oxyde d'indium de cette étude a une épaisseur de 50 nm. Les mesures de résistivité, visibles sur la figure 6.1, ont révélé une température critique T_c de 2.8 K et une résistance par carré R_s au-dessus de T_c (à 5 K) de 1870 Ω /carré. La résistance par carré à 300 K est de 710 Ω /carré. Il convient de noter le comportement isolant de l'oxyde d'indium dans l'état normal : la résistivité au-dessus de la température critique diminue à mesure que la température augmente.

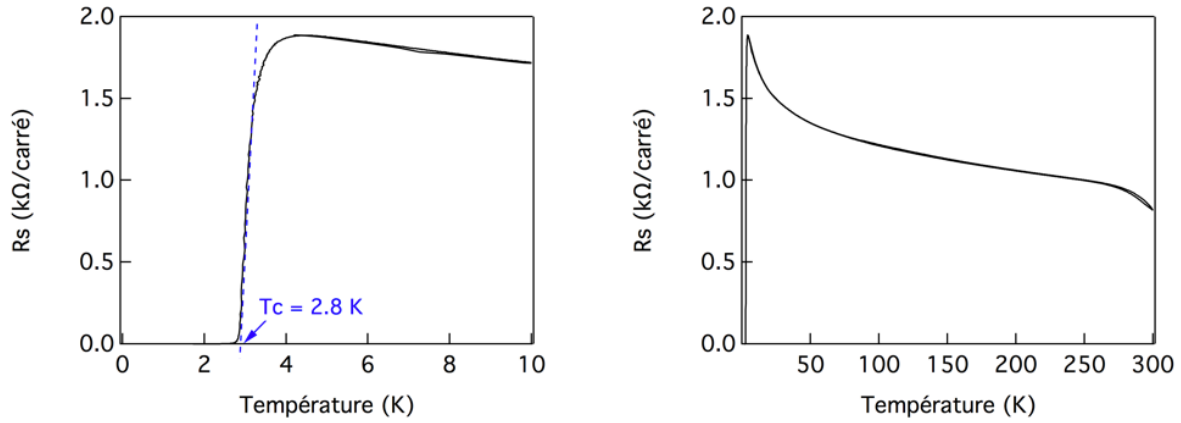


FIGURE 6.1 – Résistance par carré en fonction de la température pour l'échantillon d'oxyde d'indium étudié. La température critique T_c est de 2.8 K et la résistance par carré à 5 K est de 1870 Ω /carré. Les mesures ont été réalisées par notre collaborateur B. Sacépé.

Le gap supraconducteur a été déterminé par des mesures de spectroscopie à effet tunnel [38] sur un échantillon d'oxyde d'indium très similaire à celui de cette étude. Les caractéristiques de l'échantillon mesuré par effet tunnel sont : $T_c = 2.7 K$ et $R_s(300 K) = 700 \Omega$ /carré. On donne en figure 6.2 les mesures de conductance sur cet échantillon réalisées par notre collaborateur Benjamin Sacépé. Après modélisation des données par la densité d'états BCS d'un gap s-wave, c'est-à-dire ouvert tout autour de la surface de Fermi, on extrait le gap supraconducteur $\Delta_{tunnel} = 550 \mu eV \simeq 130 GHz$, soit $2\Delta_{tunnel} \simeq 260 GHz$.

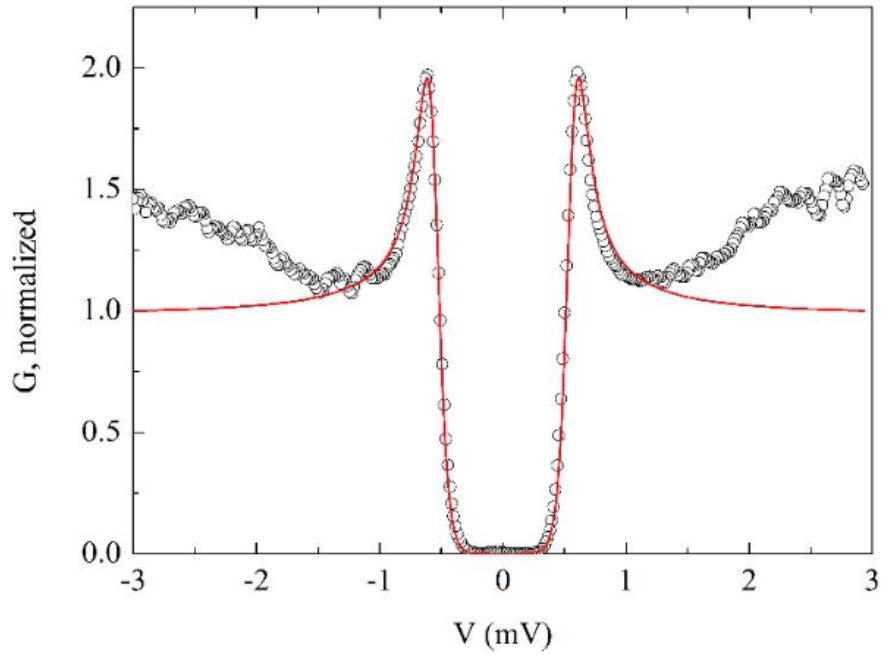
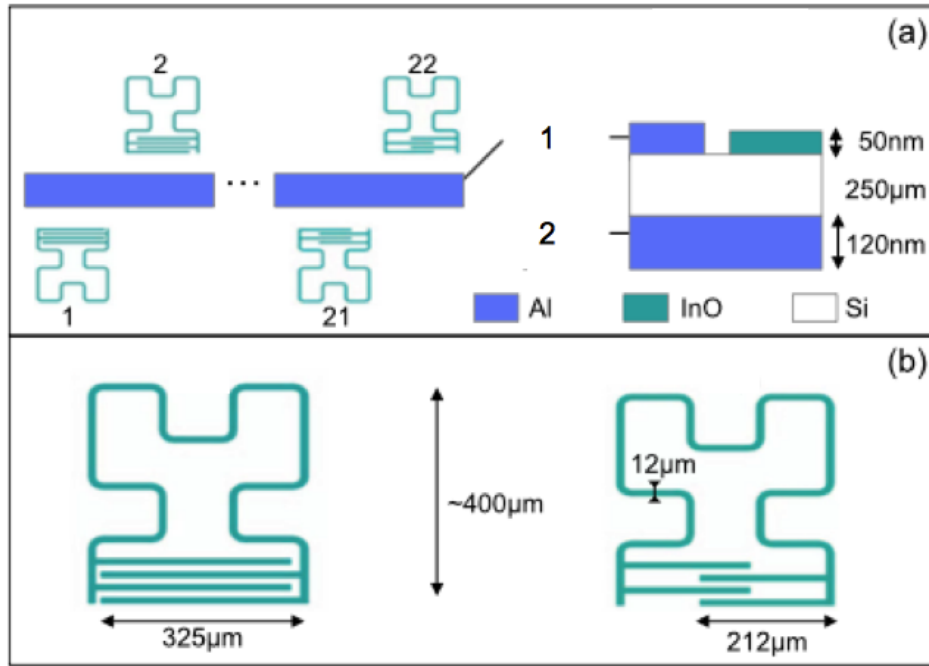


FIGURE 6.2 – D’après le *Supplementary Material* de l’article [38] : conductance tunnel différentielle (cercles ouverts) et modèle BCS permettant d’extraire la valeur du gap : $\Delta_{\text{tunnel}} = 550 \mu\text{eV} \simeq 130 \text{ GHz}$.

Présentation des résonateurs en oxyde d’indium Notre échantillon contient 22 résonateurs dont la longueur des doigts de capacité varie de $10 \mu\text{m}$ environ d’un résonateur à l’autre. On représente sur la figure 6.3 la structure des résonateurs ainsi que deux résonateurs particuliers : celui dont la longueur totale est la plus grande et celui dont la longueur totale est la plus petite.



1 : ligne de lecture
 2 : plan de masse

FIGURE 6.3 – D’après la référence [11], panel a) : schématisation des 22 résonateurs couplés à la même ligne de lecture et vue de côté de la structure de l’échantillon. Panel b) : représentation du résonateur le plus long à gauche et du résonateur le plus court à droite.

6.2 Mise en évidence des excitations sous le gap

6.2.1 Spectre Martin-Puplett

On donne en figure 6.4 le spectre Martin-Puplett obtenu pour des résonateurs fabriqués en oxyde d’indium, par comparaison avec le spectre de résonateurs fabriqués en aluminium d’épaisseur 15 nm. La courbe est une moyenne sur plusieurs résonateurs. On a pointé sur ces graphes la position du double du gap supraconducteur 2Δ pour chaque échantillon. Pour InOx, le double du gap déterminé par effet tunnel [29] vaut $2\Delta_{tunnel} \simeq 260 \text{ GHz}$. Pour l’aluminium, le double du gap est défini comme étant la fréquence minimale des photons pour laquelle on observe une variation de fréquence de résonance des résonateurs. **On constate à la lecture de ces courbes que, pour InOx, il y a modification de la fréquence de résonance pour des photons ayant une énergie inférieure au double du gap supraconducteur 2Δ , contrairement à l’aluminium.** Il convient de noter que le double du gap déterminé par effet tunnel se

trouve dans l'intervalle de fréquences des photons où on observe sur le spectre MP un changement de pente, à savoir $200 \text{ GHz} \leq h\nu \leq 300 \text{ GHz}$.

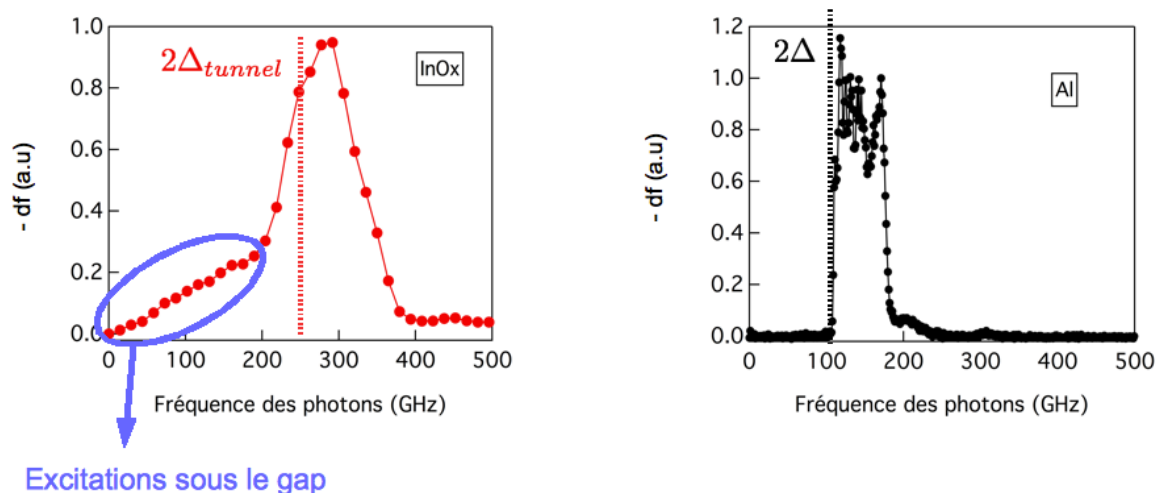


FIGURE 6.4 – Spectres Martin-Puplett des échantillons d’InOx (à gauche) et d’aluminium (à droite). On constate pour InOx une variation de fréquence de résonance sous le gap supraconducteur, contrairement à l’aluminium.

Commentaire sur le gap supraconducteur dans InOx Par ailleurs, il semblerait d’après [38] que le gap supraconducteur de l’oxyde d’indium déterminé par effet tunnel varie peu sous l’effet du désordre, comparativement à la température critique. Le ratio Δ/T_c ne serait apparemment pas constant en fonction du taux de désordre [38, 40]. On résume dans un tableau les caractéristiques des différents échantillons étudiés par B. Sacépé dans l’article [38].

T_c (K)	Δ_{tunnel} (μeV)	Δ_{tunnel} (K)	$\frac{\Delta_{tunnel}}{T_c}$	$2\Delta_{tunnel}$ (GHz)
2.8	550	6.4	2.3	265
1.7	490 ± 42	5.7 ± 0.5	3.3 ± 0.3	235 ± 20
1.2	465 ± 65	5.4 ± 0.8	4.5 ± 0.6	225 ± 30

On a mesuré à l’interféromètre de Martin-Puplett un autre échantillon d’oxyde d’indium que celui présenté jusqu’ici, dont la température critique et la résistance par carré à 300 K sont respectivement égales à 1.6 K et $8 \text{ k}\Omega / \text{carré}$. Les mesures de résistivité ont été réalisées par B. Sacépé. On donne en figure 6.5 les spectres Martin-Puplett obtenus pour les deux échantillons.

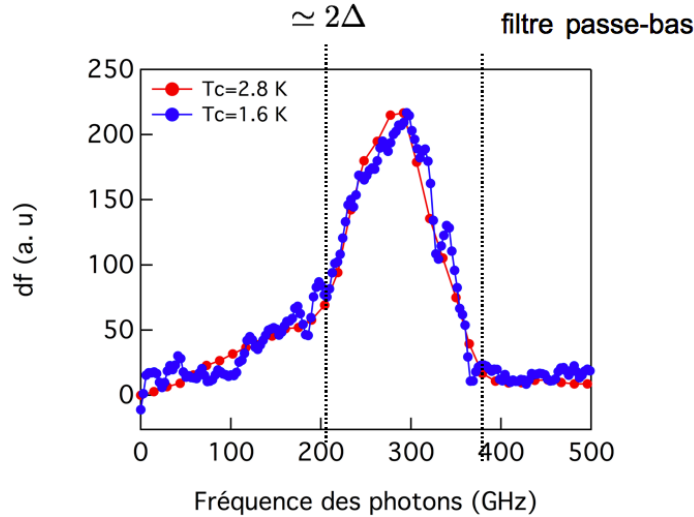


FIGURE 6.5 – Spectres Martin-Puplett des échantillons d’InOx : en bleu l’échantillon avec $T_c = 1.6\text{ K}$ et en rouge l’échantillon avec $T_c = 2.8\text{ K}$. La position du double du gap supraconducteur 2Δ est représentée en traits pointillés. Les valeurs de 2Δ sont très proches alors que les caractéristiques (T_c , R_s) des deux échantillons sont très différentes.

On constate que les spectres sont quasiment superposés. Si on estime le double du gap supraconducteur comme correspondant à la fréquence des photons pour laquelle on observe un changement de pente sur les courbes, alors les valeurs de 2Δ sont très proches d’un échantillon à l’autre, bien que les caractéristiques (T_c , R_s) soient très différentes. Ceci est cohérent avec l’observation faite par B. Sacépé sur ses mesures du gap par effet tunnel. Cela laisse penser que l’oxyde d’indium n’est pas un supraconducteur conventionnel, c’est-à-dire obéissant à la théorie BCS, puisqu’il semble qu’il n’existe pas de relation de proportionnalité entre gap et température critique.

Revenons à l’analyse des excitations sous le gap supraconducteur. La résolution en fréquence de l’interféromètre de Martin-Puplett est de 1 GHz environ. On souhaite sonder avec une plus grande résolution la partie de la courbe sous le gap supraconducteur pour caractériser ces excitations dans InOx. Pour cela, on utilise une antenne radio-fréquences.

6.2.2 Mesures avec l’antenne radio-fréquences

L’antenne radio-fréquences placée devant le cryostat illumine les résonateurs. Il est possible de régler la fréquence ainsi que la puissance des photons délivrés par l’antenne. On étudie le comportement des résonateurs face à cette illumination en mesurant l’évolution des résonances au Vectorial Network Analyzer (VNA).

Pour la suite, on appelle f_{VNA} la fréquence du courant d’excitation délivré par le VNA et ν la fréquence des photons délivrés par l’antenne. La figure 6.6 montre deux types de mesures complémentaires réalisées avec l’antenne radio-fréquences. On s’intéresse à

l'évolution de la résonance d'un résonateur choisi. A gauche, on représente l'évolution de la transmission $|S_{21}|$ en fonction de la fréquence f_{VNA} , pour différentes fréquences d'illumination ν de l'ordre de 7.5 GHz, donc très inférieures à deux fois le gap supraconducteur : $2\Delta_{opt} \simeq 250 \text{ GHz}$. On remarque que la résonance est modifiée seulement pour une fréquence ν prenant une valeur très particulière, que l'on appelle $\nu_{detectee}$. A droite, on représente l'évolution de la transmission $|S_{21}|$ en fonction de la fréquence d'illumination ν , en fixant la fréquence f_{VNA} à la fréquence de résonance fondamentale (i.e non perturbée, pointée par un trait gris vertical sur le panel de gauche) du résonateur que l'on étudie ici. On constate à la lecture de cette courbe que le pic d'absorption est très fin, si bien qu'on peut dire que $\nu_{detectee} = 7.511 \pm 0.003 \text{ GHz}$. Si on appelle $d\nu$ la largeur du pic, on peut estimer le pouvoir de résolution de la détection par ce résonateur des photons de fréquence 7.511 GHz, défini par :

$$R_{res} = \frac{\nu}{d\nu}$$

Alors $R_{res} = \frac{7.511}{0.003} \simeq 2500$.

Les mesures avec l'antenne radio-fréquences mettent en évidence l'absorption par un résonateur en InOx de photons ayant une énergie très inférieure au gap supraconducteur. Par ailleurs, la faible largeur du pic d'absorption ($d\nu = 0.003 \text{ GHz}$), conduisant à un pouvoir de résolution élevé ($R_{res} \simeq 2500$), montre que la détection de ces photons particuliers est très sélective en énergie.

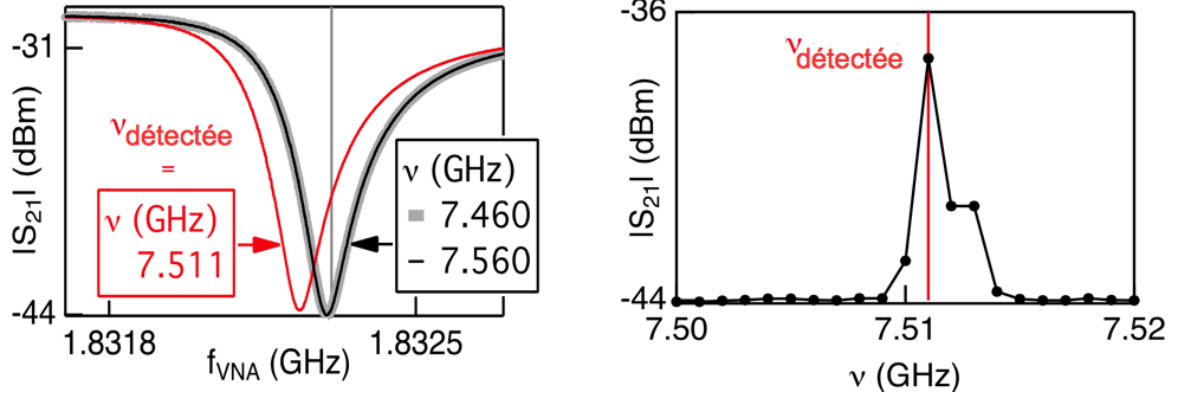


FIGURE 6.6 – D’après la référence [11] : mesures optiques réalisées avec l’antenne radio-fréquences sur un résonateur en InOx. Panel de gauche : évolution de la transmission $|S_{21}|$ en fonction de la fréquence f_{VNA} , pour différentes fréquences d’illumination ν autour de 7.5 GHz. Panel de droite : évolution de la transmission $|S_{21}|$ en fonction de la fréquence d’illumination ν , avec la fréquence f_{VNA} fixée à la fréquence de résonance fondamentale (i.e non perturbée, pointée par un trait gris vertical sur le panel de gauche) du résonateur choisi.

6.3 Explication du mécanisme de détection de photons d’énergie $h\nu \ll 2\Delta$

6.3.1 Modes de résonances

Dans des supraconducteurs en couches minces, des plasmons de surface ont été prédits et observés [42, 43, 41]. Il s’agit d’oscillations du courant d’électrons supraconducteurs à des vecteurs d’onde k_n quantifiés selon :

$$k_n = n \frac{2\pi}{l}$$

où n est un entier indiquant l’ordre du mode d’oscillation et l la longueur de la couche mince supraconductrice.

La fréquence ω_n du mode d’oscillation d’ordre n est aussi appelée fréquence du mode de résonance d’ordre n ou fréquence de la n^{eme} harmonique.

La figure 6.7 illustre les modes de résonances, en prenant comme exemple simple une corde fixée à ses deux extrémités. Le mode $n=1$ (1er ordre) correspond au mode où il y a 0 noeud ; le 2ème ordre correspond au mode où il y a 1 noeud etc...

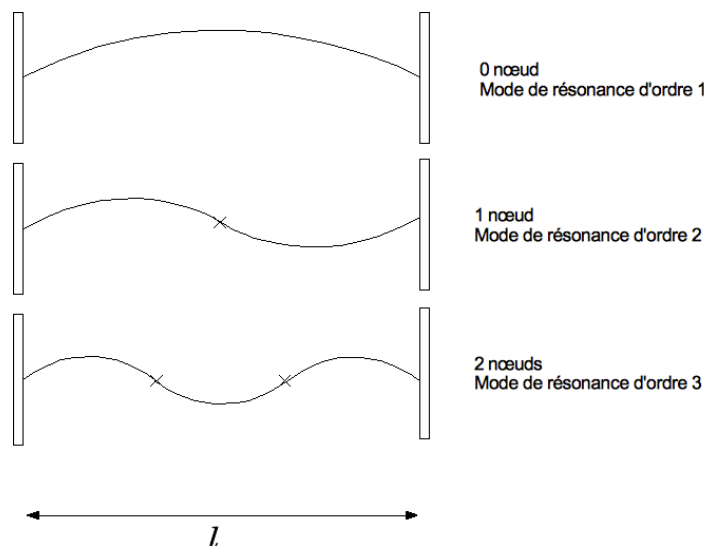


FIGURE 6.7 – Illustration des modes de résonances avec l'exemple d'une corde de longueur l fixée à ses deux extrémités.

Le courant qui circule dans les résonateurs est distribué de plusieurs manières selon le mode de résonance. Le panel du haut de la figure 6.8 montre trois distributions de courant, déterminées par simulations électromagnétiques grâce au logiciel Sonnet. La couleur rouge indique les zones où l'intensité du courant est maximale tandis que la couleur bleue les zones où l'intensité du courant est minimale. Le bleu correspond donc aux noeuds de courant introduits précédemment grâce à l'exemple de la corde. Le 1er ordre, c'est-à-dire le mode de résonance où la distribution du courant ne présente pas de noeuds, correspond au mode de résonance fondamental. Le panel du bas de la figure 6.8 montre les résonances associées à chaque mode de distribution du courant, mesurées au Vectorial Network Analyzer (VNA). Pour un mode de résonance donné, il y a la résonance associée à chaque résonateur fonctionnel parmi les 22 résonateurs de notre échantillon d'oxyde d'indium. On peut voir par exemple pour le mode fondamental 20 résonances, indiquant que 20 des 22 résonateurs sont fonctionnels. On a pointé avec une flèche rouge la résonance étudiée lors de la section précédente sur les mesures avec l'antenne radio-fréquences.

Pour rappel, on a montré dans la section précédente que le résonateur qu'on a choisi absorbait des photons de fréquence $\nu_{detectee} = 7.511 \text{ GHz}$. **A la lecture du panel inférieur de la figure 6.8, on constate que cette fréquence d'illumination particulière correspond à la fréquence de résonance de la troisième harmonique, comme le montre le spectre VNA représentant les résonances d'ordre 3.**

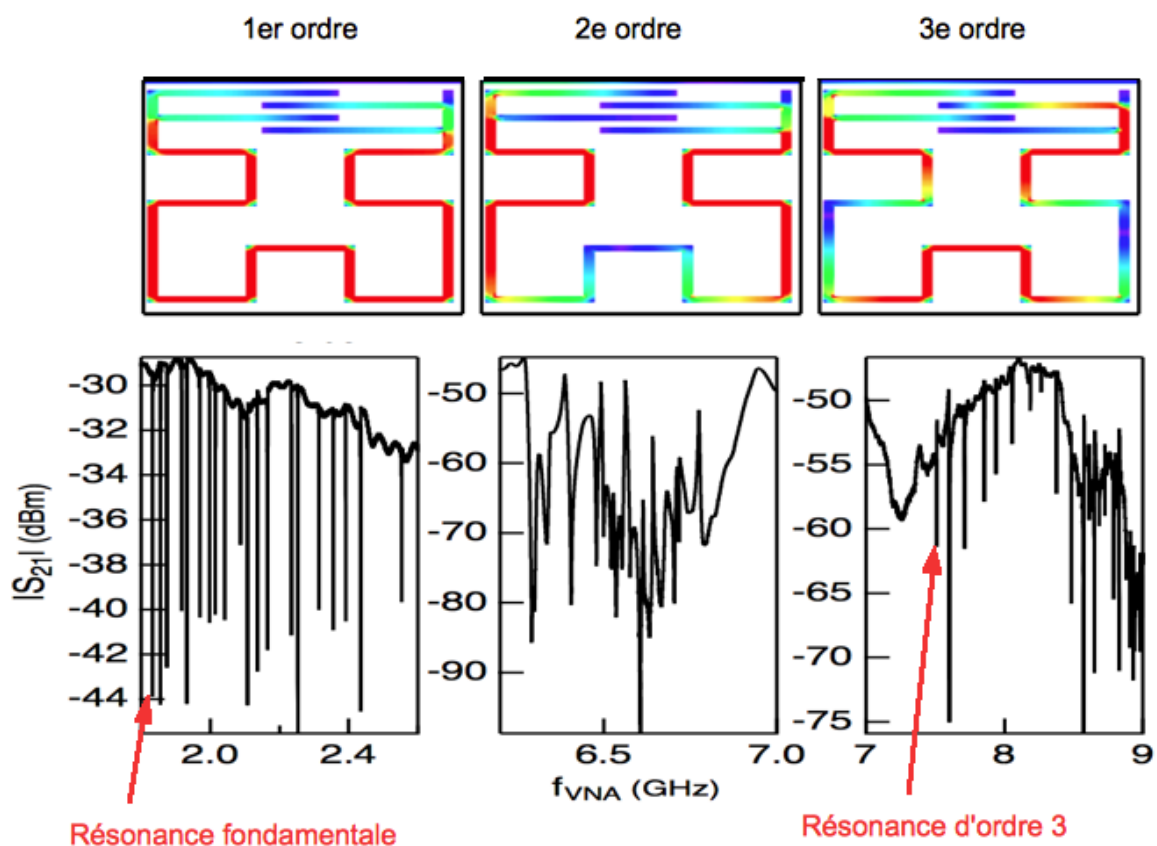


FIGURE 6.8 – Panel du haut : modes de distribution du courant pour un résonateur. Ces résultats ont été obtenus par simulations électromagnétiques avec le logiciel Sonnet. La couleur rouge indique les zones où l'intensité du courant est maximale tandis que la couleur bleue indique les zones où l'intensité du courant est minimale : les noeuds. Chaque distribution de courant est associée à un mode de résonance. Panel du bas : mesures au VNA des résonances de tous les résonateurs fonctionnels de l'échantillon, pour chaque mode de résonance. On a pointé la résonance fondamentale du résonateur étudié jusqu'ici et on montre que la fréquence des photons pour laquelle on observe une modification de la fréquence de résonance, à savoir $\nu_{detectee} = 7.511 \text{ GHz}$, correspond à la fréquence de résonance d'ordre 3.

On va maintenant confirmer la correspondance entre fréquence de photons détectés et fréquence de résonance d'ordre 3 en nous intéressant à d'autres résonateurs du même échantillon.

6.3.2 Lien entre longueur du résonateur et fréquence des photons détectés

Le panel de droite de la figure 6.9 montre la correspondance entre la fréquence de photons détectés et la fréquence de résonance de la troisième harmonique pour 11 résonateurs différents. La fréquence de photons détectés est obtenue par des mesures avec l'antenne radio-fréquences. La fréquence de résonance de la troisième harmonique est mesurée au Vectorial Network Analyzer, qui pour rappel est limité à la fréquence de 9 GHz. Le panel de gauche de la figure 6.9 rappelle la structure de l'échantillon ainsi que la différence de longueur entre les résonateurs. On a pointé par une flèche rouge le résonateur étudié précédemment : c'est celui dont la longueur totale est la plus grande et donc dont la fréquence de résonance est la plus basse. La figure 6.9 confirme l'observation faite précédemment pour un résonateur et indique que la fréquence de photons détectés dépend de la longueur totale du résonateur. **Il est alors possible d'ajuster la fréquence des photons que l'on souhaite détecter en jouant sur la longueur totale du résonateur.**

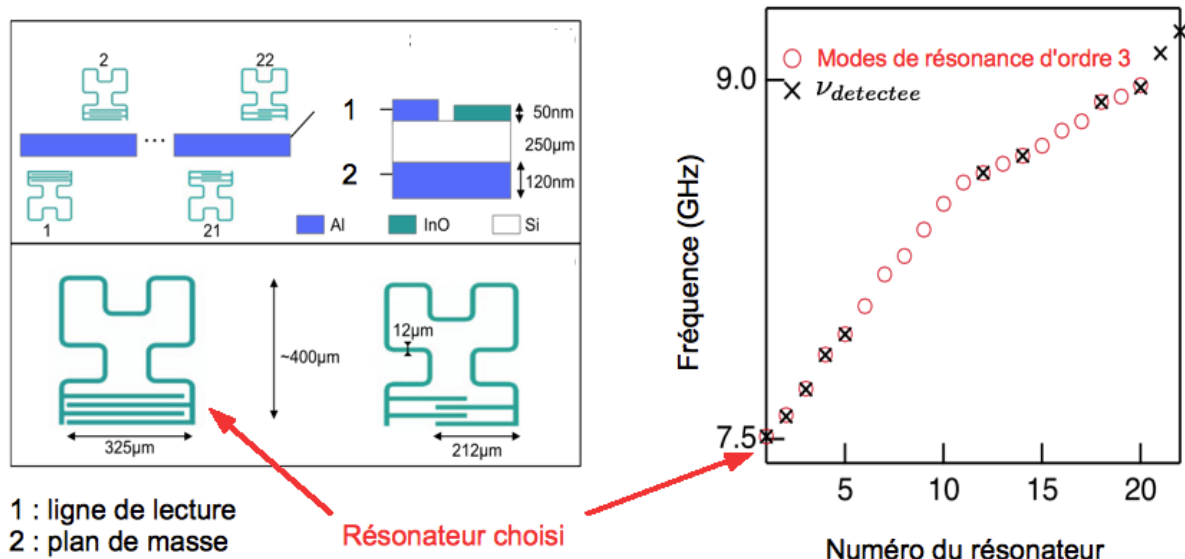


FIGURE 6.9 – D'après la référence [11] : à gauche : structure des résonateurs et illustration de la différence de longueur d'un résonateur à l'autre. À droite : correspondance entre la fréquence des photons détectés et la fréquence de résonance de la troisième harmonique pour 11 résonateurs différents.

6.3.3 Description microscopique du mécanisme d'absorption

On a montré précédemment que la fréquence des photons détectés correspondait à la fréquence de résonance de la troisième harmonique. Lorsque les photons de fréquence égale à la fréquence de résonance d'ordre 3 sont absorbés, la densité de courant superfluide J circulant dans le résonateur augmente. Cela conduit à une diminution de la densité des électrons supraconducteurs n_s . Pierre-Gilles de Gennes [44] établit la relation entre la densité de courant superfluide J circulant dans un supraconducteur et la densité superfluide. Pour illustrer, on trace en figure 6.10 l'évolution de J en fonction de la densité d'électrons supraconducteurs normalisée par rapport à sa valeur à courant nul $n_s/n_s(0)$. J_c est la densité de courant critique : pour $J \gg J_c$, la supraconductivité est détruite. Seule la partie droite de la courbe existe physiquement. On constate que lorsque la densité de courant superfluide J circulant dans le résonateur augmente, la densité d'électrons supraconducteurs n_s diminue.

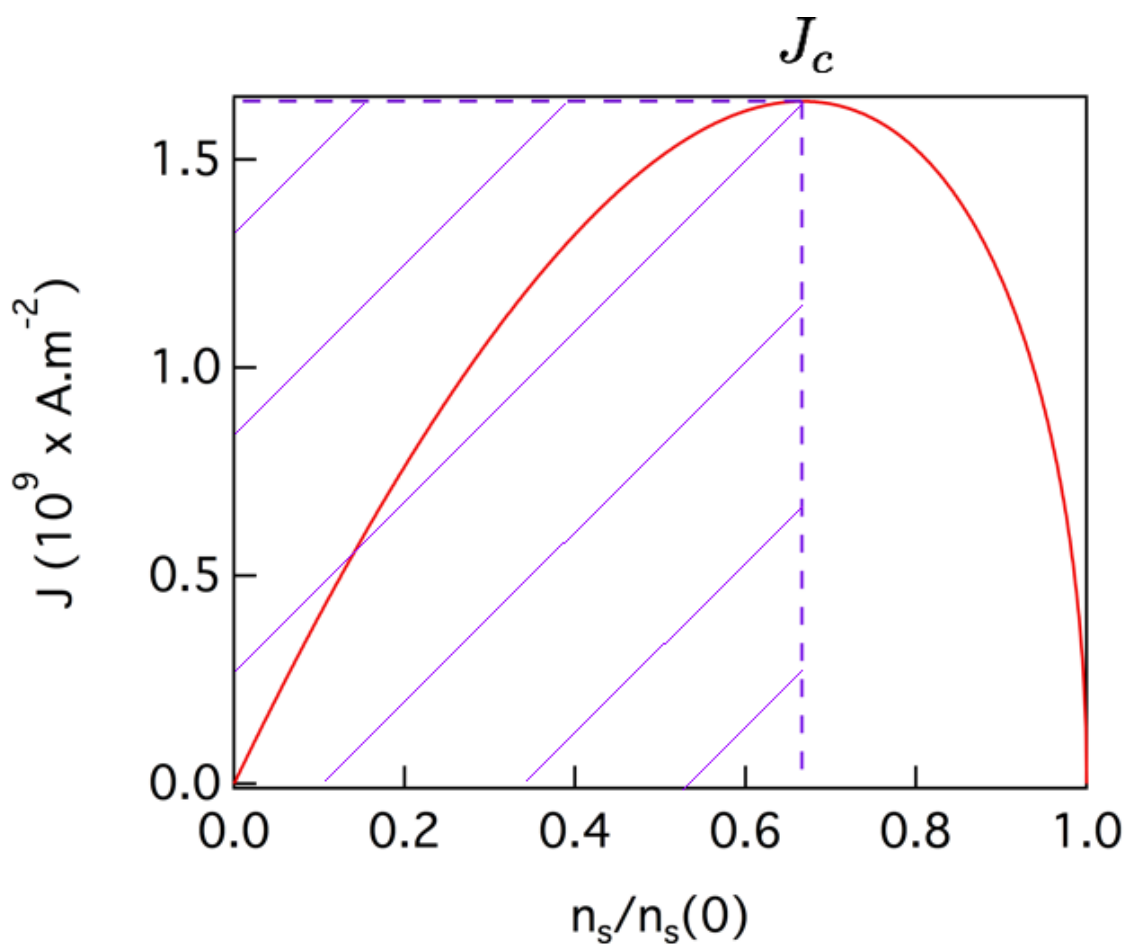


FIGURE 6.10 – *Figure adaptée de la référence [44] : évolution de la densité de courant superfluide J circulant dans un supraconducteur en fonction de la densité superfluide normalisée par rapport à sa valeur à courant nul $n_s/n_s(0)$. Seule la partie droite de la courbe, c'est-à-dire pour $J \geq J_c$ avec J_c la densité de courant critique existe physiquement. Quand J augmente, la densité d'électrons supraconducteurs n_s diminue.*

Il y a augmentation de l'inductance cinétique L_K puisque cette dernière quantité est inversement proportionnelle à n_s . Enfin la fréquence de résonance, définie pour rappel par $f_0 = \frac{1}{\sqrt{(L_K+L_G)C}}$, diminue. Ce phénomène se produit dans n'importe quel résonateur supraconducteur a priori. Alors pourquoi observe-t-on sur les spectres Martin-Puplett des excitations sous le gap dans l'oxyde d'indium et pas dans l'aluminium ?

L'inductance cinétique L_K dépend de la densité de courant circulant dans le résonateur suivant [45] :

$$L_K(J) = L_K(0)\left(1 + \left(\frac{J}{J_*}\right)^2 + \dots\right)$$

où $J_* = \left(\frac{2}{3}\right)^{3/2} J_c$ [44], avec J_c la densité de courant critique, est un facteur d'échelle du phénomène de non-linéarité de l'inductance cinétique. Il s'agit de la densité de courant minimale pour briser une paire de Cooper.

Pour estimer la valeur de J_* dans notre échantillon d'oxyde d'indium, on utilise la relation suivante [44] :

$$J_* = \frac{\hbar e n_s}{m \xi}$$

où n_s est la densité des électrons supraconducteurs à température nulle et ξ la longueur de cohérence à une température donnée. D'après [11] et [29], on estime respectivement que $n_s \simeq 10^{24} m^{-3}$ et que $\xi = 5 nm$. Il vient :

$$J_*(InOx) \simeq 4 \times 10^9 A.m^{-2}$$

Cette valeur est à comparer avec celle estimée dans l'aluminium [33] :

$$J_*(Al) \simeq 1 \times 10^{12} A.m^{-2}$$

Du fait de sa plus faible valeur de J_* due à une plus faible densité d'électrons supraconducteurs que dans l'aluminium, l'oxyde d'indium offre une plus grande sensibilité pour détecter les photons ayant une énergie $h\nu \ll 2\Delta$. Par ailleurs, lorsque le taux de désordre augmente, la densité d'électrons supraconducteurs n_s diminue et donc J_* diminue, accroissant la sensibilité. En effet, les variations d'inductance cinétique, et donc de fréquence de résonance fondamentale, sont plus importantes dans l'oxyde d'indium que dans l'aluminium. Ce phénomène de non-linéarité de l'inductance cinétique associé à l'excitation des modes de résonance d'ordre

supérieur constitue le mécanisme de détection des photons d'énergie très inférieure au gap supraconducteur dans l'oxyde d'indium.

6.4 Mesures supplémentaires

6.4.1 Influence de la puissance des photons incidents sur l'évolution des résonances

Intéressons-nous à l'influence de la puissance des photons délivrés par l'antenne sur l'évolution des résonances, lorsque la fréquence des photons correspond à la fréquence d'un mode de résonance. On montre en figure 6.11 la résonance du résonateur d'oxyde d'indium étudié jusqu'ici, à savoir celui dont la fréquence de résonance est la plus basse. L'antenne radio-fréquences délivre des photons de fréquence égale à 7.511 GHz, correspondant au 2ème mode de résonance du résonateur en question, comme montré sur la figure 6.9. On fait varier la puissance des photons incidents et on observe comment évolue la résonance. On constate que le comportement de la fréquence de résonance est standard puisqu'elle diminue à mesure que la puissance augmente. Le facteur de qualité quant à lui diminue également quand la puissance augmente, signe là encore d'un comportement standard.

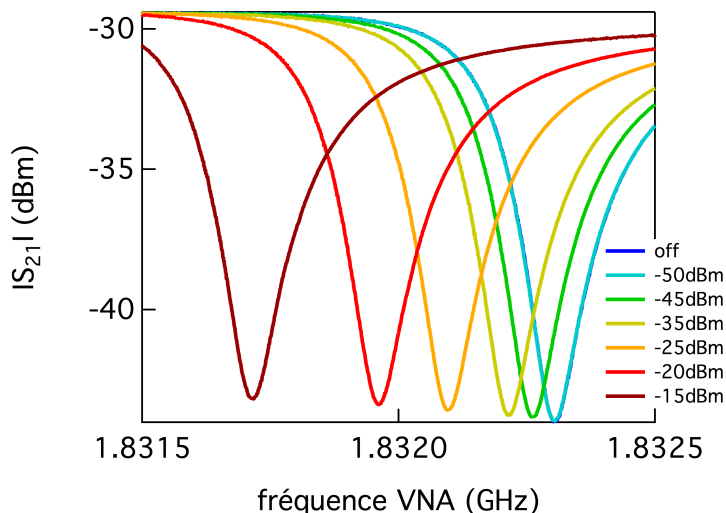


FIGURE 6.11 – Évolution de la résonance choisie sous l'effet d'une illumination de photons de fréquence correspondant au 3ème ordre de résonance, en fonction de la puissance des photons incidents. On constate que le comportement de la fréquence de résonance est standard puisqu'elle diminue à mesure que la puissance augmente. Le facteur de qualité quant à lui diminue également quand la puissance augmente, signe là encore d'un comportement standard.

6.4.2 Influence de la température sur l'évolution des résonances sous l'effet d'une illumination de photons

Ici, on reprend la même étude que précédemment mais cette fois-ci, on fixe la puissance des photons incidents et on fait varier la température. On observe l'évolution de la résonance en figure 6.12. Pour chaque température, le trait fin correspond à la résonance non illuminée et le trait épais représente la résonance lorsque l'antenne délivre des photons de fréquence correspondant au 3ème ordre de résonance du résonateur. On constate qu'à chaque température étudiée, la fréquence de résonance ainsi que la facteur de qualité diminuent sous l'effet de l'illumination par les photons. Ceci constitue un comportement standard.

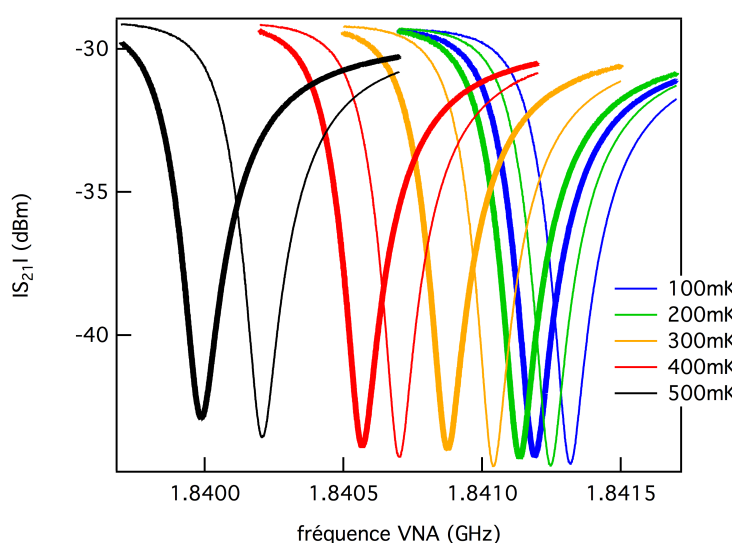


FIGURE 6.12 – Évolution de la résonance choisie en fonction de la température. Pour chaque température, le trait fin correspond à la résonance non illuminée et le trait épais représente la résonance lorsque l'antenne délivre des photons de fréquence correspondant au 3ème ordre de résonance du résonateur.

6.4.3 Influence de l'orientation de l'antenne

On reprend la même étude mais cette fois on fixe la température à 100 mK et la puissance des photons délivrés par l'antenne. On s'intéresse à l'influence de la polarisation du champ électrique porté par les photons délivrés par l'antenne sur l'évolution de la résonance. Pour cela, on oriente l'antenne placée devant le cryostat de trois manières différentes : telle que le champ \vec{E} soit parallèle à la ligne de transmission, telle que le champ \vec{E} soit à 45 degrés de la ligne de transmission et telle que le champ \vec{E} soit perpendiculaire à la ligne de transmission. On présente les résultats en figure 6.13. Quelle

que soit la polarisation de \vec{E} , la fréquence de résonance diminue. La variation de f est maximale lorsque le champ est perpendiculaire à la ligne de transmission.

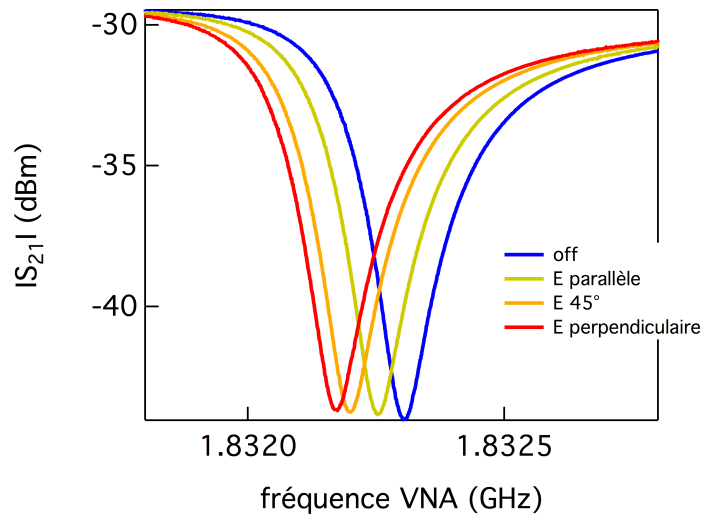


FIGURE 6.13 – Évolution de la résonance choisie en fonction de l'orientation de l'antenne. On illumine le résonateur choisi avec des photons de fréquence correspondant au 3ème ordre de résonance. On fixe la température et la puissance des photons délivrés par l'antenne. On observe que la fréquence de résonance diminue, quelle que soit la polarisation du champ \vec{E} . La variation de f est la plus élevée quand le champ est perpendiculaire à la ligne de transmission.

Conclusion On met en évidence dans des résonateurs d'oxyde d'indium la détection très sélective en énergie de photons ayant une énergie très inférieure au gap supraconducteur. On montre qu'il est possible d'ajuster la fréquence des photons détectés en jouant sur la longueur totale des résonateurs. On explique le mécanisme de détection en démontrant qu'il est lié à l'excitation des modes de résonance d'ordre supérieur, associée à la non linéarité de l'inductance cinétique avec le courant circulant dans le résonateur.

Chapitre 7

Étude des excitations sous le gap dans l'aluminium granulaire

Introduction Dans ce chapitre, on montre la présence de pics d'absorption sous le gap supraconducteur Δ dans des échantillons d'aluminium granulaire *GrAl*. On s'appuie sur l'article en cours de soumission *Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator : observation of collective superconducting modes* de F. Lévy-Bertrand et al dont je suis co-auteur. L'article accompagné de son Supplementary Material sont visibles en annexe B. L'aluminium granulaire est composé de grains d'aluminium pur supraconducteur de quelques nanomètres de diamètre, séparés par des barrières isolantes en oxyde d'aluminium *AlOx*. Les grains sont couplés entre eux via des jonctions Josephson. Lorsque les barrières isolantes sont trop larges pour empêcher l'établissement d'une cohérence de phase à travers l'ensemble des grains, le matériau devient isolant [46]. L'évolution de la température critique de l'aluminium granulaire T_c en fonction de sa résistivité à 300 K ρ prend la forme d'un dôme [48, 49, 47, 25, 50, 51].

Dans l'article, les pics d'absorption sont mis en évidence expérimentalement grâce à des mesures de spectroscopie optique avec l'interféromètre de Martin-Puplett. On donne en figure 7.1 les spectres obtenus sur l'ensemble des échantillons de cette étude, qu'on a numérotés de A à H, du moins résistif au plus résistif. Les mesures de résistivité présentées dans l'article révèlent que les échantillons de A à D se situent sur la partie gauche du dôme $T_c - \rho$ tandis que les échantillons de E à H se situent sur la partie droite du dôme. On distingue deux types d'excitations sous le gap supraconducteur, se produisant à des fréquences que l'on a nommées ω_p et ω_G . On suggère que ces pics d'absorption sous le gap seraient causés par des fluctuations de la phase du paramètre d'ordre, à savoir des plasmons 2D [42, 43, 41] pour ω_p et des modes de Carlson-Goldman [52, 53, 54] pour ω_G . Dans l'article, le lecteur pourra également trouver une discussion du diagramme de phases $T_c - \rho$ qui résulterait de la compétition entre différentes énergies que sont la robustesse de la phase J (= énergie Josephson), la répulsion coulombienne E_c et le gap supraconducteur Δ . Ma contribution à cette étude a consisté à réaliser une partie des mesures optiques au Martin-Puplett.

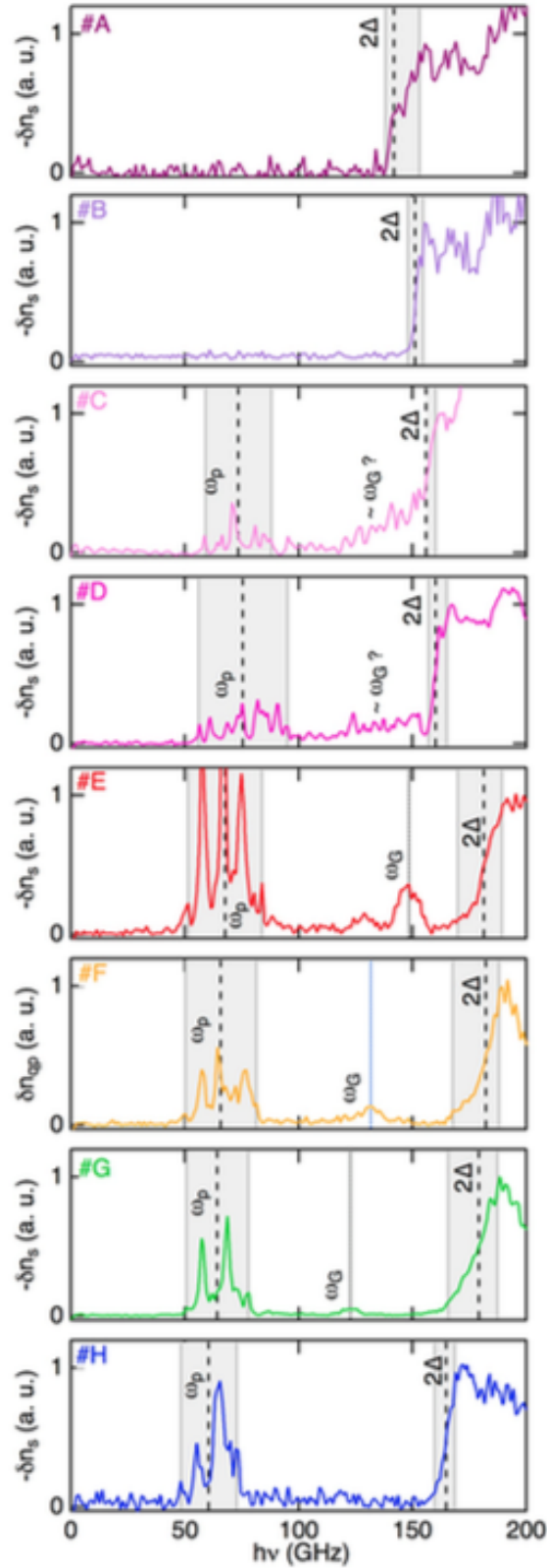


FIGURE 7.1 – Spectres Martin-Puplett des échantillons d'aluminium granulaire. On a représenté la variation de densité superfluide δn_s en fonction de l'énergie des photons incidents $h\nu$. La position du gap 2Δ ainsi que les figures d'absorption de deux sortes différentes, aux énergies ω_p et aux énergies ω_G , sont représentées par des lignes en pointillés. L'incertitude autour de ces valeurs est donnée par les zones grisées.

Dans ce chapitre, je choisis de montrer des mesures que j'ai effectuées et qui ne sont pas présentées dans l'article. Je m'intéresse de près à certains pics d'absorption visibles sur les spectres Martin-Puplett en figure 7.1. J'observe l'influence de la puissance des photons délivrés par une antenne radio-fréquences, dont la fréquence correspond aux différentes excitations étudiées, sur les résonateurs en aluminium granulaire.

7.1 Échantillon H

On s'est intéressé de plus près aux pics d'absorption sous le gap de l'échantillon H. Le panel du bas de la figure 7.2 présente les mesures faites avec une antenne radio-fréquences. On trace la variation de fréquence de résonance d'un résonateur choisi en fonction de la fréquence des photons délivrés par l'antenne, allant de 0 à 67 GHz. Dans la gamme 0-40 GHz, la puissance d'illumination est de +10 dBm tandis que dans la gamme 40-67 GHz, la puissance d'illumination est de -40 dBm. Pour comparer, on a représenté le spectre Martin-Puplett sur le panel du haut. On remarque que de nombreuses excitations sont visibles sur le panel du bas alors qu'elles n'apparaissent pas sur le spectre MP. Plusieurs raisons permettent d'expliquer ceci. D'abord, la résolution fréquentielle n'est pas identique entre les deux types de mesures : ici environ 2 GHz pour l'interféromètre et 1 MHz pour l'antenne radio-fréquences. Ensuite, la puissance des photons sortant du Martin-Puplett est plusieurs ordres de grandeur inférieure à la puissance des photons délivrés par l'antenne. Or, on a constaté expérimentalement qu'il existait une puissance minimale en dessous de laquelle on ne pouvait voir les excitations. Enfin, la détection de photons dont la fréquence est inférieure à 50 GHz est limitée à cause du faible rayonnement dans cette gamme de la source à 300 K du Martin-Puplett (voir le Supplementary Material de l'article [11]). Toutes ces raisons font que l'antenne radio-fréquences est l'instrument optique adéquat par rapport à l'interféromètre pour étudier de plus près les différents pics d'absorption.

Sur le panel du bas de la figure 7.2, on constate une augmentation de la fréquence de résonance pour certaines fréquences de photons particulières, dans la gamme 50-60 GHz notamment. Cela est le signe d'un comportement non standard. En effet dans le cas standard, lorsque les photons sont absorbés par le résonateur, la densité de courant qui y circule augmente, augmentant le nombre de quasi-particules. L'inductance cinétique augmente alors et la fréquence de résonance diminue. On va s'intéresser de plus près à cette curiosité, en étudiant différents pics pointés sur la figure 7.2 par une flèche noire.

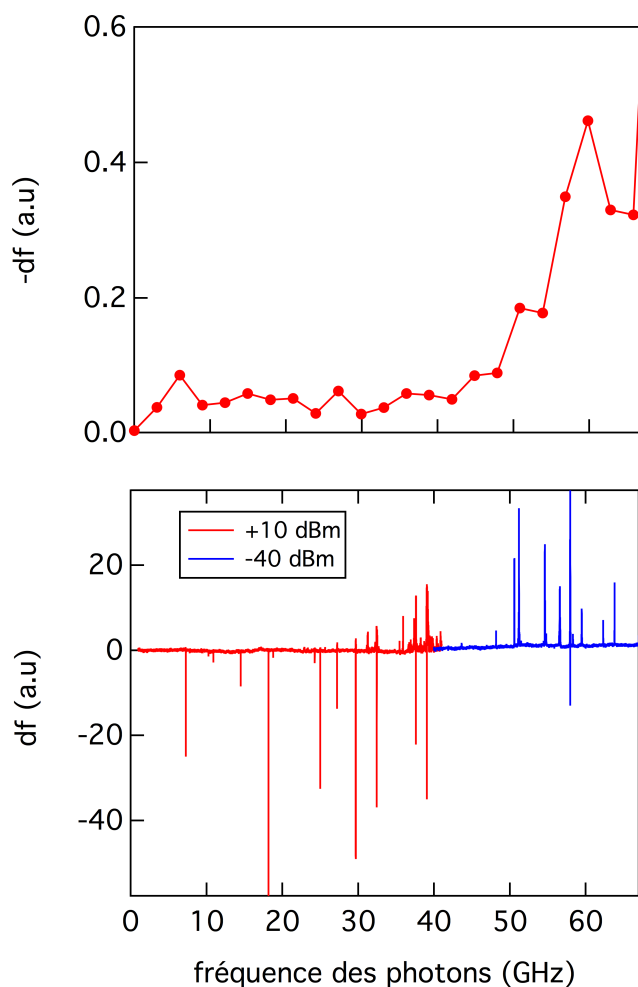


FIGURE 7.2 – Mesures avec l’antenne radio-fréquences. On a tracé la variation de fréquence de résonance d’un résonateur choisi en fonction de la fréquence des photons délivrés par l’antenne. La puissance d’illumination est de +10 dBm dans la gamme 0-40 GHz tandis qu’elle est de -40 dBm dans la gamme 40-67 GHz. On constate que, pour certaines valeurs de fréquences d’illumination, la fréquence de résonance du résonateur augmente, ce qui constitue un comportement non standard. On pointe par des flèches bleues des pics particuliers qu’on va étudier dans la suite.

7.1.1 Étude du pic à 57.2 GHz

On fixe la fréquence des photons délivrés par l’antenne à 57.2 GHz, correspondant à une fréquence pour laquelle on observe sur la figure 7.2 une augmentation de la fréquence de résonance du résonateur. Il s’agit du pic d’absorption visible sur le spectre de la figure 7.1, à la fréquence ω_p . On fait varier la puissance délivrée par l’antenne puis on étudie les variations de la fréquence de résonance. On effectue ces mesures à deux températures

différentes : 60 mK et 190 mK. On obtient la figure 7.3.

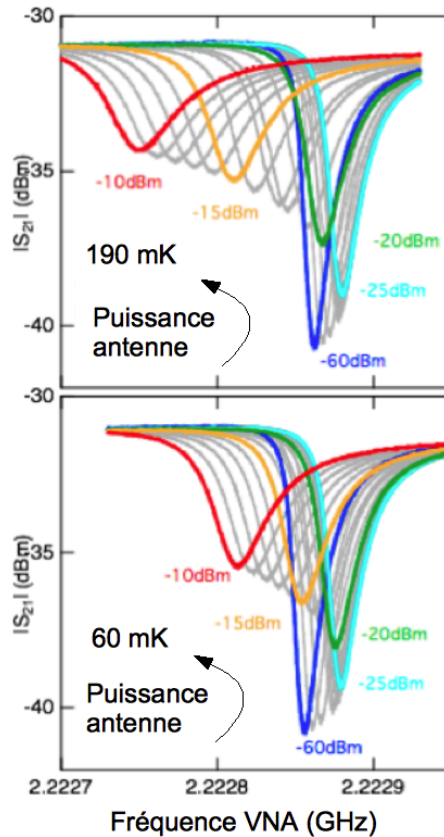


FIGURE 7.3 – Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, à deux température différentes : 190 mK (en haut) et 60 mK (en bas). Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 57.2 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l’antenne. La courbe bleue représente la résonance illuminée avec la puissance de photons la plus basse tandis que la courbe rouge représente la résonance illuminée avec la puissance de photons la plus élevée. On remarque que la fréquence de résonance commence à augmenter lorsqu’on augmente la puissance, signe d’un comportement non standard, puis diminue.

On constate que la fréquence de résonance commence par augmenter lorsque la puissance des photons émis par l’antenne augmente, puis elle retrouve un comportement standard en diminuant à mesure que la puissance augmente, et ce pour les deux températures étudiées. Il est à noter que, pour une puissance de -40 dBm, la fréquence de résonance augmente, comme observé précédemment sur la figure 7.2. Par ailleurs, le facteur de qualité décroît de manière monotone quand la puissance des photons délivrés par l’antenne augmente. On observe en effet que la résonance devient de plus en plus large et de moins en moins profonde. Il convient de noter que la sensibilité à la puissance n’est pas la même en fonction de la température : la variation de fréquence résonance pour -10 dBm est plus importante à 190 mK qu’à 60 mK. Comparons ces observations avec le cas

où le résonateur est illuminé par des photons de fréquence 39.2 GHz.

7.1.2 Étude du pic à 39.2 GHz

On fixe cette fois la fréquence des photons délivrés par l'antenne à 39.2 GHz et, de la même manière que précédemment, on étudie l'influence de la puissance des photons sur l'évolution de la fréquence de résonance du résonateur. On travaille à la température de 60 mK. On obtient la figure 7.4. On constate le même comportement singulier que celui observé pour une fréquence d'illumination de 57.2 GHz. Aux puissances de photons les plus basses, la fréquence de résonance commence par augmenter à puissance croissante puis, aux puissances de photons plus élevées, la fréquence de résonance diminue à puissance croissante, retrouvant un comportement standard. Il est à noter que, pour une puissance de +10 dBm, la fréquence de résonance diminue, conformément à ce qui a été observé en figure 7.2. Le facteur de qualité connaît la même évolution que celle observée pour une fréquence d'illumination de 57.2 GHz : il diminue à mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente.

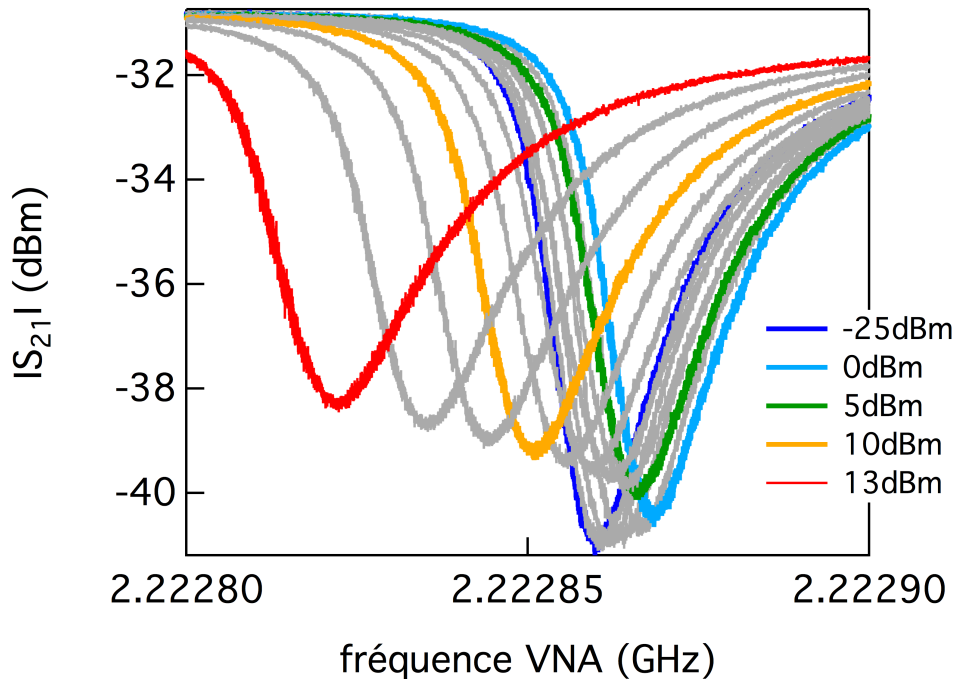
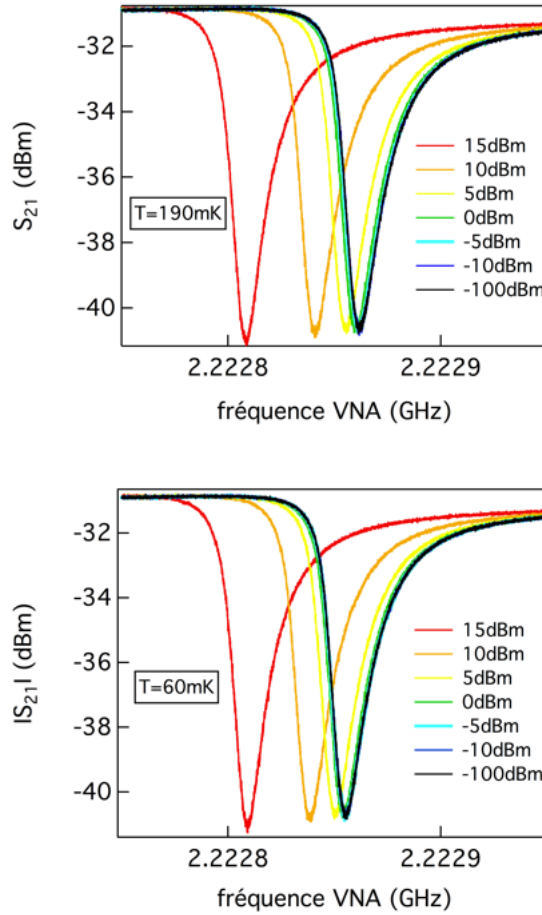


FIGURE 7.4 – *Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, à la température de 60 mK. Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 39.2 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l’antenne. La courbe bleue représente la résonance illuminée avec la puissance de photons la plus basse tandis que la courbe rouge représente la résonance illuminée avec la puissance de photons la plus élevée. On remarque que la fréquence de résonance commence à augmenter lorsqu’on augmente la puissance, signe d’un comportement non standard, puis diminue.*

7.1.3 Étude du pic à 18 GHz

On fixe cette fois la fréquence des photons délivrés par l’antenne à 18 GHz qui correspond à la fréquence à laquelle se produit le pic le plus intense, d’après le panel du bas de la figure 7.2. De la même manière que précédemment, on étudie l’influence de la puissance des photons sur l’évolution de la fréquence de résonance du résonateur. On travaille aux deux températures de 60 mK et 190 mK. On obtient la figure 7.5.



← P_{antenne} ↗

FIGURE 7.5 – Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, aux températures de 190 mK et 60 mK. Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 18 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l'antenne ; la puissance -100 dBm indique que l'antenne est éteinte, de telle sorte que le résonateur n'est pas illuminé. On remarque que la fréquence de résonance diminue de manière monotone à mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente, signe d'un comportement standard.

On constate que, contrairement aux deux fréquences de photons précédemment étudiées, la fréquence de résonance présente ici un comportement standard : elle diminue à mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente. Il convient de noter qu'à la puissance de +10 dBm, la fréquence de résonance diminue, comme observé en figure 7.2. Le facteur de qualité quant à lui semble rester constant voire augmenter sur la gamme de puissances étudiées, ce qui constitue un comportement non standard et contraire à celui observé pour les deux fréquences de photons précédemment étudiées. La sensibilité de la résonance à la puissance est identique aux deux température étudiées.

On récapitule dans le tableau qui suit l'effet d'une puissance de photons croissante sur la résonance étudiée, aux différentes fréquences de photons étudiées. On appelle ν et P respectivement la fréquence et la puissance des photons délivrés par l'antenne ; f et Q sont respectivement la fréquence de résonance et le facteur de qualité du résonateur étudié.

ν (GHz)	P (dBm)	comportement de f	comportement de Q
57.2	de off jusqu'à -25	↗ (non standard)	↘ (standard)
57.2	de -25 à -10	↘ (standard)	↘ (standard)
39.2	de off jusqu'à 0	↗ (non standard)	↘ (standard)
39.2	de 0 jusqu'à 13	↘ (standard)	↘ (standard)
18	de off jusqu'à 15	↘ (standard)	↗ (non standard)

7.2 Échantillon E

Intéressons-nous de plus près à l'échantillon E, qui présente d'après les spectres Martin-Puplett de la figure 7.1 les pics d'absorption autour de 50-60 GHz les plus intenses parmi tous les échantillons étudiés. On montre l'évolution de la résonance d'un résonateur choisi à différentes puissances de photons et températures, pour trois pics d'absorption : à 13.424 GHz, 58.3 GHz et à 154.9 GHz. Cette dernière fréquence correspond à ω_G , visible en figure 7.1.

7.2.1 Étude du pic à 13.424 GHz

On donne en figure 7.6 l'évolution d'une résonance choisie lorsque le résonateur correspondant est soumis à un rayonnement de photons de fréquence 13.424 GHz. On fait varier la puissance des photons délivrés par l'antenne. On travaille à trois températures différentes : 65 mK, 200 mK et 300 mK.

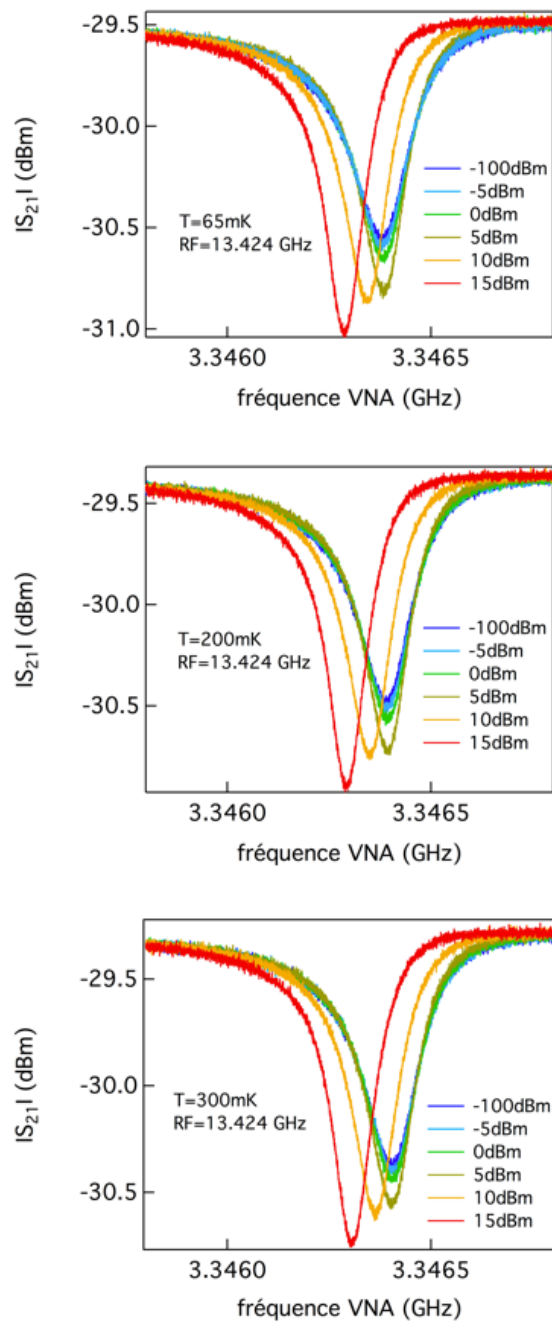


FIGURE 7.6 – Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, aux températures de 65 mK, 200 mK et 300 mK. Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 13.424 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l'antenne; la puissance -100 dBm indique que l'antenne est éteinte, de telle sorte que le résonateur n'est pas illuminé. On remarque que, à puissance croissante, la fréquence de résonance reste constante pour les plus basses puissances, avant de diminuer, signe d'un comportement standard. Le facteur de qualité quant à lui augmente de manière monotone, signe d'un comportement non standard.

On constate que la fréquence de résonance ne varie pas pour des puissances allant jusqu'à +5 dBm, avant de diminuer à puissance plus élevée, signe d'un comportement standard. Le facteur de qualité quant à lui augmente de manière monotone, signe d'un comportement non standard. La sensibilité de la résonance à la puissance est la même, quelle que soit la température étudiée. Intéressons-nous pour comparer au pic d'absorption à 58.3 GHz.

7.2.2 Étude du pic à 58.3 GHz

On donne en figure 7.7 l'évolution d'une résonance choisie lorsque le résonateur correspondant est soumis à un rayonnement de photons de fréquence 58.3 GHz. On fait varier la puissance des photons délivrés par l'antenne. On travaille à trois températures différentes : 65 mK, 200 mK et 300 mK.

À mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente, la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité diminuent de manière monotone, traduisant un comportement standard dans les deux cas. La sensibilité de la résonance à la puissance n'est pas la même selon la température étudiée : pour une puissance de 0 dBm, la variation de fréquence de résonance est plus importante à 300 mK qu'à 200 mK et qu'à 65 mK.

Intéressons-nous à présent au pic à 154.9 GHz, qu'on identifie dans l'article *Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator : observation of collective superconducting modes* de F. Lévy-Bertrand et al (visible en annexe B) comme étant lié à un mode de Carlson-Goldman [52, 53, 54], contrairement à l'ensemble des pics d'absorption étudiés jusqu'ici, qu'on interprète comme étant liés à des plasmons 2D [42, 43, 41].

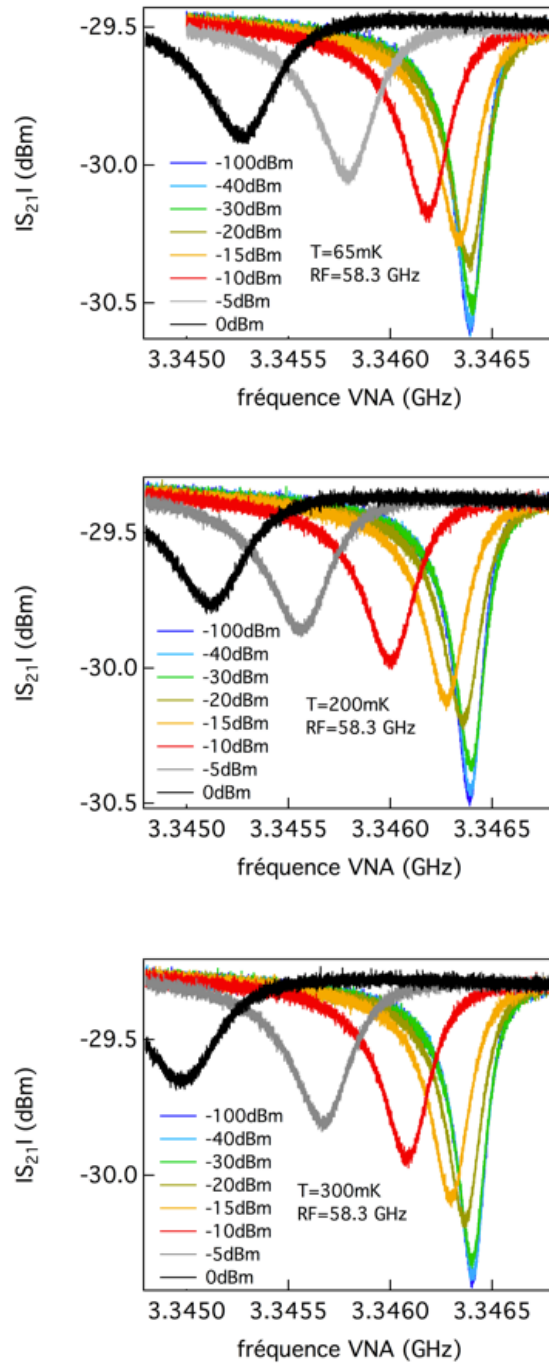


FIGURE 7.7 – Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, aux températures de 65 mK, 200 mK et 300 mK. Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 58.3 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l'antenne; la puissance -100 dBm indique que l'antenne est éteinte, de telle sorte que le résonateur n'est pas illuminé. On remarque que, à puissance croissante, la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité ont un comportement standard.

7.2.3 Étude du pic à 154.9 GHz

Étudions l'évolution de la résonance choisie en fonction de la puissance des photons délivrés par l'antenne, en fixant leur fréquence à 154.9 GHz. De la même façon que précédemment, les mesures sont réalisées à trois températures différentes : 65 mK, 200 mK et 300 mK.

On constate que la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité présentent un comportement standard, c'est-à-dire que ces deux grandeurs diminuent à mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente. Ici, la sensibilité de la résonance à la puissance est identique aux trois températures étudiées : à puissance égale, la variation de fréquence de résonance est la même quelle que soit la température.

De la même façon que précédemment pour l'échantillon H, on résume dans un tableau le comportement de la fréquence de résonance ainsi que du facteur de qualité du résonateur choisi en fonction de la puissance d'illumination, pour différentes fréquences de photons correspondant à des pics d'absorption.

ν (GHz)	P (dBm)	comportement de f	comportement de Q
13.424	de off jusqu'à 15	\searrow (standard)	\nearrow (non standard)
58.3	de off jusqu'à 0	\searrow (standard)	\searrow (standard)
154.9	de off jusqu'à 5	\searrow (standard)	\searrow (standard)

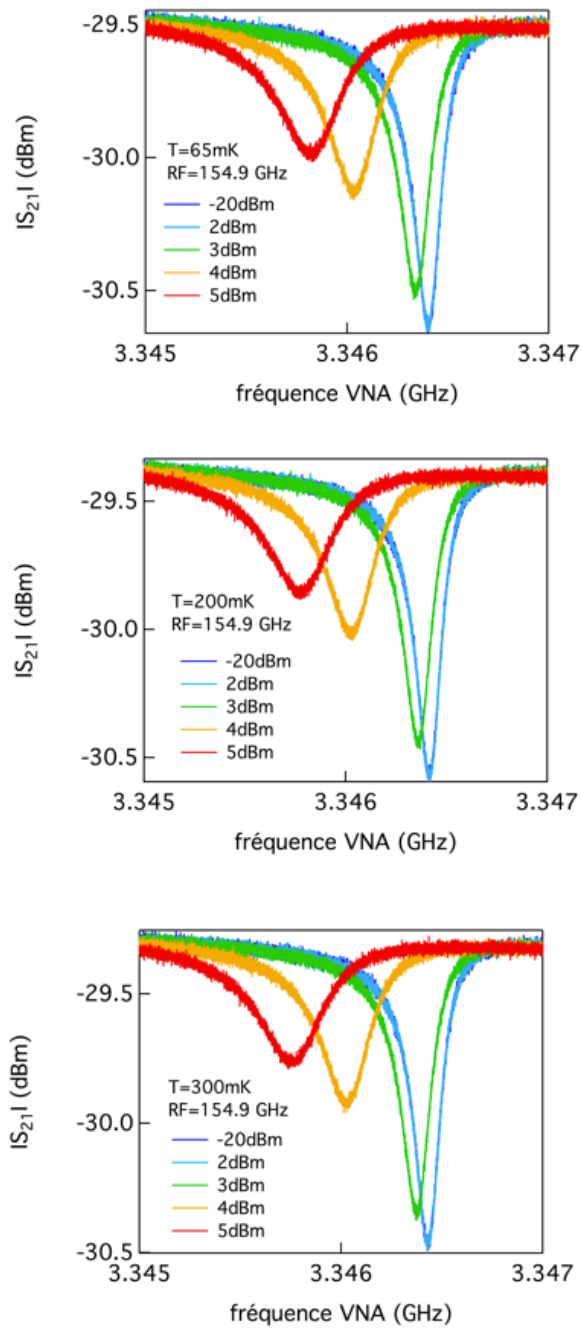


FIGURE 7.8 – *Mesure de la transmission en fonction de la fréquence du courant délivré par le VNA, aux températures de 65 mK, 200 mK et 300 mK. Le résonateur étudié absorbe des photons de fréquence égale à 154.9 GHz émis par une antenne. On fait varier la puissance de l'antenne. On remarque que, à puissance croissante, la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité ont un comportement standard.*

Conclusion Dans ce chapitre, j'ai présenté des mesures réalisées sur des échantillons d'aluminium granulaire. On a mis en évidence dans l'article *Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator : observation of collective superconducting modes* de F. Lévy-Bertrand et al (visible en annexe B), des excitations sous le gap supraconducteur dans l'aluminium granulaire. J'ai étudié l'influence de la puissance des photons délivrés par une antenne, dont la fréquence correspond à différents pics d'absorption choisis, sur la résonance d'un résonateur quelconque. Je me suis intéressé à deux échantillons de résistivité à 300 K différente. J'ai montré que, pour certaines fréquences de photons, la résonance présente un comportement standard, c'est-à-dire que la fréquence de résonance ainsi que le facteur de qualité diminuent à mesure que la puissance des photons délivrés par l'antenne augmente. En revanche, pour certaines autres fréquences de photons, la fréquence de résonance ou le facteur de qualité possède une évolution non standard, soit sur une certaine gamme de puissances des photons, soit sur l'ensemble de la gamme étudiée. A l'heure actuelle, je ne m'explique pas ces comportements singuliers. En conclusion, on peut dire qu'il reste des choses à comprendre concernant ces évolutions singulières des résonances dans l'aluminium granulaire en fonction de la puissance d'illumination.

Conclusion générale

Dans ce manuscrit, j'ai présenté différentes études menées sur des matériaux supraconducteurs en couches minces, en étudiant par spectroscopie optique notamment les propriétés des résonateurs sous la forme desquels ils sont lithographiés.

Je me suis intéressé à l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de l'aluminium, sachant que ce matériau possède la particularité de présenter une température critique qui augmente à mesure que l'épaisseur de la couche diminue, contrairement à la plupart des matériaux supraconducteurs. Plusieurs théories permettent d'expliquer ce phénomène mais, actuellement, il n'existe aucun consensus. Mes analyses et interprétations des mesures de résistivité me font pencher en faveur d'un durcissement des phonons pour expliquer l'augmentation de température critique dans l'aluminium en couches minces. Par ailleurs, j'ai déterminé le gap supraconducteur Δ par deux techniques de mesures différentes et montré que les valeurs du gap étaient sensiblement différentes d'une mesure à l'autre.

J'ai également étudié les phénomènes d'absorption de photons d'énergie $h\nu \ll 2\Delta$ par des résonateurs fabriqués avec des supraconducteurs désordonnés, comme l'oxyde d'indium et l'aluminium granulaire. Dans l'oxyde d'indium, on a mis en évidence la détection très sélective en énergie de photons ayant une énergie très inférieure au gap supraconducteur. On a montré qu'il était possible d'ajuster la fréquence des photons détectés en jouant sur la longueur totale des résonateurs. On a expliqué le mécanisme de détection en démontrant qu'il était lié à l'excitation de modes de résonance d'ordre supérieur, associée à la non-linéarité de l'inductance cinétique avec le courant circulant dans le résonateur. Dans l'aluminium granulaire, j'ai étudié l'influence de la puissance des photons délivrés par une antenne, dont la fréquence correspond à différents pics d'absorption choisis, sur la résonance d'un résonateur quelconque dans des échantillons de résistivité différente. J'ai montré que, pour certaines fréquences de photons particulières, la résonance étudiée présentait un comportement standard, alors que pour d'autres elle présentait une évolution singulière.

La détection très sélective en énergie de photons dont la fréquence vaut quelques GHz est source d'applications potentielles, particulièrement dans le domaine de l'astrophysique [11]. Par ailleurs, il reste des choses à comprendre concernant le comportement singulier de la fréquence de résonance et/ou du facteur de qualité en fonction de la puissance d'illumination dans les résonateurs d'aluminium granulaire. En ce qui concerne l'étude sur l'aluminium en couches minces, dont l'objectif principal est de comprendre l'origine

de l'augmentation de la température critique quand l'épaisseur du film diminue, on peut envisager d'autres types de mesures pour confirmer ou non l'interprétation que l'on a donnée, à savoir un durcissement des phonons. Une étude, menée par H. Cercellier, membre de notre équipe à l'institut Néel, a débuté en ce sens. Il se propose de déterminer le spectre des phonons dans nos couches d'aluminium avec des mesures de spectroscopie par point de contact et d'observer l'évolution de ce spectre en fonction de l'épaisseur des échantillons. Le but serait de déterminer si les pics sur le spectre se situent à des fréquences plus élevées dans les films minces par rapport aux films tri-dimensionnels (100 nm, 194 nm), ce qui tendrait à confirmer le mécanisme de durcissement des phonons pour expliquer l'augmentation de la température critique dans les couches minces d'aluminium.

Résumé

Dans le cadre de ma thèse, j'ai étudié des supraconducteurs par une nouvelle technique de spectroscopie optique. Cette technique, inspirée de détecteurs de photons utilisés en astrophysique, permet de faire des mesures de 0 à 300 GHz, avec une résolution de $\simeq 1$ GHz, à une température de $\simeq 100$ mK. Les supraconducteurs étudiés sont lithographiés sous la forme de résonateurs pour devenir des détecteurs de photons dont leur fréquence de résonance varie en fonction de leur densité superfluide. Au cours de cette thèse, j'ai fabriqué et étudié des résonateurs à partir de différents matériaux supraconducteurs (en couches minces).

La dimensionnalité joue un rôle essentiel dans la supraconductivité. A priori, en deux dimensions un système ne devrait pas être supraconducteur mais il existe de nombreux contre-exemples comme une monocouche de FeSe ou encore les interfaces d'oxydes. Dans ce contexte l'aluminium est particulièrement intéressant car le mécanisme supraconducteur est conventionnel (couplage électron-phonon) et que l'on peut faire varier son épaisseur (couches minces) et sa microstructure (aluminium granulaire) relativement facilement.

La thèse se compose de deux parties.

Dans une première partie, je me suis intéressé à l'influence de l'épaisseur sur la supraconductivité de couches minces d'aluminium (de 15nm à 200nm). Dans la majorité des matériaux supraconducteurs, la température critique diminue avec l'épaisseur alors que dans certains matériaux, comme dans l'aluminium, elle augmente. Différentes théories existent pour expliquer ce phénomène mais il n'existe actuellement aucun consensus. Par des techniques combinées de spectroscopie à forte résolution et de résistivité, j'essaye d'apporter un éclairage nouveau à l'augmentation de la température critique dans l'aluminium lors de la diminution de l'épaisseur. J'interprète ce phénomène comme étant lié à un durcissement des phonons, ce qui ne constitue pas une explication habituellement citée.

Dans une deuxième partie, on présente des supraconducteurs désordonnés, à savoir l'oxyde d'indium (InOx) et l'aluminium granulaire (GrAl). Dans ces matériaux, on a mis en évidence des excitations sous le gap supraconducteur par des mesures de spectroscopie optique. Ces excitations, dont l'origine est discutée, sont a priori inattendues dans les supraconducteurs. Ainsi, on a mis en évidence dans des résonateurs d'oxyde d'indium la détection très sélective en énergie de photons ayant une énergie très inférieure au gap supraconducteur. On explique le mécanisme de détection en démontrant qu'il est lié à

l'excitation des modes de résonance d'ordre supérieur, associée à la non linéarité de l'inductance cinétique avec le courant circulant dans le résonateur. Dans l'aluminium granulaire, on a étudié certaines excitations sous le gap supraconducteur dans deux échantillons de résistivité différente. Une antenne radio-fréquences placée devant le cryostat illumine les résonateurs. On choisit un résonateur quelconque et on sélectionne la fréquence des photons délivrés par l'antenne de telle sorte qu'elle corresponde aux différentes excitations que l'on souhaite étudier. On s'intéresse alors à l'influence de la puissance des photons incidents sur l'évolution de la résonance. On met en évidence des comportements non standards de la fréquence de résonance ainsi que du facteur de qualité, selon les excitations étudiées.

Summary

During my PhD-thesis, I studied superconductors thanks to a new optical spectroscopy measurements technique, based on photon detectors for astrophysics. This technique enables measurements ranging from 0 to 300 GHz with a resolution of 1 GHz at a temperature of 100 mK. The superconductors are lithographed into resonators whose resonance frequency depends on the superfluid density. During this thesis, I made and studied resonators from different superconducting materials in thin films.

Dimensionality plays a fundamental role in superconductors. In principle, in two dimensions a system should not be superconducting but there are a lot of counterexamples like single layer of FeSe or oxide interfaces. In this context, aluminum is particularly interesting for mainly two reasons. First, the superconducting mechanism is conventional : it consists in an electron-phonon coupling. Then, it is pretty easy to modify its thickness (thin films) and its microstructure (granular aluminum).

The manuscript is composed of two parts.

In the first part, I studied the role played by the thickness on superconductivity of aluminum thin films, ranging from 15 nm to 200 nm. In most superconductors, the critical temperature decreases with thickness, whereas in some materials like aluminum, it increases. Several theories may explain this phenomenon but there is currently no consensus. Thanks to combined techniques of high resolution optical spectroscopy and of resistivity measurements, I suggest that the origin of the critical temperature increase in aluminum thin films would be phonon hardening. This explanation is not among the popular ones.

In the second part, we present disordered superconductors, namely indium oxide (InOx) and granular aluminum (GrAl). In these materials, we evidenced sub-gap optical absorptions. In principle, these absorptions are unexpected in superconductors. We show that they are caused by higher order resonance mode excitations combined with kinetic inductance non-linearity with the current circulating in the resonator. In granular aluminum, we studied some sub-gap excitations in two samples with a different room temperature resistivity. A radio-frequency antenna situated in front of the dilution refrigerator illuminates the resonators. We choose a resonator and we select the photon frequency in such a way that it matches with the different studied excitations. We observe the influence of the incident photon power on the resonance. We evidence non standard behaviors of resonance frequency and quality factor, according to the studied excitations.

Annexes

A Annexe A : article *Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators*

Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators

This content has been downloaded from IOPscience. Please scroll down to see the full text.

View [the table of contents for this issue](#), or go to the [journal homepage](#) for more

Download details:

IP Address: 147.173.50.245

This content was downloaded on 24/02/2017 at 11:37

Please note that [terms and conditions apply](#).

Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators

O Dupré^{1,2}, A Benoît^{1,2}, M Calvo^{1,2}, A Catalano^{1,2,3}, J Goupy^{1,2}, C Hoarau^{1,2}, T Klein^{1,2}, K Le Calvez^{1,2}, B Sacépé^{1,2}, A Monfardini^{1,2} and F Levy-Bertrand^{1,2,4}

¹ Univ. Grenoble Alpes, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France

² CNRS, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France

³ Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Université Grenoble Alpes, CNRS/IN2P3, 53 rue des Martyrs, F-38026 Grenoble Cedex, France

E-mail: alessandro.monfardini@neel.cnrs.fr and florence.levy-bertrand@neel.cnrs.fr

Received 21 November 2016, revised 12 January 2017

Accepted for publication 20 January 2017

Published 24 February 2017



CrossMark

Abstract

We have fabricated planar amorphous indium oxide superconducting resonators ($T_c \sim 2.8$ K) that are sensitive to frequency-selective radiation in the range of 7–10 GHz. Those values lay far below twice the superconducting gap that is worth about 200 GHz. The photon detection consists in a shift of the fundamental resonance frequency. We show that the detected frequency can be adjusted by modulating the total length of the superconducting resonator. We attribute those observations to the excitation of higher-order resonance modes. The coupling between the fundamental lumped and the higher order distributed resonance is due to the kinetic inductance nonlinearity with current. These devices, that we have called sub-gap kinetic inductance detectors, are to be distinguished from the standard kinetic inductance detectors in which quasi-particles are generated when incident light breaks down Cooper pairs.

Supplementary material for this article is available [online](#)

Keywords: kinetic inductance detector, sub-gap excitation, GHz to sub-THz detector

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Superconducting microwave resonators are the building blocks of various ongoing and future technological developments ranging from sensitive photon detectors for astrophysics [1], superconducting quantum devices [2], and coupling to nano-electromechanical resonators [3]. Kinetic inductance detectors (KIDs) [4] are a particular implementation of superconducting resonators. The detection principle is based on monitoring variations of the resonator frequency $\omega_0 = (LC)^{-1/2}$. The incident radiation breaks down Cooper pairs, modifying the kinetic inductance L_K and thus the resonance frequency ($L = L_K + L_{\text{geometrical}}$).

The resonator superconducting material directly affects its employability. Indeed, the critical superconducting

temperature T_c imposes a working temperature $T \ll T_c$ and the superconducting gap Δ sets in the photon detector cutoff frequency to $h\nu > 2\Delta$. Within the Bardeen–Cooper–Schrieffer (BCS) superconducting theory T_c and Δ are not independent parameters as $\Delta = 1.76 \times K_B T_c$. Thus, for classic KID lowering the cutoff frequency requires us to lower the operating temperature accordingly. For example, to detect 100 GHz one needs an operating temperature $T \sim 100$ mK, and to detect 10 GHz $T \sim 10$ mK is required.

In this paper, we present a disruptive technology for millimetric down to centimetric detection that we have called sub-gap kinetic inductance detectors (SKIDs). These detectors are sensitive to photons with an energy $h\nu$ laying well below twice the superconducting gap 2Δ thus removing the operating temperature constraint when lowering the photon detection cutoff frequency. We attribute their detection mechanism to the excitation of higher-order resonance modes

⁴ Author to whom any correspondence should be addressed

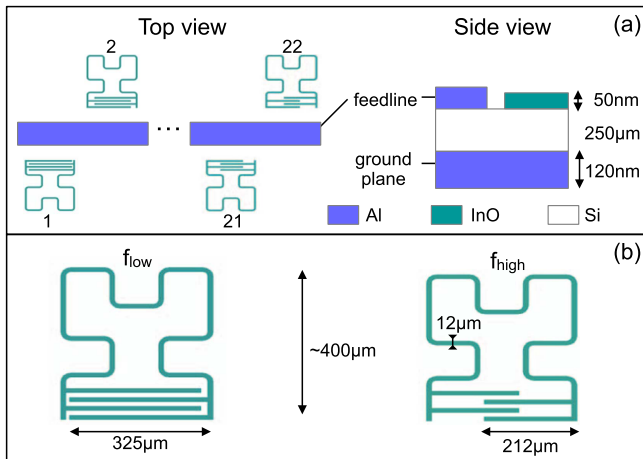


Figure 1. Resonators' design. (a) Twenty-two devices are coupled to the common feed-line. Cross-section view of the micro-strip configuration. (b) Detailed design of the f_{low} and the f_{high} resonators. The Hilbert fractal inductor is identical for all the resonators. The four capacitor fingers length are varied from one resonator to another: from the shortest (f_{high}) to the longest (f_{low}).

combined with the kinetic inductance nonlinearity with current. In case of disordered superconductors, the kinetic inductance nonlinearity with current is more pronounced because of a reduced critical current due to a low superfluid density [5]. Thus, disordered superconductors are of interest to develop sensitive SKIDs.

In that context, we have investigated amorphous indium oxide (a:InO) films that can be tuned through the superconductor-to-insulator transition by varying the disorder level [6, 7]. Lumped superconducting resonators have been designed and fabricated. The resonators' fundamental frequency variations have been monitored while illuminating at higher frequency. At centimetric wavelengths we studied the power illumination influence to evaluate the detectors' sensitivity order of magnitude. We discuss our observations in term of higher-order distributed resonance modes excitations and kinetic inductance nonlinearity with current mechanism.

2. Methods

Figure 1 displays the resonators' design. Twenty-two a:InO resonators were deposited on a silicon substrate. They are coupled to a 50Ω aluminum micro-strip transmission line. Each resonator consists of a second order Hilbert shape fractal inductor and an interdigitated capacitor [8, 9]. Frequency multiplexing is achieved by varying the capacitor fingers length. The design of the lowest (f_{low}) and the highest frequency (f_{high}) resonators are detailed on panel (b). The f_{low} and f_{high} resonators correspond to a maximum wire total length of respectively 2.3 mm and 2.1 mm. In relatively dark conditions we estimate the average internal quality factor to be of the order of 28 000 (ranging from 23 000 up to 36 000). A four wires resistivity measurement of the 50 nm a:InO film as a function of temperature allows us to determine the critical superconducting transition temperature T_c and the sheet

resistance R_s ; $T_c \sim 2.8$ K (defined at the foot of the transition) and $R_s(T = 5 \text{ K}) = 1870 \Omega/\text{sq}$. Tunneling measurements established that twice the superconducting gap of the employed indium oxide is worth about 200 GHz, see supplementary Information in [11]. Using the BCS theory in the dirty limit at low frequency f and temperature T , i.e. $hf \ll \Delta$ and $K_B T \ll \Delta$, we can estimate the sheet inductance L_s from the following formula [10] $L_s \sim 0.18 \times (\hbar R_s)/(K_B T_c)$ to be of the order of ~ 900 pH/sq (assuming that $\Delta = 1.76 K_B T_c$).

3. Results

In figure 2 we present the main result of this paper. Panel (a) shows a sketch of the experimental set-up. The resonators were cooled down to 100 mK with a $^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution refrigerator. A custom bow-tie antenna [12] was placed at room temperature in front of the optical aperture of the cryostat to illuminate the resonators in the GHz-range. The bow-tie antenna is composed of two identical planar metallic triangles that are bilaterally symmetrical. The triangles form a dipole that irradiates mainly perpendicular to its plane, over a broad frequency band. The length of the antenna sets the frequency bandwidth [12] that is in this case from 4 GHz up to 15 GHz. A radio-frequency generator was connected to the antenna and allowed to vary the illumination frequency up to 15 GHz. The light emitted from the antenna will be further referred as ν . The resonators' frequencies were monitored employing a vectorial network analyzer (VNA) connected to the transmission line. Using the VNA we measured the S_{21} transmission coefficient for two types of scans: f_{VNA} -scans and ν -scans. In f_{VNA} -scans we spanned the VNA-frequency for a fixed ν -antenna frequency. In ν -scans we varied the ν -antenna frequency while measuring the resonator S_{21} transmission coefficient at a fixed f_{VNA} frequency. Panels (b) and (c) detail the results obtained on the resonator with the lowest resonance frequency $f_{\text{low}} \sim 1.832$ GHz. Panel (b) shows three f_{VNA} -scans performed at different ν -antenna frequencies. The unperturbed resonance frequency, f_{low} , is unaffected by all the ν -antenna frequencies but $\nu_{\text{detected}} = 7.511 \pm 0.003$ GHz. For ν_{detected} the resonance is shifted to lower frequencies. The peak in panel (c) corresponds to the resonance frequency shift observed on panel (b) and indicates the ν -antenna detected by the resonator. In summary, within the whole range 7–10 GHz, the f_{low} -resonator detects only a radiation peaked at 7.511 GHz with a frequency selectivity of ± 0.003 GHz. The resulting resolving power is $R = \nu/d\nu = 2500$.

Figure 3 compares, as a function of the resonator number, the ν_{detected} -frequency for 11 resonators to the third-order resonance mode measured with a f_{VNA} -scan up to 9 GHz. When measured, the ν_{detected} -frequency equals the third-order resonance mode. The fundamental resonance frequencies of the resonator number 1 and number 22 are respectively $f_{\text{low}} \sim 1.832$ GHz and $f_{\text{high}} \sim 2.552$ GHz. From one resonator to the next the total length changes by $\sim 10 \mu\text{m}$. Within the 7–10 GHz range, each resonator detects only a ν_{detected} -frequency with a resolving power R of several

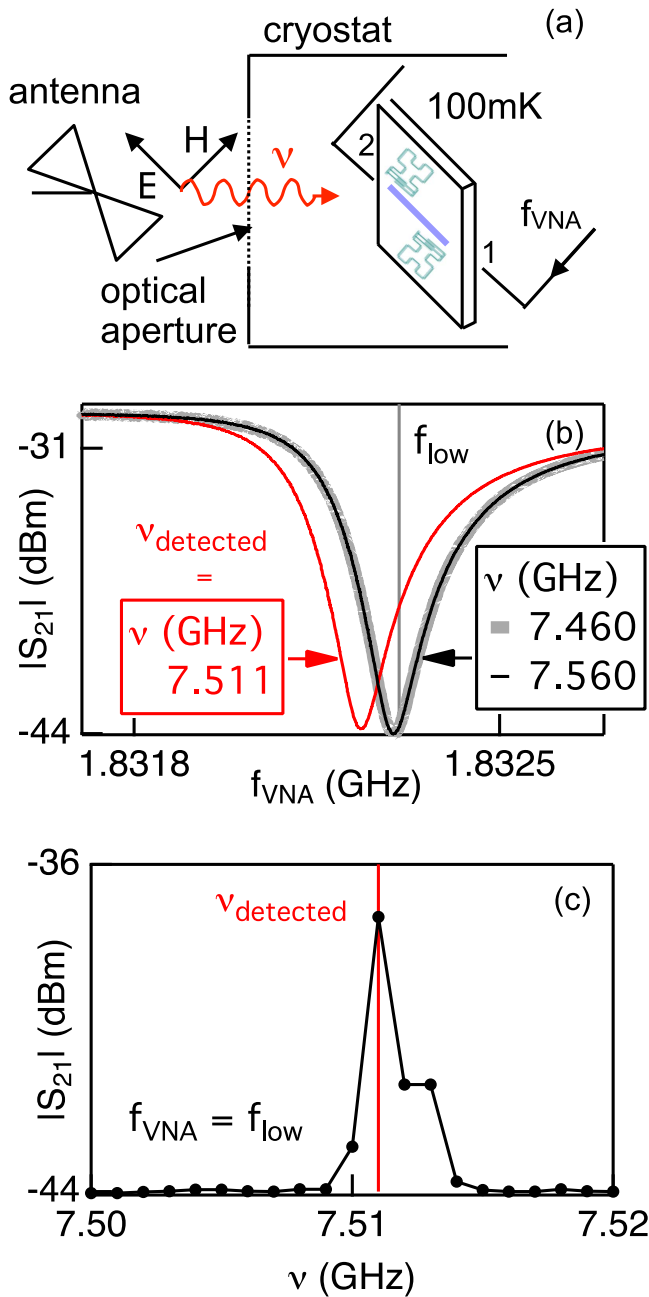


Figure 2. GHz sub-gap detection demonstration. (a) Experimental set-up. A bow-tie antenna at room temperature illuminates at a ν -frequency the resonators through the optical apertures of the dilution refrigerator. (b) f_{VNA} -scans for different fixed ν -antenna frequencies. Vertical line: f_{low} is the unperturbed resonance frequency. Only $\nu_{detected} = 7.511$ GHz gives a measurable shift of the resonance. (c) ν -scan at a fixed VNA-frequency $f_{VNA} = f_{low}$. The peak center at $\nu_{detected} = 7.511$ GHz corresponds to the resonance frequency shift presented on panel (b).

thousands (like the f_{low} shown in figure 2(c)). The $\nu_{detected}$ -frequency is different for each resonator, varying from 7.511 GHz for the first resonator to 9.204 GHz for the last resonator. The detected frequency corresponds to the third-order resonance mode measured with a f_{VNA} -scan. Being a distributed resonance, the detected frequency varies with the total length of the superconducting resonator, and, thus, can

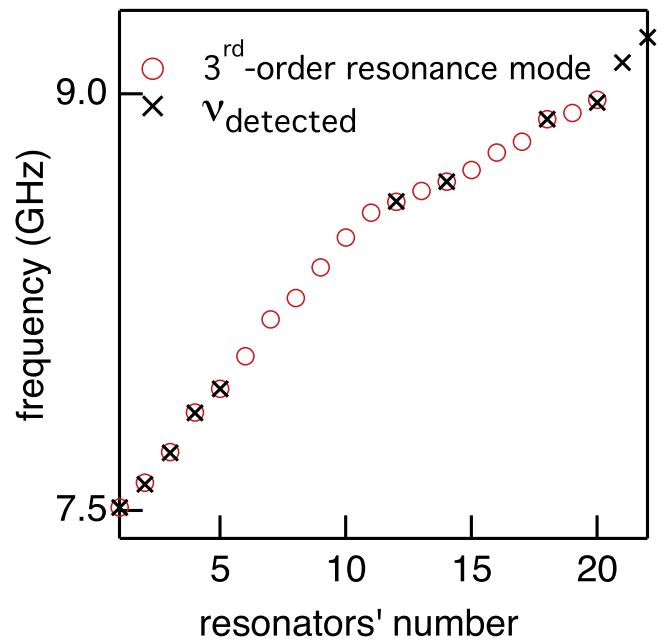


Figure 3. GHz sub-gap detection tunability. As a function of the resonator number the $\nu_{detected}$ -frequency compared to third-order resonance mode identified with a f_{VNA} -scan. From one resonator to the next the total length varies by $\sim 10 \mu\text{m}$. The f_{VNA} -scan was measured up to 9 GHz. The $\nu_{detected}$ -frequency was probed for 11 resonators.

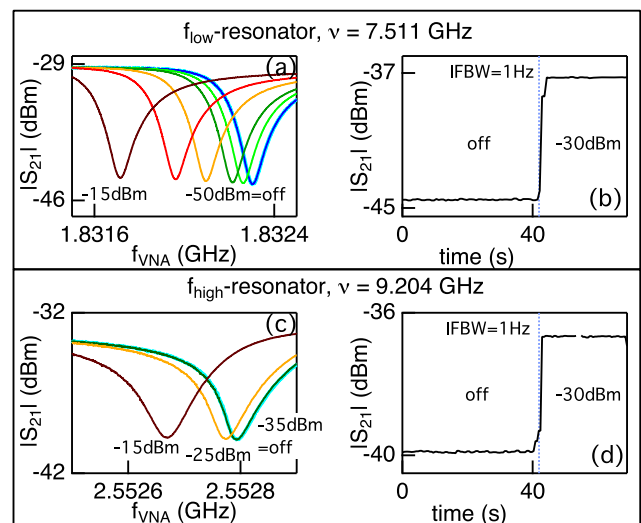


Figure 4. Power and noise studies. Left: f_{VNA} -scans for different ν -antenna power. Power applied on the antenna is, from right to left, in dBm: (a) off, -50, -45, -35, -25, -20, -15 (c) off, -35, -25, -15. Right: time variation of $|S_{21}|$ measured at the unperturbed resonator frequency with an integrated bandwidth frequency of 1 Hz. The ν -antenna is off until $t \sim 40$ s and on after, with -30 dBm applied on the antenna. (b) $|\Delta S_{21}| = 7.22 \pm 0.03$ dBm (d) $|\Delta S_{21}| = 3.24 \pm 0.02$ dBm.

be adjusted by modulating the total length of the resonator. The inductor, the radiation-sensitive structure, is identical for all the resonators.

Figure 4 presents power and noise studies conducted on the f_{low} and f_{high} resonators to evaluate the order of magnitude of their sensitivity. On the left, the power study revealed that

the frequency shift due to the ν -antenna frequency increases with the incident power. The indicated power corresponds to the one applied onto the antenna with the RF-source. On the right, the noise study consists in registering the time variation of $|S_{21}|$ measured at the unperturbed resonator frequency with an integrated bandwidth frequency of 1 Hz while the ν -antenna is off and switched on at $t \sim 40$ s with -30 dBm applied onto the antenna. The standard deviation without illumination is (b) rms = 0.03 dBm and (d) rms = 0.02 dBm. The signal variation is (b) $|\Delta S_{21}| = 7.22$ dBm and (d) $|\Delta S_{21}| = 3.24$ dBm. From these results we can approximately estimate the sensitivity of our SKIDs. We define P_{SKID} as the power hitting each resonator. Electromagnetic simulation of the antenna gives at 8 GHz a radiation efficiency of 75% and a directivity of 2.7 dBi. In the case of $P_{\text{antenna}} = -30$ dBm, three dimensional simulation ray-tracing with the cryostat geometry roughly estimates $P_{\text{SKID}} \sim 10^{-12}$ W. The noise equivalent power (NEP) is defined as:

$$\text{NEP} = P_{\text{SKID}} \frac{\text{signal}}{\text{noise}} \quad (1)$$

with the noise measured for a 1 Hz bandwidth. The signal to noise ratio is of the order of $\sim 200\sqrt{\text{Hz}}$. Thus, assuming for simplicity a linear response of the detector (implicit in the above equation), the rough evaluation of the NEP is in the 10^{-14} – 10^{-15} W Hz $^{-1/2}$ range. For future development it is important to notice that the detector response is actually nonlinear: see figure 2 of the online supplementary material.

Radio-frequency electromagnetic simulations have been realized using the Sonnet software [13]. We adjusted the kinetic inductance $L_s = 700$ pH/sq to obtain the same f_{low} -resonance frequency by simulation and measurement (1.83 GHz). With the adjusted L_s value, we get for the f_{high} -resonance a simulated resonance frequency of 2.57 GHz which corresponds within 1% to the 2.55 GHz measured frequency. For the f_{low} -geometry, besides the base resonance at 1.83 GHz, the simulation revealed higher frequency resonance modes at 6.46 and 7.53 GHz. For the f_{high} -geometry, besides the base resonance at 2.57 GHz, higher frequency resonance modes are found at 6.81 and 9.16 GHz. The highest simulated frequencies match within less than 1% the ν -frequencies detected. Within the present set-up our resonators did not detect the ~ 6 GHz frequency but they did with an antenna enclosed in the cryostat and placed at 1 cm from the resonators. This probably indicates that the current induced from the incident radiation in the resonator or the cross-Kerr coupling between the fundamental and the harmonic mode is weaker for the second resonance order compared to the third. The induced current is determined by the optical absorption efficiency, the internal and the coupling quality factors of the resonator, the cross-Kerr coupling quantifies the frequency shift of the fundamental mode when an harmonic mode is excited. We have also detected ν -frequencies above the 7–10 GHz range. The observations were similar: the ν -detected frequency was different for each resonator with a very high frequency-selectivity. Again, the ν -frequencies detected correspond to simulated frequencies. The agreement between the simulated and/or the measured higher-order

resonance mode and the detected frequencies lead us to conclude that the higher-order resonance modes are at the origin of the detection mechanism of our SKIDs. In the following paragraph we discuss why the fundamental resonance mode is shifted when a harmonic mode is excited.

There is a $\sim 25\%$ difference from the ~ 900 pH/sq estimated with the BCS-analytic formula and the 700 pH/sq extracted from the comparison between simulated and measured resonance frequencies. The difference is likely due to the non BCS-behavior of a:InO [14] being suppressed. For small penetration depth compared to the resonator width, another source of difference may be due to the fact that the electromagnetic simulation assumes an uniform current distribution for each step grid throughout the width of the resonator. This last point is inaccurate. Adjusting by simulation the kinetic inductance per square to match the experimental frequencies might thus lead to an underestimation of the kinetic inductance. This source of discrepancy is probably minor here as for a step grid of 3 μm almost no change of the current distribution was observed throughout the 12 μm width. Finally, from a practical point of view, the effective kinetic inductance extracted this way is the most useful value to foresee the highest harmonic modes.

4. Discussion

Below twice the superconducting gap, in order to be absorbed, the frequency of an incident light radiation has to match a resonance mode (or any collective mode) otherwise the superconductor is a perfect mirror. When absorbed, the radiation increases the resonator current density, modifying the inductance L owing to the following expression [5]:

$$L(J) = L(0)[1 + J^2/J_*^2 + ..], \quad (2)$$

where J_* is a constant that sets the scale of the kinetic inductance nonlinearity. The change of inductance leads to a shift of the fundamental resonance frequency.

Within the Ginsburg–Landau theory [15] $J_* = 2/3^{3/2}J_c$ where J_c is the critical current density. We can estimate the current density J_* using the following formula [15] $J_* = \hbar e/m \times n_s/\xi$ where \hbar is the reduced Planck constant, e is the elementary charge, m is the electron mass, n_s is the superfluid density (at zero temperature), and ξ is the Cooper pairs' coherence length (at a given temperature). For the employed a:InO with $n_s \sim 10^{24}$ m $^{-3}$ (see online supplementary data) and $\xi = 5$ nm (from [11]) we get $J_* \sim 4 \times 10^9$ A m $^{-2}$. This value is to be compared to the critical current density of granular aluminum [16] $J_* \sim 3 \times 10^{10}$ A m $^{-2}$ or pure aluminum [17] $J_* \sim 1 \times 10^{12}$ A m $^{-2}$.

Low superfluid density are of importance as it contributes to lower J_* and thus increases the detector sensitivity [5]. Another way to improve the detector sensitivity is to enhance the current density J by reducing the section of the resonator, by optimizing the coupling to the feed-line or by injecting a bias DC-current as realized in a frequency-tunable resonator [18]. The DC bias would allow a dynamic adjustment of the operating point.

The nonlinear behavior of the kinetic inductance is already adopted in the recently proposed kinetic inductance parametric amplifiers [19] and in a frequency-tunable resonator via a DC-current [18]. Our developments are mainly motivated by the need of integrating low frequency channels into classical KID-based instruments. For example, in the proposed next generation satellite CORE, devoted to the ultimate study of cosmic microwave background (CMB) polarization, the baseline focal plane is based on KID. CORE will nominally cover the band 60–600 GHz, split into at least 15 sub-bands in order to efficiently allow foreground components separation. Adding lower (e.g. 20–60 GHz) frequency channels would allow to strongly improve this procedure. The goal is to clearly identify the sources exhibiting non-thermal spectra, e.g. synchrotron radio emission. Using SKID instead of alternative technologies like bolometers or HEMT would allow using the existing readout electronics and naturally integrate the further pixels into the existing focal plane held at 100 mK. Further potential applications of the SKID include precise, real-time atmospheric monitoring for millimeter-wave interferometry [20] or multi-beam, intermediate energy resolution ($R \sim 1000$) instrumentation on single-dish radio-telescopes.

5. Conclusion

In conclusion, we designed, fabricated and measured KIDs that are sensitive to photons with an energy $h\nu$ laying well below twice the superconducting gap 2Δ : the SKIDs. These detectors are innovative with respect to the current KID technology for two reasons: first they remove the temperature constraint when lowering the photon detection cutoff frequency, second they are very selective in energy (resolution $R \sim 1000$ – $10\,000$). The frequency detected can be adjusted according to the total length of the resonator. The sub-gap detection mechanism is due to the excitation of higher-order resonance modes combined with the kinetic inductance non-linearity with current. As the kinetic inductance non-linearity with low current is a key ingredient to get sensitive detectors

we suggest that low superfluid density materials, like indium oxide, granular aluminum or niobium nitride are of interest for future SKIDs development.

Acknowledgments

We acknowledge O Buisson for the numerous useful discussions. We thank I Pop and L Grünhaupt for suggestions about the non linearity of kinetic inductance with current. This work is supported by the French National Research Agency through Grant No. ANR-12-JS04-0003-01 SUBRISSYME.

References

- [1] Monfardini A *et al* 2011 *Astrophys. J. Suppl.* **194** 24
- [2] Wallraff A *et al* 2004 *Nature* **431** 162
- [3] Regal C A *et al* 2008 *Nat. Phys.* **4** 555
- [4] Day P K *et al* 2003 *Nature* **425** 817
- [5] Swenson L J *et al* 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 104501
- [6] Hebard A F and Paalanen M A 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 927
- [7] Shahar D and Ovadyahu Z 1992 *Phys. Rev. B* **46** 10917
- [8] Zhu J *et al* 2003 *IEEE Antennas Wireless Propag. Lett.* **2** 2–5
- [9] Roesch M *et al* 2012arXiv:1212.4585
- [10] Rotzinger H *et al* 2017 *Supercond. Sci. Technol.* **30** 025002
- [11] Sacépé B *et al* 2015 *Phys. Rev. B* **91** 220508(R)
- [12] Bailey M C 1984 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **32** 410
- [13] Rautio J C and Harrington R F 1987 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **4** 726
- [14] Sacépé B *et al* 2011 *Nat. Phys.* **7** 239
- [15] de Gennes P G 1999 *Superconductivity of Metals and Alloys* (New York: Perseus Books) pp 182–4
- [16] Buisson O *et al* 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 3153
- [17] Kittel C 2005 *Introduction to Solid State Physics* 8th edn (New York: Wiley) p 275
- [18] Vissers M R *et al* 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 062601
- [19] Eom B H, Day P K, LeDuc H G and Zmuidzinas J 2012 *Nat. Phys.* **8** 623–27
- [20] NOEMA Project <http://iram-institute.org/EN/noema-project.php>

Supplementary information:

Tunable sub-gap radiation detection with superconducting resonators

O. Dupré,^{1,2} A. Benoît,^{1,2} M. Calvo,^{1,2} A. Catalano,^{1,2,3} J. Goupy,^{1,2} C. Hoarau,^{1,2} T. Klein,^{1,2} K. Le Calvez,^{1,2} B. Sacépé,^{1,2} A. Monfardini,^{1,2} and F. Levy-Bertrand^{1,2}

¹⁾ Univ. Grenoble Alpes, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France

²⁾ CNRS, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France

³⁾ Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Université Grenoble Alpes, CNRS/IN2P3, 53 rue des Martyrs, 38026 Grenoble Cedex, France

(Dated: 18 November 2016)

Figure 1 displays f_{VNA} scans measured up to 9 GHz. The fundamental resonances were observed around 2 GHz (left panel). Very broad and overlapping second order resonances were observed around 6 GHz (middle panel). Third order resonances were found around 8 GHz (right panel).

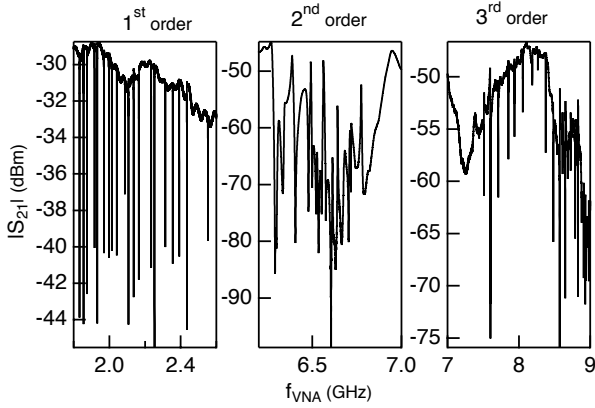


FIG. 1. f_{VNA} scans up to 9GHz Left: fundamental (lumped) resonances. Middle: second order resonances (first distributed modes). Right: third order resonances (second distributed modes).

The surface superfluid density n_s of our $a : InO$ film is estimated from the sheet kinetic inductance L_s using¹:

$$n_s = \frac{m}{dL_s e^2} \quad (1)$$

where e is the elementary charge, $d = 50 \text{ nm}$ is the film thickness and m is the electron mass. The $L_s = 700 \text{ pH/sq}$ inductance has been adjusted to obtain the same f_{low} -resonance frequency by simulation and measurement (1.83 GHz). We get $n_s = 1 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$.

Figure 2 shows the frequency shift of f_{low} and f_{high} as a function of the power applied on the antenna. f_{low} and f_{high} are, respectively, the lowest and the highest fundamental resonance frequencies. The inductor, the light-sensitive structure, is identical for all the resonators. The four capacitor fingers length are varied from one resonator to another: from the shortest (f_{high}) to the

longest (f_{low}). The variation of the capacitance allows to achieve multiplexing and also modifies the coupling to the feed-line. Although 20 times more power is needed for f_{high} , the resulting shape of the frequency shift as a function of the linear power is identical. The kinetic inductance variation can be obtained almost directly from the frequency shift. On the contrary, the current density induced in the resonator by the antenna will depend, among other parameters, on the internal and coupling quality factors². In conclusion, for a similar critical current density, the quality factors strongly influences the detector sensitivity.

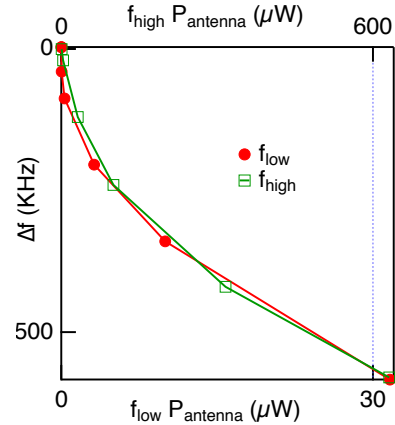


FIG. 2. Fundamental frequency shift as a function of the power applied on the antenna. Bottom axis : power applied on the antenna for f_{low} . Top axis : power applied on the antenna for f_{high}

¹P. Diener and al, Applied Physics Letters 101, 252601 (2012).

²L. J. Swenson and al, J. Appl. Phys. 113, 104501 (2013).

B Annexe B : article *Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator : observation of collective superconducting modes*

Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator: observation of collective superconducting modes

F. Levy-Bertrand,^{1,2,*} T. Klein,^{1,2} T. Grenet,^{1,2} O. Dupré,^{1,2} A. Benoît,^{1,2} A. Bideaud,^{1,2} O. Bourrion,³ M. Calvo,^{1,2} A. Catalano,³ A. Gomez,⁴ J. Goupy,^{1,2} L. Grünhaupt,⁵ U. v. Luepke,⁵ N. Maleeva,⁵ F. Valenti,⁵ I. M. Pop,^{5,†} and A. Monfardini^{1,2,‡}

¹*Univ. Grenoble Alpes, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France*

²*CNRS, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France*

³*Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Université Grenoble Alpes, CNRS, 53 rue des Martyrs, 38026 Grenoble Cedex, France*

⁴*Centro de Astrobiología (INTA-CSIC), Torrejón de Ardoz, Spain.*

⁵*Physikalisches Institut, Karlsruhe Institute of Technology, 76131 Karlsruhe, Germany*

We provide direct evidence for well resolved sub-gap absorptions in superconducting granular aluminum thanks to an original high resolution optical spectroscopy technique. We identified two different types of sub-gap excitations below twice the superconducting gap 2Δ , occurring at $\omega_p \simeq \Delta$ and $\Delta \lesssim \omega_G \lesssim 2\Delta$. The $T_c - \rho$ phase diagram (T_c being the superconducting critical temperature and ρ the resistivity of the film) is discussed as resulting from an interplay between the phase stiffness, the Coulomb repulsion and the superconducting gap. The evolutions of ω_p and ω_G with resistivity differ as ω_p scales with Δ whereas ω_G decreases with the phase stiffness. We interpret these sub-gap absorptions as phase fluctuations of the superconducting order parameter: ω_p as a two-dimensional plasma mode and ω_G as the Carlson-Goldman mode.

PACS numbers:

I. INTRODUCTION

When superconductivity establishes the electrons condensate and form one wave function with a unique phase breaking the U(1) symmetry [1]. Associated with this symmetry breaking two types of collective modes are expected to emerge: the amplitude and the phase fluctuations of the superconducting order parameter. The amplitude mode is a fluctuation of the superfluid density (a scalar), decoupled from electromagnetic waves, and foreseen to occur at twice the superconducting gap energy [1]. The phase mode is a longitudinal mode with a linear dispersion in a neutral fluid [2, 3], transformed into a dispersiveless mode at the plasma energy, well above the superconducting gap, when taking into account the unscreened long range Coulomb interactions [4, 5]. Typical optical spectroscopy techniques probe transverse electromagnetic excitations at almost zero momenta. Thus, in principle, no optical absorptions are expected below twice the superconducting gap.

Experimentally, however, excess of optical absorption below twice the superconducting gap has been evidenced in disordered superconductors and interpreted either as an amplitude mode (Higgs mode) [6] or as a phase mode (Goldstone mode) [7]. The amplitude mode would be turned into a sub-gap visible excitation because of a reduced energy scale while approaching a quantum critical point (experimentally a superconductor-to-insulator

transition in NbN and InO) [6]. The phase mode would be turned into a sub-gap visible excitation thanks to the coupling of the linear dispersion between zero momentum and a characteristic finite momentum set in by the disorder (experimentally in granular aluminum) [7].

Here, we address the question of the nature of sub-gap optical absorptions in a particular class of disorder superconductor, that is granular aluminum with a new optical spectroscopy technique with an unprecedented combination of energy resolution and base temperature, that provide direct evidences of various sub-gap optical absorptions. Granular aluminum is formed of superconducting nanometric grains of pure aluminum which are coupled via Josephson coupling through aluminum oxide barriers. Varying the Josephson coupling tunes the material from a superconductor to an insulator. The superconducting-insulator transition is reached when the aluminum oxide barriers are too large, preventing a phase coherence to develop throughout all the grains [8]. From pure aluminum to insulating composition the superconducting critical temperature presents a dome shape [9–14]. At the maximum of the dome T_c reaches 2-3 K, that is significantly higher than the $T_c \sim 1$ K of pure aluminum. The origin of this dome is still debated.

In this work, we present a detailed investigation of the superconducting parameters (superconducting gap Δ , sub-gap absorptions, critical temperature T_c and phase stiffness J) of granular aluminum films from superconductors to insulators by combined transport and optical spectroscopy measurements. Our state-of-the-art optical spectroscopy technique, obtained using an optical dilution fridge with a base temperature of ~ 100 mK combined with a spectrometer that allows to span an incident radiation from 0 GHz up to 200 GHz with a resolution of

*Electronic address: florence.levy-bertrand@neel.cnrs.fr

†Electronic address: ioan.pop@kit.edu

‡Electronic address: alessandro.monfardini@neel.cnrs.fr

1 GHz, provide direct evidence of various resolved sub-gap absorptions. From their different energy evolution with resistivity we identified two different types of sub-gap excitations below twice the superconducting gap 2Δ : $\omega_p \simeq \Delta$ scaling as Δ and $\Delta \lesssim \omega_G \lesssim 2\Delta$ scaling as the phase stiffness. In the vicinity of the maximum of the superconducting critical temperature, for 100-1000 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ room temperature resistivity we observed (i) a change from a positive to negative temperature dependance of the resistivity (ii) an increase of the coupling strength ratio Δ/T_c from ~ 1.78 to ~ 2.10 (iii) the onset of sub-gap features in the optical spectroscopy response. In the same region, we estimate that the phase stiffness falls below the geometrical Coulomb repulsion energy. We show that the insulating regime is reached when $\Delta \sim J$. The phase diagram of granular aluminum is discussed as resulting from an interplay between the phase stiffness, the Coulomb repulsion and the superconducting gap. We interpret the sub-gap absorptions as phase fluctuations of the superconducting order parameter: ω_p as a two-dimensional plasma mode and ω_G as the Carlson-Goldman mode.

II. EXPERIMENTAL

We performed optical spectroscopy and transport measurements on ten samples from low room temperature resistivity, sample #A, to high, sample #J, spanning the phase diagram of granular aluminum from superconductor to insulator. The partial oxygen pressure was increased from samples #A to #J while e-beam evaporating aluminum at 0.3 nm/second on sapphire substrate held at room temperature. A study of the films structure prepared in similar conditions allows us to estimate that the grain size is on the order of ~ 3 -4 nm in our films [11]. The films are 20 nm thick except sample #H that is 30 nm thick and sample #J that is 50 nm thick. On each film, a 3 mm \times 0.4 mm rectangle has been lithographed in order to perform resistivity measurements.

The optical spectroscopy technique used here is inspired by millimeter astrophysics observation techniques [15, 16]. Superconducting microwave resonators were nano-lithographed on the films and cooled down to 100 mK in an optical dilution fridge. The optical spectroscopy measurements consisted in monitoring the resonators resonance frequencies f while varying the optical incident photon energy. The resonance frequency shift δf is proportional to the superfluid density change δn_s [17]. The frequency shift δf is almost proportional to the real part of the superconducting conductivity essentially convoluted by the employed source (secondary corrections in the convolution will come from the momentum relaxation time of quasi-particles, diffraction effects and optical absorption of lenses and filters). The optical response measurements shown in the present letter are uncorrected from any convolution effect. For each granular aluminum film from #A to #H the optical response displayed is an average over all the functional res-

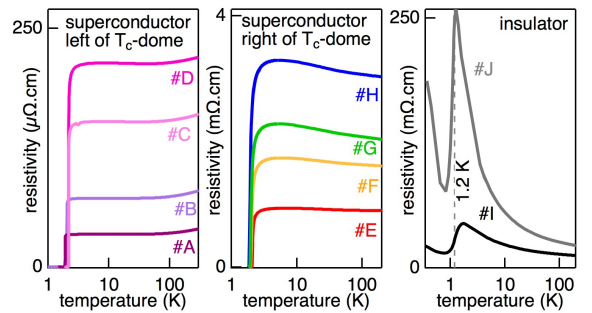


FIG. 1: **Superconductor to insulator transition observed through resistivity measurements.** Resistivity as a function of temperature for ten different compositions of granular aluminum, from less resistive, sample #A, to insulators, samples #I and #J. From sample #A to sample #J the partial oxygen pressure was increased while evaporating the aluminum, tuning the material from a superconductor to an insulator.

onators (comparison between the resonators' responses of each granular aluminum film are available in the supplementary material information). This technique can not be applied to films that are not superconducting (like samples #I and #J). The energy of the incident photon has been spanned from 0 to 200 GHz with a resolution of ~ 1 GHz thanks to a Fourier-Transform spectrometer with a 300 K black body radiation source (below 50 GHz the detection is limited by diffraction and low black body emission). Those specifications have to be compared to those of the optical spectroscopy techniques used in the latest studies on the subject [6, 7, 14]: base temperature of 1.6 K, resolution of 20 GHz, frequencies range starting from 60 GHz (up to 700 GHz). More technical details are given in the supplementary material.

III. RESULTS

As shown in Figure 1, a superconductor to insulator transition is visible on the resistivity measurements. From sample #A to sample #J the partial oxygen pressure was increased while evaporating the aluminum, reducing the electrical coupling between the aluminium grains, tuning the material from a superconductor to an insulator [11]. The room temperature resistivity increases from sample #A to sample #J. From samples #A to #D, situated on the left side of the critical superconducting temperature dome, a (mainly) positive slope of the resistivity with temperature is observed and superconductivity develops at low temperature with T_c progressively rising up to ~ 2 K (see Figure 2). As previously reported by [11, 18], a change to a negative slope of the resistivity with temperature is observed in samples #E to #J (right side of the critical superconducting temperature dome) but superconductivity (null resistance) still develops at low temperature in samples #E to #H. Fi-

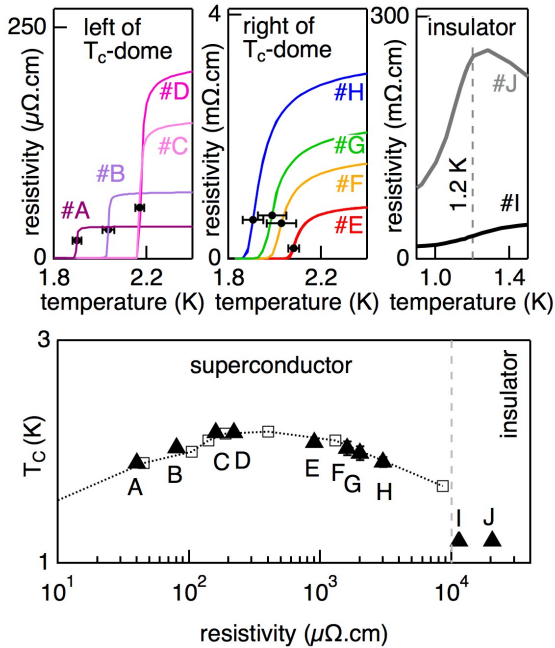


FIG. 2: **Critical temperatures determined by resistivity measurements.** *Top panel:* zoom on the superconducting transition of the resistivity measurements as a function of temperature displayed on figure 1 (partial oxygen pressure increased from sample #A to #J). Critical temperatures, black disks, correspond to the inflection point of the resistive transitions. Error bars are the temperature intervals between zero resistivity and the inflection point. *Bottom panel:* critical temperatures versus room temperature resistivity. The dashed line connects the squares corresponding to critical temperatures of samples deposited on a different substrate (silicon) using a different e-beam deposition tool. The left most point, not shown, correspond to pur aluminum.

nally, sample #I and #J are insulators but still present a dip in the resistivity. As theoretically foreseen [8] and previously observed [19, 20], this dip is a probable reminiscence of superconductivity and occurs at the critical temperature of pure aluminum $T_c \sim 1.2$ K (inflection point of the resistive transitions).

As shown in Figure 2, the superconducting transitions are pretty stiff for the samples situated on the left side of the T_c -dome with a (mainly) positive slope of the resistivity with temperature and broaden in the samples situated on the right side of the T_c -dome with a negative slope of the resistivity (as previously observed in [11, 18]). The critical temperatures have hence been defined as the inflection point of the resistive transitions (black disks) and the error bars are the temperature intervals between zero resistivity and the inflection point. The bottom part of the figure displays the critical temperatures versus room temperature resistivity. The critical temperature dome is confirmed by the dashed line with squares corresponding to critical temperatures of samples deposited on different substrates (silicon) using a different e-beam deposition

tool. The agreement between the critical temperatures obtained on samples prepared in two different laboratories is remarkable.

In Figure 3 we show the optical response of superconducting granular aluminum films. Panels from #A to #H present the change of the superfluid density δn_s measured at ~ 100 mK as a function of the incident photon energy $h\nu$. Twice the superconducting gap value 2Δ is directly determined from the abrupt decrease of the superfluid density as the photon energy $h\nu$ reaches 2Δ (pair breaking). The 2Δ dash line corresponds to the midpoint of the threshold and the shaded area to the 10%-90% threshold values. Below 2Δ the superfluid response evolves from a feature-less response for samples #A and #B to response with strong sub-gap features for samples #E to #H. Samples #C and #D show an intermediate response. Both the energy position and the shape of the absorption peaks clearly emphasize the existence of two different types of features occurring at ω_p and at ω_G . The ω_p -feature occurs at an energy of the order of Δ and is rather an assembly of more-or-less distinguishable sharp features spread over few tens of GHz. The ω_p dash line indicates the mid-position of the features, and the distribution is underlined by the shaded area. The ω_p -features are visible in the optical response of sample #C to #H but a remarkable change in the response intensity occurs between samples #C, #D and samples #E to #H. The ω_G -feature is only clearly distinguishable in three samples: #E, #F and #G, and corresponds to one broad response which maximum is indicated by a dash-line. The excess of optical response just below 2Δ in samples #C and #D may be attributed to a ω_G -feature. The ω_G -energy evolves from $\sim 2\Delta$ down to almost Δ .

Figure 4 displays the evolution of the superconducting gap and gap over critical temperature ratio with resistivity. The bottom panel shows the variation of the superconducting gap determined by the optical response (in Kelvin). The error bars correspond to half the 10%-90% interval of the optical response threshold at 2Δ (grey shaped area of the #A to #H panels of figure 3). Note that the error bars are incomplete for sample #C due to an excess of optical absorption just below twice the superconducting gap. As suggested by the lines, a change of the gap value is observed in the vicinity of the dome maximum. The top panel of figure 4 shows that this change corresponds to a modification of the superconducting coupling parameter Δ/T_c which increases from ~ 1.78 to ~ 2.10 . The error bars include the error bars coming from T_c (interval from inflection point to zero resistance) and the error bars coming from Δ . The direct comparison of the optical response of sample #D, $T_c = 2.17$ K, situated on the left side of the T_c -dome to the one of sample #E, $T_c = 2.08$ K, situated on the right side of the T_c -dome, underline that although the absolute value of the ratio Δ/T_c depends on the 2Δ position criteria (mid point or onset point), there is a change in the shape of the gap threshold (see figure 3). Eventually,

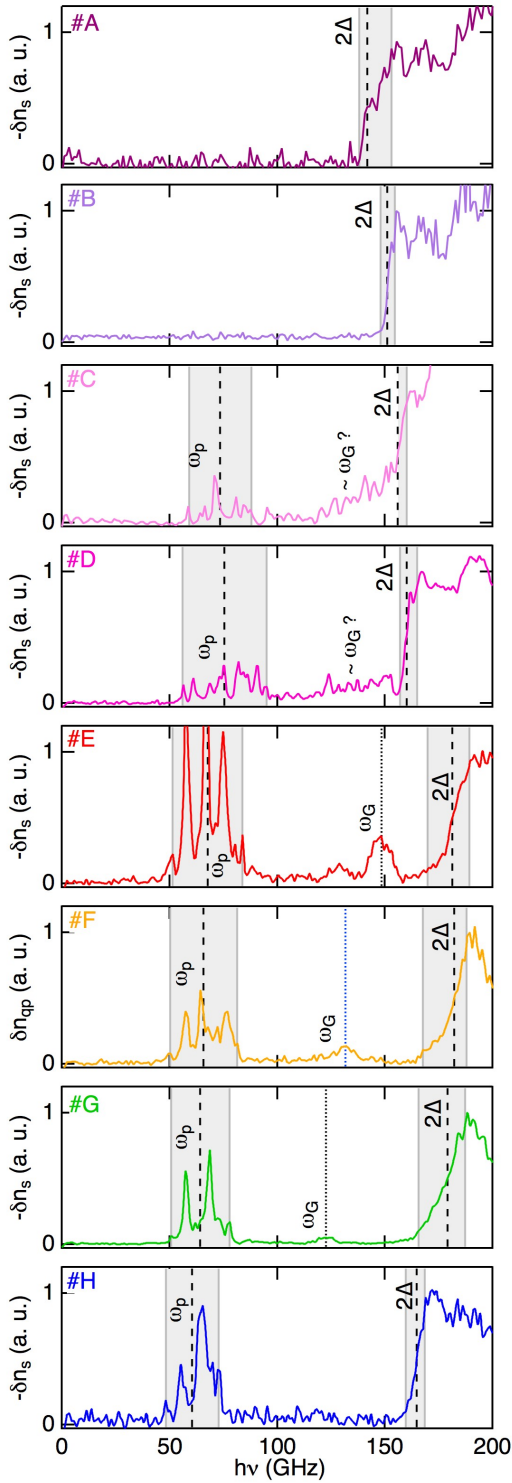


FIG. 3: **Optical spectroscopy responses of superconducting granular aluminum films.** For increasing resistivity from sample #A to #H, change of the superfluid density δn_s at ~ 100 mK as a function of the incident photon energy $h\nu$. Above 2Δ every incident photon is potentially pair breaking leading to a threshold in the superfluid density response. The dash line indicates the mid-height position, the shaded area corresponds to the 10%-90% height area. Below 2Δ two different types of sub-gap absorptions are observed: at $\omega_p \lesssim \Delta$ and at $\omega_G \lesssim 2\Delta$.

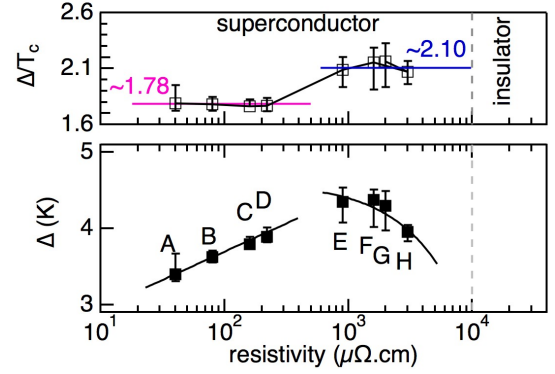


FIG. 4: **Evolution with resistivity of the superconducting gap and of the ratio gap over critical temperature.** *Bottom panel:* superconducting gaps Δ measured at ~ 100 mK as a function of room temperature resistivity. The error bars correspond to the 10%-90% threshold in the optical response at 2Δ . Continuous black lines are guide to the eyes. *Top panel:* coupling strength Δ/T_c as a function of room temperature resistivity. Error bars include the error bars coming from T_c (interval from inflection point to zero resistance) and the error bars coming from Δ (the 10%-90% interval of the optical response threshold at 2Δ). Lines are guides to the eyes.

the Δ/T_c ratio of sample #H, $T_c = 1.91$ K, is, including the error bars, above the ~ 1.78 value. The sharpening of the gap threshold in sample #H is striking (and observed for all the functional resonators, see supplementary material) and fully unexpected.

Figure 5 displays the phase diagram of granular aluminum, presenting the evolution of energies at play for increasing resistivity. Following reference [14], panel (a) displays the critical temperature, the superconducting gap, the phase stiffness, and the Coulomb repulsion energy. Panels (b) and (c) report, respectively, the evolution of the ω_G and the ω_p sub-gap absorptions energies. The phase stiffness of the superconducting condensate determines the phase coherence of the condensate and corresponds to the Josephson energy in the case of a network of Josephson junctions. At zero temperature, J can first be evaluated through $J_\Delta = \frac{\hbar}{4e^2} \frac{\pi\Delta}{R_{sq}}$ [7, 8, 12, 14] where R_{sq} is the thin film surface resistance per square (labelled J_Δ in Figure 5). J is also related to the kinetic inductance of the superconducting resonators L_s though $J_{L_s} = \frac{\hbar^2}{4e^2 L_s}$ [21]. By comparing their resonance frequencies, $f \sim (L_s C)^{-1/2}$, to frequencies obtained by radio-frequency electromagnetic simulations we determined L_s [22] and thus the phase stiffness labelled J_{L_s} in Figure 5. Those two J values agree with each other very well. The measured data show that superconductivity is suppressed at the superconducting-insulating transition, when the phase stiffness becomes smaller than the superconducting gap.

The Coulomb repulsion energy E_c (i.e the bare geomet-

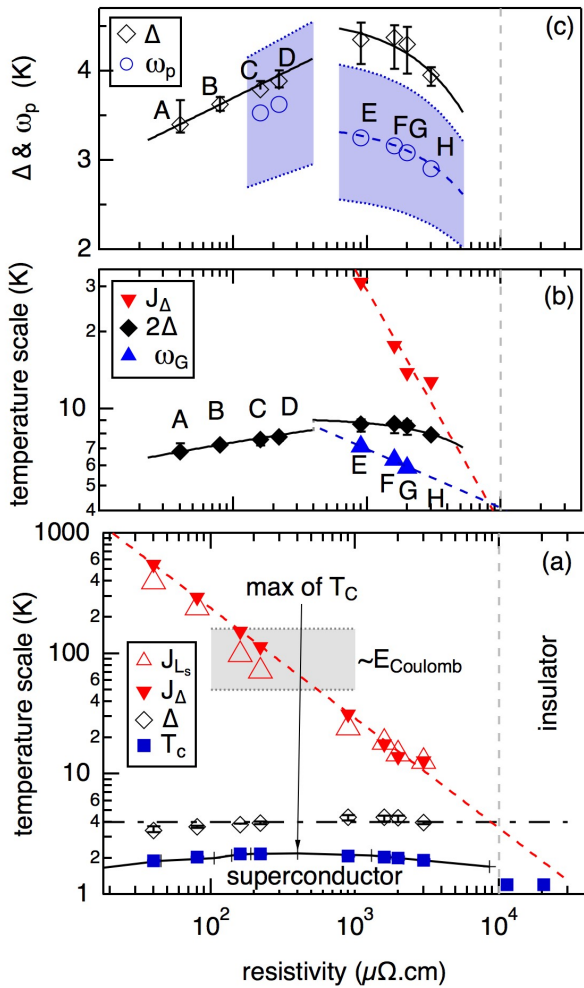


FIG. 5: **Phase diagram of granular aluminum: evolution of energies at play for increasing resistivity.** Panel (a): Critical temperature T_c , superconducting gap Δ , phase stiffness J_Δ and J_{L_s} , and Coulomb repulsion energy $E_{Coulomb}$. The continuous black line with crosses corresponds to critical temperature of samples deposited on a different substrate (silicon) using a different e-beam deposition tool. Dashed lines are linear guides to the eyes. Panel (b): evolution of J_Δ , 2Δ , and the sub-gap optical absorption ω_G . The ω_G -points correspond to the energy of the ω_G -features maxima. The ω_G -dashed line slope is four times smaller than the E_J -one. Panel (c): evolution of Δ and ω_p . The ω_p -points correspond to the mid-position of the ω_p -distribution. The energy distribution of ω_p is depicted by the shade area. The Δ -continuous lines are guide-to-the-eyes. The ω_p -dashed line is the Δ -continuous line divided by 1.35.

rical charging energy), that is the energy cost to transfer an electron from grain to grain, can be estimated by [12]: $E_c = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r d} \frac{s}{s+d/2}$ where ϵ_r is the relative dielectric constant of the insulator between the grains ($\epsilon_r \sim 8.5$ for aluminum oxide), s is the thickness of the insulating barrier ($s \sim 0.5$ nm for a one atomic layer interface) and

d is the grain size. Taking $d \sim 3-6$ nm for one to two merging grains [11], one obtains $E_c \sim 100 \pm 50$ K, which is close to the phase stiffness J at the dome maximum.

Panel (b) suggests that the ω_G -energy scales with the phase stiffness. The energy evolution of ω_G is four times smaller than the J -one in logarithmic scale, and crosses it at the superconductor-to-insulator transition. Panel (c) highlights the remarkable similar energy evolution of ω_p and Δ . The ω_p -dashed line is the Δ -continuous line divided by 1.35 (on the right side of the T_c -dome).

IV. DISCUSSION

A. Phase diagram

Granular aluminum films may be described as disordered arrays of Josephson junctions connecting the grains. The phase diagram of granular aluminum can be interpreted as resulting from an interplay between different typical energy scales: the phase stiffness or Josephson coupling energy J , the Coulomb repulsion or grains charging energy E_c and the superconducting gap Δ . In the metallic regime, for room temperature resistivity $\rho \lesssim 100 \mu\Omega\text{.cm}$, when superconductivity establishes, all electrons condensate and form one wave function with a unique phase. The phase is *rigid* with a phase stiffness J that is orders of magnitude higher than both the Coulomb repulsion energy E_c and the superconducting gap Δ . In the vicinity of the superconducting dome maximum, for $100 \lesssim \rho \lesssim 1000 \mu\Omega\text{.cm}$, the phase stiffness falls below the Coulomb repulsion energy. In principle, Coulomb blockade is then expected to localize the Cooper pairs within the grains, turning the system into an insulator [8, 23]. However, electron tunneling between the grains leads to a renormalization of the Coulomb energy down to a smaller effective Coulomb energy \tilde{E}_c , allowing superconductivity to survive for $\tilde{E}_c < J < E_c$, at the price of phase fluctuations [7, 8, 23]. The phase fluctuations tend to reduce the critical temperature, leaving the superconducting gap value mainly unaffected, hence leading to an increase of the Δ/T_c ratio (see figure 4). Finally, the insulating regime is reached for $\rho \gtrsim 10^4 \mu\Omega\text{.cm}$, when macroscopic superconductivity is suppressed as the phase stiffness becomes comparable to \tilde{E}_c . As seen in figure 5 this happens when $J \sim \Delta$. This fact can be qualitatively understood using the expression of the renormalized Coulomb repulsion energy of a single Josephson junction $\tilde{E}_c(g) = \frac{\Delta}{\alpha g + \Delta/E_c}$ ($\alpha = 3/8$ over the whole superconducting regime [24] or $\alpha \sim 2$ in the metallic regime and $\Delta/E_c \ll 1$ [23]) where g is the normalized conductance $g = \frac{h}{4e^2 R_{sq}}$ (inverse of the thin film surface resistance per square normalized by the quantum of resistance). In our case $\Delta/E_c \sim 4 \times 10^{-2}$ and in the limit $\Delta/E_c \ll 1$ the expression reduces to $\tilde{E}_c(g) = \frac{\Delta}{\alpha g}$. Writing $\tilde{E}_c \sim J$ at the superconductor to insulator transition, and using the definition of $J = g\Delta/2$, one gets a critical normalized

conductance $g_c \sim \sqrt{2/\alpha} \sim 1 - 2.3$, leading to $\Delta \sim J$ as observed. Calculations for a junction network [25] with our Δ/E_c ratio predict $g_c \sim 1.2$ hence $R_{sq} \sim 5.4$ k Ω . The sheet resistance of our first insulating sample is 5.7 k Ω . The quantitative agreement is remarkable although our samples are not strictly two dimensional and may not exactly obey our implicit assumption $R_{sq} = R_{singlejunction}$. In the insulating regime, superconductivity is expected to survive locally within the grains. The dip observed in the resistivity at 1.2 K in the insulating sample #I and #J might be a signature of this local superconductivity as theoretically predicted [8] (preliminary resistivity measurements - not presented here - show that the dip disappears for increasing magnetic field, supporting this interpretation).

The change of the temperature slope of the resistivity $d\rho/dT$ in the normal state may be due to weak localisation effects [26] or to the interplay between electron-phonon coupling and disorder leading to polaronic effects as recently suggested [27]. In the former case the change is predicted to occur for an elastic mean free path equal to the inelastic scattering length. In the latter case the change is predicted to occur for the resistivity reaching the Mott-Ioffe-Regel limit when the mean free path equals the lattice spacing.

B. Collective superconducting modes

The onset and evolution of the sub-gap absorptions seem to be related to the phase stiffness J and the Coulomb energy E_C balance. When $J > E_C$, for sample #A and #B, no sub-gap features are visible. When $J \sim E_C$, for sample #C and #D, faint sub-gap features are observed. When $J < E_C$, for sample #E to #H, strong sub-gap absorptions are present. These observations suggest that the sub-gap absorptions are most probably phase fluctuations of the superconducting order parameter. However, the difference in shape and energy evolution with resistivity of the ω_p and ω_G sub-gap absorptions, tend to indicate that, they are most likely of different nature. We suggest that the ω_p -absorptions are caused by oscillations of the superfluid only (the two-dimensional plasma mode) whereas the ω_G -absorptions are caused by oscillations of the superfluid and normal electrons (the Carlson-Goldman mode). Owing to our understanding, we did not observe any amplitude fluctuations of the superconducting order parameter. Both the two-dimensional plasma mode and the Carlson-Goldman mode are phase fluctuations of the superconducting order parameter.

In two dimensional superconducting films plasma oscillations have been predicted [28, 29] and observed [30]. The plasma oscillations are current oscillations of the superfluid occurring at discrete values of momenta $k_n = n \times 2\pi/L$ where n is an integer and L is the length of the thin film. The energy dispersion is almost linear at small momentum and saturates at large momentum to the two-

dimensional plasma frequency [30]. The discrete oscillation modes ω_n are also referred to as resonance modes. Those modes are optically visible as the finite momenta k_n mix the longitudinal and the transverse responses. Although, it is possible to optically observe the lowest oscillation modes [22], the optical absorption is strong only close to the two-dimensional plasma frequency as, close to this energy, the number of resonance modes diverges [31]. In the present experiment the employed optical source is a room temperature black body source with a very low luminescence below 50 GHz (see supplementary material). The lowest oscillation modes have been observed, in amorphous indium oxide, employing an antenna connected to a radio-frequency source [22].

The scaling of the two-dimensional plasma frequency with the superconducting gap can be seized by a Josephson junction chain model with the renormalized Coulomb energy. Indeed, within Josephson junction chain model the plasma frequency equals $\sqrt{8JE_C}$ [32, 33]. As pointed out above, in the superconducting state, the Coulomb energy E_c is strongly renormalized by the screening due to the superfluid, reducing the Coulomb energy to an effective energy \tilde{E}_c . Using the resistance dependence predicted for a single junction [24] $\tilde{E}_c(g) = \frac{\Delta}{\alpha g + \Delta/E_c}$ that approximates to $\tilde{E}_c \sim \frac{\Delta}{\alpha g}$ in the limit $\Delta/E_c \ll 1$ and the definition of $J = g\Delta/2$ one gets that $\sqrt{8JE_C} \sim \sqrt{4/\alpha}\Delta$. This crude calculation very well accounts for the scaling of the plasma frequency with the superconducting gap but further theoretical investigations are required to reach a quantitative agreement.

A puzzling observation about the ω_p absorptions is the multiple peaks structure. Within the above scenario this structure would be directly related to a discrete distribution of the superconducting gap values. We see no obvious reasons why the superconducting gap distribution should be discrete. This feature obviously deserves further investigations.

The Carlson-Goldman mode corresponds to an oscillation of the superfluid counterbalanced by an oscillation of normal electrons [34, 35]. So far, this mode has been observed only close to the critical temperature in agreement with theory as normal electrons are required [36]. Our measurements were performed at 100 mK where thermally activated quasi-particles are almost absent. However, a recent experiment demonstrates that non-equilibrium quasi-particles are present in granular aluminium [37]. Theory suggests that this excess of quasi-particles corresponds to normal electrons trapped in superconducting gap inhomogeneity [38]. Close to the critical temperature, in dirty superconductors, the energy dispersion of the Carlson-Goldman mode is linear at small momentum and saturates at large momentum to almost twice the superconducting gap (figure 6 of reference [34]). The damping is small for an energy almost equal to twice the superconducting gap and increases as the energy decreases. As discussed in [7] this mode could be turned into a sub-gap visible excitation thanks to the coupling

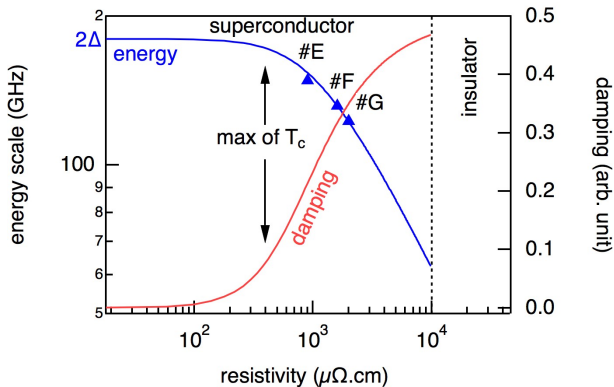


FIG. 6: **Phase diagram of the Carlson-Goldman mode.** Comparison of theory (solid lines) to the experimental ω_G -modes (triangles). In principle, theory applies only close to the critical temperature in dirty superconductors [34]. The input parameters are: the resistivity, the superconducting gap Δ , the density of states at the Fermi level $N(E_F)$, and the characteristic finite momenta set in by disorder ξ with $2\Delta = 180$ GHz (the saturating value), $N(E_F) = 3.9e46$ J.m $^{-1}$ and $\xi = 21$ nm.

of the linear dispersion between zero momentum and a characteristic finite momenta set in by disorder, mixing the longitudinal and the transverse responses. Although, our measurements are performed far from the critical temperature, the energy and damping evolutions of the observed ω_G -absorption with resistivity correspond to the Carlson-Goldman mode as illustrated by figure 6. The input parameters [34] are the resistivity, the superconducting gap, the density of states at the Fermi level, and the characteristic finite momenta set in by disorder. Taking a constant value $\Delta = 90$ GHz (in agreement with the measurements within 16%) and a constant density of states at the Fermi level equal to the one of pure aluminum (0.4 states/eV/cell [39]), this model well reproduces the resistivity dependence of ω_G for a characteristic finite momentum equal to 21 nm (see figure 6). Theory even predicts an energy close to twice the superconducting gap for resistivity equals to the one of samples #C or #D as probably observed (see figure 3). The characteristic finite momentum value corresponds to the effective Ginzburg-Landau superconducting coherence length $\xi_{eff} = 0.85\sqrt{\xi_0 l}$ for a coherence length of pure aluminum $\xi_0 = 1600$ nm and a mean free path l equal to the lattice cell parameter (4 \AA [11]). A mean free path l equal to the lattice cell parameter is in agreement with one of the above interpretation of the change of the temperature slope of the normal state resistivity occurring in the vicinity of the dome maximum [27]. The damping of a mode is inversely proportional to its energy width. Although quantitative estimation of the damping of the experimental ω_G mode is difficult, the damping evolution with resistivity seems adequate and may explain the absence of observed mode for sample #H (see figure 3).

Our well-resolved ω_G absorption peak is consistent with the excess of optical absorption observed previously below twice the superconducting gap in disordered superconductors (NbN and InO [6] and granular aluminum [7]). This excess was interpreted either as an amplitude mode (Higgs mode) [6] or as a phase mode (Goldstone mode) [7]. In this paper we propose a third interpretation that is a coupled oscillation of the phase and the electric field (Carlson-Goldman mode). Our proposition is motivated by the experimental observation that this sub-gap feature appears for $J \leq E_c$, suggesting a second phase mode coexisting with the pure two-dimensional phase mode observed at ω_p . Finally, the agreement up to a quantitative level of our observations with a Carlson-Goldman mode is remarkable. However, as pointed out above, the Carlson-Goldman theory requires the presence of quasi-particles usually only present close to the critical temperature whereas our observation were realized at low temperature, opening the way to further theoretical investigations.

V. CONCLUSION

In conclusion, we explored the superconducting critical temperature dome shape of granular aluminum by combined state-of-the art optical spectroscopy and resistivity measurements. In the vicinity of the dome maximum, we evidenced a superconducting coupling modification from $\Delta/T_c \sim 1.78$ to $\Delta/T_c \sim 2.10$. Within the same region, we observe the occurrence of sub-gap features in the optical response, the change from a positive to negative temperature slope of the resistivity, and we estimate that the phase stiffness falls below the Coulomb energy. We evidenced two types of sub-gap excitations below twice the superconducting gap 2Δ occurring at $\omega_p \simeq \Delta$ and at $\Delta \lesssim \omega_G \lesssim 2\Delta$. The ω_p -energy evolution with resistivity scales with the superconducting gap whereas the ω_G -one scales with the phase stiffness. We measured the superconductor-to-insulator transition of granular aluminum for sheet resistance on the order of 6 k Ω , when the phase stiffness J becomes comparable to the value of the superconducting gap Δ , as expected from the renormalization of the charging energy due to inter-grain tunneling [23]. We discussed the phase diagram of granular aluminum as resulting from an interplay between the phase stiffness, the Coulomb repulsion and the superconducting gap and interpret the sub-gap absorptions as phase fluctuations of the superconducting order parameter: ω_p as a two-dimensional plasma mode and ω_G as the Carlson-Goldman mode.

ACKNOWLEDGMENTS

We are in debts to Lara Benfatto, Régis Mélin and Benoît Douçot for discussions on the superconducting collective modes. We are very grateful to Pierre Lachkar

for his help during the resistivity measurements on the Physical Property Measurement System. We acknowledge the contributions of the Cryogenics and Electronics groups at Institut Néel and LPSC. This work is supported by the French National Research Agency through Grant No. ANR-16-CE30-0019 ELODIS2 and by the LabEx FOCUS through Grant No. ANR-11-LABX-0013. F.L-B acknowledges financial support from the CNRS through

a grant *Défi Instrumentation aux limites 2018*. LG, UvL, NM, FV, and IMP acknowledge funding from the Alexander von Humboldt foundation in the framework of a Sofja Kovalevskaja award endowed by the German Federal Ministry of Education and Research. A.G acknowledges the financial support from project ESP2015-65597-C4-1-R.

-
- [1] C.M. Varma, Journal of Low Temperature Physics, Vol. 126, 901 (2002).
- [2] Y. Nambu, Phys. Rev. Lett. 4, 380 (1960).
- [3] J. Goldstone, Nuovo Cimento 19, 154 (1961).
- [4] P.W. Anderson, Phys. Rev. 112, 1900 (1958).
- [5] P.W. Anderson, Phys. Rev. 130, 439 (1963).
- [6] D. Sherman et al, Nature Physics volume 11, pages 188192 (2015).
- [7] U.S. Pracht, T. Cea, N. Bachar, G. Deutscher, E. Farber, M. Dressel, M. Scheffler, C. Castellani, A.M. Garcia-Garcia and L. Benfatto, Phys. Rev. B 96, 094514 (2017).
- [8] K. B. Efetov, Sov. Phys. JETP 51(5), 1015 (1980).
- [9] B. Abeles, R. W. Cohen, and G. W. Cullen, Phys. Rev. Lett. 17, 632 (1966).
- [10] R. W. Cohen and B. Abeles, Phys. Rev. 168, 444 (1968).
- [11] G. Deutscher, H. Fenichel, M. Gershenson, E. Grnbaum and Z. Ovadyahu, Journal of Low Temperature Physics, 10, 231 (1973).
- [12] N. Bachar, Ph.D. thesis, Tel-Aviv University, Tel-Aviv, Israel, 2014.
- [13] N. Bachar, S. Lerer, A. Levy, S. Hacoheh-Gourgy, B. Almog, H. Saadaoui, Z. Salman, E. Morenzoni, and G. Deutscher, Phys. Rev. B 91, 041123(R) (2015).
- [14] U.S. Pracht, N. Bachar, L. Benfatto, G. Deutscher, E. Farber, M. Dressel, and M. Scheffler, Phys. Rev. B 93, 100503(R) (2016).
- [15] P. K. Day and al, Nature 425, 817 (2003).
- [16] M Calvo and al, Journal of Low Temperature Physics 184, Issue 3-4, 816 (2016).
- [17] P. Diener and al, Appl. Phys. Lett. 101, 252601 (2012).
- [18] N. Bachar, S. Lerer, S. Hacoheh-Gourgy, B. Almog, and G. Deutscher, Phys. Rev. B 87, 214512 (2013).
- [19] H. M. Jaeger, D. B. Haviland, B. G. Orr, and A. M. Goldman, Phys. Rev. B 40, 182 (1989).
- [20] Wenhao Wu and P. W. Adams, Phys. Rev. B 50, 13065(R) (1994).
- [21] H. Rotzinger et al, Supercond. Sci. Technol. 30 025002 (2017).
- [22] O. Dupré, A Benot, M Calvo, A Catalano, J Goupy, C Hoarau, T Klein, K Le Calvez, B Sacépé, A Monfardini and F Levy-Bertrand, Supercond. Sci. Technol. 30, 045007 (2017).
- [23] I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur and K. B. Efetov, Rev. Mod. Phys. 79, 469 (2007).
- [24] A. I. Larkin and Yu. N. Ovchinnikov, Phys. Rev. B 28, 6281 (1983).
- [25] Chakravarty S., S. Kivelson, G. T. Zimanyi, and B. I. Halperin, 1987, Phys. Rev. B 35, 7256.
- [26] B. L. Altshuler and A. G. Aronov, Electron-Electron Interaction in Disordered Conductors, edited by A. L. Efros and M. Pollak (Elsevier, Amsterdam, 1985).
- [27] D. Di Sante and al, Phys. Rev. Lett. 118, 036602 (2017).
- [28] T. Mishonov and A. Groshev, Phys. Rev. Lett. 64, 2199 (1990).
- [29] B. Mirhashem and R. Ferrell, Physica (Amsterdam) 161C, 354 (1989).
- [30] O. Buisson, P. Xavier, and J. Richard, Phys. Rev. Lett. 73, 3153 (1994). Erratum Phys. Rev. Lett. 74, 1493 (1995).
- [31] N. Maleeva and al, arXiv:1802.01859 (2018).
- [32] Matthew P. A. Fisher, PRB 36, 1917 (1987).
- [33] Nicolas Vogt, and al, Phys. Rev. B 92, 045435 (2015).
- [34] I. O. Kulik, O. Entin-Wohlman, and R. Orbach, Journal of Low Temperature Physics, vol 43, 591 (1981).
- [35] Y. Ohashi, and S. Takada, J. Phys. Soc. Jpn. 66, pp. 2437-2458 (1997)
- [36] R. V. Carlson and A. M. Goldman, Phys. Rev. Lett. 34, 11 (1975).
- [37] L. Grünhaupt and al, arXiv:1802.01858 (2018).
- [38] A. Bespalov and al, PRL 117, 117002 (2016).
- [39] G. Q. Huang, Phys. Rev. B 78, 214514 (2008).

Supplementary material of Electrodynamics of granular aluminum from superconductor to insulator: observation of collective superconducting modes

F. Levy-Bertrand,^{1,2,*} T. Klein,^{1,2} T. Grenet,^{1,2} O. Dupré,^{1,2} A. Benoît,^{1,2} A. Bideaud,^{1,2}
O. Bourrion,³ M. Calvo,^{1,2} A. Catalano,³ A. Gomez,⁴ J. Goupy,^{1,2} L. Grünhaupt,⁵
U. v. Luepke,⁵ N. Maleeva,⁵ F. Valenti,⁵ I. M. Pop,^{5,†} and A. Monfardini^{1,2,‡}

¹*Univ. Grenoble Alpes, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France*

²*CNRS, Inst NEEL, F-38000 Grenoble, France*

³*Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Université Grenoble Alpes, CNRS, 53 rue des Martyrs, 38026 Grenoble Cedex, France*

⁴*Centro de Astrobiología (INTA-CSIC), Torrejón de Ardoz, Spain.*

⁵*Physikalisches Institut, Karlsruhe Institute of Technology, 76131 Karlsruhe, Germany*

PACS numbers:

The optical spectroscopy technique we employed is inspired by a millimeter astrophysics observation technique [1, 2]. Instead of studying astrophysics faint sources with well-characterized detectors (usually made out of pure aluminum) we employed black body radiation sources to study the optical response of detectors made out the superconductor material to be studied. The detectors are a particular implementation of superconducting RLC-resonators. They are called Kinetic Inductance Detectors (KIDs) because of their working principle [1]. The variation of the resonance frequency $f = 1/(2\pi\sqrt{LC})$ is monitored. When incident photons break down Cooper pairs, the kinetic inductance L is modified and a shift in the resonance frequency is observed. In the present work the RLC-resonators were made out of granular aluminum.

Figure 1 presents the resonators design and a schematic view of the experimental set-up employed to perform the optical spectroscopy measurements. For each granular aluminum composition (from sample #A to #H) twenty-two resonators were nanolithographed on the granular aluminum thin film deposited on a sapphire substrate (i.e Al_2O_3). They are coupled to a $50\ \Omega$ aluminum transmission line in a coplanar waveguide configuration. Each resonator consists of an inductor and an interdigitated capacitor. The inductor is a Hilbert shape fractal and is identical for all the resonators[3, 4]. The Hilbert inductor is, as shown on the figure, a second order Hilbert shape fractal for samples #E to #H while a third order Hilbert shape fractal has been employed for samples #A to #D. The resonance frequency $f = 1/(2\pi\sqrt{LC})$ is varied from one resonator to another by varying the capacitor fingers length. The design of the lowest (f_1) and the highest frequency (f_{22}) resonators are detailed on panel (b). The resonance frequencies are of the order of few GHz (from 2 to 6 GHz). Panel (c) shows a schematic view of the experimental set-up. The resonators are cooled down to 100 mK using a dilution refrigerator. A special readout electronics allows to monitor simultaneously the

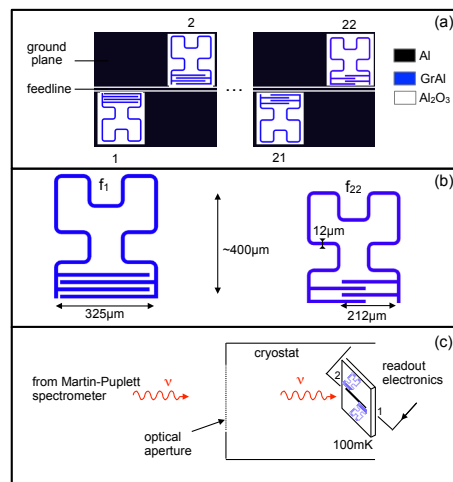


FIG. 1: Resonators design and experimental set-up. (a) Twenty-two resonators made out of granular aluminum, (GrAl in blue) are coupled to the common feed-line made out of pure aluminum (Al in black). The feed-line and ground-plane are in a coplanar waveguide configuration. The dielectric employed is sapphire (Al_2O_3 in white). (b) Detailed design of the f_1 and the f_{22} resonators. The Hilbert fractal inductor is identical for all the resonators. The four capacitor fingers length are varied from one resonator to another: from the shortest (f_{22}) to the longest (f_1). (c) Experimental set-up. Incident photons coming from a Martin-Puplett spectrometer at room temperature illuminates the resonators through the optical apertures of the dilution refrigerator. The variation of the resonance frequencies are monitored simultaneously for all the resonators by a special readout electronics.

twenty-two resonance frequencies variations [5, 6] while being illuminated by incident photons coming from a Martin-Puplett spectrometer at room temperature [7]. The Martin-Puplett spectrometer allows to explore the resonance frequencies variation as a function of the incident photon from 0 to 300 GHz with a resolution down to ~ 1 GHz.

In this paragraph we relate the measured variation of the resonance frequency to the real part of the optical conductivity. The resonance frequency f shift is directly proportional to the superfluid density changes n_s [8]:

$$\frac{\delta f}{f} = \frac{\alpha}{2} \frac{\delta n_s}{n_s} \quad (1)$$

where $\alpha = L_k/(L_k + L_g)$ is the kinetic inductance ratio (index k for kinetic and g for geometric). Within a two fluids model the complex conductivity $\sigma(\omega)$ of a superconductor expresses as:

$$\sigma^S(\omega) = \frac{n_{qp}e^2}{m} \frac{\tau}{1 - i\omega\tau} + i \frac{n_s e^2}{m\omega} \quad (2)$$

where the n_{qp} is the quasi-particles density, e is the elementary charge, m is the electron mass, τ the momentum relaxation time. The real part of the complex conductivity is:

$$\sigma_1^S(\omega) = \frac{n_{qp}e^2}{m} \frac{\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (3)$$

and $n_{qp} = \delta n_{qp} = -2\delta n_s$, thus:

$$\frac{\delta f}{f} = -\frac{\alpha}{2} \frac{\sigma_1^S(\omega)}{\sigma_1^N(\omega)} \quad (4)$$

where the exponent S is for superconductivity and the exponent N is for normal state. A more useful expression to relate the measured variation of the resonance frequency to the real part of the optical conductivity is:

$$\frac{\delta f(\omega)}{f} \propto \sigma_1^S(\omega)(1 + \omega^2\tau^2) \quad (5)$$

Then, one has to consider that this answer is convoluted by diffraction effects and by the luminance of the black body at 300 K. As illustrated by figure 2, the detection is limited below 50 GHz because of the low luminance of the 300 K black body source. The data are uncorrected from the black body photons' distribution.

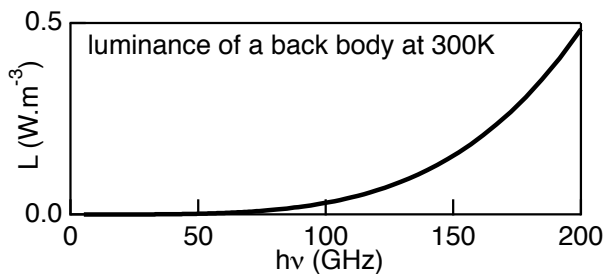


FIG. 2: **Luminance of a black body at 300 K.** The luminance of the 300 K black body source limits the detection below 50 GHz.

The table below lists the superconducting parameters of the different samples:

names	ρ ($\mu\Omega$.cm)	T_c (K)	Δ (K)	L_S (pH/sq)
#A	40	1.90	3.40	20
#B	80	2.04	3.62	33
#C	220	2.17	3.79	80
#D	900	2.17	3.89	110
#E	900	2.08	4.35	325
#F	1600	2.03	4.37	430
#G	2000	1.99	4.30	535
#H	3000	1.91	3.95	620

In Figure 3 we show, for each granular aluminum film from #A to #H, the average optical response and the optical response of each functional resonator. The 2Δ -threshold and the ω_G -absorption are, within the noise, identical for every functional resonator of a given film. The ω_p -features are quite different from resonator to resonator: they all are an assembly of sharp features spread over few ten of GHz but the precise energy distribution of the sharp features varies clearly for each resonator.

* Electronic address: florence.levy-bertrand@neel.cnrs.fr

† Electronic address: ioan.pop@kit.edu

‡ Electronic address: alessandro.monfardini@neel.cnrs.fr

- [1] P. K. Day and al, Nature **425**, 817 (2003).
- [2] M Calvo and al, Journal of Low Temperature Physics 184, Issue 3-4, 816 (2016).
- [3] J. Zhu and al, IEE Antennas and Wireless Propagation Letters, 2 (2003).
- [4] M. Roesch and al, arxiv: 1212.4585 (2012).
- [5] O. Bourrion et al, JINST 7 P07014 (2012).
- [6] O. Bourrion et al, JINST 6 P06012 (2011).
- [7] D. H. Martin and E. Pulett, Infrared Phys. 10,105109 (1970).
- [8] P. Diener and al, Appl. Phys. Lett. 101, 252601 (2012).

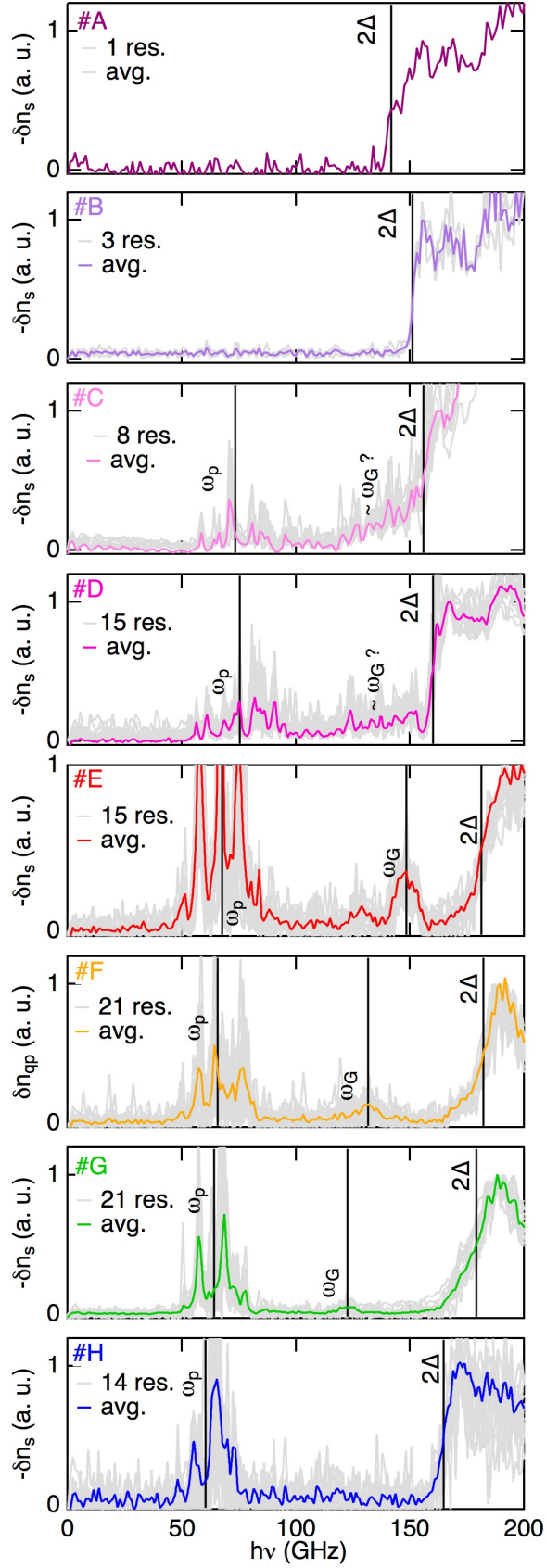


FIG. 3: **Optical spectroscopy responses of superconducting granular aluminum films.** For increasing granularity from sample #A to #H, change of the superfluid density δn_s at ~ 100 mK as a function of the incident photon energy $h\nu$. Above 2Δ every incident photon is potentially pair breaking leading to a threshold in the superfluid density response. The dash line indicates the mid-height position, the shade area corresponds to the 10%-90% height area. Below 2Δ two different types of sub-gap absorptions are observed: at $\omega_p \lesssim \Delta$ and at $\omega_G \lesssim 2\Delta$.

Bibliographie

- [1] J. E. Hirsch, *Physical Review B*, **69**, 214515 (2004)
- [2] P. K. Day et al, *Nature*, **425**, 817 (2003)
- [3] thèse de P. J. de Visser, *Quasiparticle Dynamics in Aluminium microwave resonators* (2014)
- [4] P. Diener et al, *A. P. L*, **101**, 252601 (2012)
- [5] M. Tinkham, *Introduction à la supraconductivité*, (1975)
- [6] thèse de M. Leroux, *Supraconductivité, Onde de Densité de Charge et Phonons Mous dans les dichalcogénures 2H-NbSe₂ et 2H-NbS₂, et le composé intermétallique Lu₅Ir₄Si₁₀* (2014)
- [7] J. C. Rautio, *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, Vol. MTT-35, No. 8 (1987)
- [8] thèse de F. Martin, *Développement de la réfrigération à dilution ³He / ⁴He en cycle fermé pour les futures missions scientifiques en satellite* (2009)
- [9] N. Maleeva et al, *arXiv :1802.01859* (2018)
- [10] thèse de T. Durand, *Réalisation d'un interféromètre de Martin-Puplett pour le développement d'une caméra bolométrique* (2007)
- [11] O. Dupré et al, *Supercond. Sci. Technol.*, **30**, 045007 (2017)
- [12] H. L. Zhan et al, *Science China Technological Sciences*, Vol. 58, Issue 12, pp 2104-2109 (2015)
- [13] N. Laman et al, *Optics Express*, Vol. 16, Issue 6, pp 4094-4105 (2008)

- [14] A. I. Gubin et al, *Physical Review B*, **72**, 064503 (2005)
- [15] D. B. Haviland et al, *Physical Review Letters*, **62**, 18 (1989)
- [16] R. D. Parks et al, *Physical Review Letters*, **21**, 18 (1968)
- [17] M. Strongin et al, *Physical Review B*, **1**, 1078 (1970)
- [18] G. W. Webb et al, *Physica C. Superconductivity*, **514** (2015)
- [19] D. Gall, *Journal of Applied Physics*, **119**, 085101 (2016)
- [20] M. D. Croitoru et al, *Sci. Rep.*, **5**, 16515 (2015)
- [21] M. Strongin et al, *Phys. Rev. Lett.*, **21**, 1320 (1968)
- [22] J. M. Dickey et al, *Phys. Rev. Lett.*, **21**, 1441 (1968)
- [23] C. R. Leavens et al, *Phys. Rev. B*, **24**, 5086 (1981)
- [24] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin, *Physique des solides* (1976)
- [25] thèse de N. Bachar, *Spin-flip Scattering in Superconducting Granular Aluminum films* (2014)
- [26] R. Parmenter et al, *Phys. Rev.*, **166**, 392 (1968)
- [27] M. Strongin et al, *Phys. Rev. Lett.*, **14**, 23 (1965)
- [28] A. Grockowiak et al, *Physical Review B*, **88**, 064508 (2013)
- [29] thèse de B. Sacépé, *Spectroscopie tunnel dans des films minces proches de la transition supraconducteur-isolant* (2007)
- [30] P. N. Chubov et al, *Soviet Physics JETP*, **28**, 3 (1969)
- [31] Y. Ivry et al, *Physical Review B*, **90**, 214515 (2014)
- [32] R. Cohen et al, *Phys. Rev.*, **109**, 444 (1968)
- [33] C. Kittel, *Introduction à la physique de l'état solide*, (1971)

- [34] N. A. Court et al, *Supercond. Sci. Technol.*, **21**, 015013 (2008)
- [35] G. Brammertz et al, *Physica C*, **350**, pp 227-236 (2001)
- [36] J. P. Carbotte, *Reviews of Modern Physics*, Vol. 62, No. 4 (1990)
- [37] R. Prozorov et al, *Supercond. Sci. Technol.*, **19**, R41 (2006)
- [38] B. Sacépé et al, *Phys. Rev. B*, **91**, 220508(R) (2015) + Supplementary Material
- [39] B. Sacépé, *Nature Physics*, **7**, 239-244 (2011)
- [40] T. Dubouchet et al, *arXiv :1806.00323* (2018)
- [41] O. Buisson et al, *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 3153 (1994). Erratum *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 1493 (1995)
- [42] T. Mishonov et al, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2199 (1990)
- [43] B. Mirhashem et al, *Physica (Amsterdam)*, **161C**, 354 (1989)
- [44] P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys* New York : Perseus Book pp 182-4 (1999)
- [45] L. J. Swenson et al, *J. Appl. Phys.*, **113**, 104501 (2013)
- [46] K. B. Efetov et al, *Sov. Phys. JETP*, **51**(5), 1015 (1980)
- [47] G. Deutscher et al, *Journal of low Temperature Physics*, **10**, 231 (1973)
- [48] B. Abeles et al, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 632 (1966)
- [49] R. W. Cohen et al, *Phys. Rev.*, **168**, 444 (1968)
- [50] N. Bachar et al, *Phys. Rev. B*, **91**, 041123(R) (2015)
- [51] U. S. Pracht et al, *Phys. Rev. B*, **93**, 100503(R) (2016)
- [52] I. O. Kulik et al, *Journal of Low Temperature Physics*, Vol 43, 591 (1981)
- [53] Y. Ohashi et al, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **66**, pp. 2437-2458 (1997)

[54] R. V. Carlson et A. M. Goldman, *Phys. Rev. Lett.*, **34**, 11 (1975)